

Contrôle et métrologie de la génération d'harmoniques sur miroir plasma

S. Monchocé

► To cite this version:

S. Monchocé. Contrôle et métrologie de la génération d'harmoniques sur miroir plasma. Physique [physics]. Université Paris Sud XI, 2014. Français. NNT: . tel-01093180

HAL Id: tel-01093180 https://theses.hal.science/tel-01093180

Submitted on 16 Jan 2015 $\,$

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.







Commissariat à l'Énergie Atomique

École Doctorale Ondes et Matière

Contrôle et métrologie de la génération d'harmoniques sur miroir plasma

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 21 novembre 2014

pour l' obtention du grade de

Docteur de l'Université Paris Sud XI

par

Sylvain Monchocé

Composition du jury

Président	Annie Klisnick, ISMO
Rapporteurs	Philippe Balcou, CELIA
	Jérôme Faure, LOA
Examinateurs	Patrick Audebert, LULI
	Marc Sentis, Université Aix-Marseille
Directeur de thèse	Fabien Quéré, CEA

Laboratoire Interactions Dynamique et Lasers - CEA Saclay

Remerciements

Je souhaite remercier les diverses personnes qui ont contribué de près ou de loin à ce travail de thèse :

Didier Normand et Philippe Martin pour m'avoir permis de travailler au sein du Laboratoire Interactions Dynamique Lasers.

Fabien Quéré, mon directeur de thèse, pour m'avoir accueilli dans le groupe Physique à haute intensité. Grâce à ses incroyables idées et ses vastes connaissances, ce fut un plaisir de travailler avec lui et je lui suis infiniment reconnaissant pour tout ce qu'il m'a apporté, tant sur le plan humain que scientifique.

Annie Klisnick, Philippe Balcou, Jérôme Faure, Patrick Audebert et Marc Sentis pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail en acceptant de faire partie du jury de thèse.

Subhendu Kahaly pour nos échanges après les expériences, son extème rigueur et sa grande rapidité expérimentales.

Adrien Leblanc pour les chansons, les discussions sur la moustache et la ptychographie. "Non, toi non plus tu n'as pas changé... toujours le même petit sourire..."

L'ensemble des membres du groupe PHI (présents ou anciens) : Tiberio Ceccotti, notamment pour la fureur du dragon, Sandrine Dobosz, Pascal Monot, Michel Bougeard, Vincent Floquet, Henri Vincenti, Valentin Gallet, Gustave Pariente, Ismael Vadillo-Torres pour l'excellente ambiance qu'ils font régner dans ce groupe.

L'excellent groupe laser formé par Fabrice Réau, Olivier Tcherbakoff, David Garzella et Pascal d'Oliveira, pour avoir fait en sorte de fournir continuellement un faisceau laser irréprochable.

Antonin Borot, Johnatan Wheeler, Aurélien Ricci, Arnaud Malvache, Aurélie Jullien et Rodrigo-Lopez Martens du groupe PCO au LOA.

Jeroen van Tilborg, Brian Shaw, Thomas Sokollik, Wim Leemans, avec qui nous avons pu mener des expériences passionantes au Berkeley Lab.

Jacqueline Bandura et Véronique Gereczy pour leur sourire et leur aide précieuse (indispensable) dans les démarches administratives, même dans l'urgence.

Table des matières

In	Introduction					
Pι	ıblica	ations et actes de conférences	17			
I pr	Gé opr	énération d'harmoniques sur cible solide : mécanismes et iétés	9			
1	Prél	ludes à la génération d'harmoniques sur cible solide	21			
	1.1	Notion de plasma	21			
	1.2	Gradient de densité	22			
	1.3	Réponse d'un plasma à une onde électromagnétique	23			
	1.4	Effet Brunel	23			
2	Emi	ission cohérente de sillage	27			
	2.1	Mécanisme d'émission CWE	27			
	2.2	Caractéristiques de l'émission CWE	28			
	2.3	Dérive de fréquence femtoseconde et phase spectrale	29			
	2.4	Modélisation des harmoniques CWE	33			
		2.4.1 Obtention des temps d'émission	33			
		2.4.2 Aspect temporel	34			
		2.4.3 Aspect spatial	36			
	2.5	Evolution des propriétés des harmoniques CWE	37			
		2.5.1 Avec la longueur de gradient	37			
		2.5.2 Avec l'angle d'incidence	38			
3	Har	moniques Doppler	41			
	3.1	Effet Doppler	41			
	3.2	Modèle du miroir oscillant	43			
	3.3	Modélisation des propriétés spatiales des harmoniques ROM	46			
		3.3.1 Idée générale	46			
		3.3.2 Modèle d'enfoncement	48			
		3.3.3 Modélisation des propriétés spatiales des harmoniques Doppler	52			

	3.4	3.3.4 Validation du modèle	54 54 58
II	\mathbf{N}	loyens expérimentaux et numériques	59
4	Inst	allation UHI100	61
	4.1	Le laser UHI100	62
	4.2	Amélioration du contraste temporel	62
	4.3	Correction du front d'onde	63
		4.3.1 Mode de correction standard	63
		4.3.2 Mode de correction avancé	64
	4.4	Mesures des couplages spatio-temporels	67
		4.4.1 Une détérioration des propriétés de l'impulsion laser	67
		4.4.2 Mesure du chirp spatial	68
		4.4.3 Un défaut spatio-spectral	70
	4.5	Dispositifs de mesures des harmoniques	72
		4.5.1 Diagnostic spatio-spectral	73
		4.5.2 Diagnostic spatial	73
		4.5.3 Dispositif de contrôle de la longueur de gradient	75
5	Cod	les particulaires	79
0	5.1	Princicipe d'un code particulaire	79
	5.2	CALDER	80
	0.2	5.2.1 Harmoniques dans le plan source	82
		5.2.2 Train d'impulsions attosecondes dans le plan source	82
		5.2.3 Propriétés spatiales des harmoniques en champ lointain	84
	5.3	EUTERPE	85
II	I	Contrôle des propriétés de la source harmonique	87
6	Con	trôle et mesure du gradient	89
	6.1	L'interférométrie dans le domaine de Fourier	89
		6.1.1 Idée générale et dispositif expérimental	89
		6.1.2 Mesure de la longueur de gradient	91
	6.2	Synchronisation pompe-sonde	93
	6.3	Résultats des mesures FDI	94

7 Régime de bas éclairement (CWE) 7.1 Dispositif expérimental

7.1	Dispositif expérimental																97
7.2	Effet de la longueur de gradient		•	•	•	•	 •	•	•	•	•		•	•	•	•	98

		7.2.1	Optimisation de l'efficacité de génération	98
		7.2.2	Divergence et largeur spectrale	100
	7.3	Effet d	le l'éclairement	103
		7.3.1	Observation expérimentale	103
		7.3.2	Interprétation	104
	7.4	Contrô	ble de la divergence via la phase du laser	106
		7.4.1	Conclusion	107
8	Tra	nsition	CWE vors BOM	100
0	11a 8 1	Ranne		109
	8.2	Observ	ration evpérimentale	105
	8.3	Intern	rétation	110
	8.4	Conclu		113
	0.1	0 onore		110
9	Rég	ime de	e haut éclairement : l'émission ROM	115
	9.1	Optim	isation de l'efficacité de génération	116
		9.1.1	Observation expérimentale	116
	0.0	9.1.2	Interprétation	116
	9.2	Propri	etés spatiales des harmoniques Doppler	119
		9.2.1	Observation experimentale.	119
		9.2.2		120
	0.2	9.2.3 Contra	Methode	121
	9.3	Contro	Meaning at annualized as narmoniques	122
		9.3.1	Analogia avec las CWE	122
		9.3.2 0.2.2	Limiter de la méthode	125
	0.4	9.3.3 Propri	timites de la methode	120
	9.4	0/1	Prédiction du modèle	120
		9.4.1 9/1/2	Résultate expérimentaux	120
		943	Comparaison au modèle	130
		9.4.4	Conclusion	130
		0.1.1		100
тт	7 T) (100
1 /		teseat	ux plasmas transitoires	133
10	Cré	ation e	et utilisation de réseaux plasmas transitoires	135
	10.1	Princip	pe	135
	10.2	Dispos	itif expérimental	137
	10.3	Observ	vation expérimentale de la génération d'harmoniques sur réseau plas	sma139
		10.3.1	Etude des harmoniques CWE	139
		10.3.2	Etude des harmoniques relativistes	140
		10.3.3	Premier bilan	140

10.4 Propriétés des harmoniques dans le plan source $\hfill \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots 141$

TABLE DES MATIÈRES

		10.4.1 10.4.2	Principe	. 142 . 143
11	La r	otvcho	graphie en régime de streaking	149
	11.1	Princi	уб 2 1	149
	11.1	11.1.1	Cas général	. 149
		11.1.2	Cas particulier	. 150
		11.1.3	Mise en pratique	. 152
	11.2	Résult	ats	. 153
		11.2.1	Observation expérimentale	. 153
		11.2.2	Interprétation	. 153
	11.3	Conclu	ision	. 156
\mathbf{V}	\mathbf{L}^{i}	'effet	phare attoseconde	159
12	La g	générat	tion d'impulsions attosecondes uniques	163
	12.1	Intensi	ty gating \ldots	. 163
	12.2	Polariz	vation gating	. 165
13	L'ef	fet pha	are attoseconde	167
	13.1	Princip	pe de l'effet	. 167
	13.2	Du tilt	du front d'intensité à la rotation de front d'onde	. 168
	13.3	Critère	e de séparation des impulsions attosecondes	. 171
14	Obs	ervatio	on expérimentale	173
	14.1	Dispos	itif expérimental	. 173
	14.2	Résult	ats expérimentaux	. 173
		14.2.1	Génération d'impulsions attosecondes uniques	. 173
		14.2.2	Variation de la CEP	. 175
15	Mes	sures to	emporelles par photonic streaking	179
	15.1	Princip	pe général du photonic streaking	. 179
	15.2	Détern	nination des instants d'émission	. 181
		15.2.1	Origine de l'écart entre fronts d'onde du laser et des impulsions	
			attosecondes	. 181
		15.2.2	Cas général	. 181
		15.2.3	Cas des harmoniques CWE	. 183
	15.3	Simula	tion numérique	. 185
		15.3.1	Modèle numérique	. 185
		15.3.2	Détermination des instants d'émission	. 186
	15.4	Photon	nic streaking dans le cas où les impulsions ne sont pas entièrement	
		séparé	es	. 187

TABLE DES MATIÈRES	9
15.5 Perspectives	
Conclusion	191
Bibliographie	197
Articles	208

Introduction

Le monde qui nous entoure est, en grande partie, constitué de phénomènes physiques dynamiques, c'est-à-dire qui évoluent dans le temps. Pour caractériser et comprendre ces phénomènes, il est important de résoudre temporellement leur évolution.

Résoudre une dynamique temporelle nécessite de pouvoir réaliser un arrêt sur image à différents moments de l'évolution du système. Ceci est bien connu du grand public notamment grâce à la photographie accélérée (ou time-lapse), où en capturant une image à intervalle régulier d'un phénomène, on peut en reconstituer son évolution. Le principe de base de ce procédé n'est pas nouveau, E. Muybridge l'avait déjà utilisé en 1878 pour démontrer au monde que les jambes d'un cheval au galop quittent le sol à un moment donné durant sa course. En photographiant un cheval à des instants différents pendant sa course, il a pu décomposer étape par étape son mouvement . Il a ainsi obtenu les clichés présentés sur la figure 1. Sur les clichés 2 et 3, le cheval décolle du sol. En résolvant ainsi temporellement le mouvement du cheval, il a pu répondre à une question très controversée à l'époque.

Depuis, les phénomènes que l'on cherche à résoudre deviennent de plus en plus brefs, il est pour cela important de développer de nouvelles techniques pour pouvoir mesurer effectivement les dynamiques liées à ces phénomènes. Au cours des 30 dernières années, nombre d'expériences permettant la résolution temporelle de phénomènes physiques ultrabrefs ont été réalisées [1, 2], notamment grâce à l'invention des lasers. Le développement de la technologie laser a en effet permis d'obtenir des sources lumineuses ayant des durées plus courtes que n'importe quel autre signal. Au début des années 70, les impulsions lasers les plus courtes avaient une durée de l'ordre de la picoseconde et depuis les années 80, il est possible de générer des impulsions lumineuses encore plus brèves ayant des durées dans la gamme femtoseconde $(1fs = 10^{-15}s)$. Ces impulsions jouent un rôle majeur dans la résolution temporelle des phénomènes physiques ultra-rapides dans la matière. Elles sont généralement utilisées dans le cadre d'expériences dites pompe-sonde [3], où une première impulsion (la pompe) vient exciter un milieu, et une deuxième (la sonde) vient sonder l'état du milieu un certain temps après son excitation. Ces expériences permettent tout comme celle réalisée par E. Muybrigde, de prendre des "clichés" de la dynamique du milieu à différents instants au cours de son évolution. Elles ont ainsi ouvert la voie à la femtochimie qui s'intéresse aux dynamiques des réactions chimiques se déroulant sur des échelles de temps allant de la femtoseconde à la picoseconde. Elles permettent par exemple d'étudier la réorganisation des atomes au sein des molécules, la formation ou la rupture

Introduction



FIGURE 1: Cheval au galop "résolu temporellement". En 1872, le physiologiste E-J. Marey afffrime que durant la course d'un cheval au galop, les jambes de ce dernier se soulèvent complètement du sol. Pour valider cette hypothèse, E. Muybridge a l'idée de réaliser une séquence de photographies d'un cheval au galop. Les clichés obtenus permettent de valider la théorie de E-J. Marey, sur les clichés 2 et 3, le cheval décolle du sol.

des liaisons chimiques [2], qui sont des phénomènes se déroulant à l'échelle femtoseconde. En 1999, le prix nobel de chimie a été décerné à A.H. Zewail pour les travaux précurseurs qu'il a réalisés dans ce domaine [1, 2, 4].

Pour résoudre des phénomènes physiques se déroulant sur des échelles de temps encore plus courtes que la femtoseconde, comme par exemple la dynamique des électrons dans la matière qui opère sur des durées de l'ordre de la centaine d'attosecondes $(1as = 10^{-18}s)$, les lasers femtosecondes ne suffisent plus. Il est donc important de dévolopper d'autres sources lumineuses. Depuis une vingtaine d'année nombreux travaux de recherche ont été menés dans ce domaine, donnant lieu au développement de la science attoseconde [5]. Le problème lié au développement d'un "laser attoseconde" réside dans le fait que pour produire des impulsions ultra-brèves, il est nécessaire de disposer d'une source lumineuse ayant un spectre très large. Dans la limite de Fourier, où $\Delta \tau = 4 \ln 2 / \Delta \omega$, une impulsion de durée $\tau = 100as$, impose une largeur spectrale de $\Delta \omega = 18eV$ (électrons-volts). Les périodes optiques dans la gamme visible du spectre électromagnétique ($\hbar\omega \in [1.5eV, 3eV]$) étant de l'ordre de la femtoseconde, cela signifie que le spectre d'une impulsion attoseconde s'étend obligatoirement à l'extrême ultra-violet ou au-delà. Il est délicat de développer des milieux permettant une amplification laser efficace dans cette gamme spectrale. Cela explique, en partie, pourquoi à ce jour il n'existe pas de laser attoseconde à proprement parler.

Le développement d'une source attoseconde repose donc aujourd'hui sur un tout autre moyen : la génération d'harmoniques d'ordre élevé [6, 7, 8, 9]. Celle-ci a lieu lorsqu'un



FIGURE 2: Principe de la génération d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques. Lorsqu'une impulsion laser de fréquence centrale ω_L est focalisée dans un milieu à des intensités $I \geq 10^{14} W.cm^{-2}$, la réponse de ce milieu est fortement non linéaire et le champ après interaction est fortement distordu. Dans le domaine spectral, cette distortion correspond à l'apparition de nouvelles fréquences dans le spectre du champ après interaction. Comme la distortion est généralement périodique, ces nouvelles fréquences correspondent aux harmoniques de la fréquence incidente, on parle alors de génération d'harmoniques d'ordre élevé. Lorsqu'on filtre une bande spectrale du spectre du champ après interaction (filtre représenté), on obtient le champ filtré (en vert) qui correspond à des impulsions attosecondes.

faisceau laser femtoseconde est focalisé dans un système (figure 2) à des intensités suffisamment élevées $(I \ge 10^{14} W.cm^{-2})$. A ces intensités, la réponse du système est fortement non-linéaire et induit une distorsion temporelle du champ laser incident (figure 2). Cette réponse étant généralement périodique, la distorsion correspond, dans le domaine spectral, à la génération d'harmoniques de la fréquence laser incidente (spectre en bas à droite sur la figure 2). Les ordres harmoniques générés peuvent aller jusqu'à plusieurs centaines [10]. En sélectionnant une bande spectrale de ce spectre d'harmoniques (filtre vert), on peut, sous réverve que la distorsion soit suffisamment bien localisée dans le temps, obtenir des impulsions dans la gamme attoseconde (champ filtré). Comme la génération d'harmoniques est un phénomène périodique, les impulsions attosecondes sont générées sous la forme d'un train d'impulsions.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé est en phénomène qui a été mis en évidence pour la première fois sur cible solide par Carman *et al* en 1981 [11, 12], mais la possibilité d'utiliser cette génération d'harmoniques pour descendre en dessous de la barrière de la femtoseconde et générer des impulsions attosecondes n'a été proposée qu'en 1992 par Farkas *et al* [13], pour la génération d'harmoniques dans les gaz. Depuis, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est étudiée majoritairement dans le cas de l'interaction d'un

14Introduction Ravonnement XUV/ Impulsion attoseconde 12 Potentiel électron atomique 1. Ionisation 2. Accélération sous 3. Recombinaison sur par effet tunnel l'effet du champ laser l'état fondamental

FIGURE 3: Modèle en trois étapes de la génération d'harmoniques dans les gaz.

laser femtoseconde avec une cible gazeuse à des intensités de l'ordre de $10^{14} - 10^{15} W.cm^{-2}$. Dans ce cas, le processus de génération des harmoniques peut être décrit par le modèle en trois étapes développé par Corkum [14]. Ce modèle est schématisé sur la figure 3. Lors de l'interaction du champ laser intense avec les atomes du gaz, il se produit une ionisation partielle de ces atomes par effet tunnel. Les électrons provenant de cette ionisation sont ensuite accélérés par le champ laser avant de se recombiner avec leur ion parent. C'est durant cette recombinaison que se produit l'émission d'impulsions attosecondes. Cette génération d'harmoniques permet aujourd'hui de produire des ordres harmoniques de plusieurs centaines [10]. Les impulsions attosecondes de lumière correspondant à ces harmoniques ont pu être caractérisées temporellement [8, 9, 15], grâce à des techniques de mesures, telles que l'attosecond streak camera [16] ou FROG CRAB [17], développées durant les dix dernières années. Ces impulsions ont ainsi pu être utilisées dans de nombreuses expériences permettant par exemple de résoudre temporellement l'effet Auger [18] ou l'ionisation tunnel d'atomes dans un champ laser intense [19]. L'étude de la génération d'impulsions attosecondes ont permis également de réaliser des progrès considérables dans la compréhension de l'interaction laser-atomes/molécules à haute intensité. La génération de ces impulsions attosecondes est donc un phénomène bien compris et contrôlé [20].

Parallèlement à cette approche, une autre méthode de génération a été développée : en focalisant une impulsion laser, non plus sur une cible gazeuse mais sur une cible solide, à des intensités $I > 10^{16} W.cm^{-2}$, il est également possible de produire des harmoniques d'ordre élevé [21]. Certains résultats reportés à ce jour ont permis, grâce à cette méthode, de générer des harmoniques jusque dans la fenêtre de l'eau [22], suscitant ainsi un vif intérêt pour le développement d'une telle source. Les processus mis en jeu sont alors entièrement différents de celui de la génération d'harmoniques sur cible gazeuse. Lors de l'interaction de l'impulsion laser avec la cible solide, cette dernière est ionisée, il se forme alors un plasma très dense à la surface qui réfléchit le champ laser incident : on parle alors de miroir plasma. Du fait de l'interaction fortement non-linéaire entre le laser et le plasma, le champ réfléchi est composé d'harmoniques d'ordre élevé. Les objectifs principaux de l'étude de ce rayonnement lumineux sont similaires à ceux de l'étude des harmoniques générées dans les gaz : d'une part, la compréhension l'interaction laser-plasma à ultrahaute intensité, et d'autre part le développement de sources XUV attoseconde.

Les mécanismes de génération ont été identifiés au cours de la dernière décennie, si bien que lorsque j'ai débuté ma thèse ils étaient relativement bien compris [21, 23, 24, 25, 26, 27]. A des éclairements de l'ordre de $10^{16}W.cm^{-2}$, des oscillations plasmas électroniques à l'intérieur du plasma sont excitées par un pic d'électrons énergétiques qui traverse le plasma. Ces oscillations émettent ensuite une impulsion attoseconde à chaque cycle optique, on parle d'émission cohérente de sillage (Coherent Wake Emission : CWE). Lorsque l'intensité laser dépasse $10^{18}W.cm^{-2}$, les électrons à la surface du plasma oscillent à des vitesses relativistes, induisant une distorsion du champ laser réfléchi par effet Doppler. On parle alors d'émission par le mécanisme du miroir oscillant relativiste (Relativistic Oscillating Mirror : ROM).

Cependant, peu d'études quantitatives, expérimentales, permettant de comprendre et de contrôler les propriétés des harmoniques, telles que l'efficacité de génération et la divergence des harmoniques, avaient été menées. De telles études sont cruciales en vue du développement d'une source attoseconde/XUV, basée sur la génération d'harmoniques sur cible solide, stable et utilisable pour des expériences d'applications.

Durant ma thèse, essentiellement expérimentale, au sein du groupe Physique à Haute Intensité du CEA Saclay, nous nous sommes intéressés à la caratérisation spatiale du faisceau harmonique, ainsi qu'à l'optimisation des propriétés de la source harmonique. En développant de nouvelles méthodes de mesure nous avons pu déterminer, pour la première fois, les propriétés spatiales des harmoniques et nous sommes maintenant capables de les controler finement. Les travaux que nous avons menés nous ont également permis d'obtenir des informations sur la dynamique électronique et ionique du plasma.

Dans la première partie de ce manuscrit, après avoir introduit les notions essentielles de l'interaction laser-plasma, nous présenterons les mécanismes de la génération d'harmoniques sur miroir plasma : CWE et ROM. Nous illustrerons les principes de cette génération d'harmoniques en présentant dès cette première partie une sélection des résultats expérimentaux et numériques que nous avons obtenus.

La seconde partie permettra de présenter la chaîne laser UHI 100 sur laquelle nous avons réalisé nos différentes campagnes expérimentales. Nous décrirons ensuite les diagnostics, montages expérimentaux, et moyens numériques que nous utilisons pour étudier la génération d'harmoniques.

Expérimentalement, nous nous sommes intéressés dans un premier temps, à l'optimisation du signal harmonique, puis à la caratérisation spatiale en champ lointain du faisceau harmonique (divergence des harmoniques). Ces résultats sont présentés dans la troisième partie de ce manuscrit. Si la caractérisation et le contrôle de ces propriétés sont des points importants pour le développement de la source, nous verrons également que ces résultats permettent une meilleure compréhension de l'interaction laser-plasma à ultra-haute intensité. Ils nous ont notamment permis d'obtenir des informations cruciales sur les dynamiques électronique et ionique du plasma, démontrant ainsi qu'il est possible d'utiliser les harmoniques comme un diagnostic de l'interaction laser-plasma [28]. Avec un nombre croissant d'installations laser de classe terawatt et petawatt, ces résultats présentent une avancée majeure dans la physique ultra-brève à ultra-haute intensité.

En nous inspirant des récents travaux effectués dans le domaine des harmoniques générées dans les gaz [29, 30, 31, 32, 33], nous avons également mis en place de nouvelles expériences permettant d'effectuer des mesures jusque là irréalisables. Nous présentons dans la quatrième partie de ce manuscrit une méthode complètement optique permettant de structurer un plasma in-situ. En tirant partie des propriétés de l'expansion d'un plasma, nous avons, en effet, pu créer in-situ des réseaux plasmas transitoires, que nous avons ensuite exploités pour réaliser les premières mesures ptychographiques à des intensités de $\sim 10^{19} W.cm^{-2}$, permettant de mesurer entièrement, pour la première fois, les propriétés spatiales des harmoniques (taille de source et phase) dans le plan de leur génération.

Nous terminerons, dans la cinquième partie, par l'étude de l'effet phare attoseconde qui permet de générer plusieurs impulsions attosecondes isolées angulairement [34, 35]. Après en avoir brièvement détaillé le principe, nous présenterons les résultats expérimentaux et discuterons enfin de l'utilisation de l'effet phare attoseconde pour mesurer certaines des propriétés temporelles du train attoseconde. Nous conclurons en développant certaines des perspectives ouvertes par ces travaux, comme la caractérisation temporelle des impulsions attosecondes en utilisant un phare attoseconde ultra-rapide.

Les résultats obtenus au cours de cette thèse ont mené à un certain nombre de publications, dont les références sont présentées ci-après. Les principales publications sont regroupées à la fin de ce manuscrit.

Publications et actes de conférence

A. Publications

Optically Controlled Solid-Density Transient Plasma Gratings

S. Monchocé, S. Kahaly, A. Leblanc, L. Videau, P. Combis, F. Réau, D. Garzella, P. D'Oliveira, Ph. Martin and F. Quéré Phys. Rev. Lett., 112, 145008, 2014

Procédé de structuration spatiale contrôlée optiquement d'un plasma sur une cible solide

S. Monchocé, S. Kahaly, A. Leblanc, F. Quéré Brevet déposé auprès de l'office français des brevets

Optical properties of relativistic plasma mirrors

H. Vincenti, S. Monchocé, S. Kahaly, G. Bonnaud, Ph. Martin and F. Quéré *Nature Communications*, 5, 3403, 2014

Direct Observation of Density-Gradient Effects in Harmonic Generation from Plasma Mirrors

S. Kahaly, S. Monchocé, H. Vincenti, T. Dzelzainis, B. Dromey, M. Zepf, Ph. Martin and F. Quéré Phys. Rev. Lett., 110, 175001, 2013

Attosecond Lighthouses from plasma mirrors

J. Wheeler, A. Borot, S. Monchocé, H. Vincenti, A. Ricci, A. Malvache, R. Lopez-Martens and F. Quéré *Nature Photonics*, 6, 828-833, 2012

Applications of ultrafast wavefront rotation in highly non-linear optics

F. Quéré, H. Vincenti, A. Borot, S. Monchocé, T.J. Hammond, K.T. Kim, J.A. Wheeler, C. Zhang, T. Ruchon, T. Auguste, J.F. Hergott, D.M. Villeneuve, P.B. Corkum and R.

Lopez-Martens Journal of Physics B, VOL 47, 12, 124004, 2014

Investigation of amplitude spatio-temporal couplings at the focus of a 100TW-25fs laser

S. Kahaly, S. Monchocé, V. Gallet, F. Réau, O. Tcherbakoff, P. D'Oliveira, Ph. Martin and F. Quéré *Applied Physics Letters, 104, 054103, 2014*

Spectral characterization of laser-driven solid-based high harmonics in the coherent wake emission regime

J. van Tilborg, B.H. Shaw, T. Sokollik, S. Rykovanov, S. Monchocé, F. Quéré, Ph. Martin, A. Malvache and W.P. Leemans Optics Letters VOL 38, 20, 2013

B. En préparation

Ptychography of a relativistic interaction

A. Leblanc, S. Monchocé, S. Kahaly, Ph. Martin, F. Quéré En préparation pour soumission à Nature Photonics

Spatial properties of high harmonics in the coherent wake emission regime

S. Monchocé, S. Kahaly, Ph. Martin, F. Quéré En préparation pour soumission à Phys. Rev. Lett.

C. Conférences

CLEO Europe 2012

One regular talk on "High-order harmonic generation from controlled plasma mirrors"

ATTO 2013

One poster on "Spatial Properties of Relativistic Harmonics"

UVX 2014

One invited talk on "Génération d'harmoniques sur réseau plasma transitoire"

Première partie

Génération d'harmoniques sur cible solide : mécanismes et propriétés

Chapitre 1

Préludes à la génération d'harmoniques sur cible solide

Nous allons dans ce chapitre introduire succintement la notion de plasma, de pulsation plasma, de gradient de densité et étudier dans quelles circonstances un plasma peut réfléchir une onde électromagnétique, puis nous étudierons brièvement l'effet Brunel. Ces différentes notions constituent la base de la génération d'harmoniques sur cible solide et seront utilisées dans tout ce manuscrit.

1.1 Notion de plasma

Lorsqu'une impulsion laser ultra-courte est focalisée sur une cible solide de manière à obtenir des éclairements supérieurs à $10^{12}W.cm^{-2}$, la cible est ionisée et se transforme ainsi en un plasma. Au sein de ce plasma s'établit un gradient de densité (figure 1.1), résultant de l'expansion hydrodynamique du plasma. Dans ce manuscrit, on utilisera soit l'éclairement direct, soit l'éclairement normalisé : $a_0^2 = I\lambda_L^2/I_0$, avec $I_0 = 1.37 \times 10^{18}W.cm^{-2}$. L'éclairement normalisé sera toujours donné pour une longueur d'onde de 800nm, qui correspond aux caractéristiques de notre laser.

Considérons tout d'abord que ce plasma est neutre, unidimensionnel, homogène et que son évolution est entièrement gouvernée par les électrons, les ions qui eux sont beaucoup plus lourds peuvent être considérés comme immobiles. Si l'on vient perturber ce plasma de manière à ce que les électrons inialement à une position z_0 se retrouvent déplacés d'une quantité $\xi(t)$, le champ électrique résultant de la séparation de charge entre les ions et les électrons va tendre à ramener les électrons dans leur position initiale. En intégrant l'équation de Poisson entre $-\infty$ et $z(t) = z_0 + \xi(t)$, on obtient, en supposant que les électrons ne se croisent pas :

$$E(z,t) = \frac{n_e e}{\epsilon_0} \xi \tag{1.1}$$

avec n_e la densité électronique, e la charge électronique, ϵ_0 la constante diélectrique du vide. On peut alors écrire l'équation du mouvement des électrons :



FIGURE 1.1: Profil de densité d'un plasma créé par un laser femtoseconde intense. Lorsque le laser est focalisé suffisamment fort $(I > 10^{12} W.cm^{-2})$, la cible est ionisée et se transforme en un plasma. Le plasma sur-critique réfléchit le laser incident. A la surface de la cible se forme un gradient de densité plasma (surface bleue). Le point noir correspond à l'endroit où le laser sera réfléchi.

$$\frac{d^2\xi}{dt^2} = -\omega_p^2 \xi \tag{1.2}$$

avec

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}} \tag{1.3}$$

la fréquence plasma et m_e la masse des électrons. D'après l'équation 1.2, la perturbation d'équilibre d'un plasma entraîne un déplacement collectif des électrons. Ceux-ci vont osciller à une fréquence ω_p qui dépend du milieu où a lieu l'interaction laser-plasma. Nous verrons dans la partie 2 que cela joue un rôle primordial dans la génération d'harmoniques par émission cohérente de sillage.

1.2 Gradient de densité

A cause de l'expansion hydrodynamique du plasma, il s'établit au sein de ce dernier un gradient de densité. Nous considérerons toujours dans ce manuscrit un gradient de densité électronique $n_e(z)$ exponentiel (figure 1.1) :

$$n_e(z) = n_{e0} \exp\left(z/L\right) \tag{1.4}$$

où n_{e0} correspond à la densité électronique la plus élevée du plasma et z la composante normale à la cible (z est négatif vers le vide et positif croissant vers la cible). L est la longueur de gradient. Nous verrons dans les prochaines parties que L joue un rôle crucial dans la génération d'harmoniques sur cible solide. Nous nous intéressons particulièrement à des longueurs de gradient variant entre $\lambda/100$ et $\lambda/10$.

1.3 Réponse d'un plasma à une onde électromagnétique

Il est maintenant intéressant de voir sous quelles conditions un plasma va être capable de réfléchir la lumière. Supposons que l'onde électromagnétique incidente se propage dans le vide (z < 0) et arrive sur un plasma (z > 0), initialement homogène, en incidence normale. L'équation de propagation du champ électrique, d'après les équations de Maxwell s'écrit :

$$\Delta \overrightarrow{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \overrightarrow{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial \overrightarrow{J}}{\partial t} + \frac{1}{\epsilon_0} \overrightarrow{\nabla} \rho \tag{1.5}$$

où \overrightarrow{J} est la densité volumique de courant et ρ la densité de charge. A partir du principe fondamental de la dynamique et en supposant que la dynamique du plasma n'est pas relativiste, on obtient pour une onde électromagnétique de pulsation ω_L la relation de dispersion suivante [36] :

$$k^2 = \frac{\omega_L^2 - \omega_p^2}{c^2} \tag{1.6}$$

D'après cette équation, si une onde a une fréquence ω_L supérieure à la fréquence plasma ω_p , le vecteur d'onde k est réel, cela signifie qu'une telle onde se propage à l'intérieur du plasma. Si en revanche elle a une fréquence ω_L inférieure à la fréquence plasma ω_p , le vecteur d'onde est purement imaginaire, ce qui signifie que l'onde est évanescente dans le plasma : elle ne peut s'y propager. Par conséquent, une onde à cette fréquence arrivant depuis le vide sur un tel plasma est réfléchie.

Ainsi, pour qu'un plasma se comporte comme un miroir, il faut que sa fréquence plasma soit supérieure à la fréquence de l'impulsion laser incidente. Cela signifie que le faisce au laser est réfléchi autour d'une position z particulière, pour la quelle la densité électronique a atteint la valeur critique :

$$n_c = \frac{\omega_L^2 m_e \epsilon_0}{e^2} = 1.11 \times 10^{21} \left(\frac{\lambda}{\mu m}\right)^{-2} .cm^{-3}$$
(1.7)

Un plasma est dit sous-critique lorsque sa densité électronique est inférieure à la densité critique. Dans le cas contraire, il est sur-critique. Le faisceau laser incident est donc toujours réfléchi par le plasma sur-critique, là où la densité vaut n_c (point noir sur la figure 1.1). Pour la génération d'harmoniques sur cible solide, on utilise généralement des cibles en silice, dans ce cas $n_e \simeq 400n_c$, ou des cibles en plastique : $n_e \simeq 200n_c$, si bien que le plasma est largement sur-critique et peut réfléchir le laser incident.

1.4 Effet Brunel

Maintenant que nous connaissons les prémices de la création d'un miroir plasma, nous allons nous intéresser à l'interaction entre ce plasma et le champ laser. Nous allons présenter un effet qui joue un rôle majeur dans la génération d'harmoniques sur cible solide : l'effet

24CHAPITRE 1. PRÉLUDES À LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES SUR CIBLE SOLIDE

Brunel [37, 38]. Considérons le cas d'une onde plane de polarisation p se propageant en incidence oblique $\theta \neq 0$ vers la surface. Comme nous venons de le voir, cette onde ne va quasiment pas se propager à l'intérieur du plasma, le champ électrique y est donc nul. Cela signifie que les électrons écrantent complètement le champ. Le champ total E_L vu par les électrons en surface du plasma est égal à la somme du champ incident E_i et du champ réfléchi E_r , soit $E_L = 2\sin\theta |E_i|$, en supposant, pour simplifier, une réflexion parfaite : $|E_i| = |E_r|$.



FIGURE 1.2: Schéma du mouvement des électrons de Brunel et simulation particulaire à l'aide du code EUTERPE. (a,d,g) Schéma de principe de l'accélération des électrons de Brunel par le champ laser incident à différents instants dans le cycle laser. (b,c,e,f,h,i) Espace des phases (z, p_z) des électrons de la simulation EUTERPE. Les électrons en rouge représentent les électrons de Brunel.

Sur la figure 1.2, on a tracé la distribution des électrons dans l'espace des phases (z, p_z) . Dans cette distribution, une impulsion $p_z > 0$ correspond à des électrons qui se déplacent vers le plasma et une impulsion $p_z < 0$ à des électrons qui se déplacent vers le vide. Grâce à cette figure, on peut résumer le mécanisme de Brunel en trois étapes :

- 1. Lorsque le champ laser E_L est positif (première ligne de la figure), une partie des électrons est tirée depuis le plasma vers le vide. Ces électrons sont soumis à deux forces qui s'opposent : le champ laser qui tend à les éloigner du plasma et le champ de rappel purement électrostatique exercé par les ions, qui tend lui à ramener les électrons vers le plasma.
- 2. Quand le champ laser commence à décroître (deuxième ligne), la force exercée par les ions devient prépondérante et une partie des électrons commence alors à revenir vers le plasma.
- 3. Lorsqu'ensuite le champ laser E_L change de signe (troisième ligne), la force imposée par le laser aux électrons se combine à la force de retour électrostatique exercée par les ions et ainsi pousse une partie des électrons vers l'intérieur du plasma. Une



FIGURE 1.3: **Trajectoires des électrons de Brunel.** (a) Trajectoires z(t) des électrons de Brunel calculées à partir du modèle présenté dans la partie 2.4. (b) Vitesse de retour des électrons en fonction de l'instant t_i auquel ils ont été arrachés au plasma. (c) Instant de retour t_r des électrons dans le plasma en fonction de t_i . (d) Vitesse de retour v_r des électrons en fonction de leur instant de retour t_r .

fois dans le plasma dense, les électrons ne ressentent plus l'effet du champ laser et traversent le plasma à la vitesse acquise sous l'effet du champ laser dans le vide.

On a tracé sur la figure 1.3a, les trajectoires z(t) des électrons de Brunel, issues d'un modèle très simple [39]. Les premiers électrons arrachés au plasma (bleu clair) ne reviennent pas vers le plasma sur l'échelle de temps considéré $[0-1.5T_L]$ (avec T_L la période laser). En revanche, les électrons qui sont arrachés plus tard (bleu plus foncé, à partir de la trajectoire noire) retournent vers le plasma avec une vitesse de retour v_r qui dépend de l'instant t_i auquel ils ont été arrachés au plasma. On a tracé sur le panneau (b) la vitesse de retour v_r en fonction de l'instant t_i . A partir de $t_i > 0.065T_L$, partie non hachurée de la courbe, les électrons arrachés le plus tôt subissent plus longtemps l'effet du champ laser et acquièrent dans le vide une vitesse v_r plus élevée. D'après la figure 1.3c, où on a tracé l'instant de retour t_r des électrons en fonction de t_i , les premiers électrons arrachés au plasma retournent vers le plasma en dernier. Cela signifie que les premiers électrons qui reviennent vers le plasma ont une vitesse plus faible que les électrons qui y reviennent plus tard, comme on peut le voir sur la figure 1.3d, où on a tracé la vitesse de retour v_r des électrons en fonctions de leur instant de retour t_r . Ainsi les derniers électrons à retourner vers le plasma vont rattraper les premiers électrons à l'intérieur du plasma et former un pic de densité électronique. Les trajectoires électroniques se croisent inévitablement à l'intérieur du plasma et les lieux de croisement se déplacent le long d'une caustique (traits pointillés rouges sur le panneau (a)), qui correspond à la trajectoire du pic de densité électronique. Nous verrons dans le prochain chapitre le rôle de ce croisement des trajectoires électroniques dans la génération d'harmoniques.

Dans cette discussion nous avons considéré uniquement la partie non hachurée des différentes courbes, soit $t_i > 0.065T_L$, car pour $t_i < 0.065T_L$, les électrons arrachés le plus tôt au plasma ont une vitesse plus faible que ceux qui sont arrachés plus tard. Ils ne peuvent pas se croiser à l'intérieur du plasma et ne contribuent donc pas à la formation du pic de densité. Ils ne perturbent donc quasiment pas l'équilibre du plasma en comparaison des électrons arrachés au plasma à $t_i > 0.065T_L$. Or c'est de cette perturbation que naît la génération d'harmoniques par émission cohérente de sillage [39, 40, 21]. Nous allons donc maintenant étudier le rôle de l'effet Brunel dans la génération d'harmoniques et présenter les deux mécanismes de génération d'harmoniques sur cible solide.

Chapitre 2 Emission cohérente de sillage

Les harmoniques générées par émission cohérente de sillage, dites harmoniques CWE, ont été découvertes en 2006 par F. Quéré et C. Thaury, dans une campagne d'expériences visant à étudier les harmoniques ROM. Ils ont réalisé l'expérience sur le laser LUCA de l'IRAMIS. Ce laser permet d'atteindre les éclairements requis $(I > 10^{18} W.cm^{-2})$ nécessaires à la génération d'harmoniques relativistes [40, 41]. Malheureusement, à cause du contraste temporel du laser il était impossible de dépasser des éclairements de \sim $10^{16} W. cm^{-2}$, ce qui est normalement insuffisant pour générer des harmoniques relativistes. Mais contre toute attente, ils ont observé le spectre harmonique présenté sur la figure 2.1. Etant donné la gamme d'éclairement, il ne pouvait s'agir d'harmoniques relativistes, ils ont donc étudié ce nouveau mécanisme de génération. Comme nous le verrons, dans ce mécanisme, ce sont les électrons de Brunel (1.4), qui excitent des oscillations plasma, qui sont responsables de la génération d'harmoniques. Ils ont donc décidé de le baptiser CWE pour Coherent Wake Emission. Nous nous attachons dans ce chapitre à présenter le mécanisme CWE, qui est maintenant devenu un mécanisme courant de la génération d'harmoniques dans la gamme d'éclairement $10^{16} - 10^{18} W. cm^{-2}$. Certains groupes comme celui de W. Leemans à Berkeley étudient les harmoniques CWE afin de les utiliser comme injecteur de laser à électrons libres miniatures [42].

2.1 Mécanisme d'émission CWE

L'émission cohérente de sillage (figure 2.2) est le mécanisme dominant la génération d'harmoniques à bas éclairement $(10^{15}W.cm^{-2} - 10^{18}W.cm^{-2})$ [40, 21, 27]. L'émission d'harmoniques a lieu à l'intérieur du gradient de densité plasma. Les électrons de Brunel (dont les trajectoires sont représentées en bleu sur la figure 2.2) sont arrachés au plasma, durant la première partie du cycle optique, sous l'effet du champ laser intense, puis sont renvoyés, après leur excursion dans le vide, vers le plasma lorsque le champ laser change de signe (seconde partie du cycle optique).

Comme dans la première partie du cycle optique le champ laser augmente, les électrons qui sont arrachés les premiers au plasma $(e_1, trajectoire orange sur la figure 2.2)$ subissent



FIGURE 2.1: **Premier spectre CWE.** Spectre harmonique obtenu sur le laser LUCA avec un éclairement de $3 \times 10^{16} W.cm^2$. Figure extraite de la thèse de C. Thaury [40].

plus longtemps l'influence du champ laser dans le vide (partie non hachurée des courbes de la figure 1.3), et ont ainsi une excursion hors du plasma qui est plus grande que celle des derniers électrons arrachés au plasma (e_2 , trajectoire verte). On comprend donc les électrons e_1 retournent vers le plasma avec une vitesse plus grande que les électrons e_2 (cf. figure 1.3b). Par conséquent, les trajectoires de tous les électrons arrachés au plasma se croisent inévitablement à l'intérieur du gradient plasma et forment une caustique (pointillés jaunes sur la figure 2.2). Ils forment ainsi un pic de densité électronique qui se propage à l'intérieur du gradient plasma suivant la trajectoire donnée par la caustique et excite des oscillations plasma à la fréquence plasma locale $\omega_p(z)$. Ces oscillations plasma émettent une onde lumineuse à la fréquence $\omega_p(z)$, par conversion de mode linéaire pendant une durée très courte, dans la direction spéculaire au laser incident.

2.2 Caractéristiques de l'émission CWE

Une des caractéristiques majeures de l'émission CWE réside dans la fréquence de coupure du spectre harmonique généré [21, 27, 26]. Cette fréquence de coupure correspond à la fréquence plasma la plus élevée qui puisse exister dans le plasma. Cette fréquence ω_p^{max} va correspondre à la fréquence obtenue à la densité électronique $n_e = n_{e0}$ la plus élevée où a été excitée une oscillation plasma (figure 2.2). Ainsi la fréquence maximale d'oscillation plasma vaut :

$$\omega_p^{max} \simeq \sqrt{\frac{n_{e0}}{n_c}} \omega_L \tag{2.1}$$

Nous avons représenté, sur la figure 2.3, deux spectres harmoniques CWE obtenus expérimentalement durant ma thèse, avec le laser UHI100, sur une cible en silice (a) et sur une cible en plastique (b). Ces spectres sont en excellent accord avec ceux mesurés dans [40, 21, 27, 26]. Sur la figure 2.3, on voit clairement que la fréquence de coupure n'est pas



FIGURE 2.2: Principe de l'émission cohérente de sillage. (a) Carte de variation de densité électronique. Les électrons, dont les trajectoires sont représentées en bleu, sont arrachés au plasma par le laser puis retournent vers le plasma sous l'effet du champ laser oscillant. Les trajectoires des électrons se croisent et forment une caustique (pointillés jaunes), les électrons forment un pic de densité électronique qui se propage le long de cette caustique et excitent des oscillations plasmas qui émettent une impulsion attoseconde par conversion de mode linéaire. Ce processus se répéte à chaque cycle optique. Le cycle CWE est détaillé sur le panneau (b). Le champ laser sur une période laser T_L est représentée par la sinusoïde (courbe verte-mauve-rouge), la trajectoire de certains des électrons de Brunel est représentée en bleu, orange pour la trajectoire e_1 et verte pour e_2 . A l'instant t_i , les électrons sont arrachés au plasma, à t_r ils retournent à l'intérieur du plasma et se propagent dans le plasma avec la vitesse v_r qu'ils ont acquisent dans le vide sous l'effet du champ laser, à t_c ils se croisent à l'intérieur du plasma et excitent une oscillation plasma.

la même, elle se situe vers $\omega \simeq 20\omega_L$ dans le cas de la silice où $n_{e0} = 400n_c$, alors qu'elle vaut $\omega \simeq 15\omega_L$ dans le cas d'une cible en plastique où $n_{e0} = 200n_c$.

2.3 Dérive de fréquence femtoseconde et phase spectrale

Une autre caractéristique des harmoniques CWE est liée à la structure temporelle du train d'impulsions attosecondes qui y est associé. Pour comprendre ce phénomène, nous avons tracé sur la figure 2.4 la trajectoire de 50 électrons, pour deux amplitudes laser différentes : $a_0 = 0.1$ en (a) et $a_0 = 0.2$ en (b). Cette figure montre que la caustique pour deux amplitudes différentes a une allure exactement identique mais une pente totalement différente.

La pente de la caustique (traits pointillés rouges) en (a) est plus faible que celle de la caustique en (b). La caustique en (a) passe à la profondeur $z = 0.1\lambda_L$ à un instant $t = 1.4T_L$ alors qu'elle passe en $z = 0.1\lambda_L$ en $t = 1.1T_L$ dans le cas (b). Donc l'oscillation



FIGURE 2.3: **Exemple de spectre d'harmoniques CWE.** Spectres d'harmoniques CWE obtenus expérimentalement durant ma thèse, avec UHI100 sur une cible en silice (a) et sur une cible plastique (b).

plasma à la profondeur $z = 0.1\lambda$ est excitée plus tard dans le cas (a) que dans le cas (b). Si maintenant on considère une impulsion laser réelle, l'amplitude laser varie d'un cycle à l'autre à cause de son profil temporel (figure 2.5a). Ainsi à chaque cycle optique, l'amplitude laser est différente, et donc la pente de la caustique est différente (figure 2.5b). Par conséquent, l'instant d'excitation d'une oscillation plasma à une profondeur z donnée varie d'un cycle optique à l'autre ($\Delta t_1 > \Delta t_2$ sur la figure 2.5b). Or l'instant d'émission des impulsions attosecondes est directement relié à l'instant d'excitation de l'onde plasma. On comprend alors que le profil temporel de l'amplitude laser va avoir une grande influence sur la structure temporelle du train.

D'après la figure 2.4 et la figure 2.5b, au cours d'un cycle optique, l'émission d'harmoniques va avoir lieu d'autant plus tôt que l'amplitude est élevée. Au début de l'impulsion laser l'amplitude augmente (t < 0), ce qui réduit le délai d'émission entre deux impul-



FIGURE 2.4: Trajectoires des électrons de Brunel. Trajectoires de 50 électrons, obtenues pour une amplitude laser de $a_0 = 0.1$ en (a) et $a_0 = 0.2$ en (b). La différence de pente entre les deux caustiques mène à une émission d'harmoniques à la fréquence $\omega_p(z)$ à des instants différents au sein d'un cycle optique. Elle va être émise plus tôt dans le cas (b) où la pente de la caustique est plus forte.



FIGURE 2.5: Structure temporelle du train d'impulsions attosecondes CWE. (a) Profil temporel de l'impulsion laser, à chaque cycle optique (matérialisé par des pointillés de couleur différente), l'amplitude laser est différente. (b) Trajectoires du pic de densité électronique (caustique) à l'intérieur du plasma à chaque cycle optique de l'impulsion (a). (c) Temps d'émission des impulsions CWE, obtenus à partir du modèle présenté en 2.4, pour une longueur de gradient $L = \lambda/50$. (d) Trains d'impulsions CWE. La période Δt entre deux impulsions successives ne cesse d'augmenter, elle est inférieure à la période laser T_L au début du train et est supérieure à T_L à la fin du train, ce qui correspond à un chirp femtoseconde des harmoniques CWE.

sions consécutives, il est alors inférieur à la période laser T_L (figure 2.5d). Au voisinage de l'instant où l'amplitude laser est maximale ($t \in [-1, 1]$) le délai d'émission entre deux impulsions consécutives ne varie quasiment pas puisque l'amplitude est alors quasi constante d'un cycle optique à l'autre. Les caustiques du cycle 6 (courbe jaune) et 7 (courbe rouge) sur la figure 2.5b sont quasiment identiques. Le délai d'émission vaut alors exactement la période laser T_L . A la fin de l'impulsion laser (t > 0), l'amplitude laser diminue d'un cycle à l'autre, ce qui augmente le délai d'émission, il est alors supérieur à T_L (figure 2.5d). Le train d'impulsion attoseconde est donc apériodique et la période augmente au cours du temps (figure 2.5d). Si on trace la variation de l'instant d'émission en fonction du cycle optique, on obtient la figure 2.5c. La structure en U témoigne de l'apériodicité du train attoseconde [39, 40, 43, 44]. Si ce train était périodique, la courbe serait plate.

Cet écart à la périodicité temporelle modifie la phase spectrale des harmoniques [39, 40, 43, 44]. En effet, dans le domaine spectral, les impulsions générées durant la première partie du train auront un spectre composé d'harmoniques émises à $n(1 + \epsilon)\omega_L$, alors que les

impulsions générées durant la deuxième partie du train auront un spectre d'harmoniques émises à $n(1-\epsilon)\omega_L$. Autrement dit la fréquence de génération des harmoniques varie d'un cycle à l'autre, elle dérive continûment entre les deux valeurs limites, on dit que les harmoniques sont "chirpées". Cela a pour effet d'élargir les harmoniques spectralement [43]. Si on regarde la figure 2.6a, où on a représenté le spectre résolu angulairement d'impulsions CWE générée avec le laser UHI100 (au meilleur de sa compression), on voit qu'effectivement les harmoniques sont très larges. Il a été montré que la génération d'harmoniques larges spectralement est dû uniquement à l'apériodicité du train [40, 21, 43] Cet effet du chirp (négatif) femtoseconde peut être compensé en introduisant du chirp, dans le sens contraire (chirp positif), sur le laser incident. Cela permet de réduire considérablement la largeur spectrale des harmoniques CWE comme démontré dans [43]. En effet, en chirpant le laser, la période laser T_L va varier d'un cycle optique à l'autre. Cela va permettre de modifier les instants d'émission des différentes impulsions et ainsi en choisissant le bon chirp, celui qui va exactement compenser le chirp des harmoniques CWE, on sera capable de générer un train d'impulsions attosecondes CWE parfaitement périodique. Nous avons à nouveau réalisé ces mesures durant ma thèse et présentons ces résultats sur la figure 2.6. On génère des harmoniques qui sont plus fines spectralement lorsqu'on chirp l'impulsion laser incidente (b) que lorsqu'aucun chirp n'a été introduit (a). Maintenant que nous connaissons les principales caractéristiques CWE, nous allons voir comment cette émission a été modélisée et comment grâce à cette modélisation on peut prédire à la fois les propriétés spectrales et spatiales des harmoniques CWE en calculant analytiquement les temps d'émission des impulsions attosecondes. C'est avec cette modélisation que nous avons obtenu la figure 2.5. Elle sera également utilisée dans les parties III et V de ce manuscrit.



FIGURE 2.6: Effet du chirp femtoseconde du train d'impulsions attosecondes CWE sur le spectre harmonique. (a) Spectre harmonique obtenu avec UHI100 lorsque le laser est au meilleur de sa compression temporelle. On remarque que les harmoniques sont très larges à cause du chirp femtoseconde du train d'impulsions attosecondes CWE. (b) Spectre harmonique obtenu exactement dans les mêmes conditions sauf que maintenant le laser incident a été chirpé positivement. La largeur spectrale des harmoniques a été considérablement réduite, le chirp induit sur le laser a compensé le chirp femtoseconde du train d'impulsions attosecondes.

2.4 Modélisation des harmoniques CWE

Le modèle présenté ici a été développé par A. Malvache durant sa thèse au laboratoire d'Optique Appliqué (LOA) [39]. Nous en reprenons ici les grandes lignes, car il nous sera utile dans la partie III lorsque nous interpréterons les résultats expérimentaux que nous avons obtenu durant ma thèse. Nous présentons tout d'abord brièvement comment on obtient analytiquement les temps d'émission, puis comment à partir de ces temps d'émission on est capable de calculer le champ attoseconde, et ensuite de calculer d'une part les propriétés temporelles (ou spectrales) du train attoseconde et d'autres part les propriétés spatiales des harmoniques CWE. Pour plus de détail, on pourra se rapporter à [39] ou à [44].

2.4.1 Obtention des temps d'émission

L'instant d'émission t_e à l'intérieur d'un cycle optique est lié à trois paramètres (figure 2.2b) : (i) l'instant t_i auquel les électrons sont arrachés au plasma par le laser incident, qui conditionne (ii) leur instant de retour t_r et (iii) leur vitesse de retour v_r dans le plasma. La vitesse de retour des électrons dans le plasma $v_r(t_r)$ détermine la trajectoire du pic de densité qui se propage à l'intérieur du gradient plasma (caustique de la figure 2.2a) et ainsi le temps mis par les électrons de Brunel pour traverser le gradient de densité jusqu'au point z de génération de la radiation lumineuse à la fréquence $\omega_p(z)$.

L'instant de croisement t_c des électrons à l'intérieur du plasma est très proche de l'instant d'émission t_e des impulsions attosecondes. On suppose dans le modèle que l'écart entre t_e et t_c est indépendant de l'amplitude laser. Ainsi si on détermine la dépendance de t_c en fonction des différents paramètres d'interaction (amplitude laser, longueur de gradient), on peut connaître l'instant d'émission des impulsions attosecondes.

Comme décrit par Brunel [37], à la surface du plasma, les électrons subissent à la fois l'effet du champ électrique exercé par le laser E_L et celui du champ électrostatique exercé par les ions E_S dû à la séparation de charge. A partir de l'équation du mouvement, on obtient :

$$m_e \frac{dv}{dt} = -e(E_L + E_S) \tag{2.2}$$

avec m_e la masse des électons. En faisant l'hypothèse que les électrons ne se doublent pas dans le vide, le champ électrostatique E_S pour un électron donné est constant au cours du temps et opposé au champ laser à l'instant t_i où les électrons sont arrachés au plasma [37]. On a alors :

$$E_S = -E_L(t_i) \tag{2.3}$$

On peut à partir des deux équations précédentes calculer la trajectoire et la vitesse des électrons [37]. Sachant qu'à t_r les électrons passent à la coordonnée z = 0, on peut aisément calculer cet instant t_r ainsi que la vitesse de retour v_r des électrons. Puis une fois que

les électrons sont retournés dans le plasma, ils ne ressentent plus l'effet du champ laser [37] et se propagent ainsi linéairement à l'intérieur du plasma à la vitesse v_r . Pour que les électrons excitent efficacement une oscillation plasma à la position z, il faut qu'il y ait un grand nombre de trajectoires commençant autour de l'instant t_i qui converge au même point z à l'instant t_c . Mathématiquement, cela signifie qu'il faut que l'instant de croisement des trajectoires t_c soit stationnaire par rapport à l'instant t_i , soit :

$$\frac{\partial t_c}{\partial t_i} = 0 \tag{2.4}$$

Cela donne un système de plusieurs équations à résoudre. En résolvant ce système, on obtient la formule suivante, donnant les temps d'émission en fonction des paramètres de l'interaction [44] :

$$t_e(n,\omega) = 0.307 + 0.725 \left(\frac{z_\omega}{a_0 \lambda_L \sin \theta}\right)^{\frac{1}{3}}$$
(2.5)

où $t_e(n,\omega)$ est l'instant d'émission au cycle optique n de l'harmonique émise à ω , a_0 est l'amplitude laser, λ_L la longueur d'onde du laser, θ l'angle d'incidence. z_{ω} correspond à la profondeur à laquelle est générée l'harmonique à la fréquence ω . Dans le cas d'un profil de densité exponentiel z_{ω} s'écrit :

$$z_{\omega} = 2L \ln \frac{\omega}{\omega_L} \cos \theta \tag{2.6}$$

avec L la longueur de gradient, et ω_L la pulsation laser. Cette formule a été obtenue pour une amplitude laser a_0 constante. Nous allons maintenant voir comment cette formule est modifiée lorsqu'on prend en compte le profil temporel de l'impulsion laser.

2.4.2 Aspect temporel

Pour prendre en compte le profil temporel de l'impulsion laser, il suffit de remplacer a_0 par $a_0(t)$ dans la formule 2.5. Dans le cas d'une impulsion laser Gaussienne de durée τ à mi-hauteur (exprimée en période laser), on obtient la formule suivante pour les temps d'émission de l'harmonique émise à ω , au cycle optique n:

$$t_e(n,\omega) = 0.307 + 0.725 \left(\frac{z_\omega}{a_0 \lambda_L \sin \theta}\right)^{\frac{1}{3}} e^{n^2/6\sigma^2}$$
(2.7)

où $\sigma = \tau/2\sqrt{\ln 2}$. Grâce à la formule 2.7, nous sommes maintenant capables de construire le champ harmonique qui peut s'écrire comme la somme des champs émis à chaque cycle :

$$E(\omega) = \sum a_n A_n(\omega) e^{i\omega(nT_L + t_e(n,\omega))}$$
(2.8)

avec a_n l'amplitude spectrale au cycle n, et $A_n(\omega)$ l'enveloppe spectrale de l'émission au cycle optique n. En supposant que pour l'émission CWE l'enveloppe spectrale ne varie

pas d'un cycle à l'autre, qu'elle ne dépend pas de l'intensité et que le gradient de densité n'évolue pas au cours de l'interaction, si on se restreint à l'étude des modulations spectrales et non pas de l'enveloppe spectrale, on peut prendre arbitrairement $A_n(\omega) = 1$. L'amplitude a_n n'est pas non plus donnée par le modèle, mais on peut faire l'approximation qu'elle peut s'écrire simplement comme une puissance b de l'enveloppe laser. Cela correspond à la non-linéarité entre le champ laser incident et le champ harmonique, on obtient ainsi :

$$a_n = e^{-bn^2/2\tau^2}$$
(2.9)

Nous choisirons dans ce manuscrit de prendre b = 3, car cette non-linéarité est en accord celle mesurée par A. Borot et A. Malvache durant leur thèse au LOA [39]. En effectuant simplement une transformée de Fourier du champ $E(\omega)$, on obtient directement le train d'impulsions attosecondes E(t). On a tracé sur la figure 2.7, le spectre d'harmonique CWE calculé à l'aide du modèle (a), ainsi que le train qui lui est associé (b).

La formule 2.7 donnant les temps d'émission des impulsions attosecondes CWE a été validé numériquement et expérimentalement dans [39, 44, 45]. On a tracé une de ces validations, réalisée par A. Malvache, sur la figure 2.8. Les temps d'émissions des impulsions CWE calculés à partir du modèle (ronds rouges) sont comparés aux temps d'émission mesurés dans les simulations PIC (croix bleues), pour deux longueurs de gradient différentes (les codes de simulations sont présentés dans le chapitre 5). Nous allons maintenant voir qu'à partir de ce modèle 1D, on peut étudier les propriétés spatiales des harmoniques en le généralisant à deux dimensions.



FIGURE 2.7: Construction du champ attoseconde à l'aide du modèle des temps d'émission. (a) Spectre CWE $E(\omega)$ calculé à partir du modèle pour une impulsion laser incidente de 25fs, une longueur de gradient de $L = \lambda/100$, une intensité $a_0 = 0.4$ et une non-linéarité b = 3. (b) la courbe rouge correspond à l'enveloppe temporelle de l'impulsion laser et la courbe bleue au train attoseconde CWE calculé à partir du spectre harmonique (a).


FIGURE 2.8: Validation du modèle d'émission CWE. Temps d'émission des impulsions attosecondes CWE en fonction du cycle optique laser, obtenus pour une durée d'impulsion laser de 30 fs, une amplitude laser maximale $a_0 = 0.4$, pour deux longueurs de gradient : $L = \lambda/100$ et $L = \lambda/50$. Les points rouges correspondent au prédiction du modèle, et les croix bleues aux résultats de simulations PIC 2D. Les temps d'émission sont calculés pour l'harmonique 8. Le profil temporel de l'impulsion laser est représentée en noir. Figure extraite du "supplementary material" de [44].

2.4.3 Aspect spatial

Nous avons vu que lorsque l'amplitude laser varie dans le temps, les instants d'émission des impulsions attosecondes CWE varient avec elle. Cela introduit une phase temporelle, responsable de l'élargissement spectral des harmoniques CWE. Expérimentalement, lorsqu'on focalise une impulsion laser, elle n'a pas seulement un profil temporel mais également un profil spatial : l'amplitude varie en fonction de la position dans la tache focale. Les instants d'émission CWE varient donc aussi spatialement. Cela signifie que les harmoniques présentent une phase spatiale dans le plan source qui n'est pas constante et qui augmente naturellement leur divergence. C'est ce qu'on appelle la phase intrinsèque des harmoniques CWE. Pour observer cet effet, il faut ajouter une dimension spatiale xà l'équation 2.7. Cela se fait simplement, en remplaçant a_0 par $a_0(x)$ dans l'équation 2.7. On peut alors calculer le champ attoseconde $E(\omega, x)$.

En calculant la transformée de Fourier de $E(\omega, x)$ par rapport à ω , on peut représenter le train attoseconde dans l'espace (t, x) (figure 2.9a). On voit sur cette figure que les instants d'émission varient avec x. Cela donne des impulsions ayant des fronts d'impulsions courbés. Si maintenant on trace train attoseconde dans l'espace (t, x) cette fois si sans prendre en compte la phase spatiale (figure 2.9c), on obtient un train d'impulsions ayant des fronts d'impulsions plans. On peut ensuite calculer le spectre résolu angulairement en champ lointain des trains (a) et (b), on obtient alors les panneaux (c) et (d). La divergence des harmoniques est multipliée par 3 entre le cas sans phase spatiale (panneau d) et le cas avec phase spatiale (panneau b). Nous disposons donc d'un modèle permettant d'étudier les propriétés spatiales et spectrales des harmoniques CWE. Nous avons vu que la variation d'amplitude laser introduisait une phase spectrale et une phase spatiale : nous allons maintenant étudier comment ces quantités évoluent lorsqu'on change les paramètres



FIGURE 2.9: Effet de la phase spatiale des CWE. (a) Train attoseconde $|E(t,x)|^2$ obtenu à partir du modèle lorsqu'on considère que l'amplitude a une distribution gaussienne avec x. (b) Spectre résolu angulairement correspondant au train (a). (c) Train attoseconde $|E(t,x)|^2$ obtenu lorsqu'on ne prend pas en compte la phase spatiale CWE. (d) Spectre angulaire correspondant au train (c). On voit très clairement l'effet de la phase spatiale sur la divergence des harmoniques en comparant (b) et (d). Dans le cas présent la divergence est multipliée par 3.

de l'interaction.

2.5 Evolution des propriétés des harmoniques CWE

Nous allons étudier dans cette partie comment évoluent les propriétes des harmoniques CWE lorsqu'on change la longueur de gradient et l'angle d'incidence du laser.

2.5.1 Avec la longueur de gradient

Nous avons tracé sur la figure 2.10(a-b) deux spectres harmoniques résolus angulairement, calculés à l'aide du modèle CWE que nous venons de présenter, pour deux longueurs de gradient, (a) $L = 0.001\lambda$ et (b) $L = 0.007\lambda$. On peut noter deux différences majeures entre ces spectres, une spectrale et une spatiale.

En effet, on voit que la largeur spectrale harmonique en (b) est plus grande que celle en (a). Nous avons donc tracé en (c) l'évolution de la largeur spectrale de l'harmonique 6 en fonction de la longueur de gradient. On peut voir qu'elle augmente de façon monotone avec la longeur de gradient. Ceci est dû au fait que des gradients courts vont réduire le délai d'émission entre deux impulsions successives et donc réduire l'apériodicité temporelle du train d'impulsion en comparaison de gradients plus longs. Le chirp des harmoniques sera donc plus grand pour des gradients longs que pour des gradients courts. De même les longs gradients vont introduire une phase spatiale plus grande que des gradients courts, et la divergence harmonique va donc augmenter avec la longueur de gradient (figure 2.10d).



FIGURE 2.10: Effet de la longueur de gradient sur la largeur spectrale et la divergence des harmoniques CWE. (a) Spectre résolu angulairement obtenu avec le modèle, pour une longueur de gradient de $L = 0.001\lambda$ et une amplitude laser de $a_0 = 0.4$. (b) Spectre harmonique obtenu pour une longueur de gradient de $L = 0.007\lambda$. Evolution de la largeur spectrale (c) et de la divergence (d) de l'harmonique 6 en fonction de la longueur de gradient L.

Nous y reviendrons lorsque nous présenterons nos résultats expérimentaux dans la partie 7.2.

2.5.2 Avec l'angle d'incidence

Lorsqu'on trace l'évolution de la largeur spectrale et la divergence des harmoniques (figure 2.11), on peut noter que la largeur spectrale (a) et la divergence des harmoniques (b) diminuent quand l'angle d'incidence augmente. Cela vient du fait que lorsque l'angle d'incidence augmente, la composante du champ électrique responsable du mouvement des électrons de Brunel augmente, ce qui augmente la vitesse de retour des électrons. Les trajectoires des électrons vont être modifiées et ainsi la différence entre les instants d'émission de deux impulsions successives va diminuer, ce qui tend à réduire la largeur spectrale des harmoniques. Il en est de même pour leur divergence.

Nous venons de voir quelles sont les propriétés et les caractéristiques de l'émission CWE et nous avons effectué un rappel du modèle qui permet de calculer certaines de ces propriétés. Nous reviendrons sur ces propriétés lorsque nous présenterons nos résultats expérimentaux dans les parties 7 et 15. Nous allons maintenant nous intéresser au second mécanisme de génération d'harmoniques sur cible solide : le miroir oscillant relativiste (ROM).



FIGURE 2.11: Effet de l'angle d'incidence sur la largeur spectrale et la divergence des harmoniques CWE. Evolution de la largeur spectrale (a) et de la divergence (b) de l'harmonique 6 en fonction de l'angle d'incidence θ .

CHAPITRE 2. EMISSION COHÉRENTE DE SILLAGE

Chapitre 3 Harmoniques Doppler

Lorsque l'éclairement las dépasse ~ $10^{18}W.cm^{-2}$, le mouvement des électrons à la surface du plasma devient relativiste et un second mécanisme de génération d'harmoniques entre en jeu : le miroir oscillant relativiste. Sous l'effet du champ laser, les électrons vont osciller à une vitesse relativiste et ainsi introduire une distorsion par effet Doppler sur le champ laser lors de sa réflexion. Dans ce chapitre, nous nous intéressons dans un premier temps à la génération de nouvelles fréquences via l'effet Doppler. Nous synthétiserons ensuite un modèle simple et qualitatif permettant de bien comprendre le principe de base de ce processus de génération d'harmoniques. Enfin nous verrons qu'au-delà de certains éclairements, la pression de radiation inhomogène exercée par le laser sur le plasma enfonce ce dernier, entraînant ainsi une coubure de sa surface. Les harmoniques ne sont plus générées sur un miroir plan mais sur un miroir concave, ce qui affecte fortement leurs propriétés spatiales. Nous étudierons le premier modèle, développé dans le cadre de la thèse d'H. Vincenti, au sein de notre groupe, permettant de calculer cette déformation ainsi que les propriétés spatiales et spectrales des harmoniques Doppler. On appellera indifféremment dans ce manuscrit ces harmoniques : harmoniques relativistes ou harmoniques Doppler.

3.1 Effet Doppler

L'effet Doppler est un phénomène bien connu : un observateur immobile reçoit un signal émis par une source de fréquence ω qui se déplace dans sa direction à une fréquence $\omega' > \omega$. Nous allons voir comment cet effet Doppler appliqué à la réflexion d'une onde électromagnétique sur un miroir en déplacement uniforme permet de générer une nouvelle fréquence. Supposons qu'une onde électromagnétique E_i à la fréquence ω_i se réfléchisse sur un miroir en mouvement uniforme à la vitesse v. On note E_r le champ réfléchi (figure 3.1). Les champs électriques incident et réfléchi s'écrivent sous la forme :

$$E_i(z,t) \propto \cos \omega_i (t + \frac{z}{c})$$
 (3.1)



FIGURE 3.1: Effet Doppler créé par un miroir en mouvement uniforme à la vitesse v. Dans le cas où le miroir se déplace à la vitesse v vers le champ incident E_i , le champ réfléchi E_r aura une fréquence ω_r supérieure à celle ω_i du champ incident.

$$E_r(z,t) \propto \cos \omega_r(t-\frac{z}{c})$$
 (3.2)

A la surface du miroir (en z_s), on a $E_r(z_s, t) = -E_i(z_s, t)$, avec $z_s = vt$ la position du miroir à l'instant t. On peut en déduire la relation :

$$\frac{\omega_r}{\omega_i} = \frac{1+\beta}{1-\beta} = (1+\beta)^2 \gamma^2 \tag{3.3}$$

avec $\beta = v/c$ et $\gamma = 1/\sqrt{1-\beta^2}$. Dans la limite relativiste, où $\beta \to 1$, cette relation peut s'écrire :

$$\frac{\omega_r}{\omega_i} \simeq 4\gamma^2 \tag{3.4}$$

D'après cette relation, on voit que la fréquence ω_r du champ réfléchi augmente lorsque la vitesse de déplacement du miroir augmente. En effet, lorsque la vitesse de déplacement du miroir tend vers $c, \gamma \to \infty$, et donc une fréquence ω_r très élevée. On a tracé sur la figure 3.2 l'évolution de la fréquence ω_r en fonction du facteur β . On remarque sur cette courbe qu'il faut effectivement des vitesses relativistes ($\beta \to 1$) pour constater un effet Doppler notable. On double la fréquence du champ E_i uniquement pour des vitesses v > 0.4c. Par ailleurs, la fréquence ω_r croît très rapidement lorsque vers v s'approche de c. On comprend alors aisément que si l'on veut générer une onde lumineuse à des longueurs d'ondes extrêmement courtes (XUV), il faut pouvoir déplacer le miroir à la vitesse la plus proche possible de c. Lorsqu'un laser interagit avec un plasma, les électrons ne se déplacent pas avec un mouvement uniforme mais oscillent sous l'effet du champ laser. Il est donc nécessaire de compléter l'étude précédente en prenant en compte le mouvement d'oscillation du miroir.



FIGURE 3.2: Evolution de la fréquence du champ réfléchi ω_r en fonction de la vitesse du miroir.

3.2 Modèle du miroir oscillant

Le principe du miroir oscillant a été proposé la première fois par Wilks [46] et Bulanov *et al* [47], qui attribuèrent la génération d'harmoniques sur cible solide à l'oscillation relativiste du "miroir plasma" sous l'effet du champ laser ultra-intense. Quelques années plus tard, Lichters et al [24] proposèrent un modèle élégant qui permet de décrire le mécanisme de génération d'harmoniques relativistes.

Dans ce modèle, on se place dans un référenciel mobile (figure 3.3) où le laser arrive en incidence normale sur le plasma. A partir de la dérivation d'un ensemble d'équations fluides, on obtient une expression du courant transverse à la suface plasma, dans le cas d'un laser en polarisation p:

$$\vec{J}_t = ec \left(\frac{n_e}{\gamma} (\vec{a} - \tan \theta \vec{x}) + Z n_i \sin \theta \vec{x} \right)$$
(3.5)

avec $\vec{a} = e\vec{A}/m_e c$ le potentiel normalisé [24], n_e la densité électronique, θ l'angle d'incidence, Z le nombre de charges et n_i la densité ionique et :

$$\gamma = \sqrt{\frac{1 + (a\cos\theta)^2 - a\sin 2\theta}{1 - \beta_x^2}} \tag{3.6}$$

On suppose que ce courant, qui génère le champ réfléchi et en particulier les harmoniques, est localisé à la surface du plasma en $Z_m(t)$, ce qui permet de considérer que :

$$E_r(z,t) \simeq \mu_0 \int_{Z_(t_{ret})}^{Z_(t_{ret})+l_s} J_t(Z_m(t_{ret}), t_{ret}) dx'$$
(3.7)



FIGURE 3.3: Principe du référenciel mobile. Dans le référentiel du laboratoire R le laser arrive avec un angle de θ sur le plasma. Dans le référentiel mobile R', le laser arrive en incidence normale sur le plasma qui a une vitesse de dérive, parallèlement à la surface, selon y, $v = c \sin \theta$.

avec l_s l'épaisseur de peau et $t_{ret} = t - Z(t_{ret})/c + z/c$ le temps retardé au point z qui prend en compte le temps mis par la lumière pour venir de la source jusqu'à l'observateur. On en déduit :

$$E_r(z,t) \simeq \mu_0 l_s J_t(Z_m(t_{ret}), t_{ret}) \tag{3.8}$$

Pour déterminer l'expression complète du champ réfléchi $E_r(t, z)$, il reste à déterminer t_{ret} pour pouvoir ensuite en déduire $Z_m(t_{ret})$ connaissant le mouvement du miroir oscillant $Z_m(t)$. Le modèle de Lichters ne permet pas de déterminer rigoureuseument Z_m . Pour le déterminer, on suppose que le mouvement du miroir est dominé par l'oscillation de sa couche électronique sous l'effet du champ laser incident de pulsation ω_L . On peut donc écrire :

$$Z_m(t) = \frac{v_m}{\omega_L} \cos\phi \tag{3.9}$$

où ϕ est la phase du champ laser incident (généralement $\phi = \omega_L t + \phi_0$ avec ϕ_0 une constante). v_m correspond à la vitesse des électrons sous l'effet des champs laser incident et réfléchi :

$$v_m = \frac{2a_L c\sin\theta}{\sqrt{1 + (2a_L\sin\theta)^2}} \tag{3.10}$$

avec a_L l'amplitude laser. Comme la fonction Z_m est définie de manière récursive : $Z_m(t_{ret}) = Z_m(t - Z_m(t_{ret})/c + z/c)$, on peut l'approcher par la méthode du point fixe, en cherchant pour tous les couples (z, t), la limite de la suite définie par $Z_0 = Z(t)$ et n > 0, $Z_{n+1} = Z(t - (Z_n - z)/c)$. On peut alors calculer le champ réfléchi par le miroir plasma. On a tracé sur la figure 3.4a la trajectoire du point de réflexion $Z_m(t)$ (traits pointillés rouges) et la même trajectoire prises aux temps retardés $Z_m(t_{ret})$ (trait plein bleu) vue par un observateur placé en $z = -\lambda$. On voit que le mouvement de la surface que



FIGURE 3.4: Calcul du champ réfléchi avec le modèle du miroir oscillant. (a) En traits pointillés rouges est représentée la trajectoire $Z_m(t)$ et en trait bleu la trajectoire $Z_m(t_{ret})$ qui serait vue par un observateur. (b) En bleu foncé le champ réfléchi, en bleu clair le champ réfléchi filtré spectralement entre les harmoniques 10 et 150. (c) Spectre du champ réfléchi (normalisé à sa valeur maximale). (d) Spectre du champ réfléchi obtenu lorsqu'on ne prend pas en compte t_{ret} .

perçoit l'observateur n'est plus sinusoïdal. Comme le champ réfléchi est proportionnel à $J_t(Z(t_{ret}), t-Z(t_{ret})/c+z/c)$, la phase du champ va être modulée de manière extrêmement rapide par le terme d'oscillation de la surface $\omega_L Z(t_{ret})/c$, ce qui va introduire de nouvelles fréquences dans son spectre, exactement comme dans le cas de l'effet Doppler présenté précédemment. Sur le panneau (b), on voit que le champ réfléchi vu par un observateur placé en $z = -\lambda$ est profondément distordu par cette modulation de phase : il présente des fronts très raides (traits en pointillés bleu) aux instants où le miroir se déplace vers l'observateur. Cette succession périodique de fronts raides correspond dans le domaine spectral à un large spectre composé d'harmoniques de la fréquence laser incidente ω_L , comme en témoigne la figure 3.4c. Pour vérifier que ces hautes fréquences sont bien émises à l'instant où le champ réfléchi présente des fronts raides, on a superposé au champ réfléchi (panneau (b)) le champ réfléchi filtré entre les harmoniques 10 et 150. On voit ainsi que les hamoniques sont effectivement produites durant un laps de temps très court (de l'ordre de la centième de la période laser), aux instants où la vitesse de déplacement du miroir vers l'observateur est la plus élevée. Si maintenant on supprime dans le calcul du champ réfléchi, le calcul de t_{ret} , on obtient le spectre de la figure figure 3.4d. Le nombre d'harmoniques le composant est bien inférieur à celui composant le spectre (c). C'est donc du calcul de l'instant retardé t_{ret} que naît l'effet Doppler observé.

Ce modèle présente l'avantage de donner une compréhension physique simple du phénomène

de génération d'harmoniques relativistes, cependant il reste qualitatif et n'est pas prédictif. Il connaît également certaines limitations, en particulier il ne donne pas d'information directe sur :

- 1. La forme du spectre (loi de décroissance et fréquence de coupure) en fonction des paramètres de l'interaction (car on suppose le mouvement $Z_m(t)$).
- 2. Les propriétés spatiales du faisceau d'harmoniques généré.

Concernant l'étude du premier point, il n'existe pas de modèle totalement prédictif dans des conditions expérimentales réalistes. Le modèle s'en approchant le plus a été développé par Baeva *et al* [25], et prévoit une décroissance de l'intensité spectrale des harmoniques selon une loi de puissance en $n^{-8/3}$ avec l'ordre harmonique n. Cette loi de décroissance a été validée dans un certain nombre de publications [22, 48]. Au cours de ma thèse, nous avons comparé cette loi de puissance à nos résultats expérimentaux, mais n'avons pas obtenu de résultats positifs, la loi de décroissance théorique ne correspondait pas à celle expérimentale. Pour en comprendre la raison, il est nécessaire de mener des études complémentaires.Concernant le second point, nous allons présenter dans la prochaine section, un modèle qui a été récemment développé dans le cadre de la thèse de H. Vincenti. Ce modèle est en étroite relation avec les expériences menées durant ma thèse qui seront présentées dans la partie 9.

3.3 Modélisation des propriétés spatiales des harmoniques ROM

3.3.1 Idée générale

Le contrôle des propriétés spatiales des harmoniques est primordial en vue d'une meilleure compréhension de la physique mise en jeu dans la génération d'harmoniques relativistes et de l'utilisation de ces harmoniques comme source XUV. On peut distinguer deux "catégories" de propriétés spatiales : celles dans le plan source : taille de source harmonique w_n , phase ϕ_n et profil d'amplitude des harmoniques h_n et celles en champ lointain : divergence θ_n (figure 3.5). Nous nous intéressons dans cette partie à la détermination analytique de la divergence θ_n des harmoniques. Pour déterminer la divergence θ_n il est nécessaire de connaître la phase spatiale $\phi_n(y)$ ainsi que le profil d'amplitude $h_n(y)$ de chaque harmonique n dans le plan de la cible en z = 0, où a lieu le processus de génération. Il suffit ensuite de propager le faisceau harmonique pour connaître ses propriétés à une distance z de la cible.

En 2009, B. Dromey *et al*, à la suite d'observation expérimentale [49], ont suggéré que sous l'effet de la pression de radiation inhomogène exercée par le laser sur la surface, cette dernière s'enfonce et se courbe. Les harmoniques sont ainsi générées à partir d'une surface qui n'est plus plane mais courbée. La phase spatiale $\phi_n(y)$ des harmoniques est alors



FIGURE 3.5: **Propriétés spatiales des harmoniques** Dans le plan source, les propriétés spatiales sont la taille de source harmonique w_n , la phase harmonique $\phi_n(y)$ et le profil d'amplitude $h_n(y)$. En champ lointain, les propriétés spatiales sont la divergence des harmoniques θ_n . En haut à droite est représenté un profil spatial 2D en champ lointain du faisceau harmonique mesuré sur le détecteur lors d'une de nos expériences sur UHI100. L'étude de la divergence θ_n , nous permet d'obtenir des informations directement sur l'interaction laser plasma au foyer où elle a lieu.

entièrement déterminée par la courbure de la surface. Lorsque celle-ci devient comparable à la longueur d'onde des harmoniques générées, les harmoniques sont focalisées en avant de la cible. Cette focalisation entraîne une augmentation de la divergence des harmoniques par rapport au cas où elles sont générées sur une surface plane.

Cette idée a été validée la première fois dans les simulations PIC 2D, par H. Vincenti durant sa thèse au sein du groupe PHI [41] (figure 3.6). On a tracé sur la figure 3.6 le résultat d'une simulation réalisée dans des conditions proches de celles de l'expérience que nous avons menée sur UHI 100 et que nous présenterons dans la partie 9 ($a_L = 6, L = \lambda/8$). Sur les deux panneaux, on a représenté en échelle de rouge la densité électronique. Sur le panneau de droite, on a représenté en échelle de couleur le champ réfléchi filtré entre les harmoniques 4 et 8, à différents instants après propagation depuis la cible. Le panneau de gauche de la figure 3.6 apporte la confirmation que la surface s'enfonce effectivement durant l'interaction. Le panneau de droite montre que les harmoniques sont focalisées à une distance $z \simeq 30\lambda$ de la cible.



FIGURE 3.6: Focalisation du faisceau harmonique par le miroir plasma Le laser est focalisé sur la cible inclinée à 45°, durant l'interaction le miroir plasma s'enfonce et se courbe. Cette courbure tend à focaliser les harmoniques en avant de la cible. En échelle de rouge est représentée la densité électronique. Le train attoseconde obtenu par filtrage de l'harmonique 4 à l'harmonique 8 est représenté à 3 instants au cours de sa propagation depuis la cible en échelle de couleur. On observe une focalisation des harmoniques à une distance de $z \simeq 30\lambda$ de la cible. Un zoom de la densité électronique est présenté à gauche. Cela permet de définir le paramètre d'enfoncement δ_T , utilisé dans la partie 3.3.3. Dans cette simulation $a_L = 6$ et $L = \lambda/8$.

On comprend alors que pour modéliser la divergence des harmoniques, il faut séparer le problème en deux étapes :

- 1. Modéliser l'enfoncement du miroir plasma au cours de l'interaction
- 2. Calculer la phase spatiale $\phi_n(y)$ des harmoniques en fonction de l'enfoncement du miroir plasma, calculer l'effet de ϕ_n sur la divergence.

Le modèle permet de déterminer analytiquement la phase $\phi_n(y)$ de manière totalement prédictive. En revanche il ne permet pas de déterminer $h_n(y)$, et il faut donc l'obtenir à partir de simulations PIC 2D. Nous verrons cependant dans la quatrième partie qu'après nos récents travaux nous sommes en mesure de déterminer expérimentalement $h_n(y)$ et $\phi_n(y)$.

3.3.2 Modèle d'enfoncement

Pour modéliser l'enfoncement et ainsi être en mesure d'en déduire la courbure induite par le laser sur le miroir plasma, il faut prendre en compte à la fois les dynamiques électronique et ionique du plasma. A cause de la différence de masse entre les électrons et les ions, les premiers vont avoir une réponse quai-instantanée alors que les ions vont réagir à une échelle de temps plus longue. Cela permet de modéliser la dynamique en trois étapes : (i) on calcule la réponse quasi immédiate des électrons au champ laser en considérant que les ions sont immobiles, (ii) on calcule la réponse des ions, résultant à la fois de l'effet du champ laser et de la séparation de charge due au déplacement des électrons, (iii) on inclue finalement l'influence du mouvement des ions dans le calcul du mouvement des électrons.

Dynamique des électrons

A chaque cycle optique, les électrons sont successivement poussés vers le plasma puis tirés hors du plasma. Lorsqu'ils sont arrachés au plasma, ils forment un jet d'électrons (flèche rouge sur la figure 3.7a) responsable de la génération d'harmoniques relativistes. Quand ils sont poussés vers le plasma ils forment un pic de densité à la surface du plasma à la position $x_e(t)$ (flèche blanche sur la figure 3.7a). Comme les électrons se déplacent à une vitesse proche de c, leur excursion dans le vide peut être considérée comme constante. L'émission des harmoniques a donc lieu à partir d'une surface parallèle à celle définie par la position $x_e(t)$. On s'intéresse donc à la détermination de cette position. Elle est obtenue simplement en écrivant l'équilibre entre la force de poussée exercée par le laser et la force électrostatique de rappel des ions restés immobiles. Dans la limite relativiste, cet équilibre mène à l'expression suivante pour l'excursion maximale x_e à l'intérieur du plasma, dans un cycle optique donné :

$$x_e = L \ln \left(1 + \frac{2\lambda_L a_L (1 + \sin \theta)}{2\pi L} \frac{n_c}{n_0} \right)$$
(3.11)

où θ est l'angle d'incidence sur le miroir plasma, n_c est la densité critique et n_0 correspond à la densité ionique à partir de laquelle le laser commence à pousser les électrons à l'intérieur du plasma. Dans ce calcul, on a considéré un gradient plasma exponentiel $n \propto \exp(x/L)$ pour $n > n_0$ (figure 3.7b), avec L la longueur de gradient; x est négatif vers le vide et positif croissant vers la cible.

On voit grâce à cette équation que plus la longueur de gradient est importante, plus l'enfoncement de la cible est grand, ce qui est plutôt intuitif puisque le champ laser peut



FIGURE 3.7: Courbure du miroir plasma induite par le champ laser dans le cas d'ions immobiles (a) Carte de densité électronique $n_e(x, y)$ à l'instant où l'impulsion laser a atteint son maximum, obtenue à partir d'une simulation PIC, où les ions sont immobiles, avec $a_0 = 8, L = \lambda/8$ et $\theta = 45^{\circ}$. Les prédictions du modèle sont représentés par les traits pointillés rouges (equation 3.11) Le panneau (b) schématise les densités électroniques (en rouge) et ioniques (en bleu) correspondant à l'instant $t_1 = 3T_L$ et définissent les grandeurs utilisées par le modèle. Tous les déplacements sont calculés par rapport à la position de référence $x_e = x_i = 0$, position à laquelle le laser est réfléchi au début de l'impulsion. Pour un angle d'incidence θ , cela correspond au point où $n = n_c \cos^2 \theta$, cela correspond également à la valeur n_0 de l'équation 3.11 au début de l'interaction.

pousser plus facilement les électrons dans un plasma moins dense. De même, lorsque l'éclairement est plus fort (grand a_L), l'enfoncement est plus important.

Comme au foyer laser l'éclairement varie à travers la tache focale, l'enfoncement est différent en tout point de la tache focale. C'est ce qui impose la courbure du miroir plasma. Sur la figure 3.7a on a représenté la densité électronique au maximum de l'impulsion laser, obtenue à partir de simulations PIC 2D, à laquelle a été superposée la courbure calculée à partir de l'équation 3.11 (courbe en pointillés rouges). Les prédictions du modèle reproduisent parfaitement la courbure du miroir plasma observée dans cette simulation réalisée avec des ions immobiles. On a représenté en pointillés rouges sur la figure 3.9b l'évolution temporelle de l'enfoncement de la surface pour la position y = 0. Dans le cas où les ions sont immobiles, les électrons s'enfoncent dans la première partie de l'impulsion laser et ils reviennent ensuite à leur position initiale dans la seconde partie de l'impulsion. Cette dynamique est modifiée si on prend maintenant en compte le mouvement des ions.

Enfoncement des ions

Dans le cas où le mouvement des ions est pris en compte, la densité n_0 de l'équation 3.11 n'est plus constante et varie temporellement. La séparation de charge induite par le champ laser entre les électrons et les ions crée un champ quasi-électrostatique dans le plasma, qui est maximum à la position x_e et tend à accélérer les ions situés aux alentours de cette position. L'accélération entraîne l'érosion du gradient de densité ionique au cours du temps. La position x_i de l'interface ions-vide se déplace vers le plasma pendant toute la durée de l'impulsion laser et la densité $n_0 = n(x_i(t))$ augmente au cours du temps (figure 3.8 et figure 3.9b).

La vitesse de déplacement de la surface ionique peut être calculée en écrivant un bilan de quantité de mouvement, et un bilan total d'énergie. Dans ce bilan d'énergie, on considère que la fraction d'énergie laser absorbée (1 - R) provient uniquement de l'accélération des



FIGURE 3.8: Courbure de la densité ionique induite par le champ laser dans le cas d'ions mobiles (b) Carte de densité ionique $n_i(x, y)$ au maximum de l'impulsion laser, obtenue à partir d'une simulation PIC, dans les mêmes conditions que celles de la figure 3.7 (a), sauf que les ions sont mobiles. Les prédictions du modèle sont représentés par les traits pointillés bleus en (a) (equation 3.12). Le panneau (b) schématise les densités électroniques (en rouge) et ioniques (en bleu) à l'instant $t_2 = 11T_L$.

3.3. MODÉLISATION DES PROPRIÉTÉS SPATIALES DES HARMONIQUES ROM51

électrons dans le plasma (R étant le coefficient de réflection du laser sur le miroir plasma). Cela mène à l'expression suivante pour la position $x_i(t)$:

$$x_i(t) = 2L \ln\left(1 + \frac{\Pi_0}{2L\cos\theta} \int_{-\infty}^t a_L(t')dt'\right)$$
(3.12)

avec $\Pi_0 = \sqrt{RZm_e \cos\theta/2AM_p}$, où Z et A sont le numéro atomique et le nombre de masse des ions, M_p est le masse des protons, m_e la masse des électrons. On peut noter la différence d'évolution avec l'amplitude laser a_L entre les électrons et les ions. Ceci est visible sur la figure 3.9b où on a représenté l'évolution temporelle $x_i(t)$ (pointillés bleus). Contrairement aux électrons, les ions ne reviennent pas à leur position initiale. Ceci est dû au fait que le déplacement des ions dépend de l'intégrale de a_L , ce qui signifie que c'est l'action cumulée du champ laser qui est responsable du mouvement ionique.

On a représenté sur la figure 3.8a la densité ionique, au maximum de l'impulsion, issue d'une simulation PIC. Le résultat de cette simulation correspond exactement à la prédiction du modèle, calculée grâce à la formule 3.12, représentée par la courbe en pointillés bleus. On voit sur cette figure que la pression de radiation inhomogène induit également une courbure sur la densité ionique. La modification du profil de densité ionique au cours de l'interaction (3.9b) occasione un changement dans le déplacement des électrons. Il est par conséquent nécessaire de voir comment est affectée l'équation 3.11 lorsqu'on prend en compte le mouvement des ions.

Enfoncement total

A cause de l'érosion du profil de densité ionique le champ laser va pousser les électrons à partir de la position $x_i(t)$ (alors qu'il les poussait depuis la position $x_i = 0$, dans le cas des ions immobiles). Par conséquent, la position des électrons est maintenant déterminée par $x_T(t) = x_i(t) + x_e(t)$ (figure 3.8b), où on a remplacé $n_0 = constante$ par $n_0 = n(x_i(t))$ dans l'expression de $x_e(t)$, donnée par l'équation 3.11. On a représenté sur la figure 3.9b l'évolution temporelle de $x_T(t)$, pour observer les contributions relatives des électrons et des ions à l'enfoncement total. Sur cette figure on voit que durant la première moitié de l'impulsion l'enfoncement total est défini par l'enfoncement des électrons alors que dans la seconde partie de l'impulsion il est dominé par celui des ions. Ainsi, la surface électronique ne retourne plus dans sa position initiale en fin d'impulsion laser. Sur la figure 3.9a, on a représenté la variation temporelle de la densité électronique prise en y = 0 issue d'une simulation PIC 2D. On peut voir que le modèle calculant l'enfoncement total des électrons (points noirs) reproduit parfaitement les résultats de la simulation PIC. Maintenant que nous sommes capables de prédire le mouvement de la surface en fonction des paramètres de l'interaction, nous allons pouvoir calculer les propriétés spatiales des harmoniques relativistes.



FIGURE 3.9: Courbure totale du miroir plasma induite par le champ laser (a) Evolution temporelle de la densité électronique prise au centre de la tache focale laser en y = 0, dans les mêmes conditions que celles de la figure 3.8 (a). Les résultats du modèle combinant l'enfoncement des électrons et des ions sont représentés par les points noirs. En (b) on peut observer la contribution relative des électrons en rouge (calculée lorsque les ions sont immobiles) et celle des ions en bleu à l'enfoncement total (en noir) au cours du temps. Le profil de l'amplitude laser est représenté dans l'encart supérieur de (b).

3.3.3 Modélisation des propriétés spatiales des harmoniques Doppler

Connaissant la forme de la surface du miroir plasma, le calcul de la divergence des harmoniques est un problème d'optique relativement simple. Un faiscau lumineux se réfléchit sur une surface courbée et l'on souhaite déterminer ses propriétés en champ lointain. Ici, le problème est légèrement différent puisque les harmoniques ne se réfléchissent pas sur un miroir, elles sont générées sur un miroir concave, mais le principe et la physique mis en jeu restent les mêmes. On note f la focale du miroir plasma concave. On peut relier cette focale à l'enfoncement δ_T de la surface du miroir plasma, calculé entre les points y = 0 et $y = \sqrt{w_L}$, où w_L est le waist laser au foyer [41], par :

$$\delta_T = \frac{w_L^2}{f} \tag{3.13}$$

La définition du paramètre δ_T est visible sur la partie gauche de la figure 3.6. A priori, la focale du miroir devrait dépendre du temps. Cependant, lorsqu'on considère la figure 3.9, on voit que l'enfoncement de la surface du miroir plasma change fortement au début l'interaction, de t = 0 à $t = 5T_L$ (avec T_L la période laser) et qu'il est quasiment constant par la suite. De t = 0 à $t = 5T_L$, l'amplitude laser est relativement faible (on est dans les pieds de l'impulsion), ce qui n'est pas suffisant pour générer effcacement des harmoniques. Comme la génération d'harmoniques est un phénomène très non-linéaire peu d'harmoniques sont générées durant ces instants. Elles sont générées majoritairement de t = 5 à $t = 20T_L$, là où l'enfoncement de la surface ne change quasiment pas. Pour le calcul des divergences harmoniques, on peut donc considérer l'enfoncement constant et égal à l'enfoncement au maximum de l'impulsion.

En supposant que dans le plan source le profil d'amplitude du faisceau harmonique est gaussien, et qu'il a un waist w_n (pour la n^{ieme} harmonique de longueur d'onde λ_n), on peut utiliser le formalisme des faisceaux gaussiens et on obtient alors la divergence du faisceau harmonique :

$$\theta_n = \theta_n^0 \sqrt{1 + (n\Psi_n)^2} \tag{3.14}$$

où $\theta_n^0 = \lambda_n / \pi w_n$ est la divergence qu'aurait le faisceau harmonique dans le cas où le miroir plasma serait plan, et Ψ_n est un paramètre sans dimension caratérisant la focalisation des harmoniques :

$$\Psi_n = \frac{2\pi}{\cos\theta} \left(\frac{w_n}{w_L}\right)^2 \frac{\delta_T}{\lambda_n} \tag{3.15}$$

Deux limites physiques peuvent être identifiées dans l'équation 3.14 :

1. Si $\Psi_n \ll 1$ le faisceau harmonique n'est pas focalisé, l'enfoncement de la surface a un effet négligeable sur l'harmonique n et les harmoniques d'ordre supérieur ou égal à n ont une divergence limitée par la diffraction depuis une surface plane :

$$\frac{\theta_n}{\theta_L} = \frac{1}{n} \frac{w_L}{w_n} \tag{3.16}$$

2. Si $\Psi_n >> 1$ la divergence des harmoniques est entièrement déterminée par la courbure du miroir plasma.



FIGURE 3.10: Evolution de la divergence harmonique en fonction de l'ordre harmonique : comparaison PIC-modèle. Les points correspondent aux résultats de simulations PIC menées pour deux couples longueurs de gradient-amplitude laser : $(L = \lambda/20, a_L = 6)$ en bleu et $(L = \lambda/8, a_L = 8)$ en rouge. En trait plein est tracée la divergence hamonique calculée, à ces deux longueurs de gradient, à partir du modèle d'enfoncement. La ligne en pointillé noir correspond à la divergence obtenue dans le cas où le miroir plasma serait plan, c'est-à-dire à θ_n^0 .

3.3.4 Validation du modèle

Le modèle d'enfoncement et des propriétés spatiales ayant déjà été validé numériquement dans la thèse d'H. Vincenti [41], nous ne présenterons ici qu'une des vérifications efffectuées. Le modèle ne donnant pas les tailles de sources harmoniques w_n , on les a obtenues à partir de simulations PIC. On valide donc le modèle uniquement pour la phase $\phi_n(y)$. On a tracé sur la figure 3.10 la divergence des harmoniques obtenue pour deux couples longueurs de gradient-intensité laser à partir des simulations PIC (points) et celle calculée à partir du modèle d'enfoncement que nous venons de décrire (lignes pleines). On voit que l'accord entre les deux est excellent. Nous avons tracé en pointillés noirs, à titre indicatif, la divergence harmonique θ_n^0 qui serait obtenue dans le cas où la surface du miroir plasma serait plane. On peut noter sur cette figure que la divergence des harmoniques est plus grande pour un gradient de $L = \lambda_L/8$ que pour un gradient de $L = \lambda_L/20$. On voit par ailleurs que la divergence des harmoniques est quasiment constante avec l'ordre harmonique. Nous allons maintenant voir, grâce au modèle, comment chacun des paramètres de l'interaction influe sur la divergence des harmoniques.

3.3.5 Prédiction du modèle

Détermination de la taille de source

Pour être en mesure de calculer la divergence des harmoniques à partir du modèle, il faut tout d'abord déterminer la taille de source w_n . Celle-ci s'obtient à partir des simulations PIC. On a tracé sur la figure 3.11 l'évolution de la taille de source harmonique en fonction de a_0 et de L. Cette figure est extraite de [28, 41]. Cette figure a été obtenue à partir de simulations PIC 1D à l'aide du code EUTERPE (cf. partie 5.3) et 2D à l'aide du code CALDER (cf. 5.2). D'après cette figure, la taille de source vaut $w_n \simeq 0.6w_L$, avec w_L le waist laser, pour une large gamme de couples (a_L, L) . Il semble raisonnable de considérer que la taille de source est indépendante de a_0 et de L. Pour étudier l'évolution de la divergence des harmoniques en fonction des paramètres de l'intéraction laser-plasma, nous considèrerons donc, tout comme dans [28, 41], que la taille de source est indépendante de a_L et L (dans la gamme de paramètres que nous étudions : $a_0 \in [1, 20]$ et $L \in [\lambda/50, \lambda/8]$) et qu'elle vaut $w_n = 0.6w_L$. Nous verrons dans la partie 10.4.2, que cette valeur de taille de source est en accord avec celle que nous avons mesurée expérimentalement.

En fonction de la longueur de gradient et de l'amplitude laser

Nous avons tracé sur la figure 3.12a l'évolution de la divergence harmonique θ_n , calculée à partir de l'équation 3.14, en fonction de la longueur de gradient L et de l'amplitude laser a_0 , pour un angle d'incidence $\theta = 55^{\circ}$ et une durée d'impulsion de 24 cycles pied à pied, dans le cas où les ions sont mobiles. Cette carte montre que l'amplitude laser influe relativement peu sur la divergence en comparaison de la longueur de gradient. Pour rendre cette différence de comportement encore plus évidente, nous avons tracé en (b) trois coupes de la carte (a) pour trois longueurs de gradient différentes. Cette figure montre que la divergence varie peu avec l'amplitude laser, alors qu'en revanche la divergence des hamoniques a quasiment doublé entre une longueur de gradient de $L = 0.05\lambda_L$ et une longueur de gradient de $L = 0.1\lambda_L$. Si maintenant on trace trois coupes de la carte (a) pour trois amplitudes laser différentes, on voit que la divergence évolue rapidement et linéairement avec la longueur de gradient, mais ces trois courbes sont quasiment identiques.

La figure 3.12 montre que la divergence des harmoniques varie fortement avec la longueur de gradient, ce qui est assez intuitif, puisqu'elle est directement liée à l'enfoncement de la surface. Plus la longueur de gradient est grande plus l'enfoncement sera grand, puisque le laser pourra pousser plus facilement les électrons, et plus la divergence des harmoniques sera grande.

En revanche, la divergence des harmoniques ne varie quasiment pas avec l'amplitude laser. Ceci est totalement contre intuitif, puisque c'est précisément la variation spatiale de l'amplitude laser qui est responsable de la courbure du miroir plasma. Alors comment se fait-il que la variation de a_0 ait si peu d'influence sur la divergence des harmoniques? Pour répondre à cette question, nous allons reprendre l'équation 3.11. On peut réécrire cette équation sous la forme :

$$x_e(t) = L\ln\left(1 + \beta a_L\right) \tag{3.17}$$





FIGURE 3.11: Evolution de la taille de source des harmoniques mesurées dans les simulations **PIC.** Les points correspondent aux tailles de source w_n/w_L , avec w_L le waist laser, calculées à l'aide des efficacités de génération η_{15-25} fournies par le code EUTERPE et les carrés aux tailles de source de l'harmonique 15, issues du code 2D CALDER. (a) Evolution des tailles de sources w_n/w_L avec l'amplitude laser a_0 pour différentes longueurs d'onde L. (b) Evolution de w_n/w_L avec L pour différents a_0 . Figure extraite de [28, 41].



FIGURE 3.12: Evolution de la divergence harmonique en fonction a_0 et L. (a) Carte de la divergence harmonique θ_n (normalisée par rapport à la divergence laser $\theta_L = 200mrad$), calculée à partir de l'équation 3.14, en fonction de l'amplitude laser a_0 et de la longueur de gradient L. (b) coupes de la carte (a) obtenues pour 3 longueurs de gradient différentes. (c) coupes de la carte (a) pour 3 amplitudes laser différentes. Divergences obtenues pour l'harmonique 25, l'impulsion laser a une durée de 24 cycles pied à pied.

$$\beta = \frac{2\lambda_L (1+\sin\theta)}{2\pi L} \frac{n_c}{n_0} \tag{3.18}$$

En prenant $a_L = 10$, $L = \lambda/10$ et en considérant que $n_c \simeq n_0$, on a $\beta a_L \sim 30$, soit $\beta a_L >> 1$. On peut donc réécrire x_e sous la forme :

$$x_e \propto \ln\left(\beta a_L\right) \tag{3.19}$$

Si maintenant on considère que l'amplitude laser a un profil gaussien $a_L = a_0 \exp(-x^2/w_L^2)$, on a :

$$x_e \propto \ln\left(\beta a_0\right) - \frac{\beta}{w_L^2} x^2 \tag{3.20}$$

Cette équation montre que la variation transverse de l'amplitude laser est bien responsable de la courbure de la surface puisque l'enfoncement x_e varie directement en x^2 . En revanche, lorsque a_0 augmente, la courbure de la surface ne change quasiment pas, puisque a_0 ne change pas la forme de la surface, la focale du miroir reste la même. Ceci explique pourquoi l'amplitude laser qui est responsable de la courbure du miroir plasma a si peu d'influence sur la divergence des harmoniques.

On peut donc à partir de ces équations séparer deux régimes d'interaction :

- 1. Si $\beta a_L \ll 1$, la surface ne s'enfonce pas et la divergence des harmoniques est donnée par l'équation 3.16. Les harmoniques diffractent depuis une surface plane.
- 2. Si $\beta a_L >> 1$, la surface s'enfonce et la divergence des harmoniques est donnée par la formule 3.14.

 a_L a donc une influence beaucoup moins continue que L. a_L détermine si on est dans le cas 1 ou 2, mais une fois dans le cas 2, si on augmente a_L , la divergence des harmoniques ne



FIGURE 3.13: Evolution de la divergence harmonique en fonction de τ_L . $\theta_L = 200mrad$, $L = 0.05\lambda_L$ et $a_0 = 5$, τ_L est donné en largeur pied à pied. Divergence obtenue pour l'harmonique 25, dans le cas où les ions sont immobiles (courbe bleue) et dans le cas où la dynamique ionique est prise en compte (courbe rouge).

varie quasiment pas. En revanche, si on est dans le cas 2, l'enfoncement x_e est proportionel à L, et la divergence des harmoniques varie quasi linéairement avec L.

Nous allons maintenant nous placer à une longueur de gradient donnée $L = \lambda_L/20$, qui comme nous le verrons dans la prochaine partie est une longueur de gradient qui permet de maximiser l'efficacité de génération des harmoniques, et à une amplitude laser donnée $a_0 = 5$, ce qui correspond à notre amplitude laser expérimentale, afin d'observer l'influence de la durée de l'impulsion sur la divergence des harmoniques.

En fonction de la durée d'impulsion

On a tracé sur la figure 3.13 l'évolution de la divergence harmonique en fonction de la durée τ_L de l'impulsion laser (pour un angle d'incidence $\theta = 55^{\circ}$). La courbe bleue correspond à la divergence des harmoniques obtenue si on considère que les ions sont immobiles. La divergence des harmoniques est constante, elle ne varie pas avec τ_L . Cela vient du fait que la réponse des électrons au champ laser est instantanée (cf. partie 3.3.2), ainsi la durée de l'impulsion laser n'a pas d'influence sur l'enfoncement des électrons. C'est pour cela que dans ce cas la divergence des harmoniques est indépendante de la durée de l'impulsion laser.

La courbe rouge correspond à la divergence obtenue dans le cas où on considère à la fois les dynamiques électronique et ionique. Dans ce cas, la divergence des harmoniques augmente lorsqu'on augmente la durée de l'impulsion laser. Nous avons vu dans la section 3.3.2 que c'est l'action cumulée du champ laser qui est responsable du mouvement ionique. Ainsi, lorsque la durée τ_L augmente, la pression de radiation inhomogène du laser s'exerce plus longtemps sur la surface et la contribution des ions à l'enfoncement augmente. Cela

entraîne par conséquent une augmentation de l'enfoncement de la surface et donc de sa courbure. La courbure croît avec la durée τ_L de l'impulsion et donc les harmoniques sont focalisées plus fortement quand la durée de l'impulsion laser augmente, entraînant une augmentation de leur divergence.

3.4 Conclusion

Nous avons dans cette partie introduit les concepts de bases de l'interaction laser-plasma à ultra-haute intensité. Nous avons également présenté les deux mécanismes de génération d'harmoniques d'ordre élevé sur cible solide : CWE et ROM. Nous disposons maintenant de modèles totalement prédictifs avec lesquelles nous allons pouvoir étudier ces harmoniques et ainsi être en mesure d'interpréter les résultats expérimentaux que nous avons obtenus. Nous allons dans la prochaine partie nous attacher à la présentation des moyens expérimentaux et numériques dont nous disposons pour étudier la génération d'harmoniques.

Deuxième partie

Moyens expérimentaux et numériques

Chapitre 4

Installation UHI100

Nous nous proposons dans ce chapitre de présenter l'installation laser UHI100 (figure 4.1) sur laquelle nous avons effectué toutes les mesures qui sont présentées dans ce manuscrit. Nous verrons tout d'abord les caractéristiques laser, puis comment on obtient l'excellent contraste laser nécessaire à la génération d'harmoniques. Nous présenterons le système de correction de front d'onde nous permettant d'obtenir une tache focale avec un excellent rapport de Strehl S > 0.8. Nous détaillerons enfin le dispositif expérimental permettant d'étudier la génération d'harmoniques.



FIGURE 4.1: Installation UHI100. Le laser est comprimé temporellement dans le compresseur. En sortie du compresseur, on dispose d'une impulsion laser centrée à 800nm de 25fs à mi-hauteur de 2.5J qui a un contraste temporel de 10^{-9} à 10ps du maximum de l'impulsion. L'impulsion est ensuite filtrée temporellement grâce au système de double miroir plasma, ce qui permet d'obtenir un contraste de $\simeq 10^{-13}$ à 10ps du maximum de l'impulsion. Le front d'onde de l'impulsion laser est ensuite mesuré grâce à un senseur de front d'onde, et les aberrations sont corrigées en utilisant un miroir déformable. L'impulsion pénètre ensuite dans l'enceinte expérimentale.

4.1 Le laser UHI100

Le laser UHI100 est un laser Titane-Sapphire développé par Amplitudes Technologies utilisant la technique d'amplification à dérive de fréquence (Chirped Pulse Amplification, CPA) [50]. L'oscillateur Titane-Sapphire délivre un train d'impulsions nanojoules de ~ 10fs centrées sur la longueur d'onde 800nm. Ces impulsions sont étirées jusqu'à 300psenviron, pour permettre leur amplification sans risquer d'endommager les optiques ou de détériorer les qualités du faisceau laser. Ces impulsions sont ensuite amplifiées dans deux étages d'amplification, puis recomprimées temporellement, grâce au compresseur (figure 4.1), pour retrouver une durée variant entre 25fs et 30fs. La variation de durée laser dépend de l'optimisation des différents paramètres (par exemple : phases d'ordre 2 ou d'ordre 3), qui s'effectue à l'aide d'un Dazzler et d'un Wizzler. Durant ma thèse je n'ai pas participé aux réglages laser. Ils ont été entièrement effectués par l'équipe laser : F. Réau, D. Garzella, O. Tcherbakoff et P. d'Oliveira.

Les impulsions générées par la technique CPA sont en général accompagnées d'un piédestal, voire de pré-impulsions. Ces défauts proviennent majoritairement d'une part de l'émission spontanée amplifiée qui intervient sur une échelle de temps nanoseconde, et d'autre part des imperfections de la recompression qui se manifestent à une échelle de temps picoseconde. Cela a pour effet de dégrader le contraste temporel de l'impulsion laser. Pour corriger ce problème et améliorer le contraste de l'impulsion, en sortie du compresseur l'impulsion est envoyée sur un système de double miroir plasma (figure 4.1), dont nous allons maintenant étudier le principe.

4.2 Amélioration du contraste temporel

Sur la figure 4.2a, on a tracé le profil temporel de l'impulsion laser issue de UHI100. On voit que le contraste à 10ps de l'impulsion principale est de 10^9 . Cela signifie que si on focalise l'impulsion à des éclairements de $10^{20}W.cm^{-2}$, le piédestal de l'impulsion va jouer un rôle dans la création d'un plasma en surface de la cible, puisque son éclairement d'environ $\sim 10^{12} W.cm^{-2}$ sera suffisant pour ioniser la cible. Pour éviter ce problème, une technique a été développée durant la thèse de Gilles Doumy [52, 53], il s'agit du système à double miroir plasma. Le principe est relativement simple, il s'agit de transformer sur une échelle de temps femtoseconde, un diélectrique peu réfléchissant qui transmet le piédestal, en un miroir plasma qui réfléchit l'impulsion principale. Il suffit ainsi de choisir correctement l'éclairement sur la cible, pour qu'elle ne soit ionisée que par le front d'onde montant de l'impulsion principale. Ainsi, c'est l'impulsion elle-même qui déclenche la formation du miroir qui la réfléchit. En utilisant un diélectrique traité anti-reflet qui transmet au moins 99.7% du piédestal, le contraste temporel est amélioré de deux ordres de grandeurs. Avec notre système utilisant un double miroir plasma, on peut ainsi augmenter le contraste temporel de quatre ordres de grandeurs, comme le montre la figure 4.2b. En extrapolant ce facteur d'amélioration aux derniers résultats obtenus sur UHI100 (présentés en figure 4.2 a), on peut considérer que le contraste du laser après le double miroir plasma est de



FIGURE 4.2: Contraste temporel du laser UHI100. En (a) est tracée la dernière mesure temporelle du contraste du laser UHI100 réalisée fin 2013. Le contraste est déjà très bon puisqu'il est de 10^9 à 10psdu maximum de l'impulsion. En (b) sont tracés les résultats qui avaient été obtenus durant la thèse d'Anna Lévy [51]. Ces résultats ont été mesurés sur le laser UHI10, qui avait un moins bon contraste laser. Ce panneau permet d'illustrer l'amélioration du contraste laser grâce au double miroir plasma. La courbe noire correspond au contraste du laser avant le double miroir plasma et la courbe rouge au contraste mesuré après le double miroir plasma. Le double miroir plasma améliore de 4 ordres de grandeur le contraste du laser. En extrapolant ce facteur d'amélioration aux derniers résultats obtenus en (a), on peut considérer que le contraste du laser après le double miroir plasma est de 10^{13} à 10ps du maximum de l'impulsion.

 10^{13} à 10ps du maximum de l'impulsion. Après avoir amélioré le contraste temporel, on envoie l'impulsion sur un miroir déformable pour corriger son front d'onde de toutes les aberrations qui peuvent être induites par les optiques de la ligne de transport du faisceau laser.

4.3 Correction du front d'onde

4.3.1 Mode de correction standard

Pouvoir corriger le front d'onde laser, et ainsi enlever toutes les aberrations qui l'affectent est très important dans les expériences à ultra-haute intensité, car cela permet d'avoir une tache focale limitée par diffraction et ainsi d'atteindre une intensité maximale. Pour corriger le front d'onde, nous utilisons un senseur de front d'onde de type Shack-Hartman (HASO) et un miroir déformable piloté par le logiciel CASAO, l'ensemble étant développé par Imagine Optic [54, 55]. J'ai participé durant ma thèse à la mise en oeuvre de ce dispositif sur la ligne UHI100.

Comme présenté sur la figure 4.3, l'impulsion laser est envoyée sur un miroir déformable, puis elle est dirigée vers l'enceinte expérimentale grâce à un miroir diélectrique. La fuite de ce miroir ($\sim 0.1\%$ en énergie) est envoyée vers le senseur de front d'onde. Grâce au dispositif de la figure 4.3, on réalise l'image de la surface du miroir déformable sur le senseur HASO. Ce dernier mesure le front d'onde, et grâce à une boucle de rétroaction,



FIGURE 4.3: Schéma expérimental de l'implémentation du miroir déformable sur la chaîne laser UHI100. Le faisceau laser provenant du double miroir plasma est réfléchi sur un miroir avant d'être envoyé sur le miroir déformable. Après réflexion sur le miroir déformable, le faisceau est envoyé vers l'enceinte expérimentale grâce à un miroir diélectrique. La fuite de ce miroir diélectrique ($\sim 0.1\%$ en énergie) est envoyée vers l'HASO. Un système optique composé de deux lentilles, une de longueur focale f = 1m et une de focale f = 50mm, permet d'imager la surface du miroir déformable sur l'HASO. L'HASO mesure ainsi exactement le front d'onde du laser sur la surface du miroir déformable.

on est en mesure de donner la forme au miroir déformable qui permet de corriger toutes les aberrations et ainsi d'avoir un front d'onde plan juste après le miroir déformable.

4.3.2 Mode de correction avancé

La méthode qui vient d'être présentée permet d'obtenir un front d'onde plan à l'entrée de l'enceinte expérimentale. Mais à l'intérieur de celle-ci les optiques réalisant le transport du faisceau sont susceptibles d'introduire des aberrations, ce qui va dégrader la tache focale et réduire l'éclairement sur cible. Pour pallier ce problème, Imagine Optic a développé un système permettant de corriger toutes les aberrations jusqu'à la tache focale et ainsi de faire une optimisation directement sur cette dernière [56, 57]. Ce système s'appelle PHA-RAO pour Phase Retrieval Adaptive Optic. Le laser UHI100 est le premier laser de haute puissance sur lequel PHARAO a été installé, testé et amélioré. Il a été implanté la première fois sur UHI100 durant ma thèse, j'ai participé au dernier développement du programme du côté utilisateur [57]. Nous donnerons ici une brève explication du fonctionnement de PHARAO.

Dans ce dispositif, le miroir déformable est couplé à une caméra CCD sur laquelle on image le plan focal du faisceau laser grâce à un objectif de microscope. Nous procédons dans un premier temps exactement de la même manière que dans le cas du mode de correction



FIGURE 4.4: Correction des aberrations de l'impulsion laser avec le système PHARAO. (a) Tache focale sans utiliser le système PHARAO. (b) Tache focale en utilisant le système PHARAO. L'échelle de couleur est la même pour les deux images. On note la disparition en (b) des rebonds présents en (a). Les courbes bleues et rouges correspondent à des coupes prises au centre de chacune des taches focales, respectivement selon l'axe horizontal et l'axe vertical. Chaque courbe a été normalisée par rapport au maximum de la tache focale (b). Cela montre que l'intensité est plus élevée en (b) qu'en (a). Ceci est encore plus visible sur les panneaux (c) et (d), où on a représenté respectivement les taches focales (a) et (b) en 3D. Les rebonds présents en (c) ont clairement disparu en (d). On peut noter également que le maximum en (c) est plus faible qu'en (d) et que la tache focale (c) est également plus large que celle en (d). Cela mène à une augmentation de l'intensité d'un facteur ~ 1.4 entre le cas sans PHARAO (a,c) et le cas avec PHARAO (b,d))

standard (figure 4.3). On mesure le front d'onde de l'impulsion laser avec l'HASO, puis on le corrige avec le miroir déformable. On obtient ainsi un front d'onde plan à l'entrée de l'enceinte. Avec la caméra on mesure alors la tache focale laser au meilleur foyer laser. Une fois cette procédure réalisée, on introduit une courbure controllée sur le miroir déformable (du "défocus") : cela va avoir pour effet déplacer le meilleur foyer du faisceau laser. On mesure la tache focale dans ce plan, et on mesure le front d'onde avec l'HASO, pour cette position du miroir déformable.

Le fait de mesurer le couple front d'onde-tache focale pour deux courbures différentes du

miroir déformable nous permet de connaître la phase introduite par les optiques disposées dans l'enceinte après le miroir déformable, grâce à un algorithme de phase retrieval [57]. Connaissant cette phase, nous pouvons la pré-compenser en utilisant le miroir déformable et nous pouvons ainsi améliorer le rapport de Strehl de la tache focale.

Une comparaison de la tache focale avec et sans PHARAO est présentée sur la figure 4.4, où on a utilisé les mêmes échelles de couleurs entre (a) et (b) et entre (c) et (d). Les coupes (réalisées au centre des taches focales) présentées ont été normalisées par rapport au maximum de la tache focale obtenue après correction par PHARAO. Cette figure montre que l'on arrive à mieux concentrer l'énergie dans la tache focale avec PHARAO (b) que sans (a). Si on observe maintenant les panneaux (c) et (d) où on a représenté les mêmes taches focales en 3D, on peut noter clairement une réduction de la taille w_L de la tache focale. En (c) on a $w_L = 7.1 \mu m$ alors qu'en (d) $w_L = 6.2 \mu m$. De plus les rebonds observables en (c) ont totalement disparu en (d). Le maximum en (d) est plus élevé qu'en (c) car l'énergie est mieux concentré. On a ainsi gagné un facteur 1.4 en intensité grâce à PHARAO.

On peut comparer la taille de tache focale que nous avons obtenue $w_L = 6.2 \mu m$ à celle qu'on doit obtenir si la tache focale est limitée par diffraction. Dans le cas d'un faisceau gaussien, cette taille vaut :

$$\phi_{FWHM} = \frac{1,02.\lambda_L.f}{D} \tag{4.1}$$

où λ_L est la longueur d'onde du laser, f la longueur focale de l'optique de focalisation et D le diamètre du faisceau laser avant focalisation. Dans notre cas, on a : $\lambda_L = 800nm$, f = 500mm et D = 70mm. Cela donne une taille de tache focale limitée par diffraction de $\phi_{FWHM} = 5.8\mu m$. Nous sommes ainsi en mesure, grâce à PHARAO, d'obtenir des tailles de tache focale qui sont quasiment celles que l'on obtiendrait si on était limité par la diffraction. La légère différence entre w_L et ϕ_{FWHM} peut s'expliquer par la présence d'aberrations chromatiques auxquelles notre système d'optique adaptative n'est pas sensible, puisqu'il ne mesure et ne corrige les aberrations du faisceau laser que pour sa longueur d'onde centrale.

Au début de ma thèse, lors de notre première campagne d'expérience, nous avions noté sur la tache la focale la présence d'une aberration que nous ne parvenions pas à corriger, ni à l'aide du système d'optique adaptative, ni en essayant d'améliorer l'alignement de notre optique de focalisation. Notre tache focale ressemblait alors à celle présentée sur la figure 4.5a, elle est allongé dans une direction. Ne parvenant pas à corriger cette aberration, nous avons placé un filtre interférentiel centré à 795*nm* dans le faisceau pour ne laisser passer que cette seule longueur d'onde. Nous avons alors mesuré la tache focale présentée sur la figure 4.5b. L'élongation de la tache focale (a) a totalement disparu en (b). Cette figure montre que l'aberration que nous cherchions à corriger était donc du chromatisme. Ce chromatisme provenait d'un léger désalignement du compresseur. Après réalignement du compresseur par l'équipe laser cette aberration a été quasiment supprimée. Nous allons voir dans la prochaine section, comment le chromatisme affecte les propriétés de l'impulsion laser.



FIGURE 4.5: Illustration des aberrations de chromatisme sur la tache focale du faisceau laser. (a) Tache focale mesurée sans filtre interférentiel. (b) Tache focale mesurée lorsqu'on place un filtre interférentiel, qui ne laisse passer que la longueur d'onde $\lambda = 795nm$, dans le faisceau. Si les taches focales présentées ici sont légèrement différentes de celles de la figure 4.4, c'est parce qu'elles ont été mesurées durant deux campagnes d'expériences différentes. Pour cette figure-ci, PHARAO n'avait pas encore été installé et l'optique de focalisation avait une longueur focale f = 300mm. Dans le cas de la figure 4.4, on avait f = 500mm.

4.4 Mesures des couplages spatio-temporels

4.4.1 Une détérioration des propriétés de l'impulsion laser

Les couplages spatio-temporels sont du chromatisme, ce sont des aberrations qui sont à la fois spatiales et temporelles. Il y a une dépendance spatiale des propriétés temporelles de l'impulsion et réciproquement [58, 59]. Ces couplages sont en général néfastes : ils dégradent la tache focale laser (figure 4.5) mais également la durée de l'impulsion au foyer où a lieu l'interaction, entraînant une baisse de l'intensité.

Ils peuvent cependant s'avérer être utile dans la compréhension de certains phénomènes physiques comme l'effet gyromagnétique [60, 61] ou dans la réalisation de nouveaux effets utiles à la science attoseconde comme l'effet phare attoseconde [31, 34, 35, 60], que nous étudierons dans la dernière partie de ce manuscrit .

Notre but est donc de contrôler ces couplages spatio-temporels afin de pouvoir :

- 1. Soit les supprimer totalement : dans l'étude des harmoniques relativistes, il est important de maximiser l'intensité sur cible car l'ordre harmonique le plus élevé généré est directement lié à l'intensité. On rappelle que plus l'intensité est élevée, plus la vitesse d'oscillation du miroir plasma est grande et plus le nombre d'harmoniques générées est grand (cf. partie 3.1). Il est donc primordial de vérifier que notre impulsion laser ne possède aucun couplage spatio-temporel afin de pouvoir garantir une intensité maximale.
- 2. Soit les introduire de manière maîtrisée, afin de pouvoir réaliser l'effet phare attoseconde (partie V).



FIGURE 4.6: **Dispositif expérimental du RIS.** La tache focale est imagée sur l'entrée d'un spectromètre imageur grâce à un objectif de microscope. La ligne bleue et la ligne en pointillés blancs montrent une ligne du faisceau dans la direction vertical et horizontale à différents points. En (a) une tranche verticale de l'impulsion laser est envoyée dans le spectromètre imageur. En (b) une combinaison permet de tourner l'impulsion laser de 90° et ainsi d'envoyer une tranche horizontale de l'impulsion dans le spectromètre imageur.

Nous avons pour cela mis en place un dispositif expérimental relativement simple, que nous nous proposons maintenant de détailler. Ce dispositif est présenté sur la figure 4.6, il s'appelle le RIS pour Rotating Imaging Spectrograph [62]. Ce dispositif de mesure de couplages spatio-temporels, n'est pas aussi élaboré et ne donne pas autant d'informations sur l'impulsion laser que d'autres techniques comme SEA TADPOLE, SEASPIDER, ou encore STRIPED FISH [63, 64, 65, 66, 67], mais il présente l'avantage d'être extrêmement simple et rapide à mettre en oeuvre.

Il consiste à imager la tache focale de l'impulsion laser sur l'entrée d'un spectromètre imageur couplé à une caméra CCD. Une combinaison interchangeable de miroirs nous permet d'étudier soit une tranche verticale de l'impulsion (figure 4.6a), soit une tranche horizontale (figure 4.6b). Nous pouvons ainsi étudier la tache focale selon les direction x et y avec une résolution spectrale. Contrairement aux autres méthodes de mesure qui nécessitent une accumulation de données en scannant des paramètres et une analyse poussée des résultats obtenus, ce dispositif fonctionne en tir unique et permet d'avoir l'information quasiment instantanément.

Les premières mesures que nous avons réalisées visaient tout d'abord à contrôler le "chirp spatial" [58] (dérive de fréquence spatiale) de l'impulsion laser. Nous verrons que ces mesures jouent un rôle crucial dans la réalisation de l'effet phare attoseconde (partie V).

4.4.2 Mesure du chirp spatial

Nous avons mesuré le chirp spatial pour dans les directions x et y lorsque les réseaux du compresseur laser sont parallèles (figure 4.7 (d,g)), lorsqu'ils sont légèrement désalignés (e,h) et lorsqu'ils sont très désalignés (f,i). Selon la direction x, direction selon laquelle



FIGURE 4.7: Mesures expérimentales effectuées avec le RIS. (a-c) Taches focales mesurées lorsqu'on augmente le désalignement des réseaux du compresseur laser (en (a) le compresseur est aligné). Une augmentation du désalignement des réseaux entraîne une augmentation du chirp spatial et donc à une élongation de la tache focale dans la direction selon laquelle le chirp spatial a été introduit. (d-f) RIS selon la direction horizontale x et (g-i) RIS selon la direction verticale y pour trois positions de désalignement des réseaux du compresseur. La première colonne correspond au cas où les réseaux sont alignés et la dernière colonne au cas où le désalignement est le plus grand. Le chirp spatial entraîne une rotation des RIS selon la direction x alors qu'il laisse inchangé les RIS selon la direction y. Cela explique l'élongation de la tache focale selon la direction x. De plus le spectre local selon cette direction est réduit. Cela signifie que la durée de l'impulsion est plus grande. Cette méthode RIS permet de contrôler finement le chirp spatial que l'on introduit sur l'impulsion laser. On la réutilisera dans la dernière partie de ce manuscrit.

a été introduit le chirp spatial, on voit que plus on désaligne les réseaux, plus la tache est allongée selon cette direction, et le spectre local de l'impulsion est réduit. Ainsi si les réseaux du compresseur sont mal alignés, l'intensité au foyer de l'interaction est réduite à cause de l'allongement de la tache focale (a-c) et de l'allongement de la durée de l'impulsion laser. Cependant, nous verrons dans la dernière partie de ce manuscrit que l'introduction de chirp spatial de manière contrôlée peut mener à des effets particulièrement intéressants dans la génération d'impulsions attosecondes.

Si on s'intéresse maintenant à la direction y, là où le chirp spatial n'a pas été introduit, on ne voit aucun élargissement spatial. On voit seulement un déplacement du spectre de l'impulsion, lorsqu'on augmente le désalignement des réseaux. Cela est dû au fait que pour effectuer ces mesures, on sélectionne une portion de l'impulsion selon la direction x et le spectre local de l'impulsion selon cette direction change selon la portion qu'on sélectionne. Ces mesures nous permettent de contrôler que le parallèlisme des réseaux est bon, puisque



FIGURE 4.8: Identification de la provenance des défauts spatio-spectraux. Intensité spectrale selon les directions x et y avec (a,b) et sans compresseur (c,d). Les traits pointillés rouges correspondent au spectre intégré spatialement (selon une direction) et les courbes bleues au spectre local au centre de la tache en x = 0. Cela montre que la coubure du RIS (a) provient d'un défaut du compresseur.

qu'on n'observe aucun chirp spatial sur les panneaux (d) et (g) de la figure 4.7. Elles mettent également en exergue un léger défaut de l'impulsion selon la direction x (panneau (d)). En effet, il semblerait que l'impulsion présente une légère courbure spatio-spectrale : un chirp spatial non-linéaire, qui ne peut être corrigé simplement avec l'alignement des réseaux. Nous allons tenter de comprendre d'où vient cette structure.

4.4.3 Un défaut spatio-spectral

Pour comprendre d'où provient cette courbure spatio-spectrale, nous avons réalisé des mesures RIS en contournant certains éléments de la chaîne laser (étireur, compresseur...). Le résultat principal de cette étude est présenté sur la figure 4.8. En (a), on a tracé le profil spatio-spectral selon la direction x de l'impulsion mesuré lorsqu'on passe par tous les éléments de la chaîne laser, comme cela est le cas lors de nos expériences. Le spectre intégré spatialement selon x seulement (courbe en pointillés rouges) n'est pas le même que le spectre local (courbe bleue) mesuré au centre de la tache focale. Cet effet n'est pas présent selon la direction y, tel que le montre le panneau (b).

Si maintenant on effectue les mesures en contournant le compresseur, cet effet disparaît (figure 4.8 (c,d)). Cela montre que le compresseur est responsable de la coubure observée sur le RIS (a). Cependant sur les RIS (c,d), l'impulsion présente un chirp spatial avant de rentrer dans le compresseur, cela signifie que le compresseur compense également certains des défauts spatio-temporels induits par d'autres éléments en amont (ex : étireur).

Nous avons voulu quantifier ce défaut en déterminant la durée de l'impulsion laser en



FIGURE 4.9: Signature temporelle de la présence de couplages spatio-temporels dans l'impulsion laser. (a) Profil spatio-temporel d'intensité (en fonction de la position x le long de la tache focale) correspondant au RIS de la figure 4.8a. (b) Profil spatio-temporel d'intensité dans le cas où l'impulsion ne présente aucun couplage spatio-temporel. (c) Variation de la durée d'impulsion $\tau(x)$ prise en x = 0pour l'impulsion du panneau (a) (traits pointillés rouges) et celle du panneau (b) (courbe bleue).

fonction de la position x, pour ainsi connaître la perte en intensité qu'il induit. Pour cela, nous avons calculé la transformée de Fourier de la mesure de la figure 4.8a, en considérant que l'impulsion a une phase constante. Cela nous permet de quantifier le défaut dans le meilleur des cas. Si l'impulsion laser n'a pas uniquement des défauts d'amplitude mais présente également des défauts sur la phase spatio-spectrale, la perte d'intensité que nous obtenons grâce à cette estimation sera encore plus grande.

La figure 4.9a montre la reconstruction de profil spatio-temporel en intensité obtenue à partir de la mesure de la figure 4.8a, moyennant cette hypothèse simplificatrice. A cause de la courbure spatio-spectrale, le profil est assymétrique par rapport à la position x = 0. Par comparaison, on a tracé en (b) le profil temporel d'une impulsion qui a le même contenu spectral que l'impulsion (a) mais qui n'a aucun couplage spatio-temporel. L'impulsion est ici évidemment symmétrique. Nous avons tracé sur le panneau (c), l'évolution de la durée de l'impulsion (a) (pointillés rouges) et celle de l'impulsion (b). Evidemment la durée de l'impulsion (b) est indépendante de la position x.

En revanche, la durée de l'impulsion (a) varie entre 35fs et 24fs, avec une valeur de $\sim 30fs$ autour du maximum de l'impulsion. Cette durée est 1.25 fois plus grande que la durée optimale qui est de 24fs. Le couplage entraîne aussi une élongation de la tache focale. On estime la perte en intensité au foyer de l'interaction à $\sim 50\%$ par rapport au cas idéal (b). Ces mesures RIS, même si elles sont incomplètes, sont par conséquent très adéquates pour caractériser simplement et rapidement les paramètres de l'impulsion laser


FIGURE 4.10: **Dispositif expérimental.** Le faisceau arrivant depuis le miroir déformable, est envoyé sur le miroir M_0 . En face du miroir M_0 est placé un miroir M_1 d'un demi pouce, de manière à générer une pré-impulsion. Un zoom de ce dispositif est présenté sur la figure 4.14a. Les deux faisceaux sont focalisés à l'aide de la même parabole hors axe. Un zoom de la superposition de la pré-impulsion (échelle de gris) et de l'impulsion principale (échelle de couleur) est présentée sur la figure 4.14b. Les deux impulsions sont focalisées sur une cible de silice. Cette cible est montée sur une platine de rotation, permettant ainsi soit d'étudier le spectre harmonique avec une résolution spatiale (θ_y, ω), soit d'étudier le profil 2D du faisceau harmonique sans résolution spectrale (θ_x, θ_y).

au foyer de l'interaction.

Une méthode de caractérisation plus complète : TERMITES, permettant d'analyser plus en détails les défauts de l'impulsion laser d'UHI100 a été développée durant les thèses de V. Gallet et G. Pariente, au sein de notre groupe. Ici, nous voulions principalement pouvoir être en mesure de contrôler le chirp spatial de l'impulsion rapidement pour mener les expériences qui sont présentées dans la dernière partie de ce manuscrit. Maintenant que nous avons présenté les caractéristiques du faisceau laser ainsi que les dispositifs permettant de les contrôler et de les améliorer, nous allons nous intéresser aux dispositifs expérimentaux permettant de mesurer le signal harmonique.

4.5 Dispositifs de mesures des harmoniques

Pour mesurer le signal harmonique, nous utilisons le dispositif expérimental présenté sur la figure 4.10. Le faisceau laser est focalisé sur une cible de silice qui est monté sur une platine



FIGURE 4.11: Résultats issus du diagnostic spatio-spectral. L'axe des absisses donne la fréquence des harmoniques et l'axe des ordonnées leur divergence. (a) Pour une intensité $I \sim 10^{17} W.cm^2$, on génère uniquement des harmoniques CWE. On retrouve la fréquence de coupure à $\omega = 20\omega_L$, correspondant à la fréquence maximale d'oscillation plasma $\omega_p^{max} \simeq 20\omega_L$ de la cible de silice (cf. partie 2.2). (b) A une intensité de $\sim 10^{20} W.cm^{-2}$, le spectre harmonique va beaucoup plus loin en ordre harmonique, cela correspond à la génération d'harmoniques ROM.

de rotation motorisée sous vide. Cette rotation nous permet d'utiliser deux diagnostics. Le premier est un diagnostic spatio-spectral et le second est un diagnostic purement spatial.

4.5.1 Diagnostic spatio-spectral

Le faisceau harmonique généré à la suite de la réflexion du faisceau principal sur la cible est envoyé sur un réseau concave Shimadzu à 1200 traits/mm à pas variable. Les harmoniques sont ainsi dispersées spectralement dans une direction et résolues angulairement dans l'autre direction. Leur profil spatio-spectral est détecté à l'aide d'une MCP (Micro Channel Plate) rectangulaire de dimension $69 \times 88mm$, couplée à un écran de phosphore dont l'image est réalisée sur une caméra. Ce dispositif a une acceptance angulaire de 140*mrad* et nous permet d'observer les ordres harmoniques de 11 à 160. Une image typique obtenue à l'aide de ce diagnostic est présenté sur la figure 4.11. On a représenté les spectres résolus angulairement obtenus pour les harmoniques CWE (a) et les harmoniques ROM (b). Ce diagnostic nous permet d'étudier les propriétés spatiales et spectrales de chaque harmonique en fonction des paramètres de l'interaction laser-plasma.

4.5.2 Diagnostic spatial

Le second diagnostic est purement spatial, et nous permet d'étudier le profil 2D des harmoniques (sans résolution spectrale). Le faisceau harmonique est envoyé sur deux lames de verre traitées anti-reflet (à la longueur d'onde du laser) placées en incidence rasante (75°), de manière à éliminer le laser réfléchi et les particules émises depuis le plasma. On filtre ensuite le faisceau harmonique en plaçant un filtre qui va sélectionner une certaine bande spectrale, permettant ainsi d'étudier un groupe d'harmoniques donné.



FIGURE 4.12: Résultats issus du diagnostic spatial. Avec ce diagnostic, on peut mesurer la divergence du faisceau harmonique en deux dimensions. On n'a en revanche pas de résolution spectrale. Profil 2D d'un faisceau d'harmoniques CWE (a) et d'harmoniques ROM (b). (Les différences de divergence entre cette figure et la précédente (4.14), s'expliquent notamment par le fait qu'elles n'ont pas été obtenues pour les mêmes conditions expérimentales, nous y reviendrons dans la partie 9).

Par exemple, avec un filtre en silicium de 250nm d'épaisseur, on peut étudier le groupe d'harmoniques H20 - H60 et avec un filtre d'étain, de la même épaisseur, le groupe d'harmoniques H10 - H15. Le faisceau harmonique est ensuite détecté à l'aide d'une MCP circulaire de diamètre 40mm, couplée à une caméra. Deux profils spatiaux mesurés avec ce diagnostic sont présentés sur la figure 4.12. Ils correspondent aux harmoniques CWE (a) et aux harmoniques ROM (b). La différence entre les deux panneaux vient du fait que pour les harmoniques CWE nous n'avons pas utilisé de filtre, alors que pour les harmoniques ROM, nous avons utilisé un filtre en silicium de 250nm d'épaisseur. C'est pour cela qu'on observe une structure en (b), qui correspond à la grille du filtre, qui n'est pas présente en (a).

Pour pouvoir effectivement observer les harmoniques sur ce diagnostic, nous avons dû utiliser le mode impulsionnel de la MCP. Ce mode nous permet d'acquérir le signal harmonique uniquement pendant une durée τ . Notre alimentation de MCP nous permet de régler τ entre 10ns et 100ns. Les mesures que nous avons effectuées ont été réalisées avec une durée $\tau = 35ns$. Pour mieux comprendre pourquoi nous avons été obligés d'utiliser le mode impulsionnel, nous avons représenté le signal que nous mesurons sans ce mode sur la figure 4.13 (a) et avec ce mode impulsionnel sur la figure 4.13 (b). Sur le panneau (a), la MCP est complètement saturée et il est impossible de mesurer le profil spatial des harmoniques. Au contraire sur le panneau (b), on est en mesure de détecter le profil spatial des harmoniques. La saturation de la MCP dans le cas (a) peut être due au rayonnement incohérent provenant du plasma. Le mode impulsionnel permet donc d'avoir une porte temporelle synchronisée sur l'arrivée des harmoniques, et ainsi de ne détecter que ces dernières.

Dans les expériences présentées dans dans ce manuscrit, nous utilisons l'un ou l'autre de



FIGURE 4.13: **Mode impulsionnel de la MCP.** (a) Lorsque la MCP n'est pas dans son mode impulsionnel, on observe une complète saturation, qui peut être due au rayonnement incohérent provenant du plasma. (b) Lorsque la MCP est dans son mode impulsionnel on peut mesurer le profil spatial 2D du faisceau harmonique.

ces deux diagnostics car ils sont très complémentaires. Nous allons maintenant présenter le dispositif que nous avons installé pour contrôler la longueur de gradient.

4.5.3 Dispositif de contrôle de la longueur de gradient

Présentation générale

Pour contrôler la longueur du gradient avec lequel l'impulsion laser va interagir, nous avons implémenté un système simple. Ce système est présenté sur la figure 4.14a. En face du miroir de transport M_0 , on a placé un miroir M_1 d'un demi pouce, de manière à générer une pré-impulsion. Le miroir M_1 est placé à une distance δ du miroir M_0 . Ainsi l'impulsion laser principale (celle servant à générer les harmoniques) se propage avec un retard τ par rapport à la pré-impulsion. Comme schématisé sur la figure 4.10, ces deux impulsions sont focalisées par la même parabole hors axe. La pré-impulsion arrive ainsi sur la cible avant l'impulsion principale. Son intensité de l'ordre de quelques $10^{16}W.cm^{-2}$ est suffisante pour créer un pré-plasma avec lequel va interagir l'impulsion principale. Il est intéressant de noter qu'il est crucial de bien choisir la fluence F de cette préimpulsion. En effet, il faut que :

- 1. F soit suffisament élevée pour ioniser la cible et créer un pré-plasma.
- 2. F ne doit pas non plus être trop élevée : il faut que l'expansion du plasma pendant la durée τ_L de la pré-impulsion soit inférieure aux longueurs de gradients Lcaractéristiques qu'on cherche à créer. Si on note $C_s(F)$ la vitesse d'expansion du plasma à la fluence F, l'expansion du plasma la plus petite qu'on peut atteindre vaut $C_s(F)\tau_L$. Pour que le pré-plasma créé par la pré-impulsion soit exploitable expérimentalement, il faut donc satisfaire le critère :

$$C_s \tau_L \ll L \tag{4.2}$$



FIGURE 4.14: Dispositif expérimental permettant le contrôle de la longueur de gradient. (a) En face du miroir M_0 est placé un miroir M_1 d'un demi pouce, de manière à générer une pré-impulsion. Les deux faisceaux sont focalisés à l'aide de la même parabole hors axe (comme le montre la figure 4.10). (b) Comme le diamètre de la pré-impulsion est plus petit que l'impulsion principale, au foyer la tache focale de la pré-impulsion (échelle de gris) est plus grande que celle de l'impulsion principale (échelle de couleur). Cela permet d'être sûr que l'impulsion principale interagit avec un plasma homogène.

Typiquement, pour étudier les propriétés des harmoniques en fonction de L, on veut $L \ge \lambda/100$. Sachant que $\tau_L = 25 fs$, il faut que la vitesse d'expansion du plasma soit inférieure à 320nm/ps. Nous verrons dans la partie 6, qu'avec nos paramètres expérimentaux nous obtenons une vitesse d'expansion $C_s = 37nm/ps$. Nous sommes donc en mesure d'étudier les propriétés des harmoniques dans la gamme d'intérêt de longueurs de gradient ($L \in [\lambda/100, \lambda/10]$).

Avant focalisation la pré-impulsion a un diamètre bien inférieur (un demi-pouce) à l'impulsion principale (75mm de diamètre). Lorsqu'on focalise ces deux impulsions, au foyer la tache focale correspondant à la pré-impulsion est plus grande que celle de l'impulsion principale (~ 6 fois), comme le montre la figure 4.14b. On est par conséquent sûr que l'impulsion principale interagit avec un plama homogène dans les directions transverses. En changeant le délai τ , on change la longueur de gradient, car l'expansion du plasma dépend directement de τ .

Expérimentalement, il est également important de pouvoir obtenir un délai $\tau = 0$ entre les deux impulsions. Mécaniquement, cela semble difficile, si l'on place un miroir devant un autre, d'obtenir $\delta = 0$. Nous avons pour cette raison utilisé une astuce qui consiste à ce que le miroir M_1 soit réflechissant uniquement sur sa face arrière, la face avant de M1 étant traité anti-reflet. Ainsi la pré-impulsion traverse une certaine épaisseur de verre avant d'être réfléchie. Elle acquiert ainsi un retard par rapport à l'impulsion principale et nous obtenons un délai $\tau = 0$ pour une distance $\delta > 0$. En effet, le retard qu'elle acquiert durant la traversée de la portion de verre, d'épaisseur d = 2mm vaut : $\Delta \tau \propto 2d.(1/v_g - 1/c)$, où v_g est la vitesse de groupe dans le verre, qui vaut $v_g \simeq 2/3c$. On peut ainsi obtenir un délai nul $\tau = 0$ en plaçant le miroir M_1 à une distance $\delta \simeq d/2$ en avant du miroir M0.

Limite du système

Il est important de noter ici qu'on contrôle grâce à ce système la longueur de gradient L_0 , qui est due uniquement à la pré-impulsion avant l'arrivée de l'impulsion principale, et non la longueur de gradient "totale" L au maximum de l'impulsion principale, qui est due à la pré-impulsion et à l'impulsion principale (figure 4.15). Si on note L_{ip} la longueur de gradient due à l'impulsion principale, on a :

$$L = L_0 + L_{ip} \tag{4.3}$$

Avec le très bon contraste de notre laser, et l'utilisation du double miroir plasma, on peut considérer que $L_{ip} \sim \epsilon \lambda$ avec $\epsilon \ll 0.1$ et ainsi pour des gradients suffisamment longs $\sim \lambda/20$, on peut considérer $L = L_0$. Cependant, pour des gradients courts, inférieurs à $\lambda/40$, la longueur de gradient L_0 est similaire à L_{ip} . Autrement dit, l'impulsion principale perturbe la longueur de gradient initiale. C'est une des limites de notre système qui rend difficile l'étude de la génération d'harmonique aux gradients extrèmement courts (inférieurs à $\lambda/40$). Nous verrons dans la partie 8 que l'on peut obtenir une estimation de L_{ip} à partir de nos résultats expérimentaux. Dans toute la suite de ce manuscrit, nous nous réfèrerons à L pour les données issues de modélisation ou de simulation et à L_0 pour les données expérimentales.

Malgré cette limitation, ce dispositif nous a permis d'étudier, pour la première fois de manière expérimentale, la génération d'harmoniques en fonction de la longueur de gradient. Les résultats de cette étude sont présentés dans la prochaine partie. Pour affiner notre étude et la compréhension de la génération d'harmoniques sur miroir plasma nous avons également à notre disposition plusieurs codes de simulations numériques. Nous les présentons dans le prochain chapitre.



FIGURE 4.15: Contrôle de la longueur de gradient. A "t = -1" les deux impulsions n'ont pas encore interagi avec la cible. A t = 0, la pré-impulsion ionise la cible, le plasma s'expand créant ainsi un préplasma ayant une longueur de gradient L_0 . A $t = \tau$, l'impulsion principale interagit avec le pré-plasma et modifie légèrement la longueur de gradient précédente en l'allongeant de L_{ip} . La longueur de gradient au maximum de l'impulsion vaut alors $L = L_0 + L_{ip}$. L'effet de l'impulsion principale sur la longueur de gradient a été volontairement accentué sur ce schéma.

CHAPITRE 4. INSTALLATION UHI100

Chapitre 5 Codes particulaires

Nous nous proposons dans ce chapitre de présenter les moyens numériques que nous utilisons lors de l'étude de l'interaction laser-plasma à très haute intensité $(I > 10^{16}W.cm^{-2})$. De façon générale, les codes de simulation numérique de plasma peuvent être séparés en deux catégories selon qu'ils utilisent une description fluide ou cinétique du plasma. L'approche fluide consiste à travailler sur des valeurs moyennes en considérant les différentes espèces de particules du plasma comme des fluides, et à résoudre numériquement les équations hydrodynamiques pour ces espèces. En revanche, avec l'approche cinétique, on considère des modèles plus détaillés prenant en compte la distribution locale des particules et impliquant les interactions entre le champ électromagnétique et ces particules.

Dans l'approche fluide, on suppose que le plasma est localement en équilibre thermodynamique. Or dans l'étude de la génération harmoniques, cette condition est rarement vérifiée. Nous utilisons donc des codes cinétiques. Nous allons tout d'abord présenter le principe de ces codes et détaillerons brièvement les deux codes que nous utilisons : CALDER et EUTERPE.

5.1 Princicipe d'un code particulaire

La description la plus directe du système laser-plasma consiste à utiliser la fonction de distribution $f(\mathbf{r}, \mathbf{v})$ dont l'évolution est régie par l'équation de Vlasov [36] :

$$\frac{\partial f}{\partial t} + \mathbf{v}\frac{\partial f}{\partial \mathbf{x}} + q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \wedge \mathbf{B})\frac{\partial f}{\partial \mathbf{p}} = \frac{\partial f}{\partial t}$$
(5.1)

Couplée aux équations de Maxwell, cette équation permet d'obtenir une description complète de la dynamique du plasma. Malheureusement, en pratique il est impossible de la résoudre dans le cas où f est une fonction à 7 dimensions (3 en position, 3 en vitesse, 1 en temps). Cette méthode est applicable uniquement si l'on considère des systèmes à trois ou quatre dimensions : une pour l'espace et deux ou trois pour les vitesses. Une autre approche consiste à ne plus considérer l'évolution de cette fonction de distribution mais celle d'un nombre important de macro-particules discrètes. C'est le principe des codes particulaires dit code PIC pour Particle In Cell.

Une macro-particule est une particule virtuelle qui représente de nombreuses particules (jusqu'à plusieurs millions d'électrons ou d'ions). L'utilisation de telles particules est possible car la force de Lorentz depend seulement du ratio charge/masse (Z/m). Ainsi une macro-particule va suivre la même trajectoire qu'une vraie particule.

La simulation PIC est ainsi une manière d'étudier un phénomène macroscopique en prenant en compte toutes les interactions microscopiques. En choisissant un maillage assez fin et des macro-particules assez petites, faire une simulation PIC revient à faire une expérience virtuelle avec des conditions initiales parfaitement définies.

Le principe d'une simulation PIC est schématisé sur la figure 5.1.

Après l'initialisation du système, le code PIC suit la procédure suivante :

- 1. Connaissant les positions et les vitesses des particules (après l'étape d'initialisation pour la première itération) on calcule les sources (densités de charges et de courant) sur les noeuds du maillage.
- 2. A partir de la connaissance des densités de charge et de courant on utilise les équations de Maxwell pour déterminer les champs sur la grille.
- 3. On interpole le champ électromagnétique au niveau des particules.
- 4. On résoud l'équation de mouvement des particules et on recommence le cycle avec un pas de temps suffisamment faible pour résoudre les hautes fréquences.

Durant ma thèse j'ai utilisé le code CALDER, développé par E. Lefebvre au CEA. Nous allons maintenant présenter ce code.

5.2 CALDER

Le code PIC CALDER est un code PIC 1D/2D/3D développé par E. Lefebvre et son équipe. Nous l'utilisons en 2D-3V, c'est-à-dire que le code gère deux dimensions de l'espace et calcule les vitesses dans toutes les directions. Les calculs ont été effectués sur les supercalculateurs du CCRT (Centre de Recherche de Calcul et Technologie). Grâce à ces supercalculateurs, nous pouvons paralléliser les calculs sur plusieurs centaines de processeurs et ainsi réduire le temps de calcul de chaque simulation. Une simulation type permettant d'étudier la génération d'harmoniques sur miroir plasma prend en général ~ 12000 heures processeurs, soit 24h si on la parallélise sur 512 processeurs.

Pour les simulations de génération d'harmoniques sur miroir plasma, la boîte de simulation est telle que celle présentée sur la figure 5.2a. Le laser est injecté depuis le haut de la boîte de simulation par des conditions de bord, il arrive avec un angle $\theta = 45^{\circ}$ par rapport à la surface de la cible, puis il est réfléchi par le miroir plasma et se propage selon la direction spéculaire z. La coordonnée x est la coordonnée transverse.

On enregistre le champ B_y à la position z_0 en fonction de x à chaque itération. Un exemple de champ B_y est représenté sur la figure 5.2b. Le fait d'enregistrer le champ en fonction



FIGURE 5.1: Schéma d'un code PIC. Après l'initialisation du système, le code calcule, à l'itération n, les sources (densité de charges et de courant) au niveau de la grille du système, puis les champs électromagnétiques, les interpole au niveau des particules, et déplace ensuite les particules, assigne les particules aux noeuds du maillage du système pour pouvoir calculer les sources à l'itération n + 1.

de x et de t nous permet d'étudier à la fois les propriétés spatiales des harmoniques et les propriétés temporelles du train attoseconde généré, ainsi que celles de chaque impulsion attoseconde. Cela nous permet, comme nous allons le voir, d'étudier les harmoniques soit dans le plan source (en z=0) soit en champ lointain. Cela nécessite évidemment l'utilisation de certains traitements numériques que nous allons maintenant détailler.



FIGURE 5.2: Illustration du diagnostic de champ utilisé dans CALDER. (a) Schéma de la boîte de simulation. Le laser incident arrive sur la cible avec un angle de 45°. Le champ est enregistré à chaque itération le long de la ligne de champ. (b) Champ $B_y(t,x)$ enregistré au niveau de la ligne de champ. Dans cette simulation, $a_0 = 6$, $L = \lambda/8$ et $\tau_L = 24T_L$.



FIGURE 5.3: Spectre résolu spatialement du champ réfléchi. (a) Spectre du champ réfléchi résolu spatialement : $E_r(x, \omega, z = 0)$. (b) Evolution de la taille de source des harmoniques en fonction de l'ordre harmonique obtenue à partir du spectre (a). Après une forte décroissance, la taille de source reste constante à partir de l'ordre 14. Dans cette simulation, $a_0 = 6$, $L = \lambda/8$ et $\tau_L = 24T_L$.

5.2.1 Harmoniques dans le plan source

Dans la pratique, on veut connaître le champ B_y non pas en $z = z_0$, mais dans le plan source en z = 0, là où a lieu la génération d'harmoniques. Pour connaître le champ B_y en z = 0, à partir du champ que l'on a enregistré en $z = z_0$, on utilise la décomposition en onde plane, détaillée dans [41]. On peut ainsi déterminer le champ $E_r(x, t, z = 0) =$ $B_y(x, \omega, z = 0)$. En calculant la transformée de Fourier de ce champ, on obtient le spectre résolu en espace du champ réfléchi. On a représenté ce spectre sur la figure 5.3a. A partir de ce spectre, on peut déterminer la taille de source w_n de chaque harmonique n, en calculant la largeur à mi hauteur du profil spatial $h_n(x)$, obtenu en intégrant spectralement le champ entre $n\omega_L - \omega_L/2$ et $n\omega_L + \omega_L/2$:

$$h_n(x) = \int_{n\omega_L - \omega_L/2}^{n\omega_L + \omega_L/2} |E_r(x, \omega, z = 0)| d\omega$$
(5.2)

On obtient alors la figure 5.3b, où on a représenté l'évolution de la taille de source en fonction de l'ordre harmonique. C'est cette méthode que nous utilisons dans la partie 10.4.2 pour comparer nos résultats expérimentaux aux résultats de simulations PIC. Grâce aux simulations PIC, nous pouvons également étudier les propriétés temporelles du train attoseconde dans le plan source.

5.2.2 Train d'impulsions attosecondes dans le plan source

Sur la figure 5.4a, on a représenté le train attoseconde dans le plan source obtenu à partir d'une simulation PIC. En intégrant ce train selon la direction spatiale, on obtient le train attoseconde de la figure 5.4b. En repérant les maximas de ce train, on peut mesurer les temps d'émissions $\tau_e(n)$ des impulsions attosecondes au cycle optique n, on obtient alors la courbe de la figure 5.5a. Comme l'émission des harmoniques se fait à chaque cycle optique, cette courbe est quasi-linéaire : $\tau_e(n) \propto nT_L$, où T_L est la période laser. Cependant, d'un



FIGURE 5.4: Train attoseconde dans le plan source. (a) Train attoseconde obtenu dans le plan source (b) Train attoseconde obtenu en intégrant spatialement le train attoseconde (a). Dans cette simulation, $a_0 = 0.8, L = \lambda/30.$

cycle à l'autre, l'instant d'émission peut varier au sein d'un cycle optique. C'est cette variation qui nous intéresse, elle nous permet par exemple de caractériser la dérive de fréquence femtoseconde des harmoniques CWE (cf. partie 2.3). En notant $\tau'_e(n)$ cette variation, on peut écrire :

$$\tau_e = \tau'_e + nT_L \tag{5.3}$$

Pour connaître la variation du temps d'émission τ'_e au sein d'un cycle optique, il suffit de retrancher la composante linéaire nT_L à la courbe donnant $\tau_e(n)$ (figure 5.5a). On obtient alors la courbe de la figure 5.5b, qui a la forme en U qui caractérise l'émission CWE (cf. partie 2.3). Cette détermination des instants d'émission τ'_e nous sera particulièrement utile dans la partie 15.

Nous allons maintenant nous intéresser à la détermination des propriétés spatiales des harmoniques en champ lointain.



FIGURE 5.5: Détermination des temps d'émission des impulsions attosecondes à partir des simulations PIC. (a) Mesure des temps d'émission τ_e , obtenue en repérant les maxima du train d'impulsions attosecondes représenté sur la figure 5.4b. (b) Mesure des temps d'émission τ'_e , donnant la variation des temps d'émission d'un cycle à l'autre, au sein d'un cycle optique. Dans cette simulation, $a_0 = 0.8$, $L = \lambda/30$.



FIGURE 5.6: Spectre résolu angulairement et divergence des harmoniques. (a) TF2D du champ réfléchi par le miroir plasma. La distance à l'origine correspond à la fréquence et l'angle polaire θ correspond à l'angle d'émission de la lumière dans l'espace (x, z). (b) Spectre résolu angulairement obtenu après interpolation de la TF2D sur les points ($\theta = k_x/k, \omega$). A partir du spectre (b), on peut mesurer la divergence de chaque harmonique. (c) Evolution de la divergence en fonction de l'ordre harmonique, obtenue à partir du spectre résolu angulairement (b).

5.2.3 Propriétés spatiales des harmoniques en champ lointain

Pour pouvoir comparer nos résultats expérimentaux aux simulations PIC, il est important de calculer le spectre harmonique résolu angulairement (en champ lointain). Pour cela, on calcule d'abord la transformée de Fourier 2D du champ $E_r(x, t, z)$. On obtient alors le champ $E_r(k_x, \omega, z)$, représenté sur la figure 5.6a. Sur ce graphe, la distance à l'origine correspond à la fréquence et l'angle polaire θ correspond à l'angle d'émission de la lumière dans l'espace (x, z). Pour déterminer le spectre résolu angulairement $E_r(\theta, \omega)$, il faut donc changer de repère. Cela se fait en interpolant le champ $E_r(k_x, \omega, z)$ sur les coordonnées polaires ($\theta = k_x/k, \omega$). On obtient alors le spectre résolu angulairement $E_r(\theta, \omega)$ présenté sur la figure 5.6b. A partir de ce spectre, on peut calculer la divergence $\Delta \theta_n$ de chaque harmonique en mesurant la largeur à mi-hauteur du profil :

$$\theta_n(x) = \int_{n\omega_L - \omega_L/2}^{n\omega_L + \omega_L/2} |E_r(\theta, \omega)| d\omega$$
(5.4)

On peut alors tracer l'évolution de la divergence en fonction de l'ordre harmonique (figure 5.6c). C'est ainsi que nous avons pu comparer la divergence des harmoniques ROM calculée à partir du modèle d'enfoncement (cf. partie 3.3.3) aux résultats de simulations PIC (figure 3.10 de la partie 3.3.4). Nous réutiliserons le champ $E_r(\theta, \omega)$ dans la partie 15, lorsque nous étudierons le "photonic streaking", une méthode permettant d'obtenir des informations temporelles dans le plan source à partir de mesures spatiales effectuées en champ lointain. Durant ma thèse j'ai utilisé uniquement le code CALDER, comme soutien aux résultats expérimentaux, mais dans ce manuscrit nous comparerons également les résultats expérimentaux aux résultats issus du code EUTERPE, qui ont été obtenus par C. Thaury et H.Vincenti, durant leur thèse [40, 41]. Nous allons donc maintenant décrire brièvement ce code.

5.3 EUTERPE

EUTERPE est un code 1D3V, développé par G. Bonnaud au CEA, c'est-à-dire qu'il ne gère l'étude que d'une seule dimension spatiale, mais peut calculer les vitesses dans toutes les directions. Il permet de simuler l'interaction d'un laser dans le cas d'une onde plane en incidence normale, mais également d'étudier l'interaction laser plasma en incidence oblique en utilisant une méthode simple initialement développée par Bourdier dans le cadre de calculs analytiques [68].

Le principe de cette méthode est d'effectuer la simulation dans un référentiel R_0 où l'onde arrive sur la cible en incidence normale. Ce référentiel est simplement en translation uniforme par rapport au référentiel du laboratoire R, à la vitesse $c \sin \theta$ où θ est l'angle d'incidence (figure 3.3). On peut ainsi passer de R à R_0 en effectuant une transformation de Lorentz. Si ce code ne permet pas l'étude de deux dimensions spatiales, il présente cependant l'avantage de pouvoir réaliser des simulations sans l'utilisation de supercalculateurs.

Nous utilisons les résultats de ce code dans la prochaine partie lorsque nous étudions la variation de l'efficacité de génération des harmoniques en fonction de divers paramètres de l'interaction laser-plasma. Nous allons maintenant présenter les résultats expérimentaux que nous avons obtenus et qui permettent pour la première fois de caractériser et de contrôler les propriétés de la source harmonique, CWE et ROM, en fonction notamment de la longueur de gradient.

CHAPITRE 5. CODES PARTICULAIRES

Troisième partie

Contrôle des propriétés de la source harmonique

Chapitre 6 Contrôle et mesure du gradient

Un des paramètres physiques essentiels de l'interaction laser-plasma, associé à la génération d'harmoniques, est la longueur caractéristique de gradient de densité plasma. Durant ma thèse nous avons réalisé la première étude expérimentale quantitative permettant de mettre en évidence l'effet de ce paramètre sur la génération d'harmoniques. Pour cela, nous avons utilisé le dispositif expérimental présenté sur la figure 4.14a. Il nous permet de générer un pré-plasma avant l'arrivée de l'impulsion principale et ainsi de contrôler précisément la longueur L du gradient de densité avec lequel interagit cette impulsion principale. Nous allons présenter dans ce chapitre les mesures réalisées sur ce pré-plasma permettant de déterminer L. Nous avons pour cela mesuré l'expansion du plasma grâce à un diagnostic interférométrique dans le domaine des fréquences [69]. Ces mesures seront utilisées dans toute la suite de ce manuscrit. Nous présenterons tout d'abord l'interférométrie dans le domaine de Fourier (FDI) dans le cas général, puis nous nous intéresserons au cas particulier de notre dispositif expérimental, et enfin nous discuterons les résultats que nous avons obtenus.

6.1 L'interférométrie dans le domaine de Fourier

6.1.1 Idée générale et dispositif expérimental

L'interférométrie dans le domaine de Fourier est utilisée pour mesurer des déphasages $\Delta \phi$ induits par une impulsion pompe lors de son interaction avec une cible [69]. Ces $\Delta \phi$ peuvent être liés à différents effets. Dans notre cas, l'impulsion pompe (ou impulsion principale) vient créer un pré-plasma ayant une longueur de L. Ensuite, avec une seconde impulsion (dite impulsion sonde), on vient sonder le milieu pour mesurer $\Delta \phi$, à partir duquel on pourra déterminer L.

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure 6.1. L'impulsion principale interagit avec la cible sur une surface environ 10 fois plus petite que le diamètre de l'impulsion sonde. L'impulsion sonde arrive sur la cible à un délai τ (réglable) de l'impulsion pompe. Nous allons pouvoir ainsi mesurer l'expansion du plasma en fonction de τ , ce qui nous



FIGURE 6.1: Dispositif expérimental de l'interférométrie dans le domaine des Fourier.

donnera la vitesse C_s d'expansion du plasma. Nous aurons ainsi la correspondance entre le délai τ et la longueur de gradient L. Ce qui nous sera d'une aide précieuse lors nos expériences de génération d'harmoniques.

On réalise l'image de la zone d'interaction sur un spectromètre imageur grâce à un triplet de longueur focale f = 200mm. L'utilisation d'un triplet nous permet d'éviter l'introduction d'éventuels aberrations optiques qui pourraient dégrader nos mesures. La tache focale de l'impulsion sonde étant beaucoup plus grande que celle de l'impulsion pompe, l'impulsion sonde n'est perturbée qu'autour de son centre (là où l'impulsion pompe a interagi avec la cible) et reste inchangée partout ailleurs. Si on fait interférer la partie non perturbée avec la partie perturbée de l'impulsion, on pourra mesurer le $\Delta \phi$ induit par l'impulsion pompe. Pour cela, on a placé entre le triplet et le spectromètre imageur, un interféromètre de Mach-Zender. Grâce à cet interféromètre, on génère une réplique de l'impulsion sonde, on a ainsi deux impulsions sondes identiques. Cet interféromètre est réglé de manière à ce qu'à sa sortie les deux impulsions sondes issues des deux bras de l'interféromètre soient décalées spatialement et angulairement. On peut alors faire interférer la partie non-perturbée d'une des impulsions avec la partie perturbée de l'autre impulsion. On mesure les interférences entre les deux impulsions à l'aide du spectromètre imageur. Ce dernier nous permet de mesurer des interférogrammes avec une résolution spatiale. On sera ainsi capable de mesurer le déphasage $\Delta \phi$ en fonction de la coordonnée transverse $x : \Delta \phi(x)$ et donc de déterminer L(x). En principe la deuxième dimension de l'interférogramme qui est une dimension spectrale permet d'observer l'expansion du plasma en tir unique si l'impulsion sonde est chirpée temporellement [70]. Durant notre expérience, nous n'avons pas chirpé cette impulsion et avons donc mesuré $\Delta \phi$ pour chaque



FIGURE 6.2: Interférogrammes. Interférogrammes obtenus lors d'un tir de référence (a) et lors d'un tir avec l'impulsion pompe (b).

délai τ . Nous allons décrire dans la prochaine section la procédure qui nous permet d'obtenir $\Delta \phi$ à partir de l'interférogramme. Nous exprimerons enfin L en fonction de $\Delta \phi$.

6.1.2 Mesure de la longueur de gradient

Pour mesurer la longueur de gradient à partir de nos mesures FDI, nous avons mesuré la différence de phase $\Delta \phi$ à partir de franges spatiales. La mesure s'effectue en deux temps : d'abord on réalise un tir de référence sans l'impulsion pompe, puis un "vrai" tir laser avec l'impulsion pompe.

Réalisation d'un tir de référence (sans impulsion pompe)

En sortie de l'interféromètre, les impulsions issues des deux bras sont décalées angulairement de Δk_x . En considèrant que les deux bras de l'interféromètre sont parfaitement équilibrés, on a $|E_1(k_x)| = |E_2(k_x)| = |E(k_x)|$. On peut donc écrire le champ électrique total E_{tot} en sortie de l'interféromètre :

$$E_{tot}(k_x) = E(k_x) + E(k_x) \otimes \delta(k_x + \Delta k_x) \cdot \exp(-i\phi)$$
(6.1)

où ϕ est la différence de phase entre les faisceaux des deux bras. Expérimentalement, on mesure l'amplitude du spectre du signal, soit au foyer image (sur le détecteur) :

$$I_{tot}(x) = |TF(E_{tot})|^2 = |TF(E(k_x))|^2 |1 + \exp{-i(\phi + \Delta k_x \cdot x)}|^2$$
(6.2)

Soit :

$$I_{tot}(x) = 2.|TF(E(k_x))|^2 (1 + \cos(\phi + \Delta k_x \cdot x))$$
(6.3)

A partir des franges constituant le signal (figure 6.2), on peut extraire la phase $\phi + \Delta k_x x$ en utilisant le traitement numérique développé par Takeda [71]. En effectuant une transformée de Fourier par rapport à x du signal mesuré, on obtient la figure 6.3a. L'information qui nous intéresse se trouve dans les deux pics de Dirac entourés en rouge. Ces pics sont dus au terme en $\cos(\phi + \Delta k_x x)$ dans l'équation 6.3. En filtrant un de ces deux pics, et en réalisant une transformée de Fourier inverse sur cette fonction filtée (pour revenir dans l'espace de départ), on obtient alors la phase $\phi + \Delta k_x x$. Nous pouvons maintenant réaliser un tir avec l'impulsion pompe pour pouvoir déterminer la longueur de gradient.



FIGURE 6.3: Transformée de Fourier d'un interférogramme obtenu lors d'un tir de référence. Le terme en $\cos(\phi + \Delta k_x \cdot x)$ donne deux pics dans la transformée de Fourier de l'interférogramme (identifiés par les cercles rouges). On filtre un des deux pics pour pouvoir déterminer la phase $\phi + \Delta k_x \cdot x$. Le filtre est schématisé en pointillés blancs sur cette figure, le filtre vaut F = 1 à l'intérieur des pointillés et F = 0 à l'extérieur.

Réalisation d'un tir laser avec l'impulsion pompe

En considérant toujours que les bras sont parfaitement équilibrés, on peut écrire le champ électrique total E_{tot} en sortie de l'interféromètre :

$$E_{tot} = E(k_x) + \sqrt{R} \cdot E(k_x) \otimes \delta(k_x + \Delta k_x) \cdot \exp\left(-i(\phi + \Delta \phi)\right)$$
(6.4)

avec \sqrt{R} le coefficient de réflexion du champ électrique laser sur le plasma et $\Delta \phi$ la différence de phase que l'on cherche à mesurer. En utilisant le même traitement que dans le cas du tir de référence et connaissant $\phi + \Delta k_x \cdot x$, on peut déterminer $\Delta \phi$, en soustrayant la phase du tir de référence à la phase du tir réalisé avec l'impulsion pompe.

Aux temps suffisamment longs, on peut considérer que la perturbation de phase est uniquement due à l'expansion du plasma et donc au déplacement de la surface de réflexion de

6.2. SYNCHRONISATION POMPE-SONDE

l'impulsion sonde [72]. On peut donc déduire, comme illustré sur la figure 6.4, la longueur de gradient créée par l'impulsion pompe à partir de la formule :

$$L \simeq \frac{\Delta \phi}{2.\cos\theta} \cdot \frac{\lambda}{2.\pi} \tag{6.5}$$

En comparaison des géométries habituelles utilisées pour les mesures FDI, nous avons utilisé une géométrie particulière que nous allons maintenant détailler.

6.2 Synchronisation pompe-sonde

Dans les expériences de FDI habituelles, les impulsions pompe et sonde arrivent sur la cible depuis deux chemins séparés, et sont créées largement en amont de la zone d'interaction (depuis la chaîne laser). Elles sont ensuite focalisées indépendamment l'une de l'autre pour réaliser les mesures. Cela présente une difficulté majeure, qui est la synchronisation des deux faisceaux. Pour pallier ce problème, nous avons utilisé un dispositif similaire à celui de la figure 4.10. Nous présentons ce dispositif sur la figure 6.5. Il présente l'avantage de créer la pompe et la sonde à partir du même faisceau initial et ce très près de la zone d'interaction (une seule optique sépare la création des impulsions pompe-sonde de la zone d'interaction).

Le miroir M_1 sert à générer l'impulsion pompe. Pour obtenir l'impulsion sonde, nous avons placé un masque dans le faisceau qui sélectionne un faisceau de $200 \mu m$ de diamètre seulement. Le masque laisse évidemment passer l'impulsion pompe. Les deux impulsions



FIGURE 6.4: Détermination de la longueur de gradient à partir d'un déphasage mesuré. Du fait du gradient créé par l'impulsion pompe, les faisceaux perturbés (1) et non-perturbés 2 ne sont pas réfléchis sur la même surface, ce qui entraîne un déphasage $\Delta \phi$ entre les deux. Ce déphasage peut s'exprimer en fonction de la longueur de gradient : $\Delta \phi = 2k_L \cos \theta L$, où $k_L = 2\pi/\lambda_L$ est le vecteur d'onde de l'impulsion sonde.

sont ensuite focalisées sur la cible par la même parabole hors axe. Grâce au contrôle de la distance δ entre les miroirs M_1 et M_0 , on peut contrôler le délai τ et ainsi changer la longueur de gradient que l'on cherche à déterminer. Cela nous permet de caractériser le pré-plasma, créé par l'impulsion issue de M1, que l'on uitilise dans nos expériences de génération d'harmoniques. Nous allons maintenant nous intéresser aux résultats que nous avons obtenus.



FIGURE 6.5: Dispositif expérimental permettant de générer l'impulsion pompe et l'impulsion sonde.

6.3 Résultats des mesures FDI

Nous avons représenté sur la figure 6.6a, la différence de phase $\Delta \phi(x, \tau)$ résolue spatialement en fonction de la coordonnée transverse x de la zone d'interaction, que nous avons mesurée pour différentes valeurs du délai τ . On peut noter que cette différence de phase



FIGURE 6.6: Résultats des mesures FDI. (a) Différences de phase mesurées pour différences valeurs de délai τ , en fonction de la coordonée transverse x. (b) Evolution de la longueur de gradient de densité en fonction du délai τ . De cette évolution on peut déterminer la vitesse d'expansion : $C_S = dL/d\tau = 37nm/ps$.

6.3. RÉSULTATS DES MESURES FDI

augmente lorsqu'on augmente le délai τ . Ceci est normal puisque l'expansion du plasma augmente avec le délai τ . A un délai donné, elle est maximale au centre de la tache focale, en x = 0 (là où la fluence de l'impulsion pompe est maximale). A partir des mesures présentées sur le panneau (a), on peut déduire, grâce à la formule 6.5, l'évolution de la longueur de gradient L en fonction du délai τ . On voit que L varie linéairement avec τ . De cette évolution on peut déduire la vitesse d'expansion du plasma $C_s = dL/d\tau$. Nous avons obtenu $C_s = 37nm/ps$ pour une fluence de l'impulsion pompe de $2.75 \times 10^2 J/cm^{-2}$.



FIGURE 6.7: Mesure de la vitesse d'expansion du plasma en fonction de la fluence Variation de la vitesse d'expansion $C_s = dL/dt$, mesurée en x = 0, déduite des mesures présentées en (a), en fonction de la fluence. L'encart montre l'évolution de la température des électrons (prise à la densité critique n_c) en fonction de la fluence, obtenue à l'aide de simulations hydrodynamiques réalisées avec le code ESTHER.

Nous présentons sur la figure 6.7, la dépendance de la vitesse d'expansion C_s en fonction de la fluence de l'impulsion. Cette dépendance (au-delà du seuil requis pour ioniser la cible) est quasi-linéaire avec la fluence. Des simulations hydrodynamiques, réalisées avec le code 1D ESTHER dans des conditions comparables à celles de l'expérience (encart de la figure 6.7), montrent que cette variation peut être attribuée essentiellement à une augmentation de la température T_e des électrons avec la fluence de l'impulsion pompe, due à une augmentation de l'énergie absorbée. Nous utiliserons la dépendance de la vitesse d'expansion avec la fluence de l'impulsion dans la quatrième partie de ce manuscrit.

Nous sommes maintenant capables de générer un pré-plasma avec un système relativement simple. Nous sommes capables de quantifier ce pré-plasma. Nous allons pouvoir étudier dans les prochains chapitres comment et pourquoi ce système s'avère être un atout majeur lorsqu'on étudie la génération d'hamoniques sur miroir plasma.

Chapitre 7

Régime de bas éclairement (CWE)

Nous allons nous intéresser dans ce chapitre aux résultats expérimentaux que nous avons obtenus lors de notre étude des harmoniques CWE. Nous allons voir comment nous avons modifié le dispositif expérimental afin d'étudier spécifiquement ces harmoniques. Nous présenterons les premiers résultats permettant de mettre en évidence l'influence de la longueur de gradient sur les harmoniques (efficacité de génération, divergence et largeur spectrale). Nous étudierons également l'influence de l'intensité laser sur leur divergence et leur efficacité de génération . Nous terminerons en présentant une méthode permettant de contrôler la divergence des harmoniques, en utilisant la phase du laser incident.

7.1 Dispositif expérimental

Pour étudier uniquement les harmoniques CWE, il est important de se placer à des intensités inférieures à ~ $10^{18}W.cm^{-2}$ (au-delà on génère aussi des harmoniques ROM). Pour obtenir de telles intensités, nous avons placé un masque dans le faisceau laser entre le couple de miroirs (M_0, M_1) et la parabole de focalisation (cf. figure 4.10). Ce masque laisse évidemment passer la pré-impulsion mais également un faisceau de 15mm de diamètre qui va générer les harmoniques (dit faisceau principal). Avec la parabole de focalisation que nous utilisons, qui a une longueur focale de 200mm, nous obtenons une tache focale à mi-hauteur de $12\mu m$ (figure 7.1), ce qui nous permet de limiter l'éclairement à $\sim 5 \times 10^{17} W.cm^{-2}$, et ainsi d'être sûr de n'étudier que les harmoniques CWE, l'éclairement étant trop faible pour générer des harmoniques relativistes. La différence de diamètre entre la pré-impulsion et le faisceau principal nous assure qu'au foyer de l'interaction la tache focale de la pré-impulsion a un diamètre ~ 2 fois supérieur à celle du faisceau principal (figure 7.1), ainsi le faisceau principal va interagir avec un pré-plasma relativement homogène dans les directions transverses. Nous allons maintenant présenter les premiers résultats expérimentaux permettant d'étudier l'évolution des propriétés des harmoniques CWE en fonction de la longueur de gradient.



FIGURE 7.1: Superposition de la tache focale de la pré-impulsion et de celle du faisceau principal. La tache focale du faisceau principal est représentée en échelle de bleus, elle a une taille de $12\mu m$. Celle de la pré-impulsion est représentée en échelle de gris elle a une taille de $20\mu m$.

7.2 Effet de la longueur de gradient

7.2.1 Optimisation de l'efficacité de génération

Observation expérimentale

Nous avons dans un premier temps étudié l'influence de la longueur de gradient L_0 sur la génération d'harmoniques CWE. Nous avons pour cela utilisé le montage que nous avons décrit dans la partie 4.5 (figures 4.10 et 4.14). Nous avons tracé sur la figure 7.2a la variation du signal harmonique en fonction de L_0 , pour plusieurs ordres harmoniques. Ces courbes ont été obtenues en intégrant spatialement et spectralement, pour chaque harmonique, les spectres harmoniques résolus angulairement, mesurés expérimentalement (tel que ceux présentés sur la figure 4.11 dans la partie 4.5). Sur la figure 7.2a, on peut noter deux points importants : le signal harmonique atteint un maximum aux alentours de $L_0 = \lambda/30$ et la position de ce maximum dépend de l'ordre harmonique. En effet, plus l'ordre harmonique considéré est élevé est plus ce maximum se déplace vers des gradients courts.

Interprétation

Nous avons ensuite voulu comparer nos résultats expérimentaux aux résultats de simulations PIC. Nous avons pour cela utilisé les résultats qu'avait obtenus C. Thaury durant sa thèse avec le code PIC 1D EUTERPE [40]. Nous présentons les résultats de ces simulations sur la figure 7.2b. Sur cette figure, nous avons tracé l'évolution du signal harmonique en fonction de la longueur de gradient pour les ordres harmoniques 3 (courbe verte), 8 (courbe rouge), et le groupe d'harmoniques H4 - H10 (courbe bleue). Nous avons superposé pour



FIGURE 7.2: Variation du signal harmonique en fonction de la longueur de gradient. Variation du signal harmonique en fonction de la longueur de gradient pour plusieurs ordres harmoniques mesurés expérimentalement (a) et obtenus à partir des simulations PIC 1D (EUTERPE) (b). La ligne en pointillés jaunes en (b) correspond au signal harmonique sommé entre les harmoniques 12 et 16 obtenu expérimentalement. La simulation a été obtenue pour $a_0 = 0.2$ et $n_{e0} = 110n_c$. Les traits reliant les points sont simplement des guides visuels.

comparaison le signal harmonique obtenu expérimentalement pour le groupe d'harmoniques H12 - H16 (courbe en pointillés jaunes). Les courbes expérimentales suivent exactement la même évolution que les courbes issues des simulations. Cela montre que l'accord entre les données expérimentales et les résultats de simulation est très bon. Sur les courbes provenant des simulations, tout comme mesuré expérimentalement, on note également la présence d'un maximum du signal harmonique dans les simulations vers $L = \lambda_L/30$, et la position de ce maximum dépend de l'ordre harmonique considéré : lorsque l'ordre harmonique augmente, le maximum se déplace vers des gradients plus courts.

La raison majeure expliquant cette évolution du signal harmonique en fonction de la longueur de gradient est que l'amplitude du pic de densité électronique qui se propage à l'intérieur du plasma, et qui excite les oscillations plasmas, varie avec L. Cela est visible sur la figure 7.3, où on a tracé le profil du pic de densité électronique pris à différents instants au cours de sa propagation dans le plasma, issu d'une simulation PIC réalisée avec EUTERPE. Cette figure montre que la forme du profil de densité évolue en fonction de sa position x à l'intérieur du plasma. La concentration des électrons augmente avec x (pour $x \in [0, 0.6\lambda]$) jusqu'à atteindre un maximum en $x_{max} = 0.06\lambda$ puis diminue avec x (pour $x > 0.06\lambda$). Cela signifie que l'amplitude des oscillations plasmas responsables de l'émission d'harmoniques atteint un maximum à la position x_{max} , ce qui va maximiser la génération d'harmonique atteint un maximum à une longueur de gradient particulière et ensuite pourquoi la position de ce maximum dépend de l'ordre harmonique.

Considérons tout d'abord une harmonique n donnée. La position dans le plasma x_{gen}^n à



FIGURE 7.3: **Propagation du pic de densité électronique dans le gradient de densité.** Profils de densité des électrons énergétiques, pris à différents temps dans un cycle optique (le délai entre deux courbes successives est de 0.045 période laser). Figure extraite de la thèse de C. Thaury [40].

laquelle cette harmonique est générée dépend de la longueur de gradient. Plus L est grand et plus x_{gen}^n est grande. Ainsi pour des longueurs de gradients L telles que $x_{gen}^n < x_{max}$, le pic de densité électronique est faible par rapport à sa valeur maximale, l'harmonique nsera générée peu efficacement. En revanche, pour des L telles que $x_{gen}^n \sim x_{max}$, le pic de densité atteint un maximum, l'efficacité de génération de l'harmonique n atteint elle aussi un maximum. Enfin pour des L telles $x_{gen}^n > x_{max}$, l'efficacité de génération diminue. Cela correspond exactement à ce que nous avons observé expérimentalement pour un ordre harmonique donné, le signal harmonique croît jusqu'à un maximum puis décroît. Si maintenant on considère une longueur de gradient donnée, l'ordre harmonique généré à x_{max} sera généré plus efficacement que les autres ordres harmoniques. Lorsqu'on change L, l'ordre généré à x_{max} change (puisque la densité plasma à x_{max} a changé), il augmente si L diminue. Cela explique pourquoi la position du maximum de signal harmonique, mesurée expérimentalement, est obtenue pour des gradients plus courts pour des ordres harmonique élevés (H16) que pour des ordres harmoniques "faibles" (H11).

Cela montre que l'on peut optimiser le signal harmonique en contrôlant la longueur de gradient du plasma. Ceci est un résultat très important en vue de l'utilisation des harmoniques CWE comme source XUV [42]. Dans cette perspective, il est également crucial de connaître les propriétés spatiales et spectrales du faisceau XUV en champ lointain. Nous allons donc maintenant présenter l'évolution de la divergence et de la largeur spectrale en fonction de la longueur de gradient.

7.2.2 Divergence et largeur spectrale

Observation expérimentale

Pour étudier les propriétés spatiales et spectrales en fonction de L_0 , nous avons décidé de n'utiliser que 35% de l'énergie laser disponible. La décision de réduire l'énergie nous permet de réduire la longueur de gradient L_{ip} due à l'impulsion principale. En effet, lorsqu'on

observe la figure 7.2, on peut voir que le signal harmonique n'est pas nul lorsque L est nul. Ceci est dû au fait, comme nous l'avons vu dans la partie 4.5.3, que $L = L_0 + L_{ip}$. En réduisant l'éclairement on peut ainsi réduire L_{ip} et étudier la dépendance de la divergence et des propriétés spectrales pour des gradients L plus courts. On a tracé sur la figure 7.4 deux spectres résolus angulairement obtenus expérimentalement pour $L_0 \simeq \lambda/300$ (a) et $L_0 \simeq \lambda/50$ (b). On peut noter trois différences majeures : entre (a) et (b), le signal harmonique a augmenté (c'est ce que nous venons de voir dans la section précédente), la divergence des harmoniques a fortement augmenté, elle a été multipliée par un facteur ~ 5 et la largeur spectrale de chaque harmonique a également augmenté.

Nous nous sommes donc intéressés à l'évolution de la divergence et de la largeur spectrale des harmoniques en fonction de la longueur de gradient. Nous avons tracé leur évolution sur la figure 7.5. Sur cette figure, le panneau (a) correspond à la divergence des harmoniques et le panneau (c) à la largeur spectrale des harmoniques mesurées expérimentalement. Ces panneaux montrent que ces deux propriétés des harmoniques augmentent de façon monotone avec L_0 . Pour mieux appréhender la raison de ces évolutions, nous avons voulu comparé nos résultats à ceux prédits par le modèle CWE, que nous avons présenté dans la partie 2.4 [44, 39]. Nous avons tracé les résultats issus du modèle sur la figure 7.5(b,d). L'accord entre les données mesurées expérimentalement et celles calculées à partir du modèle est excellent. Expérimentalement, tout comme avec le modèle, on note que la divergence des harmoniques (a,b) augmente d'un facteur ~ 5 entre $L_0 = 0$ et $L_0 \simeq \lambda/50$, et qu'elle est constante pour tous les ordres harmoniques. La largeur spectrale des harmoniques, quand à elle, augmente d'un facteur ~ 2 entre $L_0 = 0$ et $L_0 \simeq \lambda/50$ et elle augmente avec l'ordre harmonique. Nous allons maintenant utiliser le modèle CWE pour comprendre l'influence de L_0 sur ces propriétés des harmoniques.



Interprétation

FIGURE 7.4: Influence de la longueur de gradient sur les harmoniques CWE. Spectre résolu angulairement obtenu pour une longueur de gradient de $L_0 \simeq \lambda/300$ (a) et $L_0 \simeq \lambda/50$ (b).

Nous allons plus particulièrement nous intéresser à la variation des instants d'émissions t_e avec la longueur de gradient. En effet, nous avons vu dans la partie 2 que les temps d'émissions des harmoniques des CWE varient en fonction de l'amplitude laser. Or, comme celle-ci varie à la fois temporellement et spatialement au foyer de l'interaction, cela introduit une phase spectrale et une phase spatiale sur les harmoniques CWE. Pour comprendre les résultats de la figure 7.5, il est donc important de connaître l'évolution de ces deux phases avec L. Nous avons, par conséquent, tracé sur la figure 7.6a la variation de l'instant d'émission t_e en fonction de L et de a_0 (l'amplitude laser normalisée), calculée à l'aide de l'équation 2.5. Cette carte montre que l'instant d'émission t_e augmente lorsque a_0 diminue. La variation de t_e avec a_0 est responsable des phases spectrale et spatiale. Nous allons pouvoir, grâce à cette carte, déterminer comment cette variation de t_e , et donc les phases des harmoniques, évoluent en fonction de L. Pour simplifier, nous allons nous intéresser uniquement à l'évolution de la phase spectrale

Pour simplifier, nous allons nous intéresser uniquement à l'évolution de la phase spectrale avec L, on peut effectuer le même raisonnement pour la phase spatiale (la variation



FIGURE 7.5: Influence de la longueur de gradient sur la divergence et la largeur spectrale des harmoniques CWE. Evolution de la divergence θ_n de plusieurs harmoniques, obtenue expérimentalement (a) et à partir du modèle CWE (b). La divergence laser vaut $\theta_L = 75mrad$. (c,d) Variation de la largeur spectrale $\Delta \omega / \omega_L$ des harmoniques en fonction de la longueur de gradient obtenue expérimentalement (c) et avec le modèle CWE (d). Les paramètres du modèle sont : une amplitude laser $a_0 = 0.3$, un waist laser $w_L = 12\mu m$, une durée d'impulsion de 25fs. Les légères différences entre les courbes expérimentales et celles issues du modèle sont dues aux fluctuations tir à tir dans la manipulation. On rappelle que chacun des points des courbes expérimentales correspondent à un seul tir laser.

7.3. EFFET DE L'ÉCLAIREMENT

de l'amplitude laser étant "identique" temporellement et spatialement). Plaçons nous dans le cas où l'impulsion laser a un profil temporel tel que son amplitude varie entre $a_0 = 0.1$ et $a_0 = 1$. Dans ce cas, d'après la figure 7.6a, la variation des instants d'émissions augmente avec L. En effet, l'instant d'émission des harmoniques CWE varie entre $t_e =$ $1.4T_L$ et $t_e = 0.8T_L$ pour $L = 0.04\lambda$, alors qu'il varie seulement entre $t_e = 0.8T_L$ et $t_e = 0.55T_L$ pour $L = 0.005\lambda$ (figure 7.6b). Cela signifie que la phase spectrale des harmonique est plus grande pour $L = 0.04\lambda$ que pour $L = 0.005\lambda$. Autrement dit, la phase spectrale des harmoniques CWE augmente avec L, donc la largeur spectrale des harmoniques augmente avec L, ce qui explique les résultats présentés sur la figure 7.5(c,d). De même, la phase spatiale des harmoniques augmente avec L et c'est pour cela qu'on mesure une augmentation de la divergence des harmoniques avec L (figure 7.5(a,b)). Nous allons présenter dans la prochaine section l'étude que nous avons menée sur la dépendance des propriétés des harmoniques CWE en fonction de l'éclairement.



FIGURE 7.6: Variation de t_e en fonction de a_0 et L. (a) Carte donnant l'instant d'émission t_e des harmoniques en fonction de l'amplitude laser a_0 et de la longueur de gradient L. L'échelle de couleur donne t_e en unité de période laser T_L . Le panneau (b) représente deux coupes de (a) réalisées le long des traits pointillés blancs pour $L = 0.005\lambda$ et $L = 0.04\lambda$.

7.3 Effet de l'éclairement

7.3.1 Observation expérimentale

Pour varier l'éclairement laser nous disposons d'un atténuateur qui est placé dans la chaîne laser et qui nous permet de contrôler l'énergie de l'impulsion laser. Nous pouvons ainsi mesurer les propriétés des harmoniques en fonction de l'éclairement. La gamme d'éclairement que nous pouvons atteindre varie dans nos présentes conditions entre $a_0 = 0.15$ et $a_0 = 0.5$. Nous avons réalisé les mesures pour une longueur de gradient $L_0 \simeq \lambda/20$. On a tracé sur la figure 7.7a la vaiation de la divergence θ_n des harmoniques H11 à H15 en fonction de l'éclairement. On peut noter qu'elle augmente de manière monotone avec l'éclairement, elle a augmenté d'un facteur ~ 4 entre $a_0 = 0.15$ et $a_0 = 0.5$. Pour



FIGURE 7.7: Variation de la divergence des CWE en fonction de l'éclairement. Evolution de la divergence θ_n des harmoniques H11 à H15 en fonction de l'éclairement, mesurée expérimentalement (a) et obtenue à partir du modèle CWE (b), pour une longueur de gradient $L_0 = \lambda/50$.

comprendre cette évolution, nous avons voulu comparer nos résultats aux prédictions du modèle, et avons obtenu l'évolution représentée sur la figure 7.7b. Cette évolution est en totale contradiction avec celle que nous avons mesurée expérimentalement : θ_n décroît lorsque a_0 augmente. Nous avons alors décidé d'utiliser notre deuxième diagnostic, qui nous permet d'étudier le profil spatial 2D des harmoniques (cf. partie 4.5.2) afin de voir si cette évolution est la même dans les deux directions. Nous avons obtenu les résultats présentés sur la figure 7.8. Sur les panneaux supérieurs de la figure, nous avons tracé les profils spatiaux des harmoniques obtenus pour trois éclairements différents. Ces profils spatiaux correspondent au groupe d'harmonique 7-20 (l'harmonique 7 est l'harmonique la plus basse détectée par la MCP et l'harmonique 20 est celle la plus haute générée). L'évolution de la divergence du faisceau harmonique dans les deux directions x et y est tracée sur le panneau inférieur de la figure. On peut noter que l'augmentation de la divergence avec l'éclairement est identique dans les deux directions. Et pour l'éclairement le plus faible, le faisceau harmonique est très peu divergent, sa divergence est ~ 7 fois plus faible que la divergence du laser, qui est de 75mrad. Dans certaines expériences d'applications, il peut être particulièrement intéressant de disposer d'une source XUV peu divergente ayant un profil spatial 2D tel que celui présenté sur la figure 7.8a. Il est donc primordial de comprendre la raison du désaccord entre nos mesures expérimentales et les prédictions du modèle.

7.3.2 Interprétation

Pour comprendre ce désaccord, nous avons cherché à déterminer quels autres paramètres pouvaient être modifiés expérimentalement lorsqu'on change l'énergie laser. Les deux principaux paramètres que nous avons identifiés sont la longueur de gradient L_0 créé par la pré-impulsion ainsi que la longueur de gradient L_{ip} due à l'impulsion principale. En effet, en changeant l'énergie laser, on modifie la fluence de la pré-impulsion. Or, comme nous l'avons vu dans la partie 6.3, la vitesse d'expansion du plasma dépend de la fluence laser, ceci signifie que lorsque nous changeons l'énergie, nous changeons la vitesse d'expansion



FIGURE 7.8: Variation de la divergence avec l'éclairement. La première ligne correspond à trois profils 2D d'harmoniques CWE obtenus pour différentes éclairements laser : (a) $a_0 = 0.15$, (b) $a_0 = 0.19$ et (c) $a_0 = 0.5$. L'évolution de la divergence selon les directions x et y est tracée sur le panneau (d).

du plasma et donc la longueur de gradient avec laquelle l'impulsion principale interagit. Ainsi la variation de divergence observée expérimentalement sur la figure 7.7 semble être due à une variation de la longueur de gradient, exactement comme dans la partie 7.2, et non à une variation liée à l'éclairement de l'impulsion laser principale.

Pour valider cette hypothèse, nous nous sommes intéressés à la variation du signal harmonique en fonction de l'éclairement. Nous obtenons alors les courbes présentés sur la figure 7.9a. Ces courbes montrent que le signal harmonique augmente quand l'éclairement laser augmente. Ceci est normal, cependant l'évolution ne semble pas linéaire, comme celle reportée dans [21]. Cela signifie qu'un autre paramètre de l'interaction altère le signal harmonique. Pour déterminer que lest ce paramètre, nous avons donc tracé sur la figure 7.9b l'évolution du signal harmonique normalisé par rapport à a_0^2 en fonction de a_0 . Le signal harmonique normalisé augmente fortement, passe par un maximum, puis décroît de façon monotone. L'évolution du signal harmonique normalisé en fonction de a_0^2 est similaire à celle du signal harmonique en fonction de L_0 , que nous avons mesurée expérimentalement (figure 7.2a). La figure 7.9b, confirme donc notre hypothèse que la variation de divergence θ_n en fonction de a_0 peut-être imputée à une variation de la longeur de gradient.

Nous avons dans les deux sections précédentes mesuré pour la première fois expérimentalement la dépendance des propriétés des harmoniques CWE avec la longueur de gradient. Nous avons montré que grâce à notre simple dispositif expérimental, nous pouvons optimiser le signal harmonique. Cependant, lorsqu'on optimise le signal harmonique, cela modifie



FIGURE 7.9: Variation du signal harmonique en fonction de a_0 . Le panneau (a) présente la variation du signal harmonique pour les harmoniques H11 à H15 en fonction de a_0 . Le panneau (b) montre l'évolution du signal harmonique (a) normalisé par rapport à a_0^2 en fonction de a_0 .

également les propriétés spatiales et spectrales des harmoniques. Nous allons maintenant voir que l'on peut optimiser le signal tout en contrôlant les propriétés des harmoniques, en utilisant la phase du laser incident.

7.4 Contrôle de la divergence via la phase du laser

Nous venons de voir que pour optimiser l'efficacité de génération des harmoniques CWE il est nécessaire d'introduire une longueur de gradient non nulle, mais que cela entraîne une augmentation de la divergence des harmoniques CWE. Dans certaines expériences, comme l'injection de laser à électrons libres par harmoniques CWE [42], il est primordial de maximiser l'efficacité de génération tout en limitant la divergence des harmoniques. Pour cela une technique a été proposée en 2006 par F. Quéré et C. Thaury [43]. L'idée consiste à introduire une phase spatiale sur l'impulsion laser incidente afin de compenser la phase spatiale des harmoniques CWE. Nous reprenons ici cette technique car nous l'utiliserons également dans le cas des harmoniques ROM, et cela nous premettra dans la partie 9.3 de discuter les différences et analogies entre les harmoniques CWE et ROM.

L'introduction d'une phase ψ sur le laser se fait simplement en défocalisant le faisceau laser par rapport à son meilleur foyer positionné en z, où z est la position focale. Pour une position z < 0, $\psi < 0$ et pour une position z > 0, $\psi > 0$, la phase introduite par le laser change de signe en fonction de la position z par rapport au meilleur foyer laser. La phase spatiale des harmoniques, qui est due uniquement à la variation de l'amplitude laser, est toujours de même signe pour n'importe quelle position z. Il est donc possible de compenser cette phase spatiale avec la phase laser ψ pour une position z.

Nous avons tracé sur la figure 7.10a l'évolution de la divergence de l'harmonique 12 en fonction de la position du foyer las z/z_r , avec z_r la longueur de rayleigh, ainsi que trois spectres harmoniques résolus angulairement (panneau (b)) correspondant aux positions marquées par des flèches. Le panneau (c) est une illustration qualitative permettant de voir où est positionnée la cible par rapport au meilleur foyer las dans chaque cas du panneau



FIGURE 7.10: Contrôle de la divergence des harmoniques CWE via à la phase spatiale du laser. (a) Evolution de la divergence de l'harmonique 12 en fonction de la position focale du laser. (b) Spectres harmoniques résolus angulairement correspondant à trois positions focales particulières : le premier à une position où la divergence des CWE est augmentée à cause de la phase du laser, le spectre du milieu correspond au meilleur foyer, le troisième correspond au cas où la phase laser compense la phase spatiale des harmoniques CWE. Le panneau (c) permet d'avoir une idée de la position de la cible par rapport au meilleur foyer laser.

(b). On voit grâce à cette figure que l'on peut réduire la divergence des harmoniques CWE en plaçant le point focal laser derrière la cible.

7.4.1 Conclusion

Nous avons dans ce chapitre présenté les premiers résultats expérimentaux permettant de mettre en évidence l'influence de la longueur de gradient de densité plasma L sur les
propriétés des harmoniques. Nous avons pu mettre en évidence la dépendance du signal harmonique avec L, ce qui nous a permis d'optimiser la source harmonique. Nous avons également été capables de mesurer l'évolution de la divergence des harmoniques avec L. Nous avons enfin validé une méthode permettant de contrôler finement la divergence des harmoniques. Ces résultats sont très importants dans le développement d'une source XUV stable utilisant le mécanisme CWE comme mécanisme de génération d'harmoniques. Nous allons maintenant présenter la première expérience permettant de mettre en évidence simultanément la différence de propriétés des harmoniques CWE et des harmoniques ROM.

108

Chapitre 8 Transition CWE vers ROM

Nous l'avons vu dans la première partie, les harmoniques ROM et CWE peuvent être générées à des éclairements fort différents, ce qui permet de les étudier distinctement. Habituellement, la transition entre les deux mécanismes est présentée comme se faisant uniquement en changeant l'intensité [21, 27]. A de faibles éclairements $E = 10^{16} W.cm^{-2}$ (figure 8.1a), seules les harmoniques CWE sont générées, le mouvement d'oscillation de la surface n'étant pas assez rapide pour générer des harmoniques ROM par effet Doppler. Lorsque l'éclairement est supérieur à $10^{18}W.cm^{-2}$, on considère que le mouvement des électrons devient relativiste et on observe uniquement des harmoniques ROM (figure 8.1b). Dans ce chapitre, nous allons montrer pour la première fois expérimentalement qu'en se plaçant au niveau du seuil requis pour générer des harmoniques relativistes $E \simeq$ $10^{18} W.cm^{-2}$, on peut sélectionner préférentiellement l'un ou l'autre des deux mécanismes simplement en changeant la longueur de gradient, tout en gardant un éclairement constant [73]. Pour cela nous nous plaçons à un éclairement intermédiaire, en plaçant un diaphragme de 25cm de diamètre dans le faisceau. Le faisceau est ensuite focalisé avec une parabole ayant une logueur focale de 200mm. Nous obtenons ainsi un éclairement de $\sim 10^{18} W. cm^{-2}$. Cela va nous permettre d'étudier simultanément les harmoniques CWE et les harmoniques ROM.

8.1 Rappels

Comme nous l'avons vu dans la partie I, il est possible de différencier la contribution du mécanisme CWE de celle du mécanisme ROM au signal harmonique total. En effet, dans le domaine spectral, les harmoniques CWE présentent une fréquence de coupure (cut-off) correspondant à la fréquence plasma la plus élevée du miroir plasma. Pour les harmoniques relativistes, il n'y a pas de telle limitation, la coupure harmonique dépend uniquement de la vitesse maximale de déplacement des électrons : plus la vitesse de déplacement est élevée et plus la fréquence de coupure est élevée (cf. partie 3.1). Cela explique la différence d'extension spectrale des spectres harmoniques présentés sur la figure 8.1. La deuxième différence se situe dans le domaine spatial. Les harmoniques CWE, contrairement aux



FIGURE 8.1: Transition CWE-ROM avec l'éclairement. Lorsque l'éclairement est faible $E = 10^{16} W.cm^{-2}$, seules les harmoniques CWE sont générées (a). (b) Lorsque l'éclairement est très supérieur à $10^{18} W.cm^{-2}$, les harmoniques ROM dominent complètement le signal. La fréquence de coupure du spectre harmonique augmente alors avec l'éclairement. (la longueur de gradient vaut $L_0 = \lambda/50$ en (a) et $L_0 = \lambda/20$ en (b))

harmoniques ROM, ont une phase spatiale dépendant de l'éclairement laser, ce qui va accroître leur divergence (cf. partie 2 et 7). Pour cette raison, les harmoniques CWE ont une divergence beaucoup plus importante que celle des harmoniques ROM (figure 8.1). Sachant cela, nous allons maintenant pouvoir étudier, en même temps, les propriétés des harmoniques CWE et ROM en fonction de la longueur de gradient et voir que pour certaines longueurs de gradient les harmoniques provenant des deux différents mécanismes peuvent interférer.

8.2 Observation expérimentale

Expérimentalement, nous avons mesuré le spectre harmonique obtenu pour différents gradients (figure 8.2). Sur le panneau (a), correspondant à un gradient nul, on voit que les harmoniques ont une fréquence de coupure $\omega_p^{max} \simeq 20\omega_L$, et une divergence assez grande, de l'ordre de la divergence laser ($\theta_L \simeq 100mrad$). Sur le panneau (b), pour une longueur de gradient de $L_0 = 0.033\lambda$, on observe toujours ces mêmes harmoniques très divergentes, et en même temps des harmoniques ~ 3 fois moins divergentes, qui elles ont une fréquence de coupure de l'ordre de $\omega_n = 25\omega_L$. Cela suggère que les deux types d'harmoniques sont générées via deux mécanismes distincts. De plus, on peut voir des interférences sur chaque harmonique en-deça de l'harmonique 17.

Si on augmente encore la longueur de gradient jusqu'à $L_0 = 0.065\lambda$ (panneau (c)), les harmoniques très divergentes ont totalement disparu, seules les harmoniques peu divergentes sont générées et la fréquence de coupure est toujours de l'ordre de $\omega_n = 25\omega_L$.



FIGURE 8.2: **Transition CWE-ROM.** Première colonne : spectres résolus angulairement obtenus pour trois gradients : (a) $L_0/\lambda = 0$, (b) $L_0/\lambda = 0.033$, (c) $L_0/\lambda = 0.065$. La ligne en pointillés rouges matérialise la fréquence de coupure ω_p^{max} de la cible. Les panneaux (d,e) correspondent à la variation du signal harmonique en fonction de la longueur de gradient, pour les harmoniques en-deça de ω_p^{max} (d), et pour les harmoniques d'ordre supérieur à ω_p^{max} (e). En (f) est tracée l'évolution de la divergence de l'harmonique 14.

8.3 Interprétation

Si on met en regard les observations que nous venons de faire et les rappels effectués dans la section 8.1, on comprend qu'il est possible de sélectionner le mécanisme de génération d'harmoniques -CWE ou ROM- simplement en choisissant judicieusement la longueur de gradient. Pour les gradients courts ($L_0 < 0.033\lambda$), on ne génère que des CWE avec une fréquence de coupure à ω_p^{max} et une forte divergence (cf. partie 7.2.1). C'est exactement ce que l'on observe sur la figure 8.2a. Lorsqu'on augmente la longueur de gradient ($L_0 >$ 0.033λ), les électrons à la surface du plasma vont pouvoir osciller plus rapidement et atteindre la vitesse nécessaire à créer un effet Doppler (cf. partie 3.1). Cela va permettre l'émission d'harmoniques ROM, peu divergentes avec une fréquence de coupure supérieure à ω_p^{max} , comme observé sur la figure 8.2(b,c). Pour les gradients intermédiaires $L_0 \simeq 0.33\lambda$, les deux mécanismes ont une efficacité de génération similaire et peuvent alors interférer : c'est ainsi que nous interprétons les franges observées sur la figure 8.2b.

On a tracé sur la figure 8.2.d l'évolution du signal harmonique pour deux harmoniques ayant des fréquences inférieures à ω_p^{max} et sur la figure 8.2e celle d'une harmonique de fréquence supérieure à ω_p^{max} . La première montre une diminution progressive du signal pour les gradients courts. Cela correspond à la diminution d'efficacité de génération des harmoniques CWE, déjà observée dans la partie 7.2.1. Une différence importante est cependant à noter entre cette courbe et celle de la figure 7.2a, on n'observe pas un maximum mais simplement une décroissance du signal harmonique des CWE. Ceci est dû au fait que comme nous avons augmenté l'éclairement, nous avons également augmenté la longueur de gradient L_{ip} due à l'impulsion principale. En effet, pour les gradients courts, à des éclairements relativement élevés ($E \simeq 10^{18} W. cm^{-2}$), le gradient L_{ip} formé par l'impulsion principale est du même ordre de grandeur que le gradient L_0 créé par la pré-impulsion (cf. partie 4.5.3). Ainsi, pour les gradients courts, il est donc nécessaire de corriger le gradient mesuré d'un facteur qu'on peut déterminer à partir de la comparaison de la figure 7.2a et de la figure 8.2d. Le maximum de la courbe de la figure 7.2a se situe vers $L_0 \simeq \lambda/40$. N'observant qu'une décroissance sur la figure 8.2d, on peut donc estimer le gradient dû à l'impulsion principale à $L_{ip} \simeq \lambda/40$.

Si on considère maintenant le signal des harmoniques ayant une fréquence supérieure à ω_p^{max} , on voit qu'elle est nulle pour les gradients faibles, qu'elle augmente ensuite jusqu'à un maximum pour diminuer de nouveau. Ceci montre bien que les harmoniques ROM sont générées plus efficacement pour des longs gradients $L_0 \simeq 0.06\lambda$.

La divergence des harmoniques, tracée sur la figure 8.2f, décroît avec la longueur de gradient jusqu'à fluctuer autour d'une valeur minimale. Si elle décroît, c'est parce que l'on passe progressivement d'un mécanisme à l'autre. Les harmoniques CWE fortement di-



FIGURE 8.3: Densités electroniques issues de deux simulations PIC. En (a) $a_0 = 0.9$ (b) $a_0 = 6$, et $L = \lambda/20$ pour les deux cas. En (a), qui est le régime dans lequel nous avons étudié la transition CWE-ROM, la surface ne s'enfonce pas. En revanche en (b), qui est le régime que nous avons présenté dans la partie 3.3.2, la surface s'enfonce. La divergence des harmoniques ROM dans le cas (b) sera donc plus grande que celle dans le cas (a). Dans le cas (a), comme la surface ne s'enfonce pas, la divergence des harmoniques ROM est indépendante de la longueur de gradient. En revanche, dans le cas (b), l'enfoncement de la surface augmente avec le gradient et c'est pour cela que la divergence des harmoniques ROM augmente avec le gradient (cf. partie 3.3.5).

8.4. CONCLUSION

vergentes laissent le pas aux harmoniques ROM très peu divergentes, dont la divergence n'évolue pas avec le gradient. Il est également intéressant de noter que les courbes d'efficacité (d) et de divergence (f) suivent exactement la même évolution, montrant bien la transition progressive qui s'opère entre le mécanisme CWE et le mécanisme ROM lorsque la longueur de gradient augmente.

Cela peut sembler surprenant de mesurer que la divergence des harmoniques ROM n'évolue pas avec la longueur de gradient L alors que nous avions énoncé dans la partie 3.3.5 qu'elle augmente avec L. On tient à préciser ici que c'est parce qu'on n'est pas en régime d'enfoncement de la surface (figure 8.3a) que la divergence des harmoniques ROM est bien plus faible que celle des harmoniques CWE et qu'elle n'évolue pas avec la longueur de gradient. Pour que la surface s'enfonce et ainsi observer une variation de la divergence des harmoniques avec la longueur de gradient, il faut avoir un éclairement laser bien supérieur (figure 8.3b).

8.4 Conclusion

Cette étude est intéressante à plusieurs points de vue, elle montre que l'éclairement laser n'est pas le seul paramètre permettant de sélectionner l'un ou l'autre des mécanismes de génération d'harmoniques. A des éclairements modérément relativistes, simplement en faisant varier de manière contrôlée la longueur de gradient, on peut choisir entre le mécanisme d'émission CWE ou ROM. C'est également la première étude permettant d'observer simultanément les différences de propriétés des harmoniques CWE et ROM : différence de divergence, de fréquence de coupure, et dépendance du signal harmonique avec la longueur de gradient.

Nous allons dans le prochain chapitre étudier uniquement les harmoniques ROM, en utilisant un éclairement laser de quelques $10^{19}W.cm^{-2}$. Nous nous intéresserons aux propriétés du faisceau harmonique généré (divergence et propriétés spectrales), et verrons comment grâce à l'étude des harmoniques ROM nous sommes capables d'obtenir des informations sur la dynamique de l'interaction laser-plasma à ultra-haute intensité. Ces résultats sont très importants en vue de développer une source XUV attoseconde utilisant les harmoniques Doppler. 114

Chapitre 9

Régime de haut éclairement : l'émission ROM

Nous allons étudier dans ce chapitre l'évolution des propriétés des harmoniques relativistes lorsque la longueur de gradient varie. Il a été mis en évidence dans un certain nombre d'expériences que la longueur de gradient joue un rôle déterminant dans le mécanisme de génération des harmoniques relativistes [48, 49, 73, 74, 75, 76]. Nous présentons dans ce chapitre la première observation expérimentale claire permettant de mener une étude quantitative des propriétés de ces harmoniques [77]. La partie théorique, qui a été présentée dans la partie 3.3, a été dévelopée durant la thèse d'H. Vincenti [41], j'ai ensuite pu la confronter aux résultats expérimentaux que nous avons obtenus. Cela nous a permis de décrire quantitativement les propriétés optiques du miroir plasma à ultra-haute intensité ainsi que les propriétés de la source harmonique relativiste [28].

Pour comprendre pourquoi il est intéressant d'étudier la dépendance des harmoniques ROM avec la longueur de gradient, nous avons représenté sur la figure 9.1 deux spectres harmoniques résolus angulairement obtenus pour deux longueurs de gradient différentes : (a) $L_0 = 0$ et (b) $L_0 = 0.06\lambda$. Sur cette figure on peut noter deux différences majeures. L'une correspond à l'intensité du signal harmonique : elle est plus élevée pour des gradients longs : l'harmonique 35 est visible en (b) alors qu'elle n'est pas détectée en (a). La deuxième différence concerne la divergence des harmoniques, elle est beaucoup plus élevée en (b) qu'en (a), elle augmente avec la longueur de gradient.

Dans un premier temps, nous étudierons donc dans ce chapitre la variation de l'intensité du signal des harmoniques ROM en fonction de la longueur de gradient. Nous verrons ensuite comment sont affectées les propriétés spatiales des harmoniques lorsque l'on varie la longueur de gradient, puis qu'il est possible de les contrôler en jouant sur la phase spatiale de l'impulsion laser incidente. Enfin, nous nous intéresserons aux propriétés spectrales des harmoniques relativistes. Pour cette étude, nous avons retiré le diaphragme que nous avions placé dans les deux expériences précédentes, afin de maximiser l'éclairement sur cible. Nous avons utilisé une parabole de focalisation ayant une longueur focale de 300mm. Avec l'utilisation du système d'optique adaptative présenté dans la partie 4.3,



FIGURE 9.1: Effet du gradient de densité sur les harmoniques relativistes. Spectre résolu angulairement obtenu expérimentalement pour une longueur de gradient : $L_0 = 0$ (a) et $L_0 = 0.06\lambda$ en (b). L'intensité vaut $I = 5 \times 10^{19} W.cm^2$ et les conditions de détection entre (a) et (b) sont identiques.

nous sommes capables de focaliser le laser sur une tache focale de $4.7\mu m$ et ainsi d'atteindre des éclairements estimés à $5 \times 10^{19} W.cm^2$.

9.1 Optimisation de l'efficacité de génération

9.1.1 Observation expérimentale

Pour obtenir l'intensité du signal harmonique dans une direction $S(\omega, \theta)$ nous avons d'abord intégré les spectres résolus angulairement, tels que ceux de la figure 9.1, spectralement pour chaque harmonique. Pour obtenir ensuite le signal harmonique total, on suppose que le faisceau harmonique a une symétrie de révolution. Ainsi on peut intégrer spatialement le signal $S(\omega, \theta)$ pour obtenir le signal harmonique total : $S'(\omega) = \int S(\omega, \theta)\theta d\theta$ avec θ la coordonée angulaire dans le plan de détection. Nous avons tracé sur la figure 9.2 $S'(\omega)$ pour trois harmoniques ayant une fréquence supérieur à ω_p^{max} . Ainsi on est sûr de n'étudier que le signal provenant des harmoniques ROM.

On voit que le signal de l'harmonique 24, qui est déjà non nul pour les gradients faibles, ne cesse d'augmenter. Les harmoniques 33 et 38 qui elles ne sont pas détectées pour des gradients faibles, apparaissent pour des gradients $0.05 < L_0 < 0.1$. Les points où $S'(\omega) = 0$ correspondent aux longueurs de gradient pour lesquelles les harmoniques ne dépassent pas le bruit de fond. Cela montre que comme pour les CWE, il est possible d'optimiser le signal des harmoniques ROM grâce à la longueur de gradient. Ces résultats avaient déjà été prédits par les simulations [73], mais n'avaient jamais été directement mis en évidence expérimentalement.

9.1.2 Interprétation

Pour comparer ces résultats à ceux des simulations PIC, nous avons tracé sur la figure 9.3 l'évolution de l'efficacité de génération de trois harmoniques, obtenue grâce au code



FIGURE 9.2: Evolution de l'efficacité de génération en fonction de la longueur de gradient. Courbes obtenues à partir des spectres résolus angulairement tels que ceux de la figure 9.1, mesurés pour un éclairement de $E = 5 \times 10^{19} W.cm^{-2}$.

1D EUTERPE, dans le cas où les ions sont immobiles. Ces résultats avaient été obtenus durant la thèse de C. Thaury [40]. D'autres publications montrent des évolutions similaires de l'évolution de l'efficacité de génération des harmoniques avec la longueur de gradient [74]. Toutes les simulations correspondantes ont été menées en ions immobiles.

D'après cette figure, l'efficacité de génération ne cesse de croître avec la longueur de gradient, rapidement entre L = 0 et $L = 0.06\lambda$, puis plus lentement jusqu'à $L = 0.2\lambda$. Ceci n'est absolument pas en accord avec les mesures expérimentales, qui montre une augmentation de l'efficacité de génération avec la longueur de gradient avec un optimum vers $L = 0.06\lambda$ et une chute brutale du signal harmonique à partir de $L = 0.1\lambda$.

La première idée que nous avons eue pour expliquer cette différence est que le mouvement des ions perturbe la génération des harmoniques. En effet, une différence majeure entre les simulations et l'expérience, est que dans les simulations les ions sont immobiles. On peut



FIGURE 9.3: Evolution de l'efficacité de génération en fonction de la longueur de gradient dans les simulations PIC. Evolution de l'efficacité de génération en fonction de la longueur de gradient obtenue à partir de simulations PIC 1D à l'aide du code EUTERPE, menées dans le cas d'ions immobiles, pour trois harmoniques différentes, pour un éclairement de $3 \times 10^{19} W.cm^{-2}$. Figure réalisée par C. Thaury [40].



FIGURE 9.4: Evolution de l'efficacité de génération en fonction de la longueur de gradient dans les simulations PIC. Evolution de l'efficacité de génération en fonction de la longueur de gradient obtenue à partir de simulations PIC 1D à l'aide du code EPOCH, menées dans le cas d'ions mobiles, pour trois harmoniques différentes, pour un éclairement de $3 \times 10^{19} W.cm^{-2}$. Le panneau (b) est simplement un zoom du panneau (a) sur l'échelle de gradient que nous avons étudiée expérimentalement (carré en pointillé en (a)).

donc supposer que la dynamique ionique affecte l'efficacité de génération des harmoniques. Des simulations en ions mobiles ont alors été réalisées par H. Vincenti à l'aide du code EPOCH et les résultats sont présentés sur la figure 9.4.

Nous avons tracé sur le panneau (a) les résultats pour des longueurs de gradient variant entre L = 0 et $L = 0.5\lambda$. De prime abord, il semblerait que ces résultats ne correspondent pas à nos résultats expérimentaux puisqu'on observe un optimum de génération vers L = 0.2λ . Mais en zoomant sur la partie de la courbe encadrée par des pointillés, correspondant aux gradients courts (panneau (b)), on aperçoit clairement un maximum de génération vers 0.06λ , exactement comme mesuré expérimentalement. Les courbes du panneau (b) correspondent à nos mesures expérimentales (figure 9.2).

Cela montre l'importance de réaliser des simulations en ions mobiles, car il semblerait que la dynamique ionique altère la génération d'harmoniques. En effet, si on compare la figure 9.3 et la figure 9.4a, on note la présence d'un "trou" dans l'efficacité de génération vers $L = 0.1\lambda$ sur le figure 9.4a, qui n'est pas présent sur la figure 9.3. Cela demande une investigation plus poussée, que nous sommes en train de réaliser.

Si les simulations menées en ions mobiles reproduisent les tendances expérimentales entre L = 0 et $L = 0.1\lambda$, il n'en reste pas moins surprenant d'observer un désaccord total pour les gradients plus longs. En effet, on a noté une disparition du signal harmonique expérimentalement à partir de $L \sim 0.1\lambda$, alors qu'on observe un optimum de génération dans les simulations pour un gradient de $L = 0.2\lambda$. Il y a plusieurs explications possibles et envisageables à ce désaccord qui demandent à être vérifiées. La première serait que des effets 2D, comme des instabilités de Rayleigh-Taylor, soit responsable de la chute de la génération d'harmoniques dans l'expérience. Etant un effet 2D, on ne l'observe pas dans les simulations 1D.

La seconde explication possible serait un effet de divergence. En effet, nous avons vu dans la partie 3.3 que sous l'effet de la pression de radiation inhomogène du laser, la surface du miroir plasma se courbe et augmente la divergence des harmoniques. Comme la courbure du miroir plasma augmente avec la longueur de gradient, la divergence des harmoniques augmente également avec la longueur de gradient (nous allons le voir dans la pochaine section). Ainsi pour des gradients très longs $L \simeq \lambda/5$, qui correspondent au maximum des courbes de la figure 9.4, la divergence des harmoniques a pu tellement augmenté que notre signal expérimental $S(\omega, \theta)$ tombe sous le bruit , alors même que le signal total (intégré sur θ) augmente. Comme c'est un effet 2D, il est impossible de le voir avec les simulations 1D, réalisées avec EUTERPE ou EPOCH. Chacune des explications possibles sous-entend la présence d'un effet 2D. Pour l'observer, il faut donc réaliser des simulations 2D. Cette étude est en train d'être réalisée.

Nous allons nous intéresser dans la prochaine section aux propriétés spatiales du faisceau harmonique en champ lointain. Ces mesures nous permettront de mieux caractériser la source XUV, mais nous donneront également des informations sur l'interaction laserplasma à ultra-haute intensité. Nous verrons que les harmoniques pourront, en plus d'être utilisées comme source XUV, servir comme diagnostic de l'interaction laser plasma à très haute intensité $(I > 10^{18} W.cm^{-2})$.

9.2 Propriétés spatiales des harmoniques Doppler

9.2.1 Observation expérimentale.

Nous avons vu dans la section précédente qu'il est possible de maximiser le signal harmonique en variant la longueur de gradient L_0 . Nous allons dans cette section étudier l'évolution de la divergence θ_n des harmoniques en fonction de L_0 , afin de déterminer si on peut à la fois maximiser le niveau de signal et garder un faisceau harmonique peu divergent ($\theta_n \ll \theta_L$ avec θ_L la divergence laser). On a tracé sur la figure 9.5a l'évolution de la divergence de l'harmonique 25 en fonction de la longueur de gradient, mesurée



FIGURE 9.5: Mesure des divergences et comparaison au modèle d'enfoncement. Les divergences sont exprimées en unité de divergence laser θ_L , avec $\theta_L = 200mrad$. Les points correspondent aux mesures expérimentales, les lignes pleines au résultat du modèle et la ligne noire en pointillés à la divergence obtenue sans enfoncement de la surface du miroir plasma. (a) Variation de la divergence de l'harmonique 25 en fonction de la longueur de gradient. (b) Variation de la divergence des harmoniques en fonction de l'ordre harmonique pour deux valeurs de gradient $L_0 = 0.04\lambda_L$ et $L_0 = 0.08\lambda_L$.

expérimentalement. Elle est représentée par les points bleus. On voit qu'elle varie quasi linéairement avec la longueur de gradient. Pour comparaison, on a tracé en pointillés noirs la divergence θ_n de la même harmonique, lorsqu'elle est limitée par diffraction. Dans ce cas $\theta_n = \lambda_n / \pi w_n$ (avec w_n la taille de source de l'harmonique n), la divergence est alors indépendante de la longueur de gradient.

Sur la figure 9.5(b), on a tracé l'évolution de la divergence en fonction de l'ordre harmonique pour deux longueurs de gradient : $L_0 = 0.04\lambda$ en rouge et $L_0 = 0.08\lambda$ en bleu. Les symboles correspondent aux données expérimentales, et les traits pointillés correspondent encore une fois aux divergences qu'on obtiendrait si la source harmonique était limitée par diffraction. On voit, que pour des longueurs de gradient telles que $L_0 \ge 0.02\lambda_L$, la divergence des harmoniques est toujours largement supérieure à celle correspondant à la limite de diffraction, et que la divergence harmonique varie assez peu avec l'ordre harmonique (dans la gamme d'harmoniques étudiées).

9.2.2 Interprétation

120

Nous avons comparé ces résultats au modèle que nous avons présenté dans la partie 3.3.3. Les prédictions du modèle sont tracées en trait plein sur la figure 9.5. On voit que l'accord entre ce modèle et nos résultats expérimentaux est excellent.

Nous comprenons donc que si la divergence des harmoniques augmente avec la longueur de gradient, c'est parce que la surface de la cible s'enfonce pendant l'interaction (cf. figure 8.3b). Cette évolution est linéaire pour les gradients élevés car la taille de source harmonique ne varie quasiment pas avec le gradient (cf. partie 3.3.5, figure 3.11) alors que la focale du miroir plasma est inversement proportionnelle à la longueur de gradient : $f \propto w_L^2/L$ (où w_L est le waist laser), comme démontré dans [28, 41]. Plus la longueur de gradient est grande et plus la surface s'enfonce et donc plus la focale du miroir plasma est petite. Si on reprend l'équation analytique du modèle donnant la divergence des harmoniques en fonction des paramètres de l'interaction, on a :

$$\theta_n = \theta_n^0 \sqrt{1 + (n\Psi_n)^2} \tag{9.1}$$

avec $\theta_n^0 = \lambda_n / \pi w_n$ la divergence qu'aurait le faisceau harmonique s'il était limité par diffraction, cela correspond au cas où le miroir plasma est plan. C'est cette divergence qu'on a tracée en traits pointillés noirs sur la figure 9.5.

Dans le cas où la divergence des harmoniques est totalement déterminée par la courbure de la surface, on a $\Psi_n >> 1$ et l'équation précédente peut s'écrire :

$$\theta_n \simeq \theta_n^0 . n \Psi_n \tag{9.2}$$

Comme la taille de source harmonique ne varie pas avec le gradient, en remplaçant Ψ_n par sa valeur (cf. équation 3.15) on peut écrire :

$$\theta_n \propto 1/f$$
 (9.3)

Puisque la focale est inversement proportionnelle à la longueur de gradient, cela explique pourquoi la divergence harmonique varie linéairement avec la longueur de gradient pour les gradients élevés $L > 0.025\lambda$ (figure 9.5a). Pour les gradients courts $L < 0.025\lambda$, l'approximation $\Psi_n >> 1$ n'est plus valable, la divergence n'est pas entièrement imposée par la courbure du miroir. C'est pour cela que pour ces gradients l'évolution de la divergence harmonique avec la longueur de gradient n'est pas linéaire.

Pour pouvoir comparer les résultats du modèle aux résultats expérimentaux, il est nécessaire de connaître précisément w_n , la taille de source harmonique, puisqu'elle intervient au carré dans l'équation 3.15 donnant Ψ_n , et R le coefficient de reflectivité, intervenant dans l'équation de la position des ions 3.12. Ces deux inconnues ne sont pas fournies par le modèle. Nous allons maintenant voir comment on les détermine et comment elles influent sur la divergence harmonique.

9.2.3 Méthode

Taille de source harmonique

Nous avons extraits ces paramètres grâce aux simulations PIC réalisées dans des conditions extrèmement proches de de celles de l'expérience ($a_0 = 6$ et $L = \lambda/20$). En effet, l'avantage des simulations PIC par rapport à l'expérience est que nous pouvons mesurer les profils harmoniques dans le plan source et ainsi obtenir les tailles de sources harmoniques (cf. partie 5.2.1). Nous avons ainsi obtenu la variation de taille de source en fonction de l'ordre harmonique :

$$w_n = (0.72 - 9.10^{-3}.n)w_L \tag{9.4}$$

avec *n* l'ordre harmonique considérée et w_L le waist laser. Ceci donne $w_n = 0.59w_L$ pour l'harmonique 15 et $w_n = 0.5w_L$ pour l'harmonique 25. Nous verrons dans la partie 10.4 que cette expression correspond exactement à celle que nous avons mesurée expérimentalement ultérieurement, en utilisant une nouvelle technique expérimentale. Pour calculer les divergences harmoniques, il nous reste maintenant à déterminer le coefficient de réflectivité.

Coefficient de réflectivité

Pour déterminer le coefficient R, nous avons réalisé une série de simulations PIC 1D, où nous avons varié la longueur de gradient et l'éclairement laser. Ces résultats sont tracés sur la figure 9.6a. On voit sur cette figure que R varie peu sur une large gamme de paramètres d'interaction. On a R = 0.85 pour L = 0.015 et $a_L = 5$ et R = 0.75 pour L = 0.1 et $a_L = 10$.

A partir de ces mesures, nous avons calculé l'erreur entre la divergence calculée à partir des résultats de la figure 9.6a donnant R en fonction de L et de a_L et la divergence calculée avec un coefficient de réflectivité moyen $R_0 = 0.8$ pour tous les couples (L, a_L) . Nous obtenons ainsi la figure 9.6b, l'échelle de couleur est en %. On voit que l'erreur est minime



FIGURE 9.6: Influence de la variation du coefficient de réflection R. (a) Evolution du coefficient de réflection R avec l'éclairement a_L et la longueur de gradient L. (b) On a tracé sur ce panneau l'évolution de la quantité $((\theta_n - \theta_{n,R_0})/\theta_n).100$, avec θ_n la divergence harmonique calculée avec la valeur du coefficient de réflection obtenue en (a) et θ_{n,R_0} la divergence harmonique calculée en choisissant $R_0 = 0.8$. On voit que l'écart entre les deux valeurs de divergence ne dépasse jamais 1%.

puisqu'elle est toujours inférieure à 1%. Nous pouvons donc considérer expérimentalement que R est constant, et nous avons calculé les divergences présentées sur la figure 9.5 avec le coeficient de réflectivité moyen $R_0 = 0.8$. Nous avons pu ainsi reproduire les mesures expérimentales grâce au modèle sans l'aide d'aucun paramètre ajustable.

Cette étude a permis de comprendre les résultats expérimentaux et de valider expérimentalement le modèle des propriétés spatiales des harmoniques ROM. On dispose ainsi, pour la première fois, d'un modèle prédictif permettant de calculer les divergences harmoniques, et cela de manière complètement analytique.

Si on compare les résultats de la figure 9.2 et ceux de la figure 9.5a, on peut noter une difficulté concernant l'optimisation de la source harmonique. En effet, il semble difficile de maximiser l'efficacité de génération (long gradient, figure 9.2) et en même temps de minimiser la divergence (gradient court, figure 9.5a). Nous allons maintenant voir qu'il est possible de réduire la divergence des harmoniques pour quasiment toutes les conditions d'interaction en jouant sur la phase spatiale de l'impulsion laser incidente.

9.3 Contrôle des propriétés spatiales des harmoniques.

9.3.1 Mesures et comparaison au modèle

Nous avons expérimentalement mesuré la divergence des harmoniques en fonction de la position focale laser z. Nous avons ainsi obtenu les points présentés sur la figure 9.7. Nous avons également tracé sur cette figure les résultats issus des prédictions du modèle (courbe bleue) : encore une fois, l'accord est excellent.

Nous avons tracé sur la figure 9.7(b,c) deux profils spatiaux 2D correspondant à deux po-

sitions focales différentes. Les panneaux (d,e) illustrent la position de la cible par rapport au meilleur foyer laser. On voit qu'il est possible de réduire d'un facteur 2 la divergence du faisceau harmonique lorsqu'on déplace la cible légèrement après le meilleur foyer laser. En observant la courbe de la figure 9.7a, on voit que la divergence peut varier d'un facteur 4 autour de la position du meilleur foyer laser. Pour comprendre d'où vient cette dépendance, on peut écrire la phase ϕ_n de harmonique *n* sous la forme suivante :

$$\phi_n(r) = n(\phi_L(r) + \phi_S(r)) \tag{9.5}$$

123

où r est la coordonnée transverse, $\phi_L(r)$ est la phase laser et $\phi_S(r)$ est la phase venant de la courbure de la surface de la cible. Grâce à cette équation, on comprend que comme la surface s'enfonce, la phase $\phi_S(r)$ n'est jamais constante et c'est pour cela que la plus petite divergence n'est pas obtenue pour le meilleur foyer mais pour une position focale légèrement décalée après le meilleur foyer laser. La divergence harmonique sera la plus petite lorsque la phase laser ϕ_L compense la phase introduite par la courbure de la surface de la cible ϕ_S , la phase spatiale des harmoniques ϕ_n étant alors constante. Il est intéressant de noter que pour une position $-0.3z_R < z < 0.3z_R$ l'évolution de la divergence est linéaire avec la position focale z. Ainsi il est possible de contrôler finement la divergence des harmoniques en contrôlant précisément z. Deux positions particulières semblent intéressantes.

La première correspond à celle pour laquelle on arrive à réduire la divergence harmonique. Limiter la divergence harmonique est primordial dans certaines expériences : c'est notamment le cas dans l'expérience de l'effet phare attoseconde qui sera présentée en dernière partie de ce manuscrit.

La seconde position intéressante correspond à celle où l'on maximise la divergence des harmoniques. Si on maximise la divergence des harmoniques, cela signifie qu'elles sont focalisées avec une plus courte focale. Or, l'éclairement au foyer des harmoniques est d'autant plus élevé que la longueur focale est courte. Les harmoniques ayant une longueur d'onde plus courte que le laser, elles peuvent potentiellement avoir une tache focale plus petite. De plus, ces harmoniques sont émises sous forme d'impulsions attosecondes, ce qui va encore augmenter l'éclairement au foyer des harmoniques. On peut ainsi imaginer d'utiliser la focalisation naturelle des harmoniques de manière à augmenter l'éclairement (par rapport à l'éclairement laser) [41]. Le problème pour utiliser une telle géométrie dans une expérience est la longueur focale de la surface qui est d'environ $200\mu m$, ce qui est très court pour être en mesure de placer un autre milieu à cette distance de la cible.

9.3.2 Analogie avec les CWE

Il est important à ce stade de noter l'analogie entre les propriétés spatiales des harmoniques ROM et celles des harmoniques CWE. En effet, dans les deux mécanismes, les harmoniques présentent une phase spatiale qui tend à accroître leur divergence. La divergence des harmoniques relativistes augmente avec le gradient à cause de la phase introduite par l'enfoncement de la surface (figure 9.5). Dans le cas des harmoniques CWE, c'est la phase



FIGURE 9.7: Contrôle expérimental de la divergence des harmoniques Doppler. Les divergences sont exprimées en unité de divergence laser θ_L , avec $\theta_L = 200 mrad$. Les points correspondent aux mesures expérimentales, la ligne pleine au résultat du modèle. (a) Variation de la divergence des harmoniques en fonction de la position du foyer laser z/z_r avec z_r la longueur de Rayleigh, obtenue pour un gradient de $\lambda_L/20$. (b) et (c) montrent les profils spatiaux obtenus pour les points de focalisation indiqués par les flèches et schématisés en (d) et (e).

intrinsèque des harmoniques CWE qui augmente avec le gradient à cause d'une variation plus grande des temps d'émission à travers la tache focale (figure 7.5). Dans les deux cas, la divergence peut varier d'un facteur ~ 4 en fonction de la longueur de gradient; cependant cette augmentation de la divergence peut-être compensée grâce à la phase du laser.

125

La différence entre les deux est que la phase des harmoniques est "convexe" dans le cas des harmoniques CWE alors qu'elle est "concave" dans le cas des harmoniques ROM. Par conséquent, lorsqu'on compense cette phase avec la phase du laser incident, on déplace la cible en avant du meilleur foyer laser pour les harmoniques CWE (figure 7.10), alors qu'on la déplace en arrière du meilleur foyer laser pour les harmoniques ROM (figure 9.7). Nous allons maintenant voir que dans les cas des harmoniques ROM il y a une légère limite à la méthode de compensation de la divergence.

9.3.3 Limites de la méthode

On a tracé sur la figure 9.8 l'évolution de la divergence théorique, calculée à partir du modèle d'enfoncement, en fonction de la longueur de gradient et de la position à travers le foyer. La ligne en pointillés blancs correspond au point de compensation de la phase d'enfoncement. On voit clairement à l'aide de celle-ci que plus la longueur de gradient augmente plus la défocalisation à appliquer sur le laser est importante. Ceci est normal, puisque plus la longueur de gradient est grande et plus la phase des harmoniques ROM est grande. Par conséquent, si on veut la compenser, il faut introduire une phase spatiale plus grande sur le laser incident, si bien que pour des gradients supérieurs à 0.09λ , on sort de la longueur de Rayleigh.

Dans ces conditions, la notion de tache focale n'a plus vraiment de sens puisque l'énergie laser n'est alors plus exactement focalisée au même endroit. Cela mène à une détérioration de la tache focale et une chute de l'éclairement laser, ce qui dégrade également les propriétés spatiales des harmoniques et ce qui entraîne une baisse de l'efficacité de génération des harmoniques.

D'un point de vue pratique, les lasers ultra-intenses comme UHI100 sont en général réputés pour avoir une tache focale avec un bon rapport de Strehl au foyer qui se dégrade très vite hors foyer, ce qui pourrait laisser présager que la méthode de compensation n'est quasiment jamais applicable. Cela constitue les deux principales limites de la méthode :

- 1. Il est nécessaire de travailler à des gradients relativement courts, c'est-à-dire à des gradients pour lesquels on reste dans la longueur de Rayleigh lorsqu'on défocalise le laser.
- 2. Contrôler la tache focale du laser de part et d'autre du meilleur foyer laser.

Dans notre cas, où nous avons mené notre étude à un gradient où l'enfoncement n'introduit pas une phase spatiale trop importante, il est possible de la compenser à une position proche du meilleur foyer laser $(z/z_r = 0.3)$, ce qui permet de garder une tache focale avec un bon rapport de Strehl. Nous avons obtenu la figure 9.7, pour un gradient de $\lambda/20$. Or nous avons vu sur la figure 9.2, que ce gradient se situe quasiment au pic de maximisation de l'efficacité de génération des harmoniques ROM. Ainsi, grâce à la



FIGURE 9.8: Contrôle théorique de la divergence des harmoniques Doppler. On a représenté en échelle de couleur, l'évolution de la divergence théorique en fonction de la longueur de gradient et de la position de focalisation z/z_r . L'échelle de couleur est exprimée en unité de divergence laser. Cette carte a été obtenue à partir de l'équation 3.14.

méthode de compensation, on peut maximiser la génération d'harmoniques ROM, tout en gardant un contrôle sur leur divergence.

Maintenant que nous connaissons plus en détail les propriétés spatiales des harmoniques ROM, nous allons nous intéresser à leurs propriétés spectrales. Ces dernières vont nous permettre d'obtenir des informations sur la dynamique des ions lors de l'interaction.

9.4 Propriétés spectrales des harmoniques relativistes

Au foyer de l'interaction laser, nous venons de voir que la pression de radiation nonhomogène du laser induit une courbure de la surface du miroir plasma. Nous allons maintenant étudier la dynamique de cet enfoncement, et voir comment on peut obtenir des informations sur le mouvement des ions en étudiant le spectre harmonique.

Durant l'interaction, la surface du miroir plasma s'enfonce à une vitesse v_e . Cette vitesse d'enfoncement est responsable d'un décalage Doppler de la fréquence centrale des harmoniques. Il est important de noter que ce décalage par effet Doppler est différent de celui responsable de la génération d'harmoniques. On distingue donc deux effets Doppler :

- 1. Le premier est celui que nous étudions depuis le début de ce chapitre. La surface oscille à une vitesse relativiste, ce qui entraîne la génération d'harmoniques.
- 2. Le deuxième est celui que nous étudions dans les prochaines sections. En plus des oscillations rapides, la surface s'enfonce à une vitesse de l'ordre de $v_e = 0.01c$. Ceci crée un second effet Doppler ("plus lent" que le premier) responsable d'un décalage de la fréquence centrale des harmoniques.

9.4.1 Prédiction du modèle

Sur la figure 9.9, on peut voir qu'en régime d'enfoncement, comme les harmoniques sont focalisées, il y a une correspondance directe entre un point au foyer et un point en champ



FIGURE 9.9: **Correspondance entre un point sur la cible et un point sur le détecteur .** En régime d'enfoncement, la courbure de la surface du miroir plasma entraîne une correspondance géométrique entre la surface du miroir plasma et la direction de propagation. Le centre de la tache focale, où la vitesse d'enfoncement est la plus grande, est relié au centre du faisceau harmonique en champ lointain où on peut donc observer le décalage Doppler le plus grand.

lointain. Chaque point y sur la cible peut être associé à un angle $\theta_y = y/f_p$ sur le détecteur. Comme la vitesse v_e n'est pas la même le long de la tache focale, à cause de la variation d'éclairement au foyer, le décalage spectral observé sur les harmoniques n'est pas le même en fonction de la position angulaire : le décalage spectral maximal est observé sur l'axe et plus on s'éloigne de l'axe plus le décalage observé est faible.

On a tracé sur la figure 9.10 le spectre résolu angulairement de l'harmonique 9, obtenu d'une simulation PIC réalisée dans le cas d'ions immobiles. L'harmonique a une structure en forme d'oeil. Dans le cas où les ions sont immobiles, le mouvement de la surface est dû uniquement au mouvement des électrons. Nous avons vu dans la partie 3.3.2 que le miroir plasma s'enfonçait vers l'intérieur du plasma durant la première partie de l'impulsion



FIGURE 9.10: Effet Doppler observé dans les simulations PIC. Les deux images correspondent au spectre résolu angulairement de l'harmonique 9, obtenu grâce aux simulations PIC 2D, pour $a_0 = 8$ et $L = \lambda/8$, en considérant les ions soit fixes (a) soit mobiles (b).

laser $[t < \tau_L/2]$ (avec τ_L la durée de l'impulsion) puis qu'il retournait à sa position initiale durant la seconde partie de l'impulsion $[t > \tau_L/2]$ (figure 3.7). Ce mouvement de dérive des électrons va s'ajouter à leur mouvement d'oscillation rapide responsable de la génération d'harmonique, et ainsi créer un second effet Doppler, qui est beaucoup plus lent que le premier. Ce deuxième effet Doppler va donc correspondre à un décalage vers le rouge des harmoniques dans la première partie de l'impulsion puisque la surface électronique s'enfonce à une vitesse $+v_e$, et à un décalage vers le bleu dans la seconde partie de l'impulsion puisque la surface revient à sa position initiale avec une vitesse $-v_e$. Comme les décalages diminuent lorsqu'on s'éloigne de l'axe, on observe une harmonique avec une structure en forme d'oeil.

Si on considère à présent le cas où les ions sont mobiles, la dynamique est fortement modifiée puisqu'au lieu de revenir dans leur position initiale, les électrons s'enfoncent durant tout le temps de l'impulsion (figure 3.9 partie 3.3.2). Ainsi au lieu de changer de signe à la moitié de l'impulsion laser, la vitesse d'enfoncement garde le même signe tout au long de l'impulsion. Le décalage spectral que l'on observe est donc uniquement vers le rouge (figure 9.10b). On observe ainsi une harmonique courbée : sa fréquence dépend de la position angulaire.



FIGURE 9.11: **Spectre expérimental montrant l'effet Doppler.** (a) Spectre résolu angulairement obtenu pour un éclairement $a_0 = 5.6$ et une longueur de gradient de $L_0 = \lambda_L/20$. Les harmoniques sont courbées, et plus l'ordre harmonique est élevé plus l'effet de courbure est fort. En (b) est tracé un zoom de l'harmonique 16 du spectre (a). En (c) est tracé un zoom de l'harmonique 23 du spectre spectre (a). La courbure de l'harmonique 23 est nettement plus visible que celle de l'harmonique 16.

9.4.2 Résultats expérimentaux

Expérimentalement, on retrouve cette structure d'harmonique courbée. On a tracé sur la figure 9.11 un spectre expérimental obtenu pour un éclairement de $a_0 = 5.6$ et une longueur de gradient de $\lambda/20$. Les harmoniques sont de plus en plus courbées avec l'ordre harmonique, comme le montrent les panneaux (b) et (c) où on tracé un zoom des harmonique 16 (b) et 23 (c). L'harmonique 23 est bien plus courbée que l'harmonique 16.

128



FIGURE 9.12: Contribution des ions à l'enfoncement total. Cette carte montre l'influence des ions à l'enfoncement total $\delta x/x_T = (x_T - x_e^{IF})/x_T$, avec $x_T = x_i + x_e(n_0(t))$ l'enfoncement lorsque le mouvement des ions est pris en compte dans l'équation 3.11 et x_e^{IF} l'enfoncement lorsque les ions sont considérés comme immobiles. Cette carte est tracée en fonction de l'éclairement a_0 et la durée d'impulsion τ_L pour une longueur de gradient de $\lambda/10$. Le point blanc correspond à nos conditions expérimentales.

La structure est exactement celle que l'on observe dans les simulations PIC, réalisées avec ions mobiles, mais très différentes de celle observée dans les simulations en ions fixes. Cela prouve que dans notre expérience, la dynamique ionionique influe fortement sur les propriétés spectrales des harmoniques.

Habituellement, pour nos intensités et nos durées d'impulsions (~ 25fs) la plupart des simulations sont réalisées en ions immobiles, car on considère que la dynamique ionique n'intervient que pour de plus grandes durées d'impulsions laser (~ 100fs). Dans certaines études, cela ne pose aucun problème de considérer que les ions restent immobiles au cours de l'interaction. Par exemple dans notre expérience la dynamique ionique ne joue effectivement quasiment aucun rôle dans la détermination des propriétés spatiales, comme le montre la figure 9.12.

Sur cette figure, on a tracé la contribution des ions à l'enfoncement total. On rappelle que cet enfoncement détemine en grande partie les propriétés spatiales des harmoniques. La figure 9.12 montre que la contribution des ions à l'enfoncement total (et donc son influence sur les propiétés spatiales des harmoniques) est d'à peine $\sim 5\%$. Cela signifie que dans notre cas les propriétés spatiales des harmoniques sont entièrement déterminées par la dynamique électronique. Ainsi il est possible de calculer de façon assez précise les propriétés spatiales des harmoniques tout en négligeant le mouvement des ions. Cependant, dès qu'on s'intéresse à la détermination des propriétés spatiales, les résultats peuvent être erronés si on considère que les ions sont immobiles.

Dans notre expérience, la signature de la dynamique ionique est la structure d'harmonique courbée que l'on observe sur les spectres résolus angulairement (cf. figure 9.11). Si les ions étaient immobiles, on n'observerait pas cette structure, mais une forme d'oeil comme sur la figure 9.10a. Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution des propriétés spectrales avec la longueur de gradient.



FIGURE 9.13: Comparaison de l'effet Doppler mesuré expérimentalement à celui calculé théoriquement. Evolution du décalage Doppler mesuré au centre de l'harmonique ($\theta_y = 0$) en fonction de la longueur de gradient. Les points correspondent aux mesures expérimentales et la ligne rouge aux prédictions du modèle.

9.4.3 Comparaison au modèle

Nous venons de voir que la structure en harmonique courbée provenait de l'enfoncement des ions à la vitesse $+v_e$ et de la pression de radiation inhomogène du laser (cf. section 9.4.1). Le déplacement spectral ou décalage Doppler dû à l'enfoncement des ions dépend donc de la vitesse d'enfoncement v_e . Plus cette vitesse est élevée et plus le décalage spectral est important. Or lorsqu'on change la longueur de gradient, on change la vitesse d'enfoncement car pour des longs gradients les électrons s'enfoncent plus vite que pour des gradients courts.

Nous avons mesuré expérimentalement le décalage spectral en fonction de la longueur de gradient. Les résultats sont représentés par des points sur la figure 9.13. Sur cette figure, est tracée l'évolution du décalage Doppler relatif $\delta\omega/\omega$ au centre d'une harmonique. On a également tracé sur cette figure l'évolution de ce décalage Doppler avec la longueur de gradient prédite par le modèle (courbe rouge). L'accord modèle-expérience est une fois encore remarquable.

9.4.4 Conclusion

Dans cette partie nous avons présenté les principales caractéristiques et dépendances de la génération d'harmoniques en fonction des différents paramètres de l'interaction, tels que l'éclairement laser ou la position de la cible par rapport au meilleur foyer laser. Mais nous avons également étudié expérimentalement, pour la première fois, les propriétés spatiales et spectrales des harmoniques CWE et relativistes en fonction de la longueur de gradient du plasma grâce à un système d'une grande simplicité.

Cela nous a permis d'effectuer la première validation expérimentale du modèle d'enfoncement de la surface du plasma développé durant la thèse d'H. Vincenti. Ce modèle permet ainsi de prédire les propriétés à la fois spatiales et spectrales des harmoniques, mais il permet aussi d'obtenir des informations sur le comportement du plasma simplement en observant le signal harmonique. Les harmoniques pourront être ainsi utilisées soit comme une source XUV, soit comme un diagnostic permettant d'avoir un accès direct à l'interaction laser-plasma dans les futures expériences à ultra-haute intensité.

Dans toute cette partie nous nous sommes intéressés à la caractérisation de la source harmonique en champ lointain, dans le plan du détecteur. Nous allons étudier dans la partie suivante la caractérisation des propriétés des harmoniques dans le plan source où elles sont générées, en utilisant une méthode originale basée sur les réseaux plasmas transitoires. Cela nous a permis d'effectuer des mesures jusque là quasiment irréalisables.

Quatrième partie Réseaux plasmas transitoires

Chapitre 10

Création et utilisation de réseaux plasmas transitoires

Nous avons vu dans la partie précédente que grâce au modèle d'enfoncement développé durant la thèse d'H. Vincenti [28], on dispose d'un modèle analytique totalement prédictif pour la courbure du miroir plasma et ainsi pour la phase spatiale des harmoniques. Il y a cependant une inconnue que l'on est obligée de mesurer dans les simulations PIC 2D lorsqu'on veut calculer la divergence des harmoniques à partir de ce modèle : il s'agit du rapport entre la taille de source w_n des harmoniques et le waist laser w_L au foyer. Ce paramètre joue un rôle crucial dans la détermination de la divergence des harmoniques, il est donc peu satisfaisant de devoir l'obtenir à partir des simulations PIC, on aimerait pouvoir le mesurer expérimentalement. L'idée que nous avons eue pour cela est de moduler la surface du miroir plasma. Cette modulation agit comme une perturbation de la génération d'harmoniques. Les harmoniques, qui ne sont plus générées à partir d'une surface plane, diffractent depuis la surface modulée. Grâce à cette modulation, en champ lointain on observe des interférences, desquelles il est possible d'extraire la phase nécessaire à la reconstruction du profil harmonique (taille de source et phase) dans le plan source. Nous allons voir dans cette partie qu'une manière de moduler la surface du miroir plasma est de créer un réseau plasma transitoire. Nous allons tout d'abord expliquer le principe d'un réseau plasma transitoire, nous présenterons ensuite le dispositif expérimental qui permet de le réaliser, et nous étudierons enfin comment est affectée la génération d'harmoniques par ce réseau plasma.

10.1 Principe

L'idée de base est relativement simple : nous avons vu dans la partie 6.3 que la vitesse d'expansion du plasma varie quasi-linéairement avec la fluence laser (figure 6.7). Plus la fluence est grande et plus la vitesse d'expansion du plasma est élevée. D'après ces résultats, on comprend qu'il est possible d'induire une structure spatiale sur une cible initialement plane, avant l'arrivée d'une impulsion principale ultra-intense, simplement en mettant en

136CHAPITRE 10. CRÉATION ET UTILISATION DE RÉSEAUX PLASMAS TRANSITOIRES

forme spatialement (au foyer de l'interaction) une pré-impulsion, qui va interagir avec la cible à un délai τ avant l'arrivée de l'impulsion principale. En effet, en mettant en forme la pré-impulsion, on va pouvoir obtenir une tache focale telle que celle présentée sur la figure 10.1a. On obtient ainsi une modulation de la fluence laser avec les coordonnées spatiales. La fluence de la pré-impulsion au foyer vaut alors : F(x), avec x la coordonnée transverse, selon laquelle on a introduit la modulation. Grâce à cette modulation de fluence, on est capable de moduler la vitesse d'expansion du plasma, et ainsi la surface du plasma. La vitesse d'expansion sera maximale au point 1 alors qu'elle sera minimale au point 2 et va varier continuement entre ces deux valeurs. Ainsi, une structure va se former naturellement au cours de l'expansion du plasma : on obtient alors un réseau plasma transitoire dont la profondeur grandit avec le temps τ après la pré-impulsion. Notons ici, que c'est parce que nous nous intéressons à la réalisation d'un réseau plasma transitoire que nous limitons le problème à une dimension, un raisonnement à deux dimensions est possible si l'on s'intéresse à la réalisation de structures plus complexes.



FIGURE 10.1: Modulation de la fluence laser (a) Tache focale de la pré-impulsion présentant une modulation de fluence avec la coordonnée spatiale x. (b) coupe prise au centre de la tache focale (a). Les points 1 et 2 correspondent respectivement aux points où la fluence est maximale et minimale, et par conséquent aux points où la vitesse d'expansion du plasma est maximale et minimale.

Pour valider le principe de réseau plasma transitoire, nous avons réalisé une série de simulations 1D à l'aide du code ESTHER. Nous avons pour cela utilisé le profil de fluence laser présenté sur la figure 10.1b, et nous avons réalisé des simulations pour chaque fluence comprise entre la fluence maximale et la fluence minimale. Pour chacune de ces simulations nous obtenons alors la densité électronique $n_e^{1D}(F(x), z, \tau)$. A partir de ces résultats, on peut déduire la structure 2D du plasma en écrivant simplement $n_e^{2D}(x, z, \tau) = n_e^{1D}(F(x), z, \tau)$.

Nous avons choisi de réaliser une série de simulations 1D plutôt qu'une simulation 2D, car une simulation 2D est plus coûteuse en temps de calcul. De plus, expérimentalement, nous verrons dans la prochaine section que la plus petite périodicité de modulation p_r que



FIGURE 10.2: Modulation de la densité électronique du plasma. Ces cartes représentent la densité électronique $n_e(x, z, \tau)$ obtenue à partir du code hydrodynamique ESTHER à deux différents instants τ après le début de l'expansion du plasma : en (a) $\tau = 0.35ps$ et en (b) $\tau = 1.18ps$.

l'on peut atteindre est de l'ordre de quelques microns $(p_r \simeq 10 \mu m)$, la vitesse d'expansion est de l'ordre de $C_s \simeq 30 nm/ps$ et l'instant d'intérêt $\tau < 3ps$. On a ainsi $C_s \tau \ll p_r$, on peut donc considérer les effets hydrodynamiques 2D comme négligeables, ce qui nous permet d'affirmer que les résultats issus de simulations 1D sont parfaitement valables.

Nous présentons les cartes de densités électroniques obtenues à partir de ces simulations sur la figure 10.2, pour deux instants τ après le début de l'expansion du plasma : (a) $\tau = 0.35ps$ et en (b) $\tau = 1.18ps$. Cette figure montre que la modulation de fluence mène bien à une modulation de la surface plasma. La position de la densité critique, représentée par la ligne noire, suit parfaitement cette modulation qui a une structure en forme de réseau. De plus, les panneaux (a) et (b) qui ont été pris à deux instants τ différents montrent que la profondeur de modulation du réseau grandit lorsque l'instant τ augmente. Ainsi n'importe quelle impulsion laser arrivant sur cette surface modulée, est réfléchie par un réseau. Il est possible de varier la profondeur du réseau simplement en changeant l'instant τ auquel l'impulsion laser interagit avec ce réseau.

10.2 Dispositif expérimental

Pour notre expérience visant à générer des harmoniques sur un réseau plasma transitoire, nous avons utilisé le schéma expérimental présenté sur la figure 10.3. Nous avons placé deux miroirs (M1, M2) d'un demi pouce devant le miroir six pouces M0. La distance D_p séparant M1 et M2, ainsi que les distances (δ_1, δ_2) entre les miroirs (M1, M2) et M0 sont réglables. Lorsqu'une impulsion laser est réfléchie sur cet ensemble de trois miroirs, on obtient trois faisceaux se propageant dans la même direction. Les deux faisceaux issus de (M1, M2) servent de pré-impulsion pour créer le réseau plasma transitoire, et le faisceau issu de M0 est l'impulsion principale qui génère les harmoniques sur ce réseau.

Avant d'envoyer les trois faisceaux provenant de la réflexion sur les trois miroirs M_1, M_2

138CHAPITRE 10. CRÉATION ET UTILISATION DE RÉSEAUX PLASMAS TRANSITOIRES



FIGURE 10.3: Dispositif expérimental permettant de créer une modulation de fluence au foyer On note $\tau = (\tau_1 + \tau_2)/2$ le délai entre les deux pré-impulsions et l'impulsion principale et $\tau' = (\tau_2 - \tau_1)/2$ le délai entre la première et la seconde pré-impulsion.

et M_0 sur la parabole de focalisation, on place un masque qui laisse passer les deux préimpulsions et qui sélectionne une partie seulement de l'impulsion principale. Ainsi cette dernière est diaphragmée et a un diamètre D.

Lorsque le délai entre les deux pré-impulsions est nul, elles interférent au foyer après focalisation, menant à une figure d'interférence telles que celles présentées en échelle de gris sur la figure 10.4a. On a ainsi réussi à créer la modulation de fluence laser nécessaire à la création d'un réseau plasma. Ce système présente l'avantage d'être relativement simple à mettre en place et facilement modulable : on peut aisément soit changer le diamètre D du faisceau principal, soit changer l'espacement D_p entre les deux pré-impulsions (changer l'espacement D_p nous permet de changer le pas du réseau p_r).

Les quatres panneaux de la figure 10.4 ont été obtenues dans quatre configurations différentes. En (a,b) l'espacement entre les pré-impulsions vaut $D_p = 55mm$, et il est de $D_p = 15mm$ en (c,d). On voit clairement entre ces deux panneaux que lorsqu'on change D_p on change le pas du réseau p_r . En (a,c), le diamètre de l'impulsion principale est de D = 20mm, alors qu'il vaut D = 75mm en (b,d). Lorsqu'on modifie D, on change évidemment la taille de la tache focale de l'impulsion principale, cela va modifier deux paramètres de l'interaction : l'intensité de l'impulsion principale (en choisissant D, on choisit le régime d'interaction -CWE ou ROM- tout comme dans la partie précédente) et le nombre de traits du réseau qu'elle illumine.

Ainsi le nombre de traits éclairés du réseau dépend de D_p et de D. Il est proportionnel au rapport D_p/D . Cela se comprend intuitivement : plus D_p est grand et plus les franges sont resserrées, la tache focale illumine donc plus de franges et plus D est petit, plus tache focale est grande et donc plus elle illumine de franges. La différence intéressante entre les deux différentes configurations (a,b) et (c,d) est que dans la première (a,b) la tache focale laser illumine plusieurs franges du réseau, on interagit ainsi avec un vrai réseau, alors que dans la deuxième configuration (c,d), la tache focale illumine moins d'une frange



FIGURE 10.4: Distribution d'intensité au foyer de l'optique de focalisation. En échelle de gris est représentée la figure d'interférence obtenue avec les deux pré-impulsions espacées de $D_p = 55mm$ (a,b) et de $D_p = 15mm$ (b,d). En échelle de couleur est représentée la tache focale de l'impulsion principale pour un diamètre de faisceau D = 20mm (a,c) et D = 75mm (b,d).

du réseau, et on interagit dans ce cas, non pas avec un réseau, mais avec une surface modulée. Nous verrons pourquoi il est particulièrement intéressant d'interagir avec une surface modulée dans le prochain chapitre.

Grâce à notre système, il est également possible de changer la profondeur du réseau en changeant le délai relatif $\tau' = \tau_1 - \tau_2$ entre la première et la deuxième impulsion. En effet, si ce délai est nul $\tau' = 0$, le contraste C des franges entre les deux pré-impulsions est maximal (C = 1), la profondeur du réseau sera alors maximale. En revanche, si τ' est supérieur au temps de cohérence τ_c entre les deux pré-impulsions $\tau' > \tau_c$, les préimpulsions n'interfèrent plus, C = 0, et aucun réseau n'est créé. Cela permet de changer aisément les conditions d'interaction. Dans ce chapitre, nous nous intéressons uniquement aux cas (a,b). Nous étudierons les cas (c,d) dans le prochain chapitre.

10.3 Observation expérimentale de la génération d'harmoniques sur réseau plasma

10.3.1 Etude des harmoniques CWE

Nous avons tout d'abord testé notre réseau plasma tranistoire à des éclairements modérées en étudiant la génération d'harmoniques sur ce réseau. Pour étudier les harmoniques CWE, nous nous sommes placés dans le cas de la figure 10.4a. Dans ces conditions, l'éclairement de l'impulsion principale est de $2 \times 10^{16} W.cm^{-2}$. Pour obtenir cet éclairement, avec une focale de f = 500mm, nous avons choisi un diamètre de faisceau D = 20mm. Nous avons espacé au maximum les miroirs (M1, M2) l'un par rapport à l'autre pour obtenir le pas de réseau le plus petit possible réalisable dans notre expérience. La distance D_p vaut alors $D_p = 55mm$, ce qui donne un pas de réseau $p_r = \lambda f/D_p = 7\mu m$. Nous sommes ainsi dans les conditions expérimentales de la figure 10.4a. Le nombre de franges illuminées par l'impulsion principale étant proportionnel au ratio D_p/D , on est capable d'illuminer 5 franges du réseau.

La figure 10.5a montre le spectre résolu angulairement obtenu lorsqu'on focalise l'impulsion principale à un délai $\tau = 0.35ps$ après les deux pré-impulsions, lorsque le délai $\tau' = 0$. Sur cette figure, on voit que chaque harmonique CWE est diffractée. Le motif de diffraction est symétrique et dépend de l'harmonique considérée. Pour vérifier que ce motif de diffraction était bien dû au réseau, nous avons augmenté le délai τ' jusqu'à avoir $\tau' > \tau_c$, délai pour lequel aucun réseau n'est formé. Nous obtenons alors le spectre résolu angulairement (b). Plus aucune harmonique n'est diffractée. Le spectre harmonique résolu angulairement observé est similaire à ceux que nous avons présentés jusqu'à présent.

10.3.2 Etude des harmoniques relativistes

Nous avons ensuite étudié la génération d'harmoniques relativistes sur un réseau transitoire. Pour cela, il a fallu augmenter l'éclairement laser. Pour atteindre un éclairement de $1 \times 10^{18} W.cm^{-2}$, nous avons donc enlevé le diaphragme et utilisé la totalité du faisceau principal qui a un diamètre D = 75mm. Cela a pour effet de réduire le nombre de franges illuminées à 2. Nous sommes ainsi dans les conditions expérimentales de la figure 10.4b. Le spectre résolu angulairement obtenu dans ces conditions pour un délai $\tau = 1.18ps$ et un délai $\tau' = 0$ est présenté sur la figure 10.5c. Encore une fois, on observe un spectre harmonique diffracté dont le motif de diffraction dépend de l'ordre harmonique. Cependant, contrairement au cas des harmoniques CWE (figure 10.5a), on peut noter que ce motif n'est plus symétrique. Lorsque le délai τ' entre les deux pré-impulsions excède la durée de cohérence τ_c ($\tau' > \tau_c$), les harmoniques générées ne sont plus diffractées (figure 10.5d).

10.3.3 Premier bilan

Ces résultats sont importants pour deux aspects. Tout d'abord ils montrent que l'on est expérimentalement capable de créer un réseau plasma transitoire. De plus, ce réseau résiste à des éclairements très élevés, la structure créée n'est pas détruite par l'impulsion laser principale. Preuve en est que lorsqu'on crée le réseau plasma, on observe des harmoniques diffractées (figure 10.5(a,c)), alors qu'elle ne le sont pas lorsque le réseau n'est pas formé (figure 10.5(b,d)). Ceci est un point crucial de la manipulation, cela montre que n'importe quelle structure peut être créée in-situ. Notre expérience peut être généralisée à la création de microstructures plus complexes 1D ou 2D [78]. Nous allons montrer dans



FIGURE 10.5: Résultats expérimentaux. Les panneaux (a) et (b) montrent le spectre résolu angulairement obtenu pour les harmoniques CWE, pour des délais $\tau' = 0$ en (a) et $\tau' > \tau_c$ en (b), pour un délai $\tau = 0.35ps$ et un éclairement de $2 \times 10^{16} W.cm^2$. Les panneaux (c) et (d) montrent les spectres résolus angulairement d'harmoniques ROM, obtenus pour des délais $\tau' = 0$ (c) et $\tau' > \tau_c$ (d), pour un délai $\tau = 1.18ps$ et un éclairement de $1 \times 10^{18} W.cm^2$. Chaque encart montre le profil spatial dû aux deux pré-impulsions en échelle de gris à laquelle est superposée la tache focale laser en échelle de couleur.

la prochaine section qu'à partir de l'étude du motif de diffraction des harmoniques nous sommes capables, pour la première fois expérimentalement, d'obtenir une caractérisation spatiale complète des harmoniques dans le plan source.

10.4 Propriétés des harmoniques dans le plan source

Dans cette section, nous allons tout d'abord présenter le principe de mesure des propriétés spatiales harmoniques dans le plan source. Nous l'appliquerons ensuite aux données expérimentales que nous venons de présenter et montrerons les premières mesures harmoniques dans le plan source ainsi effectuées.

10.4.1 Principe

Expérimentalement, ce qui est facilement mesurable est le spectre harmonique résolu angulairement, que nous notons $|H_n(k)|^2$. $H_n(k)$ est le champ réfléchi après propagation jusqu'au détecteur, autrement dit, c'est la transformée de Fourier du champ dans le plan source $h_n(x)$: $H_n(k) = TF(h_n(x))$. Pour déterminer $h_n(x)$ à partir de $H_n(k)$, il est nécessaire de connaître la phase de $H_n(k)$. Nous allons voir comment cela est possible avec l'utilisation des réseaux plasmas.

Lorsque l'on module la surface, on module la phase spatiale du champ $h_n(x)$. On peut alors écrire le champ dans le plan source $h_n^r(x)$ comme le produit entre la modulation m(x) et le champ dans le plan source en l'absence de modulation $h_n(x)$:

$$h_n^r(x) = h_n(x) \times m(x) \tag{10.1}$$

Dans le cas d'un réseau, cette modulation peut s'écrire :

$$m(x) = A \exp(i \cos(\alpha x)) \tag{10.2}$$

avec α la période de modulation et A l'amplitude de la modulation (figure 10.6a). Le signal $S_n(k)$ que l'on mesure alors sur le détecteur est la convolution entre le faisceau harmonique non-perturbé et la tranformée de Fourier de la modulation M(k) = TF(m(x)):

$$S_n(k) = |H_n(k) \otimes M(k)|^2 \tag{10.3}$$

La fonction M(k) converge sur un ensemble de pics de Bragg (figure 10.6b) dont la périodicité est déterminée par le pas du réseau. Le réseau a pour effet de générer des



FIGURE 10.6: Modulation de la surface (a) Dans le plan source, la modulation du réseau vaut m(x), elle a une amplitude A et une périodicité α . (b) La transformée de Fourier de cette modulation correspond à un peigne de Dirac dont la périodicité dépend du pas α du réseau. Chaque pic du peigne correspond à un ordre de diffraction du réseau.



FIGURE 10.7: Deux régimes de diffraction (a) Lorsque la divergence de chaque réplique (traits pointillés rouges) est petite par rapport à l'espacement β entre les ordres de diffraction du réseau (réprésentés par les pointillés noirs), les répliques ne se recouvrent pas et donnent le motif de diffraction représenté en trait bleu. (b) Lorsque la divergence de chaque réplique (traits pointillés rouges) est de l'ordre de grandeur ou grande par rapport à l'espacement β entre les ordres de diffraction du réseau (réprésentés par les pointillés noirs), les répliques se recouvrent et interfèrent. Cela donne un motif de diffraction plus complexe (bleu).

répliques de $H_n(k)$ en champ lointain sur le détecteur. En fonction du profil de $H_n(k)$, deux régimes de diffraction sont possibles, comme représenté sur la 10.7 :

- 1. En (a), la divergence θ du faisceau harmonique $H_n(k)$ est petite par rapport à l'espacement β entre les pics de la fonction M(k) : les différentes répliques de $H_n(k)$ (pointillés rouges) ne se recouvrent pas. On observe alors une figure de diffraction telle que celle présentée en trait bleu.
- 2. En (b) la divergence θ est comparable ou plus grande que l'espacement β : les répliques de $H_n(k)$ (pointillés rouges) se recouvrent et interfèrent. Dans ce cas, la figure de diffraction (toujours en trait bleu) a une structure plus complexe.

La différence majeure entre les deux régimes de diffraction est que les différentes répliques de $H_n(k)$ interfèrent dans le cas (b), contrairement au cas (a). A partir de la figure d'interférence (trait bleu en (b)), on est capable de déterminer la phase de $H_n(k)$. Connaissant la phase de $H_n(k)$, on peut maintenant déterminer la fonction $h_n(x)$ et ainsi obtenir les informations sur les propriétés harmoniques dans le plan source. Nous allons utiliser cette méthode pour déterminer la taille de source harmonique dans le cas des harmoniques CWE, puis dans le cas des harmoniques ROM.

10.4.2 Interprétation des résultats

Pour obtenir les tailles de source des harmoniques, nous avons développé un modèle simple qui permet de calculer le motif de diffraction du faisceau harmonique à partir de $h_n(x)$ en utilisant les équations précédentes (10.1, 10.2 et 10.3). Dans ce modèle, nous avons supposé que le profil harmonique $h_n(x)$ dans le plan source a un profil Gaussien, de taille de source w_n et une phase quadratique $\phi_n = \alpha_n x^2$. Nous calculons ensuite le motif de diffraction connaissant la période α de la modulation m(x) que nous appliquons. Ensuite


FIGURE 10.8: Détermination des tailles de source harmonique. En bleu est représenté le profil angulaire de l'harmonique 12 obtenu à partir du spectre résolu angulairement de la figure 10.5a (a) et de celui de la figure 10.5c (b). En pointillés rouges est représenté, dans les deux cas, le meilleur fit obtenu à partir de notre modèle.

nous utilisons la méthode des moindres carrés entre le motif de diffraction ainsi calculé et celui mesuré expérimentalement pour obtenir la meilleure concordance possible. Nous déterminons ainsi w_n , α_n et A.

Cas des harmoniques CWE

Nous avons tracé sur la figure 10.8a, le profil angulaire de l'harmonique 12, obtenu à partir du spectre résolu angulairement de la figure 10.5a, ainsi que le profil calculé grâce à notre modèle (traits pointillés rouges). L'accord entre les deux profils est très bon. Grâce à ces résultats nous avons pu déterminer la taille de source harmonique w_{12} pour l'harmonique 12 :

$$w_{12} = (1 \pm 0.15).w_L \tag{10.4}$$

où w_L est le waist laser. Nous obtenons le même ordre de grandeur pour toutes les harmoniques. Ceci est en excellent accord avec les simulations PIC où tous les ordres harmoniques ont une taille de source similaire qui vaut $w_n \simeq w_L$, comme le montre la figure 10.9.

Cas des harmoniques ROM

Nous avons représenté sur la figure 10.8b, le profil angulaire de l'harmonique 12 (harmonique ROM), obtenu à partir du spectre résolu angulairement de la figure 10.5c, ainsi que le profil calculé grâce à notre modèle (traits pointillés rouges). L'accord entre les deux profils est excellent. Nous avons ainsi pu mesurer la taille de source de l'harmonique 12 :

$$w_{12} = (0.6 \pm 0.07).w_L \tag{10.5}$$



FIGURE 10.9: Evolution des tailles de source des harmoniques CWE. Cette courbe d'évolution de la taille de source a été obtenue à partir d'une simulation PIC 2D (cf. partie 5.2), réalisée dans des conditions similaires aux conditions expérimentales. Tous les ordres harmoniques ont une taille de source similaire qui vaut $w_n \simeq w_L$.

Nous avons tracé sur la figure 10.10 l'évolution de la taille de source harmonique en fonction de l'ordre harmonique mesurée expérimentalement (points) et issue des simulations PIC (trait rouge). L'accord entre les deux est excellent.

Nous avons ainsi pu mesurer expérimentalement, pour la première fois, la différence de taille de source entre les harmoniques CWE et ROM. Nous avons également mesuré la dépendance de la taille de source harmonique pour les deux mécanismes en fonction de divers paramètres : éclairement laser, longueur de gradient et position du foyer laser. Ces résultats seront présentés par A. Leblanc, qui est doctorant au sein de notre groupe [79]. Il nous reste maintenant à expliquer qualitativement la différence de motif de diffraction observé entre les harmoniques CWE et les harmoniques ROM.



FIGURE 10.10: Evolution des tailles de source des harmoniques ROM. Les points correspondent aux tailles de source que nous avons calculées à partir de notre modèle. La courbe rouge correspond aux tailles de source que l'on mesure dans les simulations PIC 2D. L'équation de la courbe rouge : $w_n/w_L = 0,72 - 9,10^{-3} \times n$ est la même que celle que nous avons utilisée dans la partie 9.2.3.

Différence entre les profils CWE et ROM

En effet, nous l'avons déjà dit (cf. partie 10.3), lorsque l'on compare les motifs de diffraction CWE et ROM (figure 10.5(a,c) pour le spectre complet et figure 10.8 pour le profil angulaire de l'harmonique 12), on s'aperçoit que le premier est symétrique alors que le second est totalement dissymétrique.

Pour comprendre l'origine de cette dissymétrie, nous allons revenir sur les conditions expérimentales. Dans le cas des harmoniques CWE, on illumine $\simeq 5$ franges du réseau avec l'impulsion laser principale, alors que dans le cas ROM on n'illumine que $\simeq 2$ franges. Cette situation est schématisée sur la figure 10.11. Dans le cas ROM, on illumine peu de franges ($\simeq 2$). Or nous venons de voir que la source harmonique ROM a une taille deux fois plus petite que celle du laser (cf équation 10.5). Ainsi si on éclaire 2 franges avec le laser, cela signifie que la source harmonique ROM n'illumine qu'une seule frange. On comprend alors pourquoi le motif de diffraction est dissymétrique. En effet, le motif de diffraction va fortement dépendre de la portion du réseau que l'on illumine avec le laser, comme schématisé sur la figure 10.12. Dans le cas où la position relative entre les deux est telle que représentée sur la figure 10.12a, on observe le motif de diffraction (b). Et si la position relative est celle de la figure 10.12c, on observe le motif de diffraction (d). Comme cette position relative varie tir à tir, on observe que le motif de diffraction varie fortement tir à tir (figure 10.12). Cet effet est également présent lors de la génération des harmoniques CWE, seulement comme on illumine plus de franges, il est moins notable. Si on comprend maintenant la différence de symétrie observée entre les motifs de diffraction des harmoniques CWE et ROM, cela soulève une question intéressante : si le motif de diffraction change en fonction de la position relative entre l'impulsion laser et les franges du réseau, quelle est la position correcte à considérer pour obtenir les informations sur les propriétés harmoniques dans le plan source?

Pour répondre à cette question nous nous sommes intéressés à la ptychographie [80, 81, 82, 83] et à ces récents développements [84, 85, 86]. La ptychographie a été premièrement



FIGURE 10.11: Différence des profils harmoniques CWE et ROM. En (a) sont schématisées les "conditions expérimentales" dans lesquelles sont générées les harmoniques CWE. La source harmonique CWE illumine $\simeq 5$ franges du réseau. En (b) sont schématisées les conditions expérimentales dans lesquelles sont générées les harmoniques ROM. La source harmonique ROM illumine $\simeq 2$ franges du réseau. Le motif de diffraction que l'on observe dépend alors de l'endroit sur le réseau où les harmoniques sont générées.

conçue pour la microscopie électronique en transmission [80, 87] et consiste à étudier les motifs de diffraction d'un faisceau lumineux ou d'électrons après passage dans un échantillon. En utilisant les interférences des réflexions de Bragg adjacentes, contenu dans le motif de diffraction, il est possible de déterminer la structure de l'échantillon. Ces mesures ne sont pas sans lien avec celles que nous avons réalisées dans la section 10.4.2. En effet, nous avons utilisé les interférences entre les réflexions de Bragg pour déterminer la taille de source $h_n(x)$ des harmoniques. Dans nos expériences, l'échantillon est le réseau plasma transitoire et la source lumineuse est le faisceau d'harmoniques. Nous allons maintenant voir pourquoi il peut être intéressant de mesurer le motif de diffraction en fonction de la position relative entre la source harmonique et les franges du réseau.

Dans notre démarche, nous avons dû émettre certaines hypothèses quand à la forme de h_n (profil gaussien) et de Φ_n (phase quadratique) pour pouvoir mesurer effectivement la taille de source harmonique. Cependant, les récents développements de la ptychographie [84, 85, 86], montrent qu'à priori cela n'est pas nécessaire si on scanne l'échantillon par rapport au faisceau incident. Dans notre cas, cela revient à mesurer l'évolution du motif de diffraction en fonction de la position relative entre les franges du réseau et la source harmonique. On obtient alors une série de motifs de diffraction. Ainsi on accumule plus d'information que dans le cas où on n'acquiert qu'un seul motif de diffraction et grâce à cette redondance



FIGURE 10.12: Dépendance du motif de diffraction à la position relative entre l'impulsion laser et les franges du réseau. En (a,b) sont schématisées deux positions relatives entre l'impulsion laser principale et les franges du réseau. En (b) est tracé le spectre harmonique résolu angulairement dans le cas de la position relative (a). En (d) est tracé le spectre harmonique résolu angulairement dans le cas de la position relative (c).

d'information on est ainsi capable de reconstruire le profil harmonique sans hypothèse, en utilisant un algorithme numérique [88]. Nous avons mis en oeuvre cette technique dans une toute nouvelle série de mesures visant à déterminer les propriétés harmoniques dans le plan source sans aucune hypothèse [89]. Nous avons réalisé ces mesures dans un régime extrême où le waist de la tache focale laser est très petite devant le pas du réseau : le régime streaking. Nous présentons ces résultats dans le prochain chapitre.

Chapitre 11

La ptychographie en régime de streaking

Nous allons dans ce chapitre étudier la diffraction des harmoniques sur un réseau plasma transitoire dans un régime particulier où le waist de la tache focale est très petit par rapport au pas du réseau (cas de la figure 10.4d). Dans ce cas, comme nous l'avons dit dans le chapitre précédent, les harmoniques ne sont plus générées sur un réseau mais sur une surface modulée. Nous montrerons dans ce chapitre comment cela nous permet de mesurer les propriétés spatiales (taille de source et phase) des harmoniques et nous présenterons ensuite les premiers résultats issus de ces mesures.

11.1 Principe

11.1.1 Cas général

Au foyer de l'interaction, lorsque les harmoniques sont générées à partir d'une surface modulée, en notant f cette modulation, on peut écrire le profil harmonique dans le plan source $h_n^m(x)$, en présence de modulation, sous la forme :

$$h_n^m(x, x_0) = h_n(x) f(x - x_0)$$
(11.1)

où $h_n(x)$ correspond au profil harmonique en l'absence de modulation, x_0 correspond au fait que la modulation f rencontrée par les harmoniques dépend de la position relative entre la source harmonique et les franges du réseau (figure 11.1).

Comme nous l'avons dit dans la section 10.4.1, ce que nous mesurons expérimentalement est le spectre harmonique résolu angulairement $S_n(k, x_0) = |H_n(k, x_0)|^2$, où $H_n(k, x_0)$ est la transformée de Fourier de la fonction $h_n^m(x, x_0)$. On peut donc écrire le signal $S_n(k, x_0)$ sous la forme :

$$S_n(k, x_0) = |\int h_n^m(x, x_0) \exp(ikx) \, \mathrm{d}x|^2$$
(11.2)

En combinant les équations 11.1 et 11.2, on obtient :

$$S_n(k, x_0) = |\int h_n(x) f(x - x_0) \exp(ikx) dx|^2$$
(11.3)

Expérimentalement, on obtient $S_n(k, x_0)$ en mesurant le profil des harmoniques, en champ lointain, pour chaque position x_0 . Ensuite, à partir de la mesure de $S_n(k, x_0)$, il existe un certain nombre d'algorithmes permettant la reconstruction de $h_n(x)$ [88, 90, 91, 92, 17, 93]. A partir de la reconstruction de $h_n(x)$, on détermine les tailles de source des harmoniques ainsi que leur phase. Nous allons maintenant présenter un exemple dans un cas particulier, pour mieux comprendre comment est encodée l'information sur la phase et la taille de source des harmoniques dans $S_n(k, x_0)$.

11.1.2 Cas particulier

Pour comprendre le principe des mesures ptychographiques en régime de streaking, nous allons maintenant nous intéresser plus en détail aux effets que va introduire la variation de x_0 sur le motif de diffraction des harmoniques. Nous avons schématisé sur la partie gauche de la figure 11.1, la génération d'harmoniques pour plusieurs valeurs de x_0 , dans le cas où la phase spatiale des harmoniques est constante (cas des harmoniques ROM hors régime d'enfoncement).

Lorsque x_0 est nul (figure 11.1a), la tache focale laser se trouve sur un creux de modulation. Les harmoniques sont générées à partir d'un miroir plasma concave. La modulation de la surface introduit une phase spatiale pour les harmoniques. Cela tend à accroître leur divergence. Sur le détecteur on va donc mesurer une divergence θ_1 plus grande que lorsque les harmoniques sont générées sur une surface plane. Les harmoniques sont émises sur l'axe (dans la direction $\theta_x = 0$).

Lorsque $x_0 = p_r/2$ (figure 11.1b)), la tache focale laser se trouve sur une bosse de la modulation. Les harmoniques sont générées à partir d'un miroir convexe qui a la même focale que le miroir concave précédent. L'effet sur la phase des harmoniques sera identique, on va donc mesurer sur le détecteur une divergence $\theta_2 = \theta_1$, et le faisceau harmonique est toujours émis sur l'axe.

Si on se place dans un cas intermédiaire où $x_0 = p_r/4$ (figure 11.1c), la tache focale se trouve sur une pente de la modulation, la surface va introduire une phase spatiale linéaire sur les harmoniques, on mesure une divergence en champ lointain $\theta_3 < \theta_1$, qui est la divergence des harmoniques limitées par diffraction (diffraction obtenue depuis une cible plane). On observe le faisceau harmonique dans la direction $\theta_x = \theta_{\pi/2}$.

Etudions maintenant ces trois cas pour une source harmonique qui a une phase quadratique (figure 11.1, côté droit). Il peut par exemple s'agir des harmoniques ROM en régime d'enfoncement.

Lorsque $x_0 = 0$ (figure 11.1e), la phase spatiale introduite par le miroir concave va s'ajouter à celles des harmoniques qui vont être focalisées encore plus fort que dans le cas (a). Leur divergence θ'_1 sera plus grande que celle obtenue dans le cas (a) : $\theta'_1 > \theta_1$. 11.1. PRINCIPE



FIGURE 11.1: Effet de la position relative entre les franges du réseau et la source harmonique. A gauche on a représenté l'effet de la position relative entre les franges du réseau et la source harmonique sur la diffraction des harmoniques dans le cas où elles ont une phase constante, pour trois valeurs de x_0 : (a) 0, (b) $p_r/2$, (c) $p_r/4$ (avec p_r la périodicité du réseau). A gauche on a représenté cet effet dans le cas où les harmoniques ont une phase quadratique, pour trois valeurs de x_0 : (d) 0, (e) $p_r/2$, (f) $p_r/4$.

Pour $x_0 = p_r/2$ (figure 11.1d), la phase spatiale introduite par la surface va réduire la phase des harmoniques et ainsi compenser en partie leur divergence. On va mesurer une divergence harmonique θ'_2 plus grande que celle limitée par diffraction (obtenue pour des harmoniques ayant une phase spatiale générée sur une cible plane). On a donc $\theta'_2 > \theta_3$. Lorsque $x_0 = p_r/4$, la phase introduite par la surface est linéaire et on mesure une divergence θ'_3 , et maintenant on mesure ce profil dans la direction $\theta_x = \theta_{\pi/2}$.

Ces effets de modulation de la divergence des harmoniques sont bien évidemment d'autant plus marqués que la source harmonique est étendue, et sont donc dépendants de la taille de source des harmoniques. Ainsi lorsqu'on mesure la variation du motif de diffraction en fonction de x_0 , c'est-à-dire $S_n(k, x_0)$, on obtiendra une évolution différente en fonction de la valeur de la phase et de la taille de source des harmoniques. La fonction $S_n(k, x_0)$ dépend donc directement de la phase et de la taille de source des harmoniques et contient donc l'information nécessaire à leur détermination. Nous allons maintenant présenter le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour réaliser nos mesures.

151



FIGURE 11.2: Fluctuation de la la position des franges du réseau. En (a) et (b) sont tracées les deux taches focales dues aux deux pré-impulsions pour deux tirs différents. Aucun paramètre n'a été varié. Sur le panneau (c), est tracé le profil intégré des taches focales (a) et (b). La position des franges est complètement différente, elle fluctue aléatoirement.

11.1.3 Mise en pratique

Problème lié à la stabilisation temporelle des deux pré-impulsions

D'un point de vue expérimental, le point crucial à contrôler est la position relative entre les franges du réseau et la source harmonique (c'est la position x_0), puisque c'est d'elle que dépend le signal $S_n(k, x_0)$ que l'on mesure et qui permet la reconstruction du profil harmonique $h_n(x)$. Malheureusement, dans notre expérience nous ne sommes pas en mesure de la contrôler car la stabilité de notre dispositif mécanique n'est pas assez bonne pour empêcher des fluctuations, supérieures ou de l'ordre du cycle optique laser, du délai τ' entre les deux pré-impulsions. Pour illustrer ce point, nous avons tracé sur la figure 11.2(ab), la figure d'interférence des deux pré-impulsions prises à deux instants différents sans qu'aucune opération ne soit menée sur le dispositif. On voit que la figure d'interférence est modifiée à cause de la fluctuation du délai τ' . La position des franges n'est absolument pas stable (figure 11.2c), elle varie aléatoirement, cela signifie que la position relative entre les franges et la source harmonique varie aléatoirement. Il est donc impossible de réaliser des mesures de ptychographie dans ces conditions, puisqu'on ne contrôle pas x_0 . Etant donné qu'il n'est pas possible de contrôler la position relative des franges et de la source harmonique, nous avons décidé de la mesurer.

Montage expérimental

Pour cela, l'idée que nous avons eue est d'imager un plan équivalent à celui de la cible, en même temps que nous réalisons les mesures harmoniques. En réalisant cette imagerie on peut mesurer la tache focale des deux pré-impulsions ainsi que celle de l'impulsion principale et ainsi déterminer leur position relative, comme le montre l'encart bleu clair de la figure 11.3, et ce en même temps que l'on mesure les profils harmoniques résolus spectralement.

Nous avons pour cela mis en place le dispositif expérimental présenté sur la figure 11.3.

152

11.2. RÉSULTATS

Le faisceau laser arrive sur le miroir M_0 , les deux pré-impulsions sont générées à l'aide des miroirs M_1 et M_2 , si bien qu'après réflexion sur les trois miroirs, trois faisceaux laser se propagent vers le miroir diélectrique M_3 . C'est à partir de M_3 que nous avons modifié notre dispositif :

- 1. ~ 99.9% du faisceau arrivant sur M_3 est réfléchi et sert à générer les harmoniques sur le réseau. Les trois faisceaux (2 pré-impulsions+faisceau principal) sont focalisés sur la cible solide par une parabole hors axe, et le rayonnement XUV est observé par un spectromètre XUV identique à celui décrit dans la partie 4.5.
- 2. ~ 0.1% du faisceau arrivant sur M_3 est transmis par M_3 . C'est cette portion de faisceau que nous utilisons pour mesurer la position des franges. On focalise les trois faisceaux à l'aide d'une lentille de focale de 750mm dont on image le plan focal sur une caméra. On mesure ainsi les taches focales de l'impulsion principale et des deux pré-impulsions.

Cela nous permet, à chaque tir, de connaître la position x_0 à laquelle le profil harmonique a été mesuré (figure 11.4) et ainsi de pouvoir mesurer correctement $S_n(k, x_0)$. Nous allons maintenant nous intéresser aux premières mesures expérimentales que nous avons obtenues.

11.2 Résultats

11.2.1 Observation expérimentale

Nous avons donc mesuré les spectres résolus angulairement des harmoniques en fonction de x_0 . Nous présentons sur la figure 11.4, trois spectres harmoniques résolus angulairement, obtenus pour trois positions x_0 différentes. Nous retrouvons le fait que la surface du réseau module la divergence des harmoniques (cf. section 11.1.2). La divergence des harmoniques est plus grande en (b) qu'en (d,f) et en (d) le faisceau harmonique n'est plus émis sur l'axe mais dans une direction légèrement différente. Pour obtenir $S_n(k, x_0)$ à partir des spectres mesurés, nous intégrons spectralement, pour toutes les positions x_0 , chaque profil harmonique. Nous avons ainsi obtenu la figure 11.5a, sur laquelle nous avons représenté $S_{12}(k, x_0)$ (obtenu pour l'harmonique 12).

11.2.2 Interprétation

Sur la figure 11.5a, on retrouve ce que l'on vient de voir sur la figure 11.4 et que l'on avait également présenté dans la section 11.1.2 : en fonction de x_0 la divergence des harmoniques change et la direction de propagation du faisceau harmonique change aussi. Nous avons utilisé la formule 11.3 pour mettre en place l'algorithme de reconstruction PCGPA (Principal Components Generalized Projections Algorithm), développé par D.J. Kane [88]. Cet algorithme nous permet de reconstruire numériquement $S_n(k, x_0)$ grâce à la formule 11.3. Après une étape d'initialisation où, à partir d'une estimation de $h_n(x)$



FIGURE 11.3: Dispositif expérimental permettant de la position relative entre les franges du réseau et la source harmonique. Lorsque l'impulsion principale issue de M_0 et les deux pré-impulsions issues de M_1 et M_2 arrivent sur le miroir diélectrique M_3 . ~ 99,9% du faisceau arrivant sur M_3 est réfléchi par M_3 , et permet de générer les harmoniques, les trois faisceaux sont focalisés par une parabole hors axe sur une cible solide et on mesure les harmoniques à l'aide du spectromètre XUV présenté dans la partie $4.5. \sim 0.1\%$ du faisceau arrivant sur M_3 est transmis à travers M_3 . Les trois impulsions sont focalisées par une lentille de focale 750mm, on mesure leur tache focale au foyer de la lentille avec une caméra (et un objectif de microscope). Cela permet de mesurer la position relative entre les franges du réseau et la tache focale laser (encart bleu), en même temps que la mesure des profils harmoniques résolus spectralement. Nous sommes ainsi capable de connaître x_0 et ainsi de mesurer $S_n(k, x_0)$.

et ϕ_n , on calcule $S_n^{reconstruite}(k, x_0)$, en comparant $S_n^{reconstruite}(k, x_0)$ calculée et $S_n(k, x_0)$ mesurée expérimentalement l'algorithme génère de nouvelles estimations pour $h_n(x)$ et ϕ_n , à partir desquelles il est posible de calculer de nouveau $S_n^{reconstruite}(k, x_0)$. Itérativement, l'algorithme converge ainsi vers les valeurs expérimentales réelles de $h_n(x)$ et ϕ_n . On est ainsi capable de déterminer le profil $h_n(x)$ et la phase ϕ_n des harmoniques.

Au terme de la reconstruction numérique, nous obtenons $S_n^{reconstruite}(k, x_0)$, qui est tracée sur la figure 11.5b, et qui reproduit bien $S_n(k, x_0)$ mesurée expérimentalement (panneau (a)). On mesure ainsi le profil harmonique $h_n(x)$ et la phase ϕ_n de l'harmonique 12, tracés sur la figure 11.5c. On obtient une taille de source $w_n = 0.6w_L$ et une phase qui varie de π sur toute la taille de source harmonique. Ainsi obtient des résultats similaires à ceux obtenus dans la section 10.4.2, qui concorde parfaitement avec les résultats de simulations PIC [41, 28]. Nous avons ainsi mesuré pour la première fois les propriétés harmoniques

154



FIGURE 11.4: Spectres harmoniques résolus angulairement mesurés pour différentes positions x_0 . (a,c,e) Schéma de la position relative entre les franges du réseau et la source harmonique. La valeur de la position x_0 est obtenue grâce à notre dispositif expérimental présenté sur la figure 11.3. (b,d,f) Spectres harmoniques résolus angulairement obtenus pour les positions x_0 (a,c,e) respectivement.

dans le plan source et ce sans aucune hypothèse, grâce à une mesure ptychographique en régime streaking. Nous avons ici présenté ici uniquement une mesure de $h_{12}(x)$ et ϕ_{12} , mais il est également possible de mesurer les profils et les phases de toutes les harmoniques, en même temps, puisqu'on mesure à chaque fois expérimentalement le profil angulaire des harmoniques résolu spectralement. Si nous obtenons pour la première fois des informations expérimentales sur les tailles de source et la phase des harmoniques, nous sommes avec notre méthode aussi capable de mesurer le profil du réseau plasma. Nous avons également mesuré les propriétés harmoniques dans le plan source en fonction des divers paramètres de l'interaction laser : éclairement laser, position de la cible par rapport au meilleur foyer laser et longueur de gradient. L'analyse détaillée de ces résultats fait l'objet de la thèse d'A. Leblanc [89].



FIGURE 11.5: Première mesure ptychographique en régime streaking des propriétés spatiales des harmoniques dans le plan source. (a) Trace expérimentale obtenue pour un éclairement de $2 \times 10^{18} W.cm^{-2}$ et un gradient de $L/\lambda = 1/20$ pour l'harmonique 12 (p_r est la périodicité du réseau). (b) Trace reconstruite à partir de la trace expérimentale (a). Profil d'amplitude $|h_{12}(x)|$ et phase harmonique ϕ_{12} obtenus grâce à la reconstruction de la trace (a).

11.3 Conclusion

Nous avons, dans cette partie, démontré qu'il est possible de créer des microstructures, telles que des réseaux plasmas transitoires, *in-situ* de manière complètement optique. Ces réseaux plasmas résitent aux hautes intensités $(I > 10^{19} W.cm^{-2})$. La création de microstructures plus complexes peut potentiellement avoir des applications dans l'accélération de protons. Certaines études récentes montrent, en effet, qu'il est possible d'optimiser l'accélération de protons en utilisant des cibles microstructurées [78, 94, 95].

Nous avons, en plus de valider le principe des réseaux plasmas transitoires, réalisé les premières mesures des propriétés spatiales des harmoniques dans le plan source. En effectuant des mesures ptychographiques du profil angulaire harmonique résolu spectralement nous avons pu déterminer la taille de source et la phase des harmoniques dans le plan source et nous avons ainsi pu mettre en exergue les différences de propriétés entre les harmoniques CWE et ROM.

11.3. CONCLUSION

Maintenant que nous connaissons les propriétés harmoniques dans le plan source, l'évolution de la divergence des harmoniques en fonction des paramètres de l'interaction, nous allons nous intéresser à une méthode permettant de générer des impulsions attosecondes uniques et de mesurer une partie des propriétés temporelles liées à la génération d'harmoniques : l'effet phare attoseconde.

Cinquième partie L'effet phare attoseconde

Nous avons vu jusqu'à maintenant, que lorsqu'on focalise un laser suffisamment intense sur une cible, on génère des harmoniques de la fréquence laser incidente qui correspondent dans le domaine temporel à un train d'impulsions attosecondes. Grâce à l'étude des propriétés, à la fois spatiales et spectrales, de ce train, on est en mesure de mieux appréhender l'interaction laser-plasma à haute intensité et de connaître en détail les mécanismes de cette génération d'impulsions attosecondes. Cela nous permet de contrôler les propriétés spatiales du train attoseconde généré. Ceci est très important en vue de futures expériences d'applications, pour lesquelles les harmoniques ne constituent pas une fin en soi mais sont utilisées comme une source de lumière XUV ultra-courte pour de nouvelles études.

Une de ces possibles expériences est la réalisation d'expériences de type pompe-sonde à l'échelle attoseconde. Elles permettraient notamment d'étudier voire de contrôler la dynamique électronique à l'échelle atomique. Sachant que la période de révolution des électrons sur leur orbite de Bohr est de l'ordre de la centaine d'attosecondes, on comprend aisément que de telles études seront difficilement réalisables avec un train d'impulsions attosecondes qui a une durée de plusieurs femtosecondes. Il est donc primordial de réussir à séparer les impulsions de ce train, et de disposer d'impulsions isolées qui sont plus adaptées aux expériences résolues en temps. Depuis une vingtaine d'années, de nombreux scientifiques ont placés leur effort dans la génération d'impulsions attosecondes uniques [15, 34, 35, 96, 97, 98].

Nous aborderons tout d'abord dans cette partie les techniques permettant de générer des impulsions attosecondes uniques qui ont été proposées. Nous présenterons les deux principalement utilisées : "l'intensity gating" [99] et le "polarization gating" [96, 15, 100]. Nous nous intéresserons ensuite, à une toute nouvelle technique développée au sein de notre groupe, "l'effet phare attoseconde", qui vise non pas à isoler une seule impulsion mais chaque impulsion contenue dans le train [34]. Après avoir présenté le principe, nous décrirons la première démonstration expérimentale de cet effet [35], que nous avons réalisée en collaboration avec le groupe de R. Lopez-Martens du Laboratoire d'Optique Appliqué. Nous terminerons cette partie avec une étude qui nous permet de reconstruire le profil temporel du train attoseconde au foyer de l'interaction par "photonic streaking" [31] : à partir des mesures réalisées sur le profil spatial des impulsions en champ lointain obtenu en régime "phare attoseconde", on obtient des informations sur les propriétés temporelles du train attoseconde.

Chapitre 12

La génération d'impulsions attosecondes uniques

Les techniques usuelles de génération d'impulsions attosecondes uniques suivent la même idée principale qui est de réussir à confiner l'émission durant un seul cycle optique laser. Ainsi, au lieu de générer un train d'impulsions on génère une seule impulsion. Ce confinement temporel peut être mis en place soit par contrôle de l'intensité : l'intensity gating, soit par contrôle de la polarisation : le polarization gating.

12.1 Intensity gating

Le principe de l'intensity gating repose sur le fait que la génération d'harmoniques, que ce soit dans les gaz ou sur cible solide est un phénomène très non-linéaire. Les fréquences les plus élevées ne sont générées que lorsque l'intensité laser est maximale. Dans le cas de la génération d'harmoniques relativistes, nous avons vu que cela était dû au fait que plus les électrons vont être tirés à des vitesses élevées (forte intensité), plus la fréquence de coupure des harmoniques va être élevée (cf. partie 3.1). Ainsi, en filtrant le spectre harmonique, de manière à ne sélectionner que les fréquences élevées du spectre, il est possible d'obtenir une seule impulsion attoseconde, qui a été générée au maximum de l'impulsion laser [99].

Pour comprendre plus en détail le principe de l'intensity gating, nous allons nous appuyer sur la figure 12.1. Cette figure a été obtenue à partir du modèle du miroir oscillant, présenté dans la partie 3.2. Lorsqu'on génère des harmoniques avec un laser incident de 25fs, on obtient un spectre d'harmoniques, correspondant à un train d'impulsions (figure 12.1(ab)). Pour isoler une impulsion par intensity gating, il est nécessaire de réduire la durée de l'impulsion laser incidente. Si on réduit la durée de l'impulsion à 3 cycles optique on ne génère plus ici qu'une seule impulsion très intense et deux impulsions satellites moins intenses (figure12.1c). Le spectre est toujours légèrement modulé jusqu'à une certaine fréquence, ici $100\omega_L$ et est continu au-delà (figure 12.1d).

Le train de la figure 12.1c correspond à un filtrage entre l'harmonique 5 et 30 du spectre

(d) (filtre orange). Si maintenant on filtre une gamme d'harmoniques plus élevées (là où le spectre est continu, filtre vert), on obtient une impulsion attoseconde unique (e). On a ainsi réussi à isoler une impulsion attoseconde par "intensity gating. On peut également utiliser le terme "high frequency filtering", car c'est en filtrant les harmoniques les plus élevées que l'on obtient l'impulsion attoseconde unique.

Si cette technique est facilement applicable dans les gaz, où l'intensité au foyer est de l'ordre de $10^{14}W.cm^{-2}$, elle reste difficilement applicable dans le cas des harmoniques Doppler où il est nécessaire d'avoir des éclairements supérieurs à $10^{18}W.cm^{-2}$. En effet, il est difficile de produire des impulsions d'un ou deux cycles optiques très énergétiques. Ceci réside dans le fait qu'aucun cristal amplificateur n'a un gain spectral uniforme dans la gamme spectrale correspondante à une impulsion de 5fs. La deuxième limitation provient



FIGURE 12.1: "Intensity gating". Sur (a),(c),(e),(f) les courbes rouges correspondes à l'enveloppe du champ laser incident, les bleues correspondent au train attoseconde généré. (b),(d), représentent les spectres correspondant aux trains présentés respectivement en (a) et (c),(e),(f). L'impulsion laser incidente a une durée de 10 cycles (a-b), 3 cycles (c-f). Le train (a) correspond au spectre (b) filtré entre les harmoniques 5 et 30 (filtre orange). Le train (c) au spectre (d) filtré entre les harmoniques 5 et 30 (filtre orange), alors que les trains (e) et (f) correspondent au spectre (d) filtré entre les harmoniques 150 et 190 (filtre vert) pour une CEP de 0 (e) et une CEP de π . En vert on a représenté les filtres. (f). Ces figures ont été obtenues à l'aide du modèle du miroir oscillant présenté en partie 3.2.

de la stabilisation de la CEP. La Carrier-Envelope relative Phase détermine la position de la porteuse par rapport à son enveloppe [101]. Par exemple dans le cas de la figure 12.1, si la CEP est nulle, on va générer effectivement une seule impulsion (figure 12.1.(e)), mais si on la décale de π alors on va générer deux impulsions de même intensité (figure 12.1.(f)). Nous allons maintenant présenter la deuxième technique permettant d'isoler une seule impulsion attoseconde.

12.2 Polarization gating

Cette technique, développée par Corkum *et al* [96], repose sur le fait que dans les gaz, l'efficacité de génération dépend de l'ellipticité du champ laser incident. L'efficacité chute lorsque la polarisation passe de linéaire à circulaire. En effet, d'après le modèle en trois étapes, lorsqu'un électron est éjecté par effet tunnel, si la polarisation est linéaire, il va se recombiner avec son ion parent et ainsi générer des harmoniques. Mais si la polarisation est circulaire, il lui sera impossible de retrouver son ion parent, et aucune harmonique ne sera générée.

Ainsi en structurant une impulsion laser de sorte à lui donner une polarisation qui varie au cours du temps, de manière à ce qu'elle ait une polarisation linéaire durant un seul cycle optique, on sera en mesure de générer une impulsion attoseconde unique. L'idée originelle propose d'utiliser deux impulsions laser de mêmes enveloppes f(t) ayant des fréquences centrales légèrement décalées et des polarisations croisées pour obtenir la porte de polarisation. Le champ électrique peut donc s'écrire sous la forme :

$$\vec{E} = E_0 f(t) [\cos(\omega_1 t) . \vec{x} + \cos(\omega_2 t) . \vec{y}]$$
(12.1)

Dans un référentiel de référence $(\vec{x'}, \vec{y'})$ tel que la direction de polarisation soit selon l'axe $\vec{x'}$ à l'instant t=0, on peut écrire le champ électrique sous la forme :

$$\vec{E} = E_0 f(t) [\cos(\omega t) \cos(\Delta \omega t/2) . \vec{x'} + \sin(\omega t) \sin(\Delta \omega t/2) . \vec{y'}]$$
(12.2)

Avec $\omega = (\omega_1 + \omega_2)/2$ et $\Delta \omega = \omega_1 - \omega_2$. Comme les deux impulsions ont des fréquences légèrement décalées, on peut supposer $\Delta \omega \ll \omega$ et on obtient alors une ellipticité $\chi(t) = \tan(\Delta \omega t/2)$ qui dépend du temps. L'impulsion est polarisée linéairement pour un seul cycle optique -celui au voisinage de t = 0- et est polarisée elliptiquement ou circulairement pour tous les autres cycles optiques (figure 12.2). La seule condition temporelle à satisfaire est qu'il faut que la durée totale de l'enveloppe de f(t) soit inférieure à la période de la fonction $\chi(t)$, c'est à dire inférieure à $2\pi/\Delta \omega$.

Si cette technique a été démontrée expérimentalement et est couramment utilisée dans les gaz [29, 30, 102], elle reste toujours un principe théorique dans le cas des harmoniques solides. Elle a été théoriquement démontrée dans [103] pour les miroirs plasmas, mais uniquement dans le cas d'un laser en incidence normale, ce qui est difficilement réalisable expérimentalement. Et lorsqu'on se place en incidence oblique, même en polarisation circulaire, on sera capable de générer des harmoniques puisqu'en polarisation circulaire

166CHAPITRE 12. LA GÉNÉRATION D'IMPULSIONS ATTOSECONDES UNIQUES



FIGURE 12.2: "**Polarisation gating**". Au cours du temps, la polarisation passe de l'état circulaire à l'état linéaire puis de nouveau à l'état circulaire.

une des composantes de polarisation peut faire osciller les électrons dans la direction orthogonale à la cible. Cette technique a donc un intérêt limité dans le cas des harmoniques solides. Pour pallier ce problème, H. Vincenti et F. Quéré ont développé une technique de séparation des impulsions attosecondes applicables à la fois aux harmoniques solides et aux harmoniques gaz [41, 34].

Chapitre 13

L'effet phare attoseconde

13.1 Principe de l'effet

Dans le cas usuel de génération d'harmoniques, schématisé sur la figure 13.1.a, un laser est focalisé sur une cible solide (ou gazeuse) et lors de l'interaction, une impulsion attoseconde est émise à chaque cycle (ou demi-cycle) optique dans la direction perpendiculaire au front d'onde du laser à l'instant d'émission. On obtient donc un train d'impulsions attosecondes émis dans une seule direction. En revanche, si les fronts d'onde du laser, au foyer de l'interaction, tournent au cours du temps (figure 13.1.b) , les impulsions attosecondes successives seront émises dans des directions différentes, c'est le principe du phare attoseconde. Nous allons présenter dans ce chapitre une méthode permettant d'obtenir de la rotation des fronts d'onde au foyer laser.



FIGURE 13.1: **Principe du phare attoseconde.** (a) Représentation de la génération d'harmoniques dans le cas usuel : une impulsion laser est focalisée sur une cible (solide ou gazeuse) et des impulsions attosecondes sont émises dans la direction spéculaire sous forme de train. (b) Génération d'harmoniques dans le cas du phare attoseconde. Dans ce cas, comme le laser présente de la rotation temporelle de front d'onde, chaque impulsion attoseconde est émise dans une direction différente. On génère ainsi, après propagation, des impulsions attosecondes uniques séparées angulairement.

13.2 Du tilt du front d'intensité à la rotation de front d'onde

Lorsqu'une impulsion laser ultra-brève, ayant un front d'onde parallèle à son front d'intensité, traverse un élément optique dispersif tel qu'un prisme (figure 13.2), la différence entre la vitesse de groupe et la vitesse de phase, combinée à la différence d'épaisseur traversée selon la position x, va induire un tilt entre le front de phase et le front d'intensité de l'impulsion en sortie du prisme. Ce tilt du front d'intensité peut être introduit par n'importe quel élément dispersif. Dans une chaîne laser utilisant la technique du "Chirped Pulse Amplification" on pourra l'obtenir en désalignant l'un des réseaux du compresseur par rapport à l'autre. Une impulsion Gaussienne présentant un tel tilt du front d'intensité peut s'écrire sous la forme :

$$E(x_i, t) = E_0 \exp\left(-2\frac{(t - \xi x_i)^2}{\tau_i^2} - 2\frac{x_i^2}{w_i^2}\right) \cdot \exp(-i\omega_L t)$$
(13.1)

avec ξ le paramètre de tilt de front d'intensité (abrégé en PFT pour pulse front tilt), τ_i la durée l'impulsion, w_i le diamètre du faisceau avant focalisation.

Si maintenant on focalise cette impulsion présentant du PFT, l'ensemble élément dispersifoptique de focalisation se comporte comme un spectromètre. Au foyer on étale les couleurs selon la direction spatiale selon laquelle on a introduit de la dispersion angulaire. On obtient donc une impulsion ayant une dérive de fréquence spatiale (un "chirp spatial"). On a représenté une telle impulsion sur la figure 13.3.a. A un point donné de l'espace



FIGURE 13.2: Introduction d'un tilt entre le front d'intensité et le front de phase au passage d'un élément dispersif. La vitesse de groupe n'étant pas la même que la vitesse de phase, et l'épaisseur l(x) dépendant de x, le retard accumulé par le front de phase sur le front d'intensité ne va pas être le même selon la position x. En sortie du prisme, le front de phase va être incliné par rapport au front d'intensité. C'est du Pulse Front Tilt (PFT).

13.2. DU TILT DU FRONT D'INTENSITÉ À LA ROTATION DE FRONT D'ONDE169

correspond une fréquence centrale particulière. Si on utilise à présent une représentation temps-espace plutôt qu'une représentation fréquence-espace 13.3.b, dans la partie de l'espace où la fréquence centrale du champ est élevée (en haut, $x/\lambda_L = 1.5$), les maxima du champs vont être plus resserrés que dans la partie de l'espace où la fréquence est basse (en bas, $x/\lambda_L = -1.5$). Comme la fréquence varie continûment le long de l'axe x, si l'on trace les maxima du champ sur l'ensemble de la tache focale, on obtient des fronts d'onde laser qui tournent au cours du temps (traits pointillés sur la figure 13.3.b).



FIGURE 13.3: Lien entre chirp spatial et rotation de fronts d'onde au foyer. Sur le panneau (a) est tracé l'impulsion laser au foyer dans le domaine (x, ω) , la fréquence centrale locale de l'impulsion dépend de l'espace, il y a du chirp spatial. Cela correspond dans le domaine (x, t) à une rotation des fronts d'onde (b). Sur le panneau (b) sont représentés les oscillations du champ pour différents points à travers la tache focale. Les lignes pointillés noires en (b) correspondent aux fronts d'onde du champ (tracé pour les maxima du champ).

En calculant la transformée de Fourier de l'équation 13.1, en la multipliant par la fonction transfert de l'espace libre et en prenant la transformée de Fourier inverse de la fonction ainsi obtenue, on détermine l'expression d'un champ électrique présentant de la rotation de fronts d'onde :

$$E(x_f, t) \propto \exp\left(-2\frac{t^2}{\tau_f^2} - 2\frac{x_f^2}{w_f^2}\right) \times \exp\left(i\varphi(x_f, t)\right)$$
(13.2)

où

$$\varphi = \zeta x_f t + \omega_L t \tag{13.3}$$

 avec :

$$\zeta = 4 \frac{\xi w_i}{\tau_f \tau_i w_f} \tag{13.4}$$

et :

$$\frac{\tau_f}{\tau_i} = \frac{w_f}{w_0} = \sqrt{1 + \left(\frac{w_i\xi}{\tau_i}\right)^2} \tag{13.5}$$

avec le $w_0 = 2\lambda_L f/\pi w_i$ waist du faisceau laser lorsque $\xi = 0$ (f correspond à la longueur focale de l'optique de focalisation).

Maintenant que nous connaissons l'expression du champ, et plus particulièrement sa phase, nous pouvons calculer la vitesse de rotation des fronts d'onde. La direction instantanée de propagation, déterminée par l'angle des fronts d'onde, est donnée par $\beta \simeq k_{\perp}/k_L$, avec $k_{\perp} = \partial \varphi / \partial x_f$ la composante transverse du vecteur d'onde laser k_L . Comme la phase du laser présente un terme dépendant à la fois du temps et de l'espace : $\zeta x_f t$, la direction de propagation tourne au cours du temps à la vitesse :

$$v_r = \frac{d\beta}{dt} = \zeta \frac{c}{\omega_L} \tag{13.6}$$

En combinant l'équation précédente et l'équation 13.4, nous obtenons la formule suivante pour la vitesse de rotation :

$$v_r = \frac{w_i^2}{f\tau_i^2} \frac{\xi}{1 + (w_i\xi/\tau_i)^2}$$
(13.7)

On a représenté sur la figure 13.4 l'évolution de la vitesse de rotation (courbe bleue) ainsi que l'évolution de la durée de l'impulsion laser au foyer en fonction du paramètre de PFT ξ . Sur cette courbe, on peut noter que la vitesse de rotation a une limite haute, ce qui est facilement compréhensible intuitivement. En effet, il est impossible pour la lumière de balayer plus que le cône de divergence laser en moins de temps que la durée de l'impulsion. La vitesse maximale sera ainsi atteinte lorsque la lumière balaiera l'angle le plus grand possible (i.e. la divergence laser θ_L), durant la durée la plus courte possible (durée τ_i de



FIGURE 13.4: Evolution de la vitesse de rotation v_r et de la durée de l'impulsion τ_f en fonction du paramètre de PFT ξ . Les évolutions de v_r (courbe bleue) et de τ_f (courbe rouge), ont été obtenues pour les paramètres d'interaction d'UHI 100 : $w_i = 75mm$, f = 200mm, $\tau_i = 25fs$.

170

l'impulsion). On s'attend donc à trouver une vitesse maximale de l'ordre de $v_r^{max} \propto \theta_L/\tau_i$. Grâce l'équation 13.7, on peut déterminer la vitesse de rotation maximale, qui est atteinte lorsque :

$$\xi = \tau_i / w_i \tag{13.8}$$

et vaut alors :

$$v_r^{max} = \frac{w_i}{2f\tau i} = \frac{\theta_L}{2\tau_i} \tag{13.9}$$

Au delà de cette limite, la vitesse diminue car la lumière balaye toujours le même cône de lumière mais dans un temps plus long, puisque la durée de l'impulsion augmente considérablement après avoir dépassé l'optimum de PFT (courbe rouge de la figure 13.4). La valeur de ξ pour laquelle la vitesse de rotation est maximale, correspond à un élargissement de la tache focale de $\sqrt{2}$, et une élongation temporelle de la durée d'impulsion de $\sqrt{2}$ (τ_f^{opt}) , ce qui conduit à une réduction d'un facteur 2 de l'éclairement au foyer du faisceau laser. La perte en éclairement au foyer n'est donc pas trop importante, en comparaison des autres effets comme les aberrations optiques qui peuvent réduire fortement l'éclairement laser.

13.3 Critère de séparation des impulsions attosecondes

Maintenant que nous avons vu comment il était possible d'obtenir de la rotation des fronts d'onde laser au foyer, il est temps de voir sous quelle condition cette rotation de front d'onde, appliquée à la génération d'impulsions attosecondes, permet de donner naissance à de multiples faisceaux séparés angulairement. Sur la figure 13.5 nous avons illustré le principe de la rotation de front d'onde appliquée à la génération d'impulsions attosecondes. D'après cette figure l'angle séparant deux impulsions attosecondes successives est donné par $\Delta \theta = v_r \Delta t$, où Δt est l'écart temporel entre l'émission de ces deux impulsions. Pour effectivement séparer les impulsions, il faut que $\Delta \theta$ soit supérieur à la divergence θ_n des impulsions attosecondes. L'angle maximal de séparation est atteint lorsque la vitesse de rotation est maximale. On a ainsi $\Delta \theta^{max} = \frac{\theta_L}{2\tau_i} \Delta t$, avec $\Delta t = T_L/p$, où T_L est la période optique de l'impulsion laser et p le nombre d'impulsions attosecondes générées par cycle (i.e. p = 1 pour les harmoniques solides, et p = 2 pour les harmoniques gaz). On peut donc écrire le critère de séparation sous la forme :

$$\theta_L \ge p N_c \theta_n \tag{13.10}$$

Pour comprendre cette formule d'un point de vue encore plus intuitif, on peut définir un faisceau attoseconde fictif en accolant chacune des différentes impulsions attosecondes. On obtient alors un faisceau attoseconde de divergence : $pN_c\theta_n$. Autrement dit, pour satisfaire le critère de séparation, il faut que le cône de divergence attoseconde (fictif), donné par $pN_c\theta_n$, soit inférieur au cône de divergence laser θ_L .



FIGURE 13.5: Critère de séparation des impulsions attosecondes. La durée séparant deux impulsions attosecondes consécutives au centre vaut Δt , et la variation de la direction d'émission d'un cycle à l'autre vaut $\Delta \theta = v_r \Delta t$. Chaque impulsion attoseconde émise a une divergence θ_n . Pour que les différents faisceaux harmoniques soient séparés angulairement, il faut que le cône de divergence laser θ_L soit plus grand que le cône de divergence attoseconde donné par $pN_c\theta_n$.

Ainsi si on veut générer des impulsions attosecondes séparées angulairement, dans le cas d'harmoniques sur cible solide (p = 1), avec une impulsion de 25fs, qui comprend ~ 10 cycles optiques, il faut que la divergence de chaque impulsion attoseconde soit dix fois plus petite que la divergence laser. Sur notre installation UHI 100, à cause de l'enfoncement, le rapport θ_L/θ_n est quasiment toujours supérieur à 10 (figure 9.5). Pour obtenir un rapport $\theta_L/\theta_n \simeq 10$, il faut défocaliser légèrement l'impulsion laser par rapport à son meilleur foyer, de manière à réduire la divergence des harmoniques (figure 9.7a). Si d'après la courbe de la figure 9.7 nous sommes théoriquement en mesure de réaliser l'effet phare attoseconde sur UHI100 pour une position $z/z_R = -0.3$, puisque pour cette position $\theta_L/\theta_n \sim 10$, il est toutefois difficile de le mettre en oeuvre expérimentalement car nous sommes à la limite de la satifaction du critère.

Pour la première démonstration de l'effet phare attoseconde, nous avons donc décidé d'utiliser une installation délivrant des impulsions lasers plus courtes : ~ 3 cycles optiques, car le critère à satisfaire est alors $\theta_L/\theta_n > 3$, ce qui est beaucoup plus facile à obtenir expérimentalement. Nous présentons dans le prochain chapitre la première validation expérimentale de l'effet phare attoseconde.

Chapitre 14

Observation expérimentale

14.1 Dispositif expérimental

Pour la première réalisation expérimentale de l'effet phare attoseconde, nous avons collaboré avec le groupe PCO de R. Lopez-Martens au LOA. Le laser de la salle noire délivre des impulsions laser de 7fs stabilisées en CEP avec une fréquence de répétition de 1kHz. Le schéma expérimental est représenté sur la figure 14.1 . L'impulsion de 2mJ passe à travers une paire de prismes, pour réaliser la compression finale de l'impulsion. Pour introduire la dispersion angulaire (le PFT) nous avons désaligné le second prisme par rapport au premier. Après agrandissement à l'aide d'un télescope, l'impulsion est focalisée sur une cible de silice grâce à un miroir parabolique. Nous observons les harmoniques générées via deux diagnostics : un spectromètre XUV et un diagnostic spatial, tous deux similaires à ceux présentés dans la partie 4.5.

La cible est escamotable, ce qui nous permet d'imager la tache focale pour son optimisation, de manière à maximiser l'éclairement sur cible. Nous avons également installé le diagnostic spatio-spectral "RIS" (cf partie 4.4), pour mesurer le chirp spatial et ainsi contrôler la vitesse de rotation des fronts d'onde.

14.2 Résultats expérimentaux

14.2.1 Génération d'impulsions attosecondes uniques

Nous avons vu dans la partie 13.3 que pour observer l'effet de phare attoseconde, il faut satisfaire le critère de séparation donné par l'équation 13.10. Nous avons donc mesuré la divergence harmonique et la divergence laser, lorsque l'impulsion laser est au meilleur de sa compression (pas de rotation de front d'onde) et avons trouvé un rapport divergence laser sur divergence harmonique $\theta_L/\theta_n \simeq 5$. Cela indique, avec notre laser à 800nm, que l'on sera en mesure de séparer angulairement les impulsions attosecondes, si l'impulsion laser incidente a une durée inférieure à ~ 13 fs. Nous sommes donc dans des conditions très favorables pour observer l'effet phare attoseconde puisque notre impulsion laser de



FIGURE 14.1: **Dispositif expérimental.** L'impulsion laser de 7fs est focalisée sur une cible de silice grâce à une parabole. Le PFT est introduit par le désalignement d'un des prismes servant à réaliser la compression finale de l'impulsion laser. Le profil spatial des impulsions attosecondes est mesuré grâce à une MCP de 40mm de diamètre, utilisée en mode impulsionnel (cf. partie 4.5.2).

départ a une durée de 7fs. L'éclairement sur cible étant légèrement inférieur à $10^{18}W.cm^2$, nous avons étudié l'effet phare attoseconde dans le régime d'émission CWE.

Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 14.2. La première colonne montre le spectre laser au foyer, obtenu grâce au RIS, la seconde correspond au champ laser calculé à partir des mesures du RIS. La troisième montre l'empreinte spatiale du champ attoseconde en champ lointain, et la quatrième le spectre correspondant au centre du profil spatial mesuré.

Ainsi lorsque les deux prismes sont parallèles, le laser a un faible chirp spatial résiduel menant à une vitesse de rotation de 8.6mrad/cycle, le spectre est composé, comme attendu, d'harmoniques et elles sont émises sous la forme d'un seul faisceau (figure 14.2.a). Si on désaligne légèrement l'un des deux prismes (figure 14.2b), la vitesse de rotation augmente ($v_r = 21mrad/cycle$), les harmoniques du spectre s'élargissent et le profil spatial est allongé dans la direction selon laquelle on a introduit du WFR (Wavefront Rotation). Si on augmente encore l'angle de désalignement (figure 14.2c), on augmente la vitesse de WFR ($v_r = 39mrad/cycle$), et on observe trois faisceaux correspondant chacun à une impulsion attoseconde unique. Chaque impulsion étant émise dans une direction différente, il n'y a plus qu'une seule impulsion qui passe dans notre spectromètre XUV (l'impulsion centrale), nous sommes ainsi en capacité de mesurer le spectre d'une seule impulsion. Nous voyons que ce spectre est continu, ce qui confirme que l'on a généré des impulsions attosecondes uniques séparées angulairement.

En travaillant avec des impulsions courtes de ~ 3 cycles optiques, un paramètre important



FIGURE 14.2: Observation expérimentale. La première colonne montre le spectre résolu spatialement mesuré avec la méthode du "RIS" pour différentes valeurs de désalignement du prisme $(0^{\circ}, 10^{\circ} \text{ et } 55^{\circ})$. La seconde colonne correspond au champ électrique E(x, t) calculé à partir des mesures de la première colonne, en supposant une phase temporelle et fréquentielle constante. Troisième colonne : profils spatiaux des faisceaux harmoniques mesurés en champ lointain sur la MCP. Sur la quatrième colonne est représenté le spectre correspondant au centre du profil spatial harmonique.

à varier est la CEP de l'impulsion laser. Nous nous y intéressons dans la prochaine section.

14.2.2 Variation de la CEP

Nous présentons sur la figure 14.3, le profil spatial harmonique mesuré pour différentes valeurs de la CEP laser. Sur cette figure, il est évident que le profil spatial change en fonction de la valeur de la CEP. Cela se comprend intuitivement par le fait qu'en présence de rotation de fronts d'onde, la direction d'émission θ_e d'une impulsion attoseconde est donnée par la direction des fronts de phase du laser à l'instant d'émission t_e :

$$\theta_e \propto v_r t_e \tag{14.1}$$

Cette formule montre que la structure temporelle du train est encodée dans le profil angulaire des faisceaux harmoniques en champ lointain. Ceci est visible sur la figure 14.4(a,b).



FIGURE 14.3: Observation de l'effet de la CEP sur le profil spatial harmonique. Profil spatiaux harmoniques obtenus pour différentes valeurs de CEP. La variation de CEP a pour effet d'avancer ou de retarder l'émission d'une impulsion donnée, ce qui entraîne une variation dans la direction d'émission. A une valeur de CEP correspond une position sur le détecteur. L'image la plus à droite montre que dans un système délivrant des impulsions laser au kHz, où l'on ne fonctionne pas en tir unique, il est très important de stabiliser la CEP, sinon on n'observe pas la séparation angulaire des différents faisceaux, mais simplement une élongation due à la fluctuation de CEP d'un tir à l'autre au cours d'une rafale.

Lorsque la CEP passe de 0 à π , le front d'onde laser tourne de $\Delta\theta$, ce qui signifie que l'instant d'émission des impulsions attosecondes change. Les impulsions attosecondes ne sont donc plus émises dans la même direction, leur direction d'émission est décalée de $\Delta\theta$. Le profil spatial harmonique en champ lointain est donc modifié. Cela signifie qu'à une variation continue de la CEP laser est associée une variation continue de l'instant d'émission t_e et par conséquent une variation continue de la direction d'émission θ_e des impulsions attosecondes. Ceci explique l'évolution du profil spatial des impulsions attosecondes mesurée expérimentalement en fonction de la CEP (figure 14.3).

Ces résultats montrent qu'outre le fait de générer des impulsions attosecondes uniques séparées angulairement, l'effet phare attoseconde permet d'avoir une correspondance tempsespace : à un point sur le détecteur correspond un temps au foyer. Cela permet d'effectuer des mesures temporelles, jusque là difficilement réalisables à cause de leur complexité, à partir de mesures spatiales simples. Nous allons développer ce point dans le prochain chapitre.



FIGURE 14.4: Principe de la correspondance temps-espace. A gauche est représenté le champ laser au foyer, au milieu un schéma de la propagation des impulsions attosecondes, et à droite le profil spatial des harmoniques. En (a), ils sont représentés pour une CEP de 0. En (b) pour une CEP de π .

Chapitre 15

Mesures temporelles par photonic streaking

Nous nous proposons dans ce chapitre de transposer aux harmoniques générées sur cible solide la technique de photonic streaking, initiallement développée pour les harmoniques générées dans les gaz [31]. Lorsque les impulsions attosecondes sont générées avec l'effet phare attoseconde, chacune d'elle est émise dans une direction différente qui dépend de l'instant auquel elles sont émises. Il devient ainsi possible de mesurer les propriétés relatives à chacune des impulsions. L'information temporelle de leur instant d'émission se retrouve ainsi encodée spatialement et peut être déterminée en mesurant le profil spatial du faisceau généré en champ lointain. La technique de photonic streaking permet ainsi, à l'aide de l'effet phare attoseconde, de résoudre temporellement la génération du train d'impulsions attosecondes, mais également la dynamique au sein du milieu d'interaction. Nous nous intéressons dans ce chapitre à un cas particulier du photonic steaking qui est la détermination des instants d'émission des impulsions attosecondes. Nous présentons tout d'abord le principe de mesures temporelles par photonic streaking. Nous détaillons ensuite un modèle relativement simple permettant de tester le principe du photonic streaking dans le cas d'harmoniques CWE. Nous terminerons avec l'étude du photonic streaking dans le cas où les différentes impulsions ne sont pas entièrement séparées angulairement.

15.1 Principe général du photonic streaking

Nous présentons le principe général du photonic streaking dans le cas des harmoniques CWE car ce sont ces harmoniques que nous avons mesurées dans l'expérience de l'effet phare attoseconde. Lorsqu'on mesure le profil spatial d'impulsions attosecondes séparées angulairement, on obtient des résultats tels que ceux présentés sur la figure 14.3. On peut noter, lorsqu'on regarde ces résultats de plus près, que les impulsions en champ lointain ne sont pas régulièrement espacées (figure 15.1). L'espacement angulaire $\Delta \theta_2$ est supérieur à l'espacement angulaire $\Delta \theta_1$. Nous allons maintenant voir pourquoi cet espacement est irrégulier. Nous avons vu dans la section 14.2.2 que la direction d'émission θ_e est liée à
l'instant d'émission t_e par la relation :

$$\theta_e \propto v_r t_e \tag{15.1}$$

Cela signifie que la variation de direction d'émission $\Delta \theta_e$ entre deux impulsions en champ lointain est reliée à la variation des temps d'émission Δt_e entre ces deux mêmes impulsions par la relation au foyer par la relation :

$$\Delta \theta_e \propto v_r \Delta t_e \tag{15.2}$$

A travers cette relation il semble possible de déterminer la structure temporelle du train attoseconde à partir de la mesure de l'espacement angulaire $\Delta \theta_e$ relatif entre chacune des impulsions attosecondes. En effet, si les impulsions attosecondes sont émises périodiquement, temporellement cela signifie que l'écart Δt_e est constant, alors on mesure en champ lointain un espacement $\Delta \theta_e$ entre chacune des impulsions constant. En revanche si elles ne sont pas émises périodiquement, on mesure un écart $\Delta \theta_e$ différent entre chacune des impulsions en champ lointain. Il est ainsi possible d'extraire des informations temporelles au foyer à partir de mesures spatiales en champ lointain. Dans le cas où les impulsions attosecondes sont envoyées dans une direction perpendiculaire à celle des fronts d'onde laser, alors on $\Delta \theta_e = v_r \Delta t_e$, et on a une mesure directe des instants d'émission. Cependant, les impulsions attosecondes ne sont pas émises perpendiculairement aux fronts d'ondes du laser mais perpendiculairement aux fronts des impulsions attosecondes. Pour pouvoir mesurer les instants d'émission correctement, il est donc important de déterminer l'écart entre les fronts d'onde laser et les fronts d'onde des impulsions attosecondes.



FIGURE 15.1: Espacement non régulier des impulsions attosecondes. L'espacement angulaire $\Delta \theta_2$ est supérieur à l'espacement $\Delta \theta_1$.

15.2 Détermination des instants d'émission

Nous allons nous intéresser dans cette section à la détermination de la provenance de l'écart entre les directions des fronts d'onde laser et des fronts d'onde des impulsions attosecondes. Nous présenterons ensuite le formalisme général nécessaire à la détermination des instants d'émissions à partir des directions d'émissions, puis nous nous intéressons au cas particulier des harmoniques CWE.

15.2.1 Origine de l'écart entre fronts d'onde du laser et des impulsions attosecondes

En régime phare attoseconde, les fronts d'onde du laser tournent au foyer, cela provient du chirp spatial qu'on a introduit : la longueur d'onde varie transversalement : $\lambda_1 > \lambda_2$ sur la figure 15.2a. Comme les fronts d'onde tournent au cours du temps, transversalement, "le long d'un front d'onde", l'amplitude laser varie : $a_L^1 > a_L^2$ sur figure 15.2b. Or dans la génération d'harmoniques, les instants d'émission des impulsions attosecondes dépendent fortement à la fois de la longueur d'onde laser et de l'amplitude laser (cf. partie 2.4.2, équation 2.7), cela signifie que les instants d'émissions dans le cas phare attoseconde varient transversalement. C'est pour cette raison que les fonts d'onde des impulsions attosecondes ne sont pas parallèles aux fronts d'onde du laser (figure 15.2c). Nous allons maintenant présenter le formalisme général permettant de déterminer les instants d'émission à partir des directions d'émission.

15.2.2 Cas général

Pour extraire l'information temporelle à partir des mesures spatiales, il est primordial de déterminer de manière exacte comment sont liés le temps et l'espace, comment est lié l'instant d'émission t_e d'une impulsion attoseconde à sa direction de propagation θ_e . Jusqu'à présent nous avions admis la relation de proportionalité 15.2, mais pour effectuer la reconstruction, il faut déterminer le coefficient de proportionalité. Pour cela, nous allons considérer que la direction d'émission de chaque impulsion est déterminée par la pente du front d'onde de chaque impulsion attoseconde au centre de la tache focale. Nous allons maintenant calculer cette pente. On peut écrire l'instant d'émission de l'harmonique à la fréquence ω , émise au n^{ieme} cycle optique laser sous la forme :

$$t_e = nT_L + f(\omega, \lambda_L, a_L, \alpha) \tag{15.3}$$

avec T_L la période laser, ω_L la fréquence centrale laser et a_L l'amplitude laser. α regroupe tous les paramètres décrivant le système physique où a lieu la génération d'harmoniques, par exemple, la longueur de gradient dans le cas d'harmoniques CWE ou le potentiel d'ionisation pour la génération d'harmoniques dans les gaz. La fonction f décrit toutes les dépendances des temps d'émission avec les paramètres d'interaction :

1. La dépence de f en ω décrit la dérive de fréquence attoseconde.



FIGURE 15.2: Ecart entre les fronts d'onde du laser et les fronts d'onde des impulsions attosecondes. Dans l'effet phare attoseconde, les fronts d'onde du laser tournent au foyer, transversalement la longueur d'onde varie : en (a) $\lambda_1 > \lambda_2$. L'instant d'émission t_e des impulsions attosecondes dépend de la longueur d'onde du laser, cela signifie que t_e varie transversalement. Comme les fronts d'onde du laser tournent au cours du temps, l'amplitude laser n'est pas la même le long du front d'onde laser : en (b) $a_L^1 > a_L^2$. t_e dépendant de a_L , cela signifie que t_e varie transversalement. Les fronts d'onde des impulsions attosecondes ne sont ainsi plus parallèles aux fronts d'onde du laser à cause de la variation de longueur d'onde et d'amplitude laser (c).

- 2. La dépendance de f avec a_L décrit la dépendance du temps d'émission avec l'éclairement. Dans le cas d'harmoniques CWE elle est responsable de l'espacement variable des impulsions du train.
- 3. La dépendance de f avec λ_L et α , correspond dans le cas des harmoniques CWE à la dépendance de l'émission avec le gradient (L/λ_L) .

La pente du front d'onde au centre de la tache focale est déterminée par :

$$\theta_e = c \frac{dt_e}{dx} \tag{15.4}$$

où x est la coordonnée spatiale selon laquelle on a introduit le chirp spatial. En présence de rotation de front d'onde, la période laser dépend de $x : T_L = T_L(x)$. On obtient alors en x = 0:

$$\theta_e = c \frac{dT_L}{dx} t_e + cT_L \frac{df}{dx} \tag{15.5}$$

Le premier terme de cette équation correspond à l'interprétation intuitive de l'effet phare attoseconde : la direction d'émission varie linéairement avec le numéro de cycle optique.

C'est l'interprétation que nous avons utilisée jusqu'à présent (équation 15.2). Si c'était le seul terme, cela signifierait que la direction d'émission est directement proportionnelle à l'instant d'émission et ainsi la direction d'émission donnerait directement l'information concernant la structure temporelle du train d'impulsions attosecondes.

Cependant, si le deuxième terme n'est pas négligeable en comparaison du premier, cette interprétation n'est plus valide, il y a un facteur correctif , la direction d'émission est modifiée par les paramètres de l'interaction : la longueur d'onde du laser λ_L , l'amplitude laser a_L , et les autres paramètres α . On peut donc calculer le terme correctif :

$$\frac{df}{dx} = \frac{\partial f}{\partial \lambda_L} \frac{d\lambda_L}{dx} + \frac{\partial f}{\partial a_L} \frac{da_L}{dx} + \frac{\partial f}{\partial \alpha} \frac{d\alpha}{dx}$$
(15.6)

Expérimentalement, on peut considérer que le paramètre α est indépendant de x, puisque dans le cas des gaz I_p ne varie pas, et dans le cas des harmoniques CWE, la variation transversale de la longueur de gradient est faible. On peut alors simplifier l'équation précédente et on obtient alors :

$$\frac{df}{dx} = \frac{\partial f}{\partial \lambda_L} \frac{d\lambda_L}{dx} + \frac{\partial f}{\partial a_L} \frac{da_L}{dx}$$
(15.7)

On retrouve ce que l'on avait vu sur la figure 15.2, le facteur correctif provient de la variation transversale de la longueur d'onde et de l'amplitude laser. Maintenant que nous savons comment est liée théoriquement la direction d'émission à l'instant d'émission, nous allons étudier le photonic streaking dans le cas des harmoniques CWE. L'avantage des harmoniques CWE est que nous possédons un modèle complet, qui nous donne une formule analytique pour les temps d'émission (cf. partie 2.4). Nous allons donc dans la prochaine section calculer les différents termes de l'équation 15.7 dans le cas des harmoniques CWE, puis nous présenterons un modèle simple permettant de simuler numériquement un train d'impulsions attosecondes générées par l'effet phare attoseconde, ce qui nous permettra de déterminer l'influence de chacun des paramètres de l'interaction (λ_L , a_L) sur le terme correctif.

15.2.3 Cas des harmoniques CWE

Dans la partie 2.4, nous avons vu que les temps d'émission des harmoniques CWE peuvent s'écrire sous la forme :

$$t_e(n,\omega) = \left(n + 0.307 + 0.725 \left(\frac{z_\omega}{a_L \lambda_L \sin \theta}\right)^{\frac{1}{3}} e^{n^2/6\sigma^2}\right) T_L$$
(15.8)

avec $z_{\omega} = 2L \ln(\omega/\omega_L \cos \theta)$, où L est la longueur de gradient et θ l'angle d'incidence. a_L est l'amplitude laser normalisée $(a_L^2 = I\lambda_L^2/I_0$ où $I_0 = 1.37 \times 10^{18} W.cm^{-2})$ et $\sigma = \tau/2\sqrt{\ln 2}$, où τ est la durée de l'impulsion.

Formule des temps d'émission en régime phare attoseconde

En présence de chirp spatial, il faut introduire la dépendance de certains paramètres avec la coordonnée transverse x, cette formule doit être légèrement modifiée, il faut prendre en compte le fait que :

- 1. La période laser varie avec la coordonnée transverse $x : T_L = T_L(x)$
- 2. La longueur d'onde laser varie avec la coordonnée transverse $x : \lambda_L = \lambda_L(x)$
- 3. L'amplitude laser normalisée varie avec la coordonnée transverse $x : a_L = a_L(x)$
- 4. La durée de l'impulsion a augmenté après l'introduction de chirp spatial, on rappelle que la nouvelle durée vaut (cf. partie 13.2) :

$$\frac{\tau_f}{\tau_i} = \sqrt{1 + \gamma^2} \tag{15.9}$$

où on a introduit le paramètre de pulse front tilt normalisé : $\gamma = \left(\frac{w_i\xi}{\tau_i}\right)$ Cela affecte le paramètre σ , on introduit le paramètre σ_p qui tient compte de la modification de la durée de l'impulsion :

$$\sigma_p = \sigma \sqrt{1 + \gamma^2} \tag{15.10}$$

On peut donc réécrire l'équation des temps d'émission sous la forme :

$$t_e(n,\omega,x) = \left(n + 0.307 + 0.725 \left(\frac{z_\omega}{a_L(x)\lambda_L(x)\sin\theta}\right)^{\frac{1}{3}} \exp\left(\frac{(nT_L(x))^2}{6\sigma_p^2}\right)\right) T_L(x) \quad (15.11)$$

Détermination du terme correctif

A partir des équations 15.7 et 15.11, on peut déterminer le terme correctif nécessaire à la détermination des temps d'émission par photonic streaking. En dérivant ces équations on obtient l'expression de la direction d'émission θ_e de chaque impulsion attoseconde :

$$\theta_e = c \frac{dT_L}{dx} \left[\frac{te}{T_L} + \frac{1}{3} \left(2 - \left(\frac{nT_L}{\sigma_p} \right)^2 \right) 0.725 \left(\frac{x_\omega}{a_L \lambda_L \sin \theta} \right)^{\frac{1}{3}} \exp\left(\left(\frac{nT_L}{6\sigma_p} \right)^2 \right) \right]$$
(15.12)

Le premier terme correspond à l'interprétation intuitive, les directions sont données par $v_r t_e$, le deuxième terme correspond au facteur correctif df/dx. Maintenant que nous possédons une formule analytique pour les temps d'émission, nous allons tester les mesures par photonic streaking avec un modèle numérique.



FIGURE 15.3: Train CWE en régime phare attoseconde. (a) Train attoseconde CWE, $L = \lambda/50$, $a_L = 0.4$, $\theta = 45^{\circ}$, b = 3, $\tau = 4T_L$ et $\xi = 1$. (b) Coupe de (a) prise en x = 0.

15.3 Simulation numérique

Pour tester les mesures par photonic streaking, nous avons développé un modèle numérique. Dans cette section nous étudions les résultats issus de ce modèle, cela nous permettra de mettre en évidence l'influence du terme de correction de l'équation 15.7. L'avantage des simulations numériques est qu'il est facile d'avoir accès à l'information temporelle au foyer (temps d'émission) et à l'information spatiale en champ lointain (direction d'émission). On peut ainsi facilement comparer les temps d'émission réels mesurés au foyer à ceux mesurés par photonic streaking.

15.3.1 Modèle numérique

Pour modéliser les harmoniques générées avec un laser ayant une rotation de front d'onde, nous utilisons une méthode similaire à celle développée dans la partie 2.4.2. En partant de l'équation 15.11, on peut écrire le champ harmonique CWE au foyer $E(x, \omega)$ sous la forme :

$$E(x,\omega) = \sum_{n} \sum_{n} a_n A_n(\omega) \exp(i\omega(t_e(n,\omega,x)))$$
(15.13)

La différence avec le modèle présenté dans la partie 2.4.2, est qu'ici chacun des paramètres dépend de la coordonnée transverse x. A partir de cette expression, on peut calculer le train attoseconde E(x,t) au foyer. Nous avons représenté sur la figure 15.3a, le train ainsi calculé. Les impulsions attosecondes ne sont pas parallèles (elles sont envoyées dans des directions distinctes). En (b), on a tracé le train attoseconde en x = 0, on retrouve la dérive de fréquence des harmoniques CWE, le délai entre deux impulsions attosecondes successives n'est pas constant. A partir de cette figure, on peut déterminer les temps d'émission au foyer laser.

Pour maintenant déterminer les temps d'émission à partir de mesures spatiales en champ lointain, il faut propager le champ E(x,t), afin d'obtenir le champ $E(\theta,\omega)$ (le spectre résolu angulairement, cf. partie 5.2.3). On a tracé ce champ sur la figure 15.4. Par rapport à l'expérience où on a mesuré un profil spatial, on mesure ici un profil spatio-spectral. Ce n'est a priori pas nécessaire pour réaliser nos mesures de photonic streaking, mais cela présente l'avantage d'avoir une information spatiale et spectrale. Sur cette figure, on résout le spectre de chaque impulsion attoseconde émise dans des directions différentes. En repérant les maximas du profil angulaire des impulsions attosecondes tracé sur la figure 15.4b, on peut mesurer à partir de cette figure la direction d'émission de chaque impulsion attoseconde. Nous pouvons ainsi mesurer l'écart $\Delta \theta_e$ entre chaque impulsion. Nous allons maintenant comparer les temps d'émission mesurés au foyer à ceux mesurés en champ lointain par photonic streaking.



FIGURE 15.4: Spectre résolu en angle. (a) Spectre résolu en angle obtenu pour les mêmes conditions d'interaction que précédemment. (b) Profil intégré en ω entre les harmoniques 16 et 20 de (a).

15.3.2 Détermination des instants d'émission

Lorsqu'on mesure directement les directions d'émission θ_e à partir de la figure 15.4 et que l'on utilise la relation $t_e = \theta_e/v_r$, on obtient la courbe rouge de la figure 15.5a. En bleu on a tracé les instants d'émission mesuré directement au foyer sur le train attoseconde. On voit qu'il n'y a aucun accord entre les deux courbes. Si maintenant on utilise la relation 15.12, pour déterminer t_e à partir de θ_e , on obtient la courbe rouge de la figure 15.5b. Elle se superpose parfaitement à celle des instants d'émission mesuré directement au foyer sur le train attoseconde

Ces résultats montrent qu'il est possible de réaliser d'autres expériences en vue de mieux comprendre l'émission CWE. Par exemple, en combinant l'expérience phare attoseconde (partie 14.2) et l'expérience gradient présentée dans la deuxième partie, il doit être possible de mesurer expérimentalement l'évolution de la variation des temps d'émission en fonction de la longueur de gradient. Plus simplement, on pourrait mesurer la variation des



FIGURE 15.5: Détermination des instants d'émission par photonic streaking. Courbe bleue : instants d'émission mesurés directement au foyer sur le train attoseconde. Courbe rouge : instants d'émission calculé à partir des mesures de directions d'émission en utilisant la relation $\theta_e = v_r \tau_e$ (a) et en utilisant la relation 15.12 (b).

temps d'émission en fonction de l'éclairement laser. Cependant, si ces mesures semblent réalisables dans le cas des harmoniques CWE, la méthode de mesures par photonic streaking présente une certaine limite : pour pouvoir déterminer les instants d'émission des impulsions attosecondes, il est absolument nécessaire de connaître la formule donnant les instants d'émission t_e (équation 15.11) pour connaître la correction à apporter et ainsi effectuer une détermination correcte de ces instants d'émission. Pour résoudre ce problème, nous avons pensé réaliser les mesures de photonic streaking dans un régime où les impulsions attosecondes ne sont pas complètement séparées.

15.4 Photonic streaking dans le cas où les impulsions ne sont pas entièrement séparées.

Il est également possible de réaliser des mesures de photonic streaking dans le cas où les impulsions ne sont pas complètement séparées angulairement, puisque même si elles ne sont pas complètement isolées angulairement, elles sont tout de même envoyées dans des directions différentes. Ceci est visible sur la figure 15.6a où on a tracé le train attoseconde CWE en champ lointain dans l'espace (t, θ) issu d'une simulation PIC (réalisée avec une impulsion laser "longue" de 15fs). Chacune des impulsions est effectivement envoyée dans une direction différente, mais la séparation entre chacune des impulsions n'est pas suffisante pour générer des impulsions uniques. Comme les harmoniques CWE sont générées sous la forme d'un train qui présente une dérive de fréquence femtoseconde (cf. partie 2.3), l'écart temporel varie de $\Delta \tau_1$ à $\Delta \tau_2$ entre le début et la fin du train d'impulsions. Si maintenant on trace le spectre résolu angulairement associé à ce train d'impulsions (figure 15.6), il est composé d'harmoniques inclinées : la période spectrale $\Delta \omega$ dépend de l'angle θ . Cela vient du fait que les impulsions du début du train sont envoyées dans une direction ($\theta < 0$), et l'écart temporel entre deux impulsions vaut $\Delta \tau_1$, alors que les impulsions de la fin du train sont émises dans une autre direction ($\theta > 0$) et l'espacement $\Delta \tau_2$ est supérieur à $\Delta \tau_1$. Ainsi l'espacement spectral $\Delta \omega_1$ pour les angles $\theta < 0$ est plus grand que celui $\Delta \omega_2$ pour les angles $\theta > 0$: $\Delta \omega_1 > \Delta \omega_2$. Ce qui explique que le spectre soit composé d'harmoniques inclinées. On mesure ainsi un spectrogramme du train d'impulsions attosecondes [104]. Comme la pente de chaque harmonique dépend de l'espacement temporel entre chaque impulsion du train, il est possible de mesurer la structure temporelle du train à partir de la mesure du spectre d'harmoniques résolu angulairement.



FIGURE 15.6: Simulation PIC du photonic streaking dans le cas des harmoniques CWE. Le panneau (a) représente la distribution d'intensité des impulsions attosecondes après diffraction depuis le plan source de génération, en fonction du temps et de l'angle d'émission. Chaque impulsion est émise dans une direction particulière, mais la séparation angulaire n'est pas suffisante pour isoler chaque impulsion. Les harmoniques CWE sont générées sous la forme d'un train qui présente une dérive de fréquence femtoseconde (cf. partie 2.3). L'écart temporel varie de $\Delta \tau_1$ à $\Delta \tau_2$ entre le début et la fin du train d'impulsions. Le panneau (b) représente le spectre résolu angulairement du train d'impulsion (a). La combinaison de la dérive de fréquence femtoseconde et du fait que chaque émission est envoyée dans une direction différente résulte en des harmoniques inclinées. Le spectre du début du train (dont les impulsions sont envoyées en haut) a une périodicité plus grande que le spectre de la fin du train (les impulsions sont envoyées en bas). A chaque position θ correspond un temps particulier.

Nous avons ensuite essayé de mettre cette idée expérimentalement, nous avons pour cela mesuré les spectres harmoniques résolus angulairement lorsqu'on génère des harmoniques CWE avec une impulsion de 25fs, en régime phare attoseconde. On ne satisfait alors pas le critère de séparation de l'équation 13.10 et on ne sépare pas les différentes impulsions. Nous avons représenté sur la figure 15.7, un spectre obtenu expérimentalement dans ce régime. On mesure effectivement des harmoniques inclinées, ce qui suggère, comme nous venons de le voir, qu'en principe on est capable de mesurer les temps d'émission à partir de ce spectre en utilisant un algorithme de type FROG [88]. Nous sommes actuellement en train de finaliser cette étude.



FIGURE 15.7: Résultats expérimentaux. Spectre résolu angulairement d'harmoniques CWE obtenus sur UHI100, dans le cas où on introduit du WFR. Les impulsions attosecondes ne sont pas séparées angulairement, mais comme dans les simulations PIC on mesure des harmoniques inclinées et l'inclinaison des harmoniques augmente avec l'ordre harmonique.

15.5 Perspectives

Nous allons clore ce chapitre en présentant deux perspectives ouvertes par l'effet phare attoseconde :

- 1. La réalisation d'expériences pompe attoseconde-sonde attoseconde, pour la mesure des dynamiques ultra-rapides de la matière.
- 2. Un phare attoseconde ultra-rapide en vue d'une caractérisation temporelle des impulsions attosecondes.



FIGURE 15.8: Possible dispositif utilisant l'effet phare attoseconde en vue de la réalisation d'expériences pompe-sonde attosecondes.

190 CHAPITRE 15. MESURES TEMPORELLES PAR PHOTONIC STREAKING

Dans la recherche visant à résoudre des phénomènes physiques de plus en plus brefs, l'effet phare attoseconde présente un avantage majeur. En effet, il permet non pas de générer une seule impulsion attoseconde unique mais plusieurs impulsions uniques séparées angulairement, fournissant ainsi une configuration parfaite pour réaliser des expériences pompe attoseconde-sonde attoseconde, comme schématisé sur la figure 15.8. En sélectionnant uniquement deux des impulsions générées grâce à un masque spatial, on peut ensuite les recombiner sur une cible. En étudiant les faisceaux après réflection/transmission par la cible en fonction du délai relatif entre chacune des deux impulsions, on peut étudier les dynamiques au sein de la cible avec une résolution attoseconde.



FIGURE 15.9: **Illustration du phare attoseconde ultra-rapide.** Au lieu d'avoir les fronts d'onde laser qui tournent continuellement durant la durée de l'impulsion laser comme dans l'effet phare attoseconde classique (a), pour obtenir un phare attoseconde ultra-rapide, il faut que les fronts d'onde du laser tournent à l'échelle du cycle optique, autrement dit ils oscillent au cours de la durée de l'impulsion laser.

Une autre perspective ouverte par l'effet phare attoseconde est la réalisation d'un phare attoseconde ultra-rapide en vue d'une caractérisation temporelle des impulsions attosecondes elles-mêmes. Nous avons vu que grâce au photonic streaking, on peut obtenir certaines informations sur la structure temporelle du train attoseconde. Cependant cela ne permet pas d'obtenir une mesure temporelle des impulsions attosecondes. L'effet phare attoseconde, se déroulant à une échelle femtoseconde (les fronts d'onde tournent d'un cycle optique laser à l'autre), est un effet trop lent pour mesurer des durées attosecondes. Une idée possible, pour réaliser des mesures temporelles sur les impulsions attosecondes ellesmêmes, est d'augmenter la vitesse de rotation des fronts d'onde pour qu'ils tournent à l'échelle attoseconde. Les fronts d'onde de l'impulsion laser incident ne doivent plus tourner pendant la durée de l'impulsion mais durant un cycle optique de l'impulsion. On n'a alors plus des fronts d'onde qui tournent (figure 15.9a) comme c'était le cas dans toute cette partie, mais des fronts d'onde qui oscillent au cours du temps comme le montre la figure 15.9b. On peut ainsi réaliser des mesures par photonic streaking ultra-rapide où

15.5. PERSPECTIVES

191

la divergence des harmoniques $\Delta \theta$ dépend directement de la durée Δt_{atto} des impulsions attosecondes au foyer. La durée des impulsions attosecondes se retrouvent ainsi encodées dans leur divergence, permettant ainsi de caractériser temporellement les impulsions attosecondes générées sur miroir plasma.

Conclusion

Depuis sa découverte en 1981 [11, 12], la compréhension de la génération d'harmoniques sur cible solide a fortement progressé. En effet, plusieurs modèles décrivant le mécanisme de génération des harmoniques ROM [24, 25, 105] et des harmoniques CWE [39, 44] ont été proposés et un certain nombre d'expériences a permis, en partie, de les valider [22, 42, 45]. Au début de ma thèse, un point crucial en vue du développement d'une source attoseconde/XUV restait à développer : la caractérisation et le contrôle des propriétés du faisceau harmonique. Par exemple, aucune étude quantitative permettant la caractérisation et le contrôle des propriétés propriétés spatiales n'avait été menée. Durant ma thèse, nous avons pour cela travaillé tout d'abord à caractériser spatialement la source harmonique en champ lointain en fonction des différents paramètres de l'interaction. Nous avons réalisé l'expérience avec S. Kahaly sur la chaîne laser UHI 100 et avons obtenu d'excellents résultats permettant de valider entièrement le modèle développé en parallèle durant la thèse d'H. Vincenti [28]. Cela nous a permis de mettre en évidence l'évolution des dynamiques ionique et électronique lors de l'interaction laser-plasma à des intensités relativistes et d'obtenir une caractérisation complète de la divergence des harmoniques relativistes. Nous avons en parallèle étudié les propriétés des harmoniques CWE, et avons pu valider pour la première fois le modèle des propriétés spatiales développés dans le cadre de la thèse d'A. Malvache [39, 44]. Nous disposons donc maintenant de modèles analytiques totalement prédictifs pour les propriétés spatiales des harmoniques générées sur miroirs plasmas. Grâce à ces modèles, les harmoniques pourront éventuellement être utilisées comme une source de lumière XUV ultra-brève mais également comme un diagnostic, relativement simple, de l'interaction laser-plasma dans les prochaines grandes installations à ultra-haute intensité.

Nous avons, par ailleurs, mis en place une toute nouvelle série d'expériences permettant de mettre en forme *in-situ* la surface du plasma de manière complètement optique. Nous avons démontré que la formation de microstructures 1D, comme les réseaux plasmas transitoires, résistent à des ultra-hautes intensités $(I > 10^{19} W.cm^{-2})$ [79]. Ces résultats ouvrent la voie à de nouvelles campagnes d'expériences utilisant la mise en forme plasma *in-situ* pour maximiser les couplages onde-matière. Certaines études, relativement récentes, suggèrent en effet que d'une part, l'utilisation de cible en forme de réseau de diffraction permet d'augmenter l'efficacité de génération des harmoniques [106, 107, 108], et que d'autre part, l'utilisation de cibles microstructurés (microsphères, réseaux de diffraction) permet d'optimiser l'accélération de protons [78, 94, 95]. Dans ces études le pas



FIGURE 15.10: Mise en forme spatiale du faisceau laser pour la création de microstructures plasmas. (a) En plaçant un masque dans le faisceau, on peut le mettre en forme spatialement. Sur notre schéma, on récupère quatre faisceaux identiques après le masque (b). Si on focalise ces quatre faisceaux sur une cible solide, ils interfèrent menant à la figure d'interférences (c). Si la fluence de chaque impulsion est suffisamment élevée, la cible est ionisée et le plasma créé s'expand au cours du temps donnant naissance à une microstructure 2D. Cette figure ne présente qu'une des possibiltés offertes par notre principe mais peut être généralisée à la création d'autres structures.

du réseau ou de la structure est fixe et difficilement modulable, ce qui limite la gamme de paramètres que l'on peut étudier expérimentalement. L'utilisation de notre technique devrait donc apporter une plus grande flexibilité expérimentale - variation du pas du réseau et/ou forme de la structure relativement simple à réaliser - et ainsi de mener des études sur une plus large gamme de paramètres. Par exemple, dans les nouvelles installations à ultra-haute intensité, disposant de deux faisceaux laser synchronisés, il sera possible d'utiliser un des faisceaux pour mettre en forme le plasma selon une structure bien définie (figure 15.10), avec laquelle viendra interagir le deuxième faisceau.

Nous avons pour l'instant utilisé les réseaux plasmas transitoires pour caractériser à la fois les propriétés des harmoniques dans le plan source et l'évolution du plasma [79, 89], à partir de mesures basées sur le principe de la ptychographie [84, 86]. Les mesures que nous avons réalisées, et qui sont en excellent accord avec les résultats de simulations PIC constituent une avancée importante dans le développement d'une source XUV/attoseconde basée sur l'émission d'harmoniques ROM et/ou CWE, ainsi que sur la compréhension

Conclusion

de leur mécanisme de génération. Ces résultats pourront, par exemple, être utilisés par des groupes comme celui de W. Leemans, avec qui nous avons collaboré, qui cherchent à obtenir la meilleure source XUV possible (efficacité de génération, propriétés spatiales) de manière à l'utiliser comme injecteur d'un laser à électrons libres XUV [42].

Durant ma thèse, nous avons également mis en place la première expérience démontrant l'effet phare attoseconde [35] et avons été ainsi, pour la première fois, capables de générer des impulsions attosecondes isolées, sur miroir plasma. Si cet effet offre une configuration idéale pour la réalisation d'expériences pompe-sonde attoseconde, il permet également de résoudre temporellement la dynamique de la génération d'harmoniques, grâce au principe de photonic streaking [31].

Pour ensuite être à même d'utiliser les harmoniques comme une "source attoseconde", et les destiner à des expériences résolues en temps, il est maintenant primordial de les caractériser temporellement. Si les techniques, comme FROG CRAB ou RABBITT [17, 9], qui sont utilisées pour mesurer les durées des impulsions attosecondes générées dans les gaz, sont en théorie applicables aux harmoniques générées sur cible solide, elles restent



FIGURE 15.11: Illustration du phare attoseconde ultra-rapide. Lorsqu'on perturbe le faisceau laser principal $E_0(t)$ de fréquence ω_L avec un second faisceau laser de fréquence $2\omega_L$, arrivant sur la cible avec un angle θ_p par rapport au premier, on obtient des fronts d'onde oscillant au foyer. Comme les fronts d'onde oscillent au cours d'un cycle optique, la divergence du faisceau harmonique dépend de la durée de l'impulsion attoseconde et de la vitesse de balayage. En changeant le délai τ entre les deux faisceaux, on change la vitesse de balayage des fronts d'onde à l'instant de génération, cela a pour effet de moduler la divergence du faisceau harmonique. Sur le schéma, à l'instant τ_1 la vitesse de balayage est plus faible qu'en τ_2 , ce qui explique que la divergence $\Delta \theta_2$ soit plus grande que la divergence $\Delta \theta_1$. En mesurant la divergence du faisceau harmonique en fonction de τ , on obtient une trace à partir de laquelle il est possible de déterminer les propriétés temporelles (durée et phase) des impulsions attosecondes.

néanmoins difficiles à mettre en pratique, à cause de la complexité de leur implémentation dans une chaîne laser 100TW. Il est donc nécessaire de développer des méthodes alternatives pour caractériser temporellement les impulsions attosecondes générées sur cible solide. S'inspirant des méthodes de mesure *in-situ* qui ont été récemment développées dans le cadre des harmoniques gaz [29, 102], l'utilisation d'un phare attoseconde ultra-rapide paraît être une méthode prometteuse pour réaliser les premières mesures temporelles des impulsions attosecondes générées sur miroir plasma. En perturbant le faisceau principal générant les harmoniques, avec un faisceau doublé en fréquence, il est possible d'obtenir des fronts d'onde qui oscillent au cours du temps (figure 15.11). Les oscillations des fronts d'onde le faisceau harmonique a une divergence θ qui vaut :

$$\Delta \theta = v_b(t) \cdot \Delta \tau_{atto} \tag{15.14}$$

Avec v_b la vitesse de balayage des fronts d'onde et $\Delta \tau_{atto}$ la durée des impulsions attosecondes. Comme la vitesse de balayage des fronts d'onde dépend du temps, en scannant le délai τ entre l'impulsion principale et l'impulsion perturbatrice, la vitesse de balayage, au moment où a lieu la génération des harmoniques, est modifiée. La divergence $\Delta \theta$ est donc modulée en fonction de τ . On encode ainsi l'information temporelle relative à la durée des impulsions $\Delta \tau_{atto}$ dans la divergence du faisceau harmonique et on obtient alors une "trace" nous donnant l'évolution de la divergence du faisceau harmonique en fonction du délai τ . A partir de cette trace, on peut utiliser un algorithme itératif pour déterminer la durée et la phase des impulsions attosecondes. Le principe de ces mesures est similaire à celui des mesures ptychographiques en régime streaking que nous avons présentées dans la partie 11. Dans cette partie, nous avions encodé l'information des propriétés spatiales dans le plan source en champ lointain en perturbant la génération d'harmoniques au foyer. Le phare attoseconde ultra-rapide est donc exactement le pendant temporel des mesures spatiales ptychographiques.

Outre le fait de caractériser temporellement les impulsions attosecondes générées, un autre point crucial de la génération d'harmoniques sur cible solide reste à élucider. Si certaines expériences ont permis d'atteindre un rayonnement XUV jusque dans la fenêtre de l'eau [22], la majeure partie des résultats présentés à ce jour est limitée en ordre harmonique. Les ordres harmoniques les plus élevés se situent aux alentours de $\omega/\omega_L \sim$ 40 - 50 [74, 77, 97, 109]. Il est par conséquent primordial de comprendre pourquoi les résultats présentés dans [22] n'ont pu être reproduits. Pour des applications, notamment en biologie, il serait très intéressant de pouvoir disposer d'une source XUV robuste dans la fenêtre de l'eau. Il est donc important de comprendre la différence de régime d'interaction entre l'expérience [22] et les autres afin d'être plus à même de développer une telle source. Dans les prochaines années, les développements de la technologie laser devraient jouer un rôle majeur dans le développement de la génération d'harmoniques sur cible solide. En effet, les récentes inventions telles que le Frequency Domain Optical Parametric Amplification (FOPA) permettant de générer des impulsions de quelques dizaines de mJ, de ~ 2 cycles optiques accordables en fréquence [110], le cross-polarized wave (XPW) servant à améliorer le contraste temporel des impulsions laser de 3-4 ordres de grandeur, permettant ainsi de s'affranchir du double miroir plasma et le développement de nouvelles architectures laser menant à la réalisation de chaîne laser TW opérant au kHz[111], devraient contribuer à rendre les expériences de génération d'harmoniques sur cible solide plus flexibles. Avec en parallèle un développement croissant de chaînes laser multi-

petawatt, comme ELI ou APPOLON (15fs, 150J), cela devrait permettre la réalisation de nouvelles expériences extraordinaires et passionantes dans des régimes d'interaction encore plus extrêmes.

Conclusion

Bibliographie

- M. Dantus, M. Rosker, and A. Zewail, "Femtosecond real-time probing of "transition states" in chemical reactions," *Journal of Chemical Physics*, no. 87, pp. 2395–2397, 1987.
- M. Dantus, M. Rosker, and A. Zewail, "Femtosecond real-time probing of reactions. ii. the dissociation reaction of icn," *Journal of Chemical Physics*, no. 89, pp. 6128–6140, 1988.
- [3] M. Rosker, M. Dantus, and A. Zewail, "Femtosecond real-time probing of reactions. i. the technique," *Journal of Chemical Physics*, no. 89, p. 6113, 1988.
- [4] A. Zewail, "Femtochemistry : atomic-scale dynamic of the chemical bond using ultrafast lasers," *Nobel Lecture*, 1999.
- [5] P. B. Corkum and F. Krausz, "Attosecond science," *Nature Physics*, vol. 3, pp. 381–387, June 2007.
- [6] A. L'Huillier, K. Schafer, and K. Kulander, "Theoretical aspects of intense field harmonic generation," *Reviews of modern physics*, vol. 72, no. 525, 2000.
- [7] T. Brabec and F. Krausz, "Intense few-cycle laser fiels : Frontiers of nonlinear optics," *Reviews of modern physics*, vol. 72, no. 525, 2000.
- [8] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, "Attosecond metrology," *Nature*, vol. 414, pp. 509–513, Nov. 2001.
- [9] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, "Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation," *Science*, vol. 292, pp. 1689–1692, June 2001.
- [10] B. Schmidt, A. Shiner, M. Giguere, P. Lassonde, C. Trallero-Herrero, J.-C. Kieffer, P. Corkum, D. Villeneuve, and Légaré, "High-harmonic generation with longwavelength few cycle laser pulses," *Journal of Physics B*, vol. 45, 2012.
- [11] R. L. Carman, F. D.W., and J. Kindel, "Visible harmonic emission as a way of measuring profile steepening," *Physical Review Letters*, vol. 46, 1981.
- [12] R. L. Carman, R. F. Benjamin, and C. K. Rhodes, "Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in CO2-laser-produced plasmas," *Physical Review* A, vol. 24, pp. 2649–2663, Nov. 1981.

- [13] G. Farkas and T. CS, "Proposal for attosecond light pulse generation using lasrr induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases," *Phys. Lett. A*, no. 168, p. 447, 1992.
- [14] P. Corkum, "Plasma perspective on strong fiel approximation," Phys. Rev. Lett., vol. 71, no. 13, 1993.
- [15] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, and M. Nisoli, "Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses," *Science*, vol. 314, pp. 443–446, Oct. 2006.
- [16] J. Itatani, F. Quéré, G. Yudin, F. Ivanov, M.Yu. Krausz, and P. Corkum, "Attosecond streak camera," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 9, no. 3, p. 159163, 2013.
- [17] Y. Mairesse and F. Quéré, "Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts," *Physical Review A*, vol. 71, p. 011401, Jan. 2005.
- [18] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleinberg, U. Heinzmann, and F. Krausz, "Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy," *Nature*, vol. 419, pp. 803–807, Oct. 2002.
- [19] M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, A. Verhoef, V. Yakovlev, M. Kling, N. Rauschenberger, J. Kabachnik, H. Schroeder, M. Lezius, K. Kompa, H. Muller, M. Vrakking, S. Hendel, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, "Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms," *Nature*, vol. 446, pp. 627–632, Apr. 2007.
- [20] N. Dudovich, O. Smirnova, J. Levesque, Y. Mairesse, M. Ivanov, D. Villeneuve, and P. Corkum, "Measuring and controlling the birth of attosecond xuv pulses," *Nat Phys*, vol. 2, no. 11, p. 781786, 2013.
- [21] C. Thaury and F. Quéré, "High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors : basic mechanisms," J. Phys. B., vol. 43, p. 213001, Oct 2010.
- [22] B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakakis, S. Moustaizis, R. Kodama, M. Tampo, C. Stoeckl, R. Clarke, H. Habara, D. Neely, S. Karsch, and P. Norreys, "High harmonic generation in the relativistic limit," *Nature Physics*, vol. 2, pp. 456–459, July 2006.
- [23] L. Plaja, L. Roso, K. Rzazewski, and M. Lewenstein, "Generation of attosecond pulse trains during the reflection of a very intense laser on a solid surface," J. Opt. Soc. AM. B, vol. 15, July 1998.
- [24] R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, "Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity," *Physics of Plasmas*, vol. 3, p. 3425, 1996.
- [25] T. Baeva, S. Gordienko, and A. Pukhov, "Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma," *Physical Review E*, vol. 74, p. 046404, Oct 2006.

- [26] F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, P. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert, "Coherent Wake Emission of High-Order Harmonics from Overdense Plasmas," *Physical Review Letters*, vol. 96, p. 125004, Mar. 2006.
- [27] C. Thaury, F. Quéré, J.-P. Geindre, A. Lévy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. D'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and P. Martin, "Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics," *Nature Physics*, vol. 3, pp. 424–429, June 2007.
- [28] H. Vincenti, S. Monchocé, S. Kahaly, G. Bonnaud, P. Martin, and F. Quéré, "Optical properties of relativistic plasma mirrors," *Nat. Commun*, vol. 5, 2014.
- [29] K. Kim, D. Villeneuve, and P. Corkum, "Manipulating quantum paths for novel attosecond measurement methods," *Nat Photon*, vol. 8, no. 3, p. 187194, 2014.
- [30] K. Kim, C. Zhang, A. Shiner, B. Schmidt, F. Légaré, D. Villeneuve, and P. Corkum, "Petahertz optical oscilloscope," *Nat Photon*, vol. 7, no. 12, p. 958062, 2013.
- [31] K. Kim, C. Zhang, T. Ruchon, J.-F. Hergott, T. Auguste, D. Villeneuve, P. Corkum, and F. Quéré, "Photonic streaking of attosecond pulse trains," *Nat Photon*, vol. 7, no. 8, p. 651656, 2013.
- [32] Y. Mairesse, N. Dudovich, J. Levesque, D. Kartashov, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and T. Auguste, "Transient phase masks in high-harmonic generation," *Opt. Lett.*, vol. 32, pp. 436–438, Feb 2007.
- [33] Y. Mairesse, D. Zeidler, N. Dudovich, M. Spanner, J. Levesque, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, "High-order harmonic transient grating spectroscopy in a molecular jet," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 100, p. 143903, Apr 2008.
- [34] H. Vincenti and F. Quéré, "Attosecond lighthouses : How to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, p. 113904, Mar 2012.
- [35] J. Wheeler, A. Borot, S. Monchocé, H. Vincenti, A. Ricci, A. Malvache, R. Lopez-Martens, and F. Quéré, "Attosecond Lighthouse from plasma mirrors," *Nature Photonics*, vol. 6, Nov. 2012.
- [36] W. Kruer, The Physics of Laser Plasma Interaction. Westview Press, 1988.
- [37] F. Brunel, "Not-so-resonant, resonant absorption," *Physical Review Letter*, vol. 59, pp. 52–55, Jul 1987.
- [38] G. Bonnaud, P. Gibbon, J. Kindel, and E. Williams, "Laser interaction with a sharp-edged overdense plasma," *Laser and Particle Beams*, vol. 9, pp. 339–354, Apr 1991.
- [39] A. Malvache, Optique non-linéaire á haute intensité : Compression d'impulsions laser Interaction laser-plasma. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2011.
- [40] C. Thaury, Génération d'harmoniques d'odres élevés sur miroir plasma. PhD thesis, Ecole Paris Sud XI, 2008.

- [41] H. Vincenti, Génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma relativiste. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2013.
- [42] J. van Tilborg, B. Shaw, T. Sokollik, S. Rykovanov, F. Monchocé, Quéré, A. Malvache, and L. W.P., "Spectral characterization of laser-driven solid-based high harmonics in the coherent wake emission regime," *Optics Letters*, vol. 38, no. 20, pp. 4026–4029, 2013.
- [43] F. Quéré, C. Thaury, J.-P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot, and P. Martin, "Phase Properties of Laser High-Order Harmonics Generated on Plasma Mirrors," *Physical Review Letters*, vol. 100, pp. 095004–+, Mar. 2008.
- [44] A. Malvache, A. Borot, F. Quere, and R. Lopez-Martens, "Coherent Wake Emission Spectroscopy as a Probe of Plasma Density Profiles," *Phys. Rev. E*, vol. 87, p. 035101, Mar 2013.
- [45] A. Borot, A. Malvache, X. Chen, A. Jullien, J.-P. Geindre, P. Audebert, G. Mourou, F. Quéré, and R. Lopez-Martens, "Attosecond control of collective electron motion in plasmas," *Nature Physics*, vol. 8, pp. 416–421, May 2012.
- [46] Wilks, S.C., "Simulation of ultraintense laser-plasma interaction," Phys. Fluids B, vol. 5, pp. 2603–2608, Mar. 1993.
- [47] S. Bulanov, N. Naumova, and F. Pegoraro, "Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma," *Physics of Plasmas*, vol. 1, pp. 745–757, Mar. 1994.
- [48] I. Kim, K. Pae, C. Kim, H. Kim, H. Yun, S. Yun, J. Sung, S. Lee, J. Yoo, T. Yu, T. Jeong, C. Nam, and J. Lee, "Relativistic frequency upshift to the extreme ultraviolet regime using self-induced oscillatory flying mirrors," *Nat Commun*, vol. 3, no. 1231, 2012.
- [49] B. Dromey, D. Adams, R. Hörlein, Y. Nomura, S. G. Rykovanov, D. C. Carroll, P. S. Foster, S. Kar, K. Markey, P. McKenna, D. Neely, M. Geissler, G. D. Tsakiris, and M. Zepf, "Diffraction-limited performance and focusing of high harmonics from relativistic plasmas," *Nature Physics*, vol. 5, pp. 146–152, Feb. 2009.
- [50] D. Strickland and G. Mourou, "Compression of amplified chirped optical pulses," Optics Communications, vol. 55, pp. 447–1449, Oct. 1985.
- [51] A. Lévy, T. Ceccotti, P. DéOliveira, F. Réau, M. Perdrix, F. Quéré, P. Monot, M. Bougeard, H. Lagadec, P. Martin, P. Audebert, and J. Geindre, "Double plasma mirror for ultrahigh temporal contrast ultraintense," *Optics Letter*, vol. 32, p. 310, Feb. 2007.
- [52] G. Doumy, F. Quere, O. Gobert, M. Perdrix, P. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, J.-P. Geindre, and T. Wittmann, "Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses," *Physical Review E*, vol. 69, no. 2, p. 026402, 2004.
- [53] G. Doumy, Interaction laser matiére á haut flux et fort contraste temporel. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2006.

- [54] N. Lefaudeux, X. Levecq, G. Dovillaire, S. Theis, and L. Escolano, "New deformable mirror technology and associated control strategies for ultrahigh intensity laser beam corrections and optimization," 2012.
- [55] N. Lefaudeux, X. Levecq, L. Escolano, and S. Theis, "Large deformable mirrors for beam control of high brightness lasers," 2013.
- [56] N. Lefaudeux, X. Levecq, E. Lavergne, O. Hort, F. Burgy, P. Balcou, and E. Constant, "Direct focal spot adaptative optics for achieving high power diffraction limited performance in the interaction chamber," 2013.
- [57] N. Lefaudeux, E. Lavergne, S. Monchocé, and X. Levecq, "Diffraction limited focal spot in the interaction chamber using phase retrieval adaptive optics," 2014.
- [58] S. Akturk, X. Gu, P. Bowlan, and R. Trebino, "Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses," *Journal of Optics*, vol. 12, no. 9, p. 093001, 2010.
- [59] S. Akturk, X. Gu, P. Gabolde, and R. Trebino, "The general theory of first-order spatio-temporal distortions of gaussian pulses and beams," *Opt. Express*, vol. 13, pp. 8642–8661, Oct 2005.
- [60] F. Quéré, H. Vincenti, A. Borot, S. Monchocé, T. J. Hammond, K. T. Kim, J. A. Wheeler, C. Zhang, T. Ruchon, T. Auguste, J. F. Hergott, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and R. Lopez-Martens, "Applications of ultrafast wavefront rotation in highly nonlinear optics," *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 47, no. 12, p. 124004, 2014.
- [61] J. Geindre, P. Audebert, and R. Marjoribanks, "Relativistic ac gyromagnetic effects in ultraintenselaser-matter interaction," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, p. 085001, Aug 2006.
- [62] S. Kahaly, S. Monchocé, V. Gallet, O. Gobert, F. Réau, O. Tcherbakoff, P. D'Oliveira, P. Martin, and F. Quéré, "Investigation of amplitude spatio-temporal couplings at the focus of a 100tw-25fs laser," *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 054103, 2014.
- [63] P. Bowlan, P. Gabolde, A. Shreenath, K. McGresham, R. Trebino, and S. Akturk, "Crossed-beam spectral interferometry : a simple, high-spectral resolution method for completely characterizing complex ultrashort pulses in real time," *Opt. Express*, vol. 14, pp. 11892–11900, Nov 2006.
- [64] C. Dorrer, E. M. Kosik, and I. A. Walmsley, "Direct space time-characterization of the electric fields of ultrashort optical pulses," *Opt. Lett.*, vol. 27, pp. 548–550, Apr 2002.
- [65] P. Gabolde and R. Trebino, "Single-frame measurement of the complete spatiotemporal intensity and phase of ultrashort laser pulses using wavelength-multiplexed digital holography," J. Opt. Soc. Am. B, vol. 25, pp. A25–A33, Jun 2008.
- [66] S. L. Cousin, J. M. Bueno, N. Forget, D. R. Austin, and J. Biegert, "Threedimensional spatiotemporal pulse characterization with an acousto-optic pulse shaper and a hartmann-shack wavefront sensor," *Opt. Lett.*, vol. 37, pp. 3291–3293, Aug 2012.

- [67] K. Varju, A. Kovaćs, G. Kurdi, and K. Osvay, "High-precision measurement of angular dispersion in a cpa laser," *Applied Physics B*, vol. 74, no. 1, pp. s259–s263, 2002.
- [68] A. Bourdier, "Oblique incidence of a strong electromagnetic wave on a cold inhomogeneous electron plasma - Relativistic effects," *Physics of Fluids*, vol. 26, pp. 1804– 1807, July 1983.
- [69] J. P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, F. Falliès, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, A. Dos Santos, G. Hamoniaux, and A. Antonetti, "Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laserproduced plasma," *Optics Letters*, vol. 19, pp. 1997–1999, Dec. 1994.
- [70] J. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, F. Fallies, J. Gauthier, D. Santos, A. A. Mysyrowicz, and A. Hamoniaux, G. and Antonetti, "Single-shot spectral interferometry with chirped pulses," *Optics Letters*, vol. 26, pp. 1997–1999, 2001.
- [71] M. Takeda, H. Ina, and S. Kobayashi, "Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry," *Journal of the Optical Society of America*, vol. 72, 1982.
- [72] P. Blanc, P. Audebert, F. Fallies, J. Geindre, J. Gauthier, A. Dos Santos, A. Mysy-rowicz, and A. Antonetti, "Phase dynamics of reflected probe pulses from sub-100-fs laser-produced plasma," *Journal Optical Society America B*, vol. 13, no. 1, pp. 118–124, 1996.
- [73] A. Tarasevitch, K. Lobov, C. Wünsche, and D. von der Linde, "Transition to the relativistic regime in high order harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 98, p. 103902, Mar 2007.
- [74] C. Rödel, D. an der Brügge, J. Bierbach, M. Yeung, T. Hahn, B. Dromey, S. Herzer, S. Fuchs, A. G. Pour, E. Eckner, M. Behmke, M. Cerchez, O. Jäckel, D. Hemmers, T. Toncian, M. C. Kaluza, A. Belyanin, G. Pretzler, O. Willi, A. Pukhov, M. Zepf, and G. G. Paulus, "Harmonic generation from relativistic plasma surfaces in ultrasteep plasma density gradients," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 109, p. 125002, Sep 2012.
- [75] M. Yeung, B. Dromey, D. Adams, S. Cousens, R. Hörlein, Y. Nomura, G. D. Tsakiris, and M. Zepf, "Beaming of high-order harmonics generated from laser-plasma interactions," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 165002, Apr 2013.
- [76] M. Zepf, G. D. Tsakiris, G. Pretzler, I. Watts, D. M. Chambers, P. A. Norreys, U. Andiel, A. E. Dangor, K. Eidmann, C. Gahn, A. Machacek, J. S. Wark, and K. Witte, "Role of the plasma scale length in the harmonic generation from solid targets," *Physical Review E*, vol. 58, pp. R5253–R5256, Nov 1998.
- [77] S. Kahaly, S. Monchocé, H. Vincenti, T. Dzelzainis, B. Dromey, M. Zepf, P. Martin, and F. Quéré, "Direct observation of density-gradient effects in harmonic generation from plasma mirrors," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 175001, Apr 2013.
- [78] V. Floquet, Génération d'ions rapides par impulsions laser ultra-intenses et ultracourtes. PhD thesis, Ecole Paris Sud XI, 2012.

- [79] S. Monchocé, S. Kahaly, A. Leblanc, L. Videau, P. Combis, F. Réau, D. Garzella, P. D'Oliveira, P. Martin, and F. Quéré, "Optically controlled solid-density transient plasma gratings," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 112, p. 145008, Apr 2014.
- [80] W. Hoppe, "Beugung im inhomogenen primarstrahlwellenfeld. i. prinzip einer phasenmessung von elektronenbeungungsinterferenzen," Acta Crystallographica Section A, vol. 25, no. 4, p. 495, 1969.
- [81] W. Hoppe and G. Strube, "Beugung im inhomogenen primarstrahlwellenfeld. ii. lichtopische analogieversuvhe bei unperiodischen objeckten," Acta Crystallographica Section A, vol. 25, no. 4, p. 508, 1969.
- [82] W. Hoppe, "Beugung im inhomogenen primarstrahlwellenfeld. iii. amplituden- und phasenbestimmung bei unperiodischen objekten," Acta Crystallographica Section A, vol. 25, no. 4, p. 502, 1969.
- [83] R. Hegerl and W. Hoppe, "Dynamische theorie des kristallstrukturanalyse durch elecktronenbeugung im inhomogen primarstrahlwellenfeld," *Berichte der Bunsen*gesellschaft fur physikalische Chemie, vol. 74, no. 11, pp. 1148–1154, 1970.
- [84] P. Thibault, M. Dierolf, A. Menzel, O. Bunk, C. David, and F. Pfeiffer, "Highresolution scanning x-ray diffraction microscopy," *Science*, vol. 321, p. 379, 2008.
- [85] P. Thibault, M. Dierolf, A. Menzel, O. Bunk, and F. Pfeiffer, "Probe retrieval in ptychographic coherent diffractive imaging," *Ultramicroscopy*, vol. 109, pp. 338–343, 2009.
- [86] P. Thibault and A. Menzel, "Reconstructing state mixtures from diffraction measurements," *Nature*, vol. 494, no. 7435, pp. 68–71, 2013.
- [87] P. Hawkes, "Is a stem a ptychograph," Ultramicroscopy, vol. 9, p. 27, 1982.
- [88] D. Kane, "Real-time measurement of ultrashort laser pulses using principal component generalized projections," *Selected Topics in Quantum Electronics, IEEE Journal of*, vol. 4, pp. 278–284, Mar 1998.
- [89] A. Leblanc, S. Monchocé, S. Kahaly, and F. Quéré, "Ptychography of relativistic plasma interaction," In preparation for submission to Nature Photonics, 2014.
- [90] J. Fienup, "Phase retrieval problem : a comparison," Applied optics, vol. 21, pp. 2758–2769, Aug 1982.
- [91] G.-Z. Yang, B.-Z. Dong, B.-Y. Gu, J.-Y. Zhuang, and O. Ersoy, "Gerchberg-saxton and yang-gu algorithms for phase retrieval in a nonunitary transform system : a comparison," *Applied optics*, vol. 33, pp. 2152–2154, Jan 1994.
- [92] R. Trebino, Frequency-Resolved Optical Gating : The Measurement of Ultrashort Laser Pulses : The Measurement of Ultrashort Laser Pulses. Kluewer Academic Publishers, 2000.
- [93] K. W. DeLong, B. Kohler, K. Wilson, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino, "Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections," *Opt. Lett.*, vol. 19, pp. 2152–2154, Dec 1994.

- [94] T. Ceccotti, V. Floquet, A. Sgattoni, A. Bigongiari, O. Klimo, M. Raynaud, C. Riconda, A. Heron, F. Baffigi, L. Labate, L. A. Gizzi, L. Vassura, J. Fuchs, M. Passoni, M. Květon, F. Novotny, M. Possolt, J. Prokůpek, J. Proška, J. Pšikal, L. Štolcová, A. Velyhan, M. Bougeard, P. D'Oliveira, O. Tcherbakoff, F. Réau, P. Martin, and A. Macchi, "Evidence of resonant surface-wave excitation in the relativistic regime through measurements of proton acceleration from grating targets," *Phys. Rev. Lett*, vol. 111, p. 185001, Nov 2013.
- [95] A. Bigongiari, *High Intensity Laser-Plasma Interaction : surface wave excitation and particle acceleration.* PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2012.
- [96] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, "Subfemtosecond pulses," Opt. Lett., vol. 19, pp. 1870–1872, Nov 1994.
- [97] P. Heissler, R. Hörlein, J. Mikhailova, L. Waldecker, P. Tzallas, A. Buck, K. Schmid, C. Sears, F. Krausz, L. Veisz, M. Zepf, and G. Tsakiris, "Few-Cycle Driven Relativistically Oscillating Plasma Mirrors : A Source of Intense Isolated Attosecond pulses," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, 2012.
- [98] G. D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyer-ter-Vehn, and F. Krausz, "Route to intense single attosecond pulses," *New Journal of Physics*, vol. 8, pp. 19–+, Feb. 2006.
- [99] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. Aquila, E. M. Gullikson, D. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg, "Single-cycle nonlinear optics," *Science*, vol. 320, p. 16141617, June 2008.
- [100] I. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J. Caumes, S. Stagira, C. Vozzi, G. Sansone, and M. Nisoli, "Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating," *Nature Physics*, vol. 2, pp. 319–322, 2006.
- [101] D. Jones, S. Diddams, J. Ranka, A. Stentz, R. Windeler, H. Hall, and S. Cundiff, "Carrier-enveloppe phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis," *Science*, vol. 288, pp. 635–639, Apr 2000.
- [102] K. Kim, C. Zhang, A. Shiner, S. Kirkwood, E. Frumker, G. Gariepy, A. Naumov, D. Villeneuve, and P. Corkum, "Manipulation of quantum paths for space-time characterization of attosecond pulses," *Nat Phys*, vol. 9, no. 3, p. 159163, 2013.
- [103] S. Rykovanov, M. Geissler, J. Meyr-ter Vehn, and G. Tsakiris, "Intense single attosecond pulses from surface harmonics using the polarization gating technique," New J. Phys., vol. 10, no. 025025, 2008.
- [104] F. Quéré, Impulsions attosecondes de lumieres : caractérisation temporelle et sources de deuxieme génération. Habilitation á diriger des recherches, Ecole Paris Sud XI, 2010.
- [105] A. Gonoskov, A. Korzhimakov, A. Kim, M. Marklund, and A. Sergeev, "Ultrarelativistic laser interaction with overdense plasma," *Physical Review E*, vol. 84, Oct 2011.

- [106] X. Lavocat-Dupuis and J.-P. Matte, "Numerical simulation of harmonic generation by relativistic laser interaction with a grating," *Phys. Rev. E*, vol. 80, p. 055401, Oct 2009.
- [107] X. Lavocat-Dupuis and J.-P. Matte, "Numerical and theoretical study of the generation of extreme ultraviolet radiation by relativistic laser interaction with a grating," *Physics of Plasmas*, vol. 17, p. 093105, Sept 2010.
- [108] M. Cerchez, A. Giesecke, C. Peth, M. Toncian, M. Albertazzi, J. Fuchs, O. Willi, and T. Toncian, "Generation of laser-driven higher harmonics from gratings targets," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 065003, Feb 2013.
- [109] F. Dollar, P. Cummings, V. Chvykov, L. Willingale, M. Vargas, V. Yanovsky, C. Zulik, A. Maksimchuk, A. Thomas, and K. Kushelnik, "Scaling high-order harmonic generation from laser-solid interactions to ultrahigh intensity," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 110, p. 175002, Apr 2013.
- [110] B. Schmidt, N. Thiré, M. Boivin, A. Laramé, F. Poitras, G. Lebrun, T. Ozaki, H. Ibrahim, and F. Légaré, "Frequency domain optical parametric amplification," *Nature Communication*, vol. 5, no. 3643, 2013.
- [111] A. Jullien, F. Ricci, Bohle, J.-P. Rousseau, S. Gabrielle, N. Forget, H. Jacqmin, B. Mercier, and R. Lopez-Martens, "Carrier-envelope-phase stable, high contrast, double chirped-pulse-amplification laser system," *Optics Letters*, vol. 39, no. 13, 2014.

Optically Controlled Solid-Density Transient Plasma Gratings

S. Monchocé,¹ S. Kahaly,¹ A. Leblanc,¹ L. Videau,² P. Combis,² F. Réau,¹ D. Garzella,¹

P. D'Oliveira,¹ Ph. Martin,¹ and F. Quéré^{1,*}

¹Commissariat à l'Energie Atomique, Lasers, Interactions and Dynamics Laboratory,

²Commissariat à l'Energie Atomique, DAM, DIF 91297 Arpajon Cedex, France

(Received 8 November 2013; published 11 April 2014)

A general approach for optically controlled spatial structuring of overdense plasmas generated at the surface of initially plain solid targets is presented. We demonstrate it experimentally by creating sinusoidal plasma gratings of adjustable spatial periodicity and depth, and study the interaction of these transient structures with an ultraintense laser pulse to establish their usability at relativistically high intensities. We then show how these gratings can be used as a "spatial ruler" to determine the source size of the high-order harmonic beams produced at the surface of an overdense plasma. These results open new directions both for the metrology of laser-plasma interactions and the emerging field of ultrahigh intensity plasmonics.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.112.145008

PACS numbers: 52.65.Rr, 42.65.Ky, 52.27.Ny, 52.38.-r

The study of high-intensity laser-matter interactions using high-power femtosecond lasers is driven by two main motivations. One is understanding the fundamental physics behind these highly nonlinear interactions, and the other exploring their potential applications, as in laserdriven particle acceleration [1] and high order harmonic generation [2]. Most of these experiments require reaching the highest possible effective laser field amplitude on target and/or optimizing the coupling with the resulting plasma.

One way to achieve this is by utilizing spatial modulations at the surface of a solid target. Periodic structures can couple the laser field efficiently with collective excitation modes, called plasmons, potentially resulting in high light absorption [3,4]. Sharp spatial features can also lead to large local field enhancements, which can enhance hardx-ray emission [3,5]. Both can favor acceleration of the plasma particles to high energies [6–8].

This new direction of research has so far been based on fairly complex target engineering, which does not allow structure control during the experiment. This also excludes materials or systems that cannot be shaped on the required scale before laser irradiation, such as the nanometric foils typically used for laser ion acceleration. In this context, the ability to generate *in situ* tunable plasma structures from initially plain solid targets made of any material would be a major step forward. This would extend the domain of plasmonics to high field science [9] and open new possibilities for experimental investigations on fast electron transport [10,11].

In this Letter, we present and demonstrate experimentally a new, simple, and flexible scheme to produce optically controllable structured plasmas from plain solid targets, for high-field physics experiments. As a first implementation of this scheme, we create transient sinusoidal "plasma gratings" from flat silica targets, which we probe by measuring the diffraction pattern of the high-order harmonic beam produced at their surface by an ultraintense laser pulse. Conversely, we show that this scheme provides a straightforward experimental means of retrieving the size of the harmonic source in the target plane—a quantity that is very challenging to measure by conventional optical methods.

All experiments described in this Letter have been performed on UHI100, the 800 nm, 25 fs-100 TW, high temporal contrast ($\geq 10^{12}$ using double plasma mirrors [12]) laser of CEA-IRAMIS. When a small part of this beam of adequate intensity (hereafter called a prepulse) is used to irradiate the surface of a solid target, it ionizes this target and initiates a plasma expansion. This leads to an exponential density profile [13], $n \propto \exp(-z/L(\tau))$ at the plasma-vacuum interface at a delay τ after the prepulse. The velocity $C_s = dL/d\tau$, of this expansion is expected to depend on the fluence F of the prepulse, and this dependence constitutes the starting point of our scheme. We measure this dependence for a polished silica target exposed to a single 25 fs laser pulse, by probing the subsequent plasma expansion through the phase shift it induces on a weak probe pulse, measured with timeresolved Fourier-domain interferometry [14] using the scheme described in Ref. [15].

Figure 1(a) shows the spatial profile of this phase shift across the prepulse focal spot, at four different delays τ after the prepulse. Plasma expansion velocity C_s at a given prepulse fluence F is obtained from the temporal evolution of this phase shift. Figure 1(b) depicts the measured variation of C_s with F. Beyond a threshold required to turn the target into a plasma, C_s shows a quasilinear dependence on the prepulse fluence [Fig. 1(b)]. Hydrodynamic simulations with the 1D code ESTHER [16], in conditions comparable to those of this experiment,

0031-9007/14/112(14)/145008(5)

DSM/IRAMIS, CEN Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France



FIG. 1 (color online). (a) Temporal evolution of the spatially resolved phase shift induced on the Fourier-domain interferometry probe pulse by the plasma expansion triggered by a prepulse. (b) Fluence dependence of plasma expansion velocity C_s at the center of the prepulse beam, as deduced from the measured phase shifts. The inset plots T_e (at the critical plasma density n_c) as a function of prepulse fluence obtained from ESTHER simulations for a fused silica target under typical experimental conditions.

show that this variation can be predominantly attributed to an increase of the electron temperature T_e with the prepulse fluence [inset in Fig. 1(b)], due to the increase in absorbed laser energy.

Based on this result, a spatial structure can be induced at the surface of an initially flat solid target, prior to the arrival of a main ultraintense pulse, through the irradiation of this target by a spatially shaped prepulse beam [fluence $F(x) = F_0 f(x)$], at a variable delay τ before the main pulse. The dependence of C_s on F then leads to the progressive growth in time of a modulation on the surface of the overdense plasma. A simple way of achieving very fine spatial structures (potentially down to $\approx \lambda/2$, λ being the prepulse wavelength) with this approach, consists in using the spatial interferences of several beams to shape the prepulse fluence on target—a scheme then analogous to transient grating spectroscopy [17,18].

To demonstrate this idea, we create sinusoidal transient plasma gratings by interfering two synchronized prepulse beams on target. Experimentally, this is easily achieved by placing two 10 mm diameter mirrors on diametrically opposite edges of the UHI100 laser beam [M1 and M2 in Fig. 2(a)], just in front of one of the large mirrors [M0 in Fig. 2(a)] used for the main beam. Both beams are focused on a silica target by the same off axis parabolic mirror, and thus, cross at an angle on this target, where they interfere, producing a focal spot intensity pattern as shown in gray scale in Fig. 2(b). The fringe period λ_g is given by $\lambda_q = \lambda f / D_p$ —with D_p the distance between the prepulse mirrors, and f the focal length of the focusing optics—and can be varied through any of these three parameters (Here, $D_p = 55$ mm, f = 500 mm, and $\lambda = 0.8 \ \mu m$ leading to $\lambda_a = 7 \ \mu m$). The peak fluence of each individual prepulse on target is high enough ($\sim 1.7 \times 10^2 \text{ J/cm}^2$) to create a dense plasma at the surface of silica.

We first carry out hydrodynamical simulations to study the plasma structure resulting from such an intensity



FIG. 2 (color). (a) Experimental scheme for the creation of optically controlled plasma gratings and their irradiation by an ultraintense pulse. (b) Resulting intensity distributions of the two interfering prepulse beams (gray scale) when they are perfectly synchronized ($\tau' = 0$), and of the main beam (colored scale) at focus. Panels (c) and (d) present the reconstructed plasma grating density calculated from ESTHER simulations at two different time delays τ . The black lines show the isodensity contours at $n = n_c$.

distribution. For typical lateral scales λ_g in the μ m range and expansion velocities of the order of 30 nm/ps, $L(\tau) = C_s \tau \ll \lambda_g$ for delays $\tau \le 3$ ps used in the experiment, implying that 2D hydrodynamical effects can be neglected. Therefore to determine the time-dependent plasma electron density map $n_e(x, z, \tau)$ in this regime, we performed 1D ESTHER simulations, at different laser fluences *F* between 0 and F_0 . This provides a collection of 1D density profiles at time τ , $n_e^{1D}(F, z, \tau)$, from which we deduce the 2D structure of the modulated plasma using $n_e(x, z, \tau) = n_e^{1D}(F_0f(x), z, \tau)$.

The resulting density profiles $n_e(x, z, \tau)$ at two different delays are displayed in Figs. 2(c) and 2(d), while the complete temporal evolution $n_e(x, z, \tau)$ is provided in [19]. We observe that the fluence variation in the focal plane gives rise to periodic modulations of the critical density surface [solid black lines in Figs. 2(c) and 2(d)]. This solid density plasma grating retains the periodicity of the driving prepulse intensity modulation and expands in time, thus allowing for a control of grating periodicity and depth through the focusing configuration and delay time, respectively. The maximum modulation depth that can be achieved with these gratings is typically of the order of λ_g , beyond which two-dimensional hydrodynamical expansion effects are expected to significantly affect and smear out the spatial structure.

We now turn to the experimental demonstration of plasma gratings growth and control. A central portion of the UHI100 beam of adjustable diameter D is used to produce a main pulse that is focused on the target by the

same optics as the prepulses and interacts with the structured plasma they have created, thus acting as a high-intensity probe. The delay between the main pulse and the prepulses, $\tau = (\tau_1 + \tau_2)/2$ as well as the delay between the two prepulses, $\tau' = (\tau_1 - \tau_2)$ are adjustable. The prepulses are reflected from the back face of the small mirrors, so that the group delay accumulated in the glass substrate makes it possible to achieve $\tau = 0$ [15].

Figure 2(b) shows a superposition of the focal spot of the main pulse (color image) and of the interference pattern of the two prepulse beams on the target surface (gray image). The small diameter of the prepulse beams ensures that they each produce a much larger focal spot than the main beam, allowing it to interact with a uniform plasma grating. For diffraction-limited focusing, the number of grating periods N illuminated by this main pulse scales as D_n/D .

To visualize the existence of such a grating and to confirm that the structure survives when exposed to high intensities, we study high order harmonic generation (HHG) occurring when the *p*-polarized main pulse interacts with this grating at oblique incidence (55°). HHG can occur through two now well-identified mechanisms, coherent wake emission (CWE) [20] and the relativistic oscillating mirror (ROM) [21] process, the relative weight of which depends on the interaction conditions [15,22]. Intuitively, one expects that HHG occurring on a plasma grating would result in a diffraction pattern on the harmonic beam in far field, which, due to the short wavelengths of these harmonics, constitutes a very sensitive probe of this grating. We measure this diffraction pattern for each individual harmonic using a flat field XUV grating spectrometer described in [15], the slit of which is oriented in the plane of the two interfering prepulse beams.

We perform the first set of experiments on CWE harmonics, which are typically generated at moderate intensities ($\sim 10^{16}$ W cm⁻²) and for sharp plasmas [2,15], allowing us to test the grating under these conditions. In Fig. 3(a), we present the angularly resolved harmonic spectrum after diffraction from such a plasma grating with a main pulse intensity, $I = 2 \times 10^{16}$ W/cm², a prepulse delay of $\tau = 0.35$ ps and $\tau' = 0$ [as in Fig. 2(c)]. Experimentally, this is achieved by using a rather small diaphragm (D = 2 cm) to produce the main pulse, leading to a $N \approx 5$ grating periods within its focal spot.

As the delay τ' between the two prepulses increases, the diffraction pattern progressively vanishes and is no longer observed when it exceeds the pulse coherence time τ_c [Fig. 3(b)], i.e., when the two prepulses no longer interfere. The complete evolution as a function of τ' is shown in [19]. This demonstrates that the observed diffraction pattern indeed results from the modulated plasma expansion triggered by the spatially interfering prepulse beams.

We now expose the grating to more drastic conditions by looking at ROM harmonics, which are generated at relativistic intensities and for longer density gradients L,



FIG. 3 (color). Panels (a) and (b) present experimental CWE angularly resolved harmonic spectra, respectively, at $\tau' = 0$ (maximum fringe contrast) and $\tau' > \tau_c$ (no grating) for short gradient ($\tau = 0.35$ ps) and $I_{\text{max}} = 2 \times 10^{16}$ W/cm². Panels (c) and (d) present similar measurement for ROM harmonics, now for long gradient ($\tau = 1.18$ ps) and $I_{\text{max}} = 1 \times 10^{18}$ W/cm². The blue lines in (i)–(iv), respectively, correspond to lineouts of the 12th harmonic in (a)– (d). The red dashed lines in (i) and (iii) present the best fits obtained from our model, and in (ii) and (iv), the Gaussian beams calculated in the far field in the absence of plasma grating, using the values of the parameters w_n and α_n deduced from these fits in (i) and (iii). The insets show the spatial pattern of the prepulses measured at focus (gray scale) super-imposed with the focal spot of the main pulse (colored scale).

corresponding to larger delays τ . Compared to the previous results, this higher intensity is obtained by using a larger diaphragm for the main pulse, which also results in a smaller number of grating periods within its focal spot $(N \approx 2)$. Figure 3(c) shows the frequency-resolved diffraction pattern of ROM harmonics at $I = 1 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$, from the plasma grating obtained with $\tau = 1.18$ ps and $\tau' = 0$. The small number of illuminated fringes is responsible for the asymmetry in this diffraction pattern. As shown in Fig. 3(d), where $\tau' > \tau_c$, the effect of the prepulses relative delay is the same as for the CWE case, confirming the origin of this diffraction pattern. This demonstrates clearly that the plasma gratings survive during the interaction with the main pulse, despite its ultrahigh intensity. This makes them very suitable for diverse high field applications, such as the coupling of ultraintense laser fields with surface plasmons [4] or, as we now show, the implementation of original measurement schemes of laser-plasma interactions.

We have so far used the harmonics beam as a probe of the plasma gratings. Conversely, these gratings can act as a probe of the harmonic source, to determine its spatial properties in the target plane, which are relevant both for development of new light sources and understanding the underlying physics [23–25]. For harmonic orders $n \gg 1$, this field $h_n(x)$ is not readily accessible in usual experiments, due to the difficulty of making adequate optics for this spectral range. What can easily be measured is typically $|H_n(k)|^2$, with $H_n(k) = FT(h_n(x))$. the harmonic field after propagation up to a detector (far field). Determining $h_n(x)$ from this measurement is then essentially a phase-retrieval problem, as it requires the knowledge of the phase of $H_n(k)$, to perform an inverse Fourier transform.

Diffracting this source on a grating of suitable periodicity provides a simple solution to this standard problem: by inducing a modulation of known periodicity on the harmonic source, the grating can be used as a "spatial ruler" and release the indeterminacy associated with intensity measurements in the far field. We assume that the grating acts as a small perturbation on the HHG process: then, the *n*th harmonic field in the target plane in the presence of the grating, $h_n^g(x)$, can be expressed as $h_n^g(x) = h_n(x)g(x)$, where the function q(x) describes the periodic amplitude and phase modulation induced by the grating. The diffraction pattern of the harmonic beam in the far field is then given by $S_n(k) = |FT(h_n^g(x))|^2 = |H_n(k) * G(k)|^2$, i.e., it is the convolution of the unperturbed harmonic beam in the far field, $H_n(k)$, and of the Fourier transform G(k) of g(x), which essentially consist of a few Bragg peaks spaced by $2\pi/\lambda_a$ (Fig. 4).

The effect of the grating is, thus, to generate spatially shifted replicas of $H_n(k)$ on the detector (Fig. 4). Two distinct regimes can then be identified, depending whether the spacing between these replicas is larger [Figs. 4(a) and 4 (b)] or smaller than the width of the unperturbed harmonic beam $H_n(k)$ [Figs. 4(c)-4(d) and 4(e)-4(f)]. In the first, most common case, these replicas are well separated, and no additional information on $H_n(k)$ is obtained from the diffraction pattern. In the second case, in contrast, the spatially sheared replicas of $H_n(k)$ overlap and interfere, and the resulting interference pattern is determined by the phase of $H_n(k)$. In this regime, a measurement of this diffraction pattern thus provides information on the spatial phase of $H_n(k)$, that is otherwise missing to determine $h_n(x)$. This is the basic idea that led to the invention of the well-known technique of ptychography [26]. Plasma gratings are ideal to implement this method, since they can be tuned in both periodicity and depth to fulfill the conditions on which it relies.

The experimental data of Fig. 3 are precisely taken in this regime of overlapping replicas: in the case of CWE, this is due to the large divergence of the unperturbed harmonic beam resulting from the strong intensity dependence of the harmonic phase [as in Fig. 4(c)] [23], while in the case of ROM, this is because of the low number of fringes $N \approx 2$ contained in the main focal spot [as in Fig. 4(e)]. To extract the information from these measurements, we calculate the diffraction pattern of the harmonic beam by using the



FIG. 4 (color online). Different regimes of diffraction from a grating. Panels (a)–(c)–(e) show different unperturbed source $[h_n(x)]$ amplitude (shaded red) and phase (blue) profiles, all modulated by the same sinusoidal grating (shaded gray). Panels (b)– (d)– (f) show the multiple replicas of the unperturbed beam $|H_n(k)|^2$ induced by the grating (dashed red) in the far field, which combination produce the total diffraction pattern (blue). In (a)–(b), the spacing between these replicas is larger than the divergence of the unperturbed beam, so that they do not overlap. In contrast, in (c)–(d) and (e)–(f), the replicas overlap and interfere, producing a pattern that depends on the spatial phase of $H_n(k)$.

previous formulas, assuming for $h_n(x)$ a Gaussian amplitude profile, with a source size w_n , and a parabolic phase profile $\Phi_n(x) = \alpha_n x^2$. We then use least square fitting method between this calculated pattern and the experimental data to determine the actual values of w_n and α_n .

The results of this fitting procedure in the CWE and ROM regimes are displayed in Figs. 3(i) and 3(ii), showing a remarkable agreement. Defining w_0 as the size of the focal spot of the main laser pulse, this leads to a source size of $w_{12} = (1 \pm 0.15)w_0$ for the 12th CWE harmonic, consistent with the low nonlinearity of CWE [2], and $w_{12} =$ $(0.5 \pm 0.07)w_0$ for the 12th ROM harmonic, in excellent agreement with the predictions of particle-in-cell simulations [24,25]. The retrieved values of w_n and α_n are fully consistent with the divergences of the harmonic beams that we measure in the absence of plasma grating, as demonstrated by the plots in Figs. 3(ii) and 3(iv).

In conclusion, we have introduced a new scheme to generate and control modulated structures at the surface of solid density plasmas, demonstrated experimentally the generation of transient plasma gratings using this scheme, and shown that these structures survive relativistic intensities. Diffraction patterns on harmonics produced from modulated plasma surfaces have been observed for the first time and exploited to perform the first determination of the harmonic source size in the target plane. In the future, more advanced measurement schemes can be implemented with plasma gratings, that would allow complete spatial characterisation of harmonic wave fields as well as their coherence properties, exploiting the latest developments in ptychographic algorithms [27].

More degrees of freedom can be easily introduced in this scheme, at the cost of only moderate additional complexity. The prepulse beam can, for instance, be frequency upconverted or focused with a shorter focal length optics, to achieve surface modulations with smaller spatial periods, potentially down to less than 1 μ m. More complex surface plasma structures (e.g., nonsinusoidal or two-dimensional) can be induced by using more than two interfering beamlets. This scheme thus offers a great flexibility in terms of plasma structuring, opening numerous new possibilities in ultrahigh intensity plasmonics.

Insightful discussions with R. Marjoribanks are gratefully acknowledged. The research leading to these results has received funding from "Conseil Général de l'Essonne" though the ASTRE2010 Grant, of the Région île de France through SESAME, of the Triangle de la physique through PLASMOPT2, of OSEO through SAPHIR, of the European Research Council (ERC Grant Agreement No. 240013). The research leading to these results has received funding from LASERLAB-EUROPE (Grant Agreement No. 284464, EC's Seventh Framework Programme). S. Monchocé and S. Kahaly contributed equally to this work.

*fabien.quere@cea.fr

- A. Macchi, M. Borghesi, and M. Passoni, Rev. Mod. Phys. 85, 751 (2013).
- [2] C. Thaury and F. Quéré, J. Phys. B 43, 213001 (2010).
- [3] S. Kahaly, S. Yadav, W. Wang, S. Sengupta, Z. Sheng, A. Das, P. Kaw, and G. Kumar, Phys. Rev. Lett. 101, 145001 (2008).
- [4] T. Ceccotti et al., Phys. Rev. Lett. 111, 185001 (2013).
- [5] G. Kulcsár, D. AlMawlawi, F. Budnik, P. Herman, M. Moskovits, L. Zhao, and R. Marjoribanks, Phys. Rev. Lett. 84, 5149 (2000).

- [6] D. Margarone et al., Phys. Rev. Lett. 109, 234801 (2012).
- [7] H. Schwoerer, S. Pfotenhauer, O. Jäckel, K.-U. Amthor, B. Liesfeld, W. Ziegler, R. Sauerbrey, K. W. D. Ledingham, and T. Esirkepov, Nature (London) 439, 445 (2006).
- [8] A. Zigler et al., Phys. Rev. Lett. 106, 134801 (2011).
- [9] A. P. Michael et al., Nat. Photonics 7, 796 (2013).
- [10] H. Habara, K. Ohta, K. A. Tanaka, G. R. Kumar, M. Krishnamurthy, S. Kahaly, S. Mondal, M. K. Bhuyan, R. Rajeev, and J. Zheng, Phys. Rev. Lett. **104**, 055001 (2010).
- [11] S. Kahaly, S. Mondal, G. R. Kumar, S. Sengupta, A. Das, and P. K. Kaw, Phys. Plasmas 16, 043114 (2009).
- [12] A. Lévy et al., Opt. Lett. 32, 310 (2007).
- [13] Y. B. Zeldovich and Y. P. Raizer, *Physics of Shock Waves* and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena (Dover Publications, New York, 2002).
- [14] J. P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, F. Falliès, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, A. D. Santos, G. Hamoniaux, and A. Antonetti, Opt. Lett. 19, 1997 (1994).
- [15] S. Kahaly, S. Monchocé, H. Vincenti, T. Dzelzainis, B. Dromey, M. Zepf, Ph. Martin, and F. Quéré, Phys. Rev. Lett. 110, 175001 (2013).
- [16] J. Colombier, P. Combis, A. Rosenfeld, I. Hertel, E. Audouard, and R. Stoian, Phys. Rev. B 74, 224106 (2006).
- [17] S. Mukamel, *Principles of Nonlinear Optical Spectroscopy* (Oxford University, New York, 1995).
- [18] Y. Mairesse, D. Zeidler, N. Dudovich, M. Spanner, J. Levesque, D. Villeneuve, and P. Corkum, Phys. Rev. Lett. 100, 143903 (2008).
- [19] See Supplementary Material http://link.aps.org/ supplemental/10.1103/PhysRevLett.112.145008 for movies showing the dynamics of the plasma grating simulated with ESTHER (Mov1), and the evolution of the experimental CWE diffraction pattern with τ' (Mov2).
- [20] F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, Ph. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert, Phys. Rev. Lett. 96, 125004 (2006).
- [21] B. Dromey et al., Nat. Phys. 2, 456 (2006).
- [22] A. Tarasevitch, K. Lobov, C. Wünsche, and D. von der Linde, Phys. Rev. Lett. 98, 103902 (2007).
- [23] F. Quéré, C. Thaury, J-P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot, and Ph. Martin, Phys. Rev. Lett. **100**, 095004 (2008).
- [24] M. Yeung, B. Dromey, D. Adams, S. Cousens, R. Hörlein, Y. Nomura, G. Tsakiris, and M. Zepf, Phys. Rev. Lett. 110, 165002 (2013).
- [25] H. Vincenti, S. Monchocé, S. Kahaly, G. Bonnaud, Ph. Martin, and F. Quéré, Nat. Commun. 5, 3403 (2014).
- [26] Von W. Hoppe, Acta Crystallogr. Sect. A A25, 495 (1969).
- [27] P. Thibault and A. Menzel, Nature (London) **494**, 68 (2013).



ARTICLE

Received 5 Jul 2013 | Accepted 7 Feb 2014 | Published 11 Mar 2014

DOI: 10.1038/ncomms4403

OPEN

Optical properties of relativistic plasma mirrors

H. Vincenti¹, S. Monchocé¹, S. Kahaly¹, G. Bonnaud^{1,2}, Ph. Martin¹ & F. Quéré¹

The advent of ultrahigh-power femtosecond lasers creates a need for an entirely new class of optical components based on plasmas. The most promising of these are known as plasma mirrors, formed when an intense femtosecond laser ionizes a solid surface. These mirrors specularly reflect the main part of a laser pulse and can be used as active optical elements to manipulate its temporal and spatial properties. Unfortunately, the considerable pressures exerted by the laser can deform the mirror surface, unfavourably affecting the reflected beam and complicating, or even preventing, the use of plasma mirrors at ultrahigh intensities. Here we derive a simple analytical model of the basic physics involved in laser-induced deformation of a plasma mirror. We validate this model numerically and experimentally, and use it to show how such deformation might be mitigated by appropriate control of the laser phase.

¹Lasers, Interactions and Dynamics Laboratory, Commissariat à l'Energie Atomique, Gif-Sur-Yvette 91191, France. ² INSTN, Commissariat à l'Energie Atomique, Gif-Sur-Yvette 91191, France. Correspondence and requests for materials should be addressed to H.V. (email: hvincenti.poghju@gmail.com) or to F.Q. (email: fabien.quere@cea.fr).

Itrafast laser technology now makes it possible to study the interaction of femtosecond laser pulses with plasmas in an extreme regime, where the motion of electrons in the laser field is relativistic¹. With several facilities aiming at peak powers beyond a PetaWatt, the study of new regimes of quantum electrodynamics should thus become feasible in the near future². The rapid growth in the number of high-power ultrashort lasers is also driven by the perspective of societal and scientific applications, such as compact laser-driven particle accelerators³⁻⁵.

These laser developments and their prospects call for new types of optical elements, which can be used to manipulate and tailor ultrahigh-power laser beams at very high intensities *I*, both in the temporal and spatial domains. As soon as $I \gtrsim 10^{13}$ W cm⁻², any medium gets strongly ionized by the field, making conventional optics inappropriate: in this regime, optical components will inevitably consist of a plasma medium. Easy to use and versatile, plasma mirrors (PMs) have a major role to play as high-intensity optical components⁶, and constitute simple testbeds for models of relativistic laser–plasma interaction.

PMs are already routinely used at moderate light intensities $(10^{14} - 10^{16} \text{ W cm}^{-2})$ as ultrafast optical switches, to enhance the temporal contrast of femtosecond lasers^{6–9}. As $I \gtrsim 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$, the nonlinear response of PMs to the laser field results in subcycle temporal modulations of the reflected field, associated to high-order harmonic generation (HHG) in its spectrum^{10,11}. These harmonics, generated through different mechanisms, are associated in the time domain to attosecond pulses^{12,13}. Beyond ~ $10^{18} \text{ W cm}^{-2}$, a key HHG mechanism is the relativistic oscillating mirror (ROM) where the laser-driven oscillation of the plasma surface induces a periodic Doppler effect on the reflected field^{11,14–17}, which can result in harmonic orders of several thousands¹⁸. PMs thus hold great promise for the generation of intense attosecond pulses of light^{19,20}, which would break down a major barrier in attosecond science, opening the way to potential ground-breaking applications such as pump-probe experiments on electron dynamics in matter²¹.

In addition to these temporal effects, the initial solid target on which the PM is created can be geometrically shaped to also spatially manipulate the reflected beam. At moderate intensities, elliptical PMs have thus recently allowed extremely tight focusing of a high-power laser beam²². In the relativistic regime, curved PMs have been proposed as a way to focus the very high generated harmonic orders to a spot size $w \ll \lambda_L$ (where λ_L is the laser wavelength)^{17,23}. Combined with their attosecond temporal bunching, this is a promising path to boost the peak intensity of ultrashort lasers, which might help approaching the Schwinger limit²⁴ $I_s = 2.25 \times 10^{29}$ W cm⁻², where the light field starts inducing electron-positron pair creation from vacuum^{25,26}.

In these high-intensity applications, the laser field exerts such a high pressure on the plasma (typically 5 Gbar for $I \approx 10^{19}$ W cm⁻²) that it induces a significant motion of the PM surface, even during a femtosecond laser pulse. Any spatial variation of the intensity on target, as generally occurs at or around focus, then leads to a deformation of the PM surface—typically a curvature—which can affect the spatial²⁷⁻²⁹ and spectral³⁰ properties of the reflected beam. Beyond its fundamental interest, understanding and controlling this intrinsic dynamics of PMs is crucial for any of the previous applications. In particular, it determines the divergence of attosecond beams produced from PMs, which is a key parameter for future experiments.

In this article, we elucidate the physics of the light-induced curvature of PMs, with an analytical model of the surface dynamics and its consequences on the reflected light. Despite its simplicity, it captures the essential aspects of this process, and disentangles the influences of electron and ion dynamics in the femtosecond regime. Owing to their small wavelengths, highorder harmonics generated on PM are strongly affected, and thus constitute sensitive probes of its curvature. We present some of the most exhaustive measurements of the ROM harmonic properties performed to date, which we use to validate this model experimentally. Controlling the spatial properties of these harmonics is crucial for future applications in attosecond science. We finally demonstrate that such a control can be achieved very simply by using the spatial phase of the driving laser.

Results

Model of laser-induced PM curvature. Properly describing the PM surface motion requires taking into account both the plasma electron and ion dynamics. The response time of electrons to the laser field is much smaller than the optical period, while ions react on a longer timescale because of their larger mass. Akin to the Born-Oppenheimer approximation in molecular physics, this makes it possible to model the system in the following three steps: (i) we first describe the quasi-instantaneous response of electrons to the laser field, considering a given ion background (Fig. 1a); (ii) we then calculate the slow ion motion, resulting from the combined actions of the laser field and of the charge separation fields it induces (Fig. 1b) and (iii) finally, the influence of the slow dynamics on the fast one is included to determine the surface motion over the entire laser pulse (Fig. 1c). The derivations of all formulas and their validation by particle-in-cell (PIC) simulations are provided in the online Supplementary Information.

Qualitatively, the plasma electrons respond to the laser field as a spring, being alternatively pushed inside, and pulled outside the ion background in each optical period¹⁷. When pulled outwards, they form relativistic electron jets (red arrow in Fig. 1a) that are responsible for the ROM attosecond pulse emission. When pushed inwards, a high-density spike is formed at the sharp surface of the electron distribution (white arrow in Fig. 1a), at a position $x_e(t)$ (Fig. 1e,f). A detailed analysis of PIC simulations (see Supplementary Note 1) shows that the position of the outgoing electron jet responsible for the emission of an attosecond pulse in each laser cycle is tied to the position of the high-density spike formed in this compression phase, and thus follows the same evolution as the laser intensity changes in time or space. We therefore concentrate on the value of $x_e(t)$, which can be easily determined by the balance between the pushing force exerted by the laser field, and the restoring force exerted by the ion background. In the relativistic regime, this balance leads to the following expression for the maximum inward excursion x_e of electrons in a given optical period:

$$x_{\rm e} = L \ln \left[1 + \frac{2\lambda_L a_L (1 + \sin \theta)}{2\pi L} \frac{n_{\rm c}}{n_0} \right] \tag{1}$$

where θ is the angle of incidence of the laser on the PM and n_c is the critical plasma density at the laser frequency. n_0 is the ion charge density at the ion-vacuum boundary (Fig. 1e,f), that is, the density from which the laser field starts pushing electrons inside the ion background. For this derivation, the ion density gradient at the PM surface has been assumed to be exponential beyond n_0 , with a scale length *L*, that is, $n(x) \propto \exp(x/L)$ for $n > n_0$ (Fig. 1e,f). *L* is a crucial parameter of the interaction, which in particular strongly affects the HHG efficiency^{11,31,32}. x_e increases for larger values of *L* in equation (1) because the laser field can more easily push electrons inside a smoother ion background.

The electron boundary displacement x_e also increases with $a_L = eA_L/m_ec = [I(W \text{ cm}^{-2})\lambda_L^2(\mu\text{m}^2)/1.37 \times 10^{18}]^{1/2}$, the amplitude of the normalized vector potential of the incident laser field: the higher this amplitude, the further electrons get



Figure 1 | Laser-induced curvature of a relativistic PM. (a) Spatial map of the plasma electron density $n_e(x,y)$ at the maximum of a laser pulse with a gaussian focus, from a 2D PIC simulation ($a_L = 8$, $L = \lambda_L/8$, $\theta = 45^\circ$) performed with fixed ions. (**b**) Same spatial map, now for the plasma ion density $n_i(x,y)$ (charge state of the ions Z = 1) at the maximum of the laser pulse, from a 2D PIC simulation with moving ions in the same interaction conditions as in **a**. (**c**) Temporal evolution of the electron density $n_e(x,t)$ at the centre y = 0 of the laser focal spot, with moving ions. A logarithmic scale is used in all cases, and densities are expressed in units of n_c . In **a** and **b**, the dashed curves show the predictions of the model (equation (1) in **a**, equation (2) in **b**). The results of the total model for $x_T(t) = x_i(t) + x_e(t)$, which combines electron and ion dynamics, are shown by the black dots in **c**. In **d**, this model is used to displacement x_e^F when no ion motion occurs, calculated using equation (1) with a fixed value $n_0 = n_c \cos^2 \theta$, (ii) the ion surface displacement x_i , calculated using Equation (2), and (iii) the total displacement $x_T = x_i + x_e$, where $x_e \neq x_e^F$ is now the electron surface displacement calculated when ion motion is taken into account, by using $n_0 = n(x_i)$ in equation (1). Panels **e** and **f** sketch the electron (red) and ion (blue) density profiles, at two different times of the laser pulse, and define the different quantities used in the model. All surface displacements are calculated with respect to the reference position $x_e = x_i = 0$, where the laser pulse, at low intensity. For an angle of incidence θ , this is the point where $n = n_c \cos^2 \theta$, which also corresponds to the value of n_0 in equation (1) at the beginning of the interaction.

pushed inside the target. For a focused laser pulse, the field envelop is a function of both time and space, $a_L(y,t)$. The spatial envelop results in an overall spatial curvature—a denting—of the plasma electron density surface. This laser-cycle-averaged curvature is clearly observed on a spatial map of electron density at t_0 corresponding to the laser pulse maximum (Fig. 1a). It is very well reproduced by the curve $x_e[a_L(y,t_0)]$ deduced from equation (1) and can be attributed to the spatially inhomogenous ponderomotive force exerted by the laser field.

As for the temporal evolution $x_e(t)$ associated to the laser pulse temporal envelop, the prediction of equation (1) is shown as a red dashed line in Fig. 1d, in the case of a fixed ion background: electrons move back to their initial position in the falling edge of the laser pulse, owing to their immediate response to the field $a_L(t)$ (equation (1)) and the restoring force from the ion background. However, this temporal evolution will be affected when ion motion is taken into account, because n_0 then becomes a slow function of time in equation (1). The second step of our model aims at determining $n_0(t)$. The charge separation induced by the laser field between the electron and ion populations leads to a quasi-electrostatic field in the plasma, which peaks around x_e and tends to accelerate the ion population located around this position³³. This acceleration expels the ions from this location, which results in an erosion of the ion density gradient in time. The position x_i of the ion-vacuum boundary thus drifts inwards during the laser pulse, and the density $n_0 = n(x_i)$ increases in time (Fig. 1e,f).

The so-called hole-boring velocity $v_p = dx_i/dt$ of the ion surface can be calculated by writing a momentum flux balance^{34–38}. The reflection of the laser beam corresponds to a change in momentum of the field, which is compensated by an opposite change in momentum of the plasma particles. To determine how the light momentum is shared between electrons and ions, we use the same approach as developed independently in ref. 39, that is, we also write the energy flux balance, assuming that the absorbed laser intensity (1 - R)I (where *R* is the plasma reflection coefficient for the laser) is entirely carried away by electrons.
The combination of these two balances leads to:

$$x_{i}(t) = 2L \ln \left(1 + \frac{\Pi_{0}}{2L\cos\theta} \int_{-\infty}^{t} a_{L}(t') dt' \right)$$
(2)

with $\Pi_0 = (RZm_e \cos \theta/2AM_p)^{1/2}$, where *Z* and *A* are, respectively, the average charge state and mass number of the ions, M_p is the proton mass and m_e is the electron mass. The prediction of this equation for $x_i(y,t_0)$ at the laser pulse maximum t_0 is shown as a blue line in Fig. 1b, and fits well the surface of the superimposed ion density map obtained from a PIC simulation with mobile ions. The derivation of equation (2) shows that this curvature of the ion surface is induced by the spatially inhomogenous laser radiation pressure on the PM.

The temporal evolution $x_i(t)$ is represented in Fig. 1d by the blue line. As opposed to x_e , the ion boundary displacement x_i does not return to its initial value at the end of the pulse. This is because x_i depends on the time integral of a_L (see equation (2) where a_L corresponds to the envelop of the laser field), indicating that it is the cumulated action of the laser field over time that is responsible for the ion dynamics. This results in a progressive change in the ion profile, which in turn affects the electrons dynamics. This coupling is included in our model in a very simple way.

Owing to the erosion of the ion density profile, the laser field now starts pushing the electrons inside the ion background directly from $x_i(t)$, instead of $x_i = 0$ initially. Consequently, the position of the electron boundary $x_T(t)$ when ion motion is taken into account is now given by $x_T(t) = x_i(t) + x_e(t)$ (see Fig. 1f). In this equation, the value of $x_e(t)$ is also affected by ion motion because the restoring force induced by the ions initially located between x = 0 and $x_i(t)$ is suppressed. As explained before, this second effect is accounted for simply by using $n_0 = n(x_i(t))$ in equation (1).

The temporal evolution of the electron boundary resulting from these coupled dynamics is illustrated in Fig. 1c. An excellent agreement is obtained between the PIC simulation and the prediction of the full model (black dots). An extensive parametric study of the surface dynamics, using hundreds of PIC simulations, confirms the excellent accuracy ($\leq 5\%$) of this model over a broad range of physical conditions (see Supplementary Note 2).

Figure 1d uses our model to highlight the relative contributions of ion and electron dynamics in the case of the simulation of Fig. 1c. Despite the brevity of the pulse, the influence of ion motion on the position x_T of the electron boundary becomes significant in the second part of the pulse (beyond $t \approx 10 T_L$). Its main effect is to prevent the electron boundary from moving back to its initial position in the falling edge of the laser pulse, which has observable consequences in experiments, as we will see later. As expected intuitively, the influence of ion dynamics on the total PM surface motion is predicted to become more and more significant as the laser pulse duration increases (Fig. 2).

The laser-induced denting of the PM leads to a curvature of the wavefronts of the reflected light beam, which tends to focus this beam—including the harmonics generated on reflection—in front of the surface^{27,29}. This is clearly observed in Fig. 3 on the attosecond pulse train generated by the ROM mechanism, which is focused at a distance z_n from the surface, with a magnification ratio $\gamma_n = w_{\rm f}/w_n < 1$. This focusing of the beam naturally tends to increase its divergence. Assuming a Gaussian intensity profile of width w_n for the $n^{\rm th}$ harmonic in the source plane, this divergence is given by (see Supplementary Note 3):

$$\theta_n = \theta_n^0 \sqrt{1 + \Psi_n^2} \tag{3}$$

 Ψ_n is the PM dimensionless focusing parameter for the n^{th} harmonic, which characterizes the effect of the PM curvature on



Figure 2 | Influence of ion motion on the plasma surface displacement. This colour map shows the relative change in the plasma electron boundary displacement at the peak t_0 of the pulse, $\delta x/x_T = (x_T - x_e^{Pl})/x_T$, when ion motion is taken into account $(x_T = x_i + x_e(n_0(t)))$ and when ions are considered as fixed $(x_e^{Pl}$, equation (1) with a constant n_0), as predicted by our model. This is plotted as a function of a_L and pulse duration for a typical value of the density gradient $(L = \lambda_L/10)$. The white dot corresponds to the interaction conditions of the experiment performed with UHI100.

all spatial properties of the reflected beam:

$$\Psi_n = \frac{2\pi}{\cos\theta} \left(\frac{w_n}{w_L}\right)^2 \frac{\delta_{\rm T}}{\lambda_n} \tag{4}$$

with $\lambda_n = \lambda_L/n$ the harmonic wavelength. Here δ_T is defined as $\delta_T = x_T(y=0) - x_T(y=\sqrt{2}w_L) = w_L^2/2f_p$ (Fig. 3, left), that is, it is the difference between the surface position at the centre of the focal spot y=0, and its position at $y = \sqrt{2}w_L$ (with w_L the half spatial width at 1/e of the laser field amplitude). In equation (3), $\theta_n^0 = \lambda_n/\pi w_n$ is the divergence that would be obtained in the absence of surface curvature, that is, imposed by diffraction from the source plane. It can be expressed as a function of laser divergence $\theta_n^0 = \theta_L w_L/w_n n$.

In equation (3), each term of $1 + \Psi_n^2$ corresponds to a different physical limit. If $\Psi_n \ll 1$ (for example, $\delta_T \ll \lambda_n$ or $w_n \ll w_L$), surface curvature has a negligible effect on the spatial properties, which are determined only by the beam diffraction from the source plane. On the opposite, if $\Psi_n \gg 1$, the focusing induced by the PM imposes the beam divergence, leading to $\theta_n \to \Psi_n \theta_n^0 \gg \theta_n^0$, Ψ_n is in principle a function of time. However, our model shows that after a fast transient of less than five laser periods only, δ_T and hence Ψ_n weakly vary in time (black dots in Fig. 1d). As a first approximation, we therefore neglect its temporal variation in our study of the spatial properties of the reflected beam.

This model for the reflected beam properties has been successfully compared with a series of two-dimensional (2D) PIC simulations (see Supplementary Note 4). In the interaction conditions corresponding to the present state of the art of femtosecond lasers ($a_L \leq 10$, $L \leq \lambda_L/5$), it predicts $\delta_T \approx 0.1\lambda_L$ (80 nm for $\lambda_L = 800$ nm) and $\Psi_n \approx 0.6n$ typically. The effect of surface curvature thus already becomes significant for harmonic orders $n \gtrsim 3$. We now turn to an experimental investigation of the spatial properties of such harmonics, to validate the model, and show what insight it provides on HHG, and more generally on the physics of PMs.

Experimental study. The experiment was performed on the UHI100 laser of IRAMIS (CEA, France), which delivers 25 fs pulses with a peak power of up to 100 TW and an ultrahigh temporal contrast (see Methods section). This beam was focused

in *p*-polarization to a spot size of 4 µm on a silica target, reaching an estimated peak intensity of 6.7×10^{19} W cm⁻² ($a_L = 5.6$), thus producing a relativistic PM. The density gradient scale length *L* at the PM surface was varied by using a small controlled prepulse, intense enough to create a plasma ($I = 10^{16}$ W cm⁻²) at an adjustable delay τ ($0 \le \tau \le 2$ ps) before the main pulse. The value of L was determined experimentally using time-resolved interferometry^{32,40}.

Under these conditions, high-order harmonics are produced in the reflected beam by the ROM mechanism^{6,18}, and two diagnostics were used to characterize the spatial properties of the resulting harmonic beam in the far field (see Fig. 4a,b and



Figure 3 | **Focusing of ROM harmonics by a curved PM in a 2D PIC simulation.** The laser-induced curvature of the PM surface tends to focus the reflected light in front of the PM. Higher harmonic orders are more affected by this curvature owing to their smaller wavelengths. The right panel shows a spatial map of the plasma electron density n_e at the maximum of the laser pulse in dark purple scale. A zoom on the surface is shown in the left panel, which also defines the denting parameter δ_T . The multicolour map shows the intensity I(y',t) of the train of attosecond pulses obtained by filtering ROM harmonics from order 4–8 at three different times during its propagation away from the PM. Focusing of this train at a distance $z_n \approx f_p \cos \theta$ from the PM surface is observed, where f_p is the focal length of the curved PM (here $z_n \approx 25 \lambda_L$. that is, 20 µm for $\lambda_L = 800$ nm).



Figure 4 | Measurements of ROM harmonic beams divergence. (**a**,**b**) Typical raw images obtained with the UHI100 laser. See Methods section for a description of the diagnostic instruments. Image **a** shows the angularly resolved harmonic spectrum measured in the far field, for a peak intensity of $I=3.5 \times 10^{19}$ W cm⁻² ($a_L=5.6$) and an initial density gradient $L = \lambda_L/20$. The apparent decrease of the harmonic divergence with order is mainly an effect of the 2D colour map. Image **b** displays the full far-field spatial profile of the beam corresponding to the superposition of harmonics 20 to ~35, measured in similar interaction conditions. The shadow of the supporting mesh of the thin Si filter used to select a group of harmonics is clearly observed. From these images, quantitative information on the harmonics spatial properties can be extracted. Panel **c** thus shows the spectrally resolved divergence (in units of laser divergence θ_L with $\theta_L = 200$ mrad in our experiment) as a function of harmonic order, for two values of the density gradient *L*. The plot in **d** is the divergence of the 25th harmonic as a function of *L*. In both panels, the full lines show the results of the model. The divergence $\theta_n^0 = (w_L/w_n)(\theta_L/n)$ that would be imposed by diffraction from the same source size in the absence of the laser-induced PM curvature is shown as the dashed lines in **c** and **d**. A fully consistent set of parameters was used for all curves. All experimental data points correspond to a single laser shot. The two shots displayed in panel **c** correspond to the data points for which the absolute value of the divergence is in best agreement with the model in panel **d**.

Methods section). The spectrally resolved divergence, extracted from images such as shown in Fig. 4a, is presented in Fig. 4c,d as a function of harmonic order and of the density gradient L at the PM surface. The full lines show the results of the model. The only two unknowns of the model are the plasma reflectivity R (used only to calculate the ionic contribution to the surface curvature) and the ratio of harmonic and laser source size w_n/w_L (used to deduce the harmonic divergence from the surface curvature). These are, however, not used as free parameters to fit the data, but are directly extracted from 2D PIC simulations performed in the physical conditions of the experiment (see Methods section). This provides $R \approx 0.7$ and $w_n/w_L \approx 0.5$ for the 25th harmonic. Parametric studies (see Supplementary Note 3) show that these values hardly change over a broad range of interaction conditions $(a_I \text{ and } L)$. In addition, we note that R hardly influences the results, since it only affects ion motion and appears in a square root in Equation (2). These curves are in remarkable agreement with the measurements, thus validating the model and showing it can be used to gain insight on the physics involved in this experiment. Note that this agreement was obtained without introducing any additional 'intrinsic phase' φ , such as the one described by an der Brügge and Pukhov³⁰. Our model actually suggests that this phase is simply given by $\varphi = 2\pi x_e/\lambda_L$ where x_e is the electron denting provided by Equation (1), and is thus implicitly included in our analysis. This expression exactly predicts the scaling of φ obtained in ref. 30 for normal incidence, fixed ions, and a step-like plasma surface in the limit of ultra-relativistic intensities.

Comparing the measured divergences with those that would be obtained by diffraction from a flat PM for the same source size (black dashed lines in Fig. 4c,d) shows that the harmonic divergence is close to this limit when *L* is small, but is then very significantly increased by the PM curvature, here by a factor of up to 3, for the typical gradients that optimize the ROM conversion efficiency ($L \approx 0.05-0.1\lambda_L$)^{11,31,32}. This analysis provides a clear indication of the focusing of the harmonics in front of the PM because of its surface curvature. The measurements of Fig. 4d show that this focusing increases with the gradient scale length *L*, as expected from the model, since a longer gradient leads to a softer restoring force from the ion background, and hence to a larger surface denting $\delta_{\rm T}$.

The laser pulse duration used in this experiment is so short that ion motion has little influence on the PM curvature, and hence on the harmonic divergence (white dot on Fig. 2). According to Fig. 1d, it however significantly changes the temporal dynamics of the surface in the falling edge of the pulse. We now demonstrate that this can lead to observable effects in the experiment by considering the spectral properties of the harmonics.

After a fast initial transient where the denting $\delta_{\rm T}$ strongly varies, the temporal evolution of the field envelop $a_L(t)$ only leads to a weak residual drift of PM surface during the pulse (black dots in Fig. 1d), with typical velocities of the order of 0.01*c* according to our model. This motion appears as a slow drift on the femtosecond timescale that combines with the fast relativistic oscillation of the plasma surface at the laser frequency responsible for HHG (see Fig. 1c). This results in a Doppler shift on the reflected light, which scales linearly with harmonic order *n*, and thus gets measurable for large enough values of *n*.

Since the ion dynamics affects the temporal evolution of the PM surface, it can potentially influence this Doppler effect. This is confirmed by a comparison of PIC simulations performed with fixed (Fig. 5a) and moving ions (Fig. 5b). In the case of fixed ions, the plasma surface moves inwards in the rising part of the pulse, leading to a Doppler redshift, and then moves outwards in the falling part, leading to a Doppler blueshift. If strong enough, this effect leads to harmonics with a double peak structure⁴¹, clearly

observed in Fig. 5a. In contrast, when ion motion is allowed in the simulation, the irreversible erosion of the ion density gradient prevents the electron boundary from moving back to its initial position when the laser intensity decreases. This naturally suppresses the Doppler blueshift, and only a Doppler redshift is observed, in the interaction conditions considered here.

Turning back to the experiment, Fig. 6a shows a zoom on the spatio-spectral distribution of the 23rd harmonic, measured in a typical shot. It is very similar to the PIC results of Fig. 5b, and only a redshift is observed: according to the previous discussion, this is a signature of ion motion. Figure 6b shows that the Doppler shift at the centre of the beam increases with the density gradient scale length L, which is consistent with the stronger curvature of the PM for larger L. This dependence is quantitatively reproduced by our model, when both ion and electron dynamics are taken into account using the same parameters as in Fig. 4. Thus, although ion dynamics does not affect the spatial properties of harmonics in our experimental conditions, it has a clear signature in the spectral domain, which validates the ionic part of our model.

Discussion

We have presented a simple analytical model for the spatial properties of light beams reflected by relativistic PMs, in excellent agreement with both PIC simulations and experimental results. It provides insight into the respective roles of ion and electron dynamics, and into the spatial and spectral properties of harmonics generated in the reflected beam. Combined with this model, these harmonics now constitute a direct and powerful diagnostic of the femtosecond motion of the PM surface, with spatial resolution within the laser focal spot (Fig. 5c). Measurements schemes such as photonic streaking⁴² will potentially also provide temporal resolution within the laser pulse envelop.

This model will be instrumental in designing future applications of PMs, in particular for attosecond science. It can for instance be used to determine what laser pulse duration is required to generate isolated ROM attosecond pulses using the lighthouse effect^{43,44}. In this perspective, as well as in most applications where the reflected beam is manipulated or used in the far field, being able to control and minimize the attosecond beam divergence is essential²⁹, which requires mitigating the effect of the laser-induced PM curvature. Figure 7 provides the first experimental demonstration in the relativistic regime of a very simple scheme for such a control⁴⁵; by using a driving laser beam with a slightly diverging wavefront on target, the effect of the PM curvature on the attosecond beam can be compensated, leading to a divergence close to the one that would be obtained for a flat mirror, reduced by a factor of more than 2 compared with the one obtained at best focus.

In other applications, PM will prove useful to focus the reflected beam and boost the peak intensity of the fundamental laser frequency²² or its harmonics^{17,23}. This can be achieved using either curved substrates or the natural light-induced PM curvature described in this work, which typically leads to magnification factors $\gamma_n = w_t/w_n \approx 0.1$ for $n \ge 10$ in the interaction regime considered here. In either case, the understanding of the laser-induced PM surface dynamics provided by this work will be essential.

Methods

Simulations. We used the codes EUTERPE for one-dimensional (1D) PIC simulations, and CALDER for 2D PIC simulations, to confront our model to simulations. In all simulations, we considered a *p*-polarized laser pulse of amplitude a_L impinging with an angle θ on a plasma density profile that has a maximum density of $200n_c$, and an initial exponential density gradient of scale length *L*. The laser field is injected in the simulation box through boundary conditions. In 1D, we account for the oblique incidence by performing all the calculations in the boosted



Figure 5 | Doppler shift of high-order harmonics. The two images show the angularly resolved spectra of the 9th harmonic, obtained from 2D PIC simulations for $a_L = 8$ and $L = \lambda/8$, considering either fixed (**a**) or mobile (**b**) ions. The curves in the upper panels show line outs of the spectra at the centre of these beams ($\theta_y = 0$). In these interaction conditions, the PM curvature is strong enough to lead to a geometrical mapping of the PM surface onto the propagation angle (sketch in panel **c**). The centre of the focal spot where the surface recession velocity is the largest and the Doppler redshift the strongest is mapped to the centre of the far-field beam. This explains the shape of the distributions in **a** and **b**, where the Doppler shifts are always larger at the centre of the beams.



Figure 6 | Measured Doppler shift of an individual harmonic. The image in **a** shows the measured angularly resolved spectrum of the 23rd harmonic, for $a_L = 5.6$ and $L = 0.044 \lambda_L$. It is a zoom on a measured image such as displayed in Fig. 4a. An angle-dependent Doppler redshift is observed, similar to the PIC simulation with moving ions of Fig. 5b, owing to the position-to-angle mapping resulting from the PM curvature. Panel **b** shows the measured Doppler shift at the centre of the beam as a function of the density gradient scale length *L*. The full line shows the results of the model. All experimental data points correspond to a single laser shot.

frame. The size of the simulation box is $30 \lambda_L$, with a mesh size of $6.7 \times 10^{-4} \lambda_L$, the time step is $4 \times 10^{-4} T_L$, and we used 500 particles per cell. A typical calculation requires 24 h on 1 central processing unit (CPU). In 2D, the simulations parameters are the following: a simulation box of $30 \lambda_L \times 40 \lambda_L$, with a mesh size of $2.8 \times 10^{-3} \lambda_L$, a time step $2 \times 10^{-3} T_L$ and 20 macroparticles per cell. A typical calculation requires 24 h on 512 CPUs. All simulation results presented in the main text are from 2D simulations with CALDER. The results of 1D simulations with EUTERPE are presented in the online Supplementary Material (Supplementary Note 2).

Experiment. The experiments are performed using the UHI100 Ti:sapphire laser that delivers 25 fs full width at half maximum pulses centred at 800 nm. The ps pulse contrast is improved to more than 10^{12} using an antireflection-coated double PM set-up. The high contrast *p*-polarized laser beam is then aberration corrected using an adaptive optical system and focused on an optically flat target at an incidence angle of 55° using an off-axis parabola. A small fraction of the main beam is picked up for the prepulse and is focused to generate a preplasma. The prepulse focal spot is five times larger than that of the main beam allowing homogenous density gradient all across the HHG source. The controlled delay



Figure 7 | Control of the harmonic divergence from a relativistic PM.

The blue dots in panel **a** show the divergence of the 25th harmonic measured in our experiment as a function of the distance *z* between the laser best focus and the target surface. The full line shows the prediction of the model. The two images in **b** and **c** show the 2D spatial profiles of the harmonic beam measured at the two focusing positions indicated by the arrows, sketched in **d** and **e**. A slightly curved, diverging laser wavefront (z < 0; **d**) compensates the effect of the laser-induced PM curvature, thus reducing the harmonic beam divergence to a value that is imposed by diffraction from the source plane. All experimental data points correspond to a single laser shot.

between the prepulse and the pump beam determines the initial gradient scale length *L*, which is measured using time-resolved interferometry. The harmonic beam produced by the main laser pulse on the gradient-controlled PM is spectrally dispersed and angularly resolved using a 1,200 lines per mm varied line spacing Extreme Ultraviolet grating (Shimadzu 30-002), and is detected on a 69 × 88 mm² rectangular microchannel plate (MCP; Fig. 4a). For the 2D spatial diagnostics (Fig. 4b), the reflected beam is spectrally filtered by the combination of two silica plates used at grazing incidence and anti-reflection coated at the laser wavelength, and a high pass 250 nm thick Si filter, and then detected using another MCP. The MCPs are coupled to phosphor screens imaged on 12 bit charge-coupled device cameras.

Fit of experimental data with the model. We extracted the harmonic source size w_n from the results of 2D PIC simulations performed in the physical conditions of the experiment and obtained $w_n/w_L = 0.72 - 9.10^{-3}$. *n* for orders *n* between 5 and 25. For the theoretical curves shown in Fig. 4, w_n/w_L thus varies from 0.59 for n = 15 to 0.5 for n = 25. However, the curves are hardly changed if a constant source size of $w_n/w_L = 0.5$ is used for this entire spectral range. The same values of the source size ratio were used for all gradient scale lengths *L*, as suggested by PIC simulations.

NATURE COMMUNICATIONS | DOI: 10.1038/ncomms4403

References

- Mourou, G. A., Tajima, T. & Bulanov, S. V. Optics in the relativistic regime. *Rev. Mod. Phys.* 78, 309–371 (2006).
- Di Piazza, A., Mueller, C., Hatsagortsyan, K. Z. & Keitel, C. H. Extremely highintensity laser interactions with fundamental quantum systems. *Rev. Mod. Phys.* 84, 1177–1228 (2012).
- Daido, H., Nishiuchi, M. & Pirozhkov, A. S. Review of laser-driven ion sources and their applications. *Rep. Prog. Phys.* 75, 056401 (2012).
- Malka, V. *et al.* Principles and applications of compact laser-plasma accelerators. *Nat. Phys.* 4, 447–453 (2008).
- Fuchs, J. et al. Laser-driven proton scaling laws and new paths towards energy increase. Nat. Phys. 2, 48–54 (2006).
- 6. Thaury, C. et al. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. Nat. Phys. 3, 424-429 (2007).
- Doumy, G. *et al.* Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses. *Phys. Rev. E* 69, 026402 (2004).
- Dromey, B., Kar, S., Zepf, M. & Foster, P. The plasma mirror: a subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Rev. Sci. Instrum.* 75, 645–649 (2004).
- 9. Monot, P. et al. High-order harmonic generation by nonlinear reflection of an intense high-contrast laser pulse on a plasma. Opt.s Lett. 29, 893–895 (2004).
- Teubner, U. & Gibbon, P. High-order harmonics from laser-irradiated plasma surfaces. *Rev. Mod. Phys.* 81, 445–479 (2009).
- Thaury, C. & Quéré, F. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors: basic mechanisms. J. Phys. B 43, 213001 (2010).
- Plaja, L., Roso, L., Rzazewski, K. & Lewenstein, M. Generation of attosecond pulse trains during the reflection of a very intense laser on a solid surface. J. Opt. Soc. Am. B 15, 1904–1911 (1998).
- Nomura, Y. et al. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laserproduced plasmas. Nat. Phys. 5, 124–128 (2009).
- Bulanov, S. V., Naumova, N. M. & Pegoraro, F. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. *Phys. Plasmas* 1, 745 (1994).
- Lichters, R., Meyer-ter-Vehn, J. & Pukhov, A. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Phys. Plasmas* 3, 3425 (1996).
- Baeva, T., Gordienko, S. & Pukhov, A. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma. *Phys. Rev. E* 74, 046404 (2006).
- Gonoskov, A. A., Korzhimanov, A. V., Kim, A. V., Marklund, M. & Sergeev, A. M. Ultrarelativistic nanoplasmonics as a route towards extremeintensity attosecond pulses. *Phys. Rev. E* 84, 046403 (2011).
- Dromey, B. et al. High harmonic generation in the relativistic limit. Nat. Phys. 2, 456–459 (2006).
- Tsakiris, G. D., Eidmann, K., Meyer-ter-Vehn, J. & Krausz, F. Route to intense single attosecond pulses. *New J. Phys.* 8, 19 (2006).
- Sansone, G., Poletto, L. & Nisoli, M. High-energy attosecond light sources. *Nat. Photon.* 5, 655–663 (2011).
- 21. Krausz, F. & Ivanov, M. Attosecond physics. *Rev. Mod. Phys.* 81, 163–234 (2009).
- Nakatsutsumi, M. et al. Fast focusing of short-pulse lasers by innovative plasma optics toward extreme intensity. Opt. Lett. 35, 2314–2316 (2010).
- Gordienko, S., Pukhov, A., Shorokhov, O. & Baeva, T. Coherent focusing of high harmonics: a new way towards the extreme intensities. *Phys. Rev. Lett.* 94, 103903 (2005).
- 24. Schwinger, J. On gauge invariance and vacuum polarization. *Phys. Rev.* 82, 664–679 (1951).
- Bell, A. R. & Kirk, J. G. Possibility of prolific pair production with high-power lasers. *Phys. Rev. Lett.* 101, 200403 (2008).
- Bulanov, S. S., Esirkepov, T. Z., Thomas, A. G. R., Koga, J. K. & Bulanov, S. V. Schwinger limit attainability with extreme power lasers. *Phys. Rev. Lett.* 105, 220407 (2010).
- 27. Dromey, B. et al. Diffraction-limited performance and focusing of high harmonics from relativistic plasmas. Nat. Phys. 5, 146–152 (2009).
- Yeung, M. et al. Beaming of high-order harmonics generated from laser-plasma interactions. Phys. Rev. Lett. 110, 165002 (2013).
- Hoerlein, R. et al. Controlling the high harmonic divergence from solid targets: a route toward coherent harmonic focusing. Eur. Phys. J. D 55, 475–481 (2009).
- an der Brügge, D. & Pukhov, A. Propagation of relativistic surface harmonics radiation in free space. *Phys. Plasmas* 14, 093104 (2007).
- 31. Rödel, C. et al. Harmonic generation from relativistic plasma surfaces in ultrasteep plasma density gradients. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 125002 (2012).
- Kahaly, S. et al. Direct observation of density-gradient effects in harmonic generation from plasma mirrors. Phys. Rev. Lett. 110, 175001 (2013).
- Macchi, A., Cattani, F., Liseykina, T. V. & Cornolti, F. Laser acceleration of ion bunches at the front surface of overdense plasmas. *Phys. Rev. Lett.* 94, 165003 (2005).
- Denavit, J. Absorption of high-intensity subpicosecond lasers on solid density targets. *Phys. Rev. Lett.* 69, 3052–3055 (1992).

NATURE COMMUNICATIONS | 5:3403 | DOI: 10.1038/ncomms4403 | www.nature.com/naturecommunications

- Wilks, S. C., Kruer, W. L., Tabak, M. & Langdon, A. B. Absorption of ultraintense laser pulses. *Phys. Rev. Lett.* 69, 1383–1386 (1992).
- Naumova, N. et al. Hole boring in a DT pellet and fast-ion ignition with ultraintense laser pulses. Phys. Rev. Lett. 102, 025002 (2009).
- Schlegel, T. *et al.* Relativistic laser piston model: Ponderomotive ion acceleration in dense plasmas using ultraintense laser pulses. *Phys. Plasmas* 16, 083103 (2009).
- Robinson, A. P. L. *et al.* Relativistically correct hole-boring and ion acceleration by circularly polarized laser pulses. *Plasma Phys. Control. Fusion* 51, 024004 (2009).
- 39. Ping, Y. et al. Dynamics of relativistic laser-plasma interaction on solid targets. *Phys. Rev. Lett.* **109**, 145006 (2012).
- 40. Geindre, J. P. *et al.* Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma. *Opt. Lett.* **19**, 1997–1999 (1994).
- 41. Behmke, M. et al. Controlling the spacing of attosecond pulse trains from relativistic surface plasmas. Phys. Rev. Lett. **106**, 185002 (2011).
- 42. Kim, K. T. et al. Photonic streaking of attosecond pulse trains. Nat. Photon. 7, 651–656 (2013).
- Vincenti, H. & Quéré, F. Attosecond lighthouses: how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.* 108, 113904 (2012).
- 44. Wheeler, J. et al. Attosecond lighthouses from plasma mirrors. Nat. Photon. 6, 829–833 (2012).
- 45. Quéré, F. *et al.* Phase properties of laser high-order harmonics generated on plasma mirrors. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 095004 (2008).

Acknowledgements

We are grateful to E. Lefebvre from CEA/DAM/DPTA for providing us the CALDER code, C. Thaury for fruitful discussions in the early stage of this work and P. Oliveira, F. Réau and O. Tcherbakoff for operating, maintaining and optimizing the UHI100 laser source used for the experiments. The research leading to these results has received funding from 'Conseil Général de l'Essonne' through the ASTRE2010 grant, of the Région île de France through SESAME, of the Triangle de la physique through

PLASMOPT2, of OSEO through SAPHIR, of the European Research Council (ERC Grant Agreement number 240013) and of Laserlab-ALADIN (Grant number 228334). The numerical simulations were performed by using HPC resources from GENCI-CCRT/CINES (Grant numbers 2012-056057 and 2013-056057).

Author contributions

H.V. and F.Q. developed the theoretical model. H.V. performed the PIC simulations with some help from G.B.; F.Q., S.K. and S.M. envisioned and designed the experiment; S.M. and S.K. built the experiment and performed the measurements with some help from F.Q.; S.K. led the FDI measurements, with the help of S.M. and did the corresponding data analysis. S.K. and S.M. had comparable overall contributions on the experimental part. S.M. analysed the harmonic data and compared the results with the model, with the help of H.V. All authors participated in the discussions and contributed to the preparation of the manuscript. F.Q. provided overall guidance.

Additional information

Supplementary Information accompanies this paper at http://www.nature.com/ naturecommunications

Competing financial interests: The authors declare no competing financial interests.

Reprints and permission information is available online at http://npg.nature.com/ reprintsandpermissions/

How to cite this article: Vincenti, H. *et al.* Optical properties of relativistic plasma mirrors. *Nat. Commun.* 5:3403 doi: 10.1038/ncomms4403 (2014).

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-NoDerivs 3.0 Unported License. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in the credit line; if the material is not included under the Creative Commons license, users will need to obtain permission from the license holder to reproduce the material. To view a copy of this license, visit http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/3.0/

Direct Observation of Density-Gradient Effects in Harmonic Generation from Plasma Mirrors

S. Kahaly,¹ S. Monchocé,¹ H. Vincenti,¹ T. Dzelzainis,² B. Dromey,² M. Zepf,^{2,3} Ph. Martin,¹ and F. Quéré^{1,*}

¹Service des Photons, Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, DSM/IRAMIS,

CEN Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France

²Centre for Plasma Physics, School of Mathematics and Physics, Queen's University Belfast, Belfast BT7 1NN, United Kingdom

³*Helmholtz Institut Jena, 07743 Jena, Germany* (Received 7 December 2012; published 22 April 2013)

(Received 7 December 2012, published 22 April 2013)

High-order harmonics and attosecond pulses of light can be generated when ultraintense, ultrashort laser pulses reflect off a solid-density plasma with a sharp vacuum interface, i.e., a plasma mirror. We demonstrate experimentally the key influence of the steepness of the plasma-vacuum interface on the interaction, by measuring the spectral and spatial properties of harmonics generated on a plasma mirror whose initial density gradient scale length L is continuously varied. Time-resolved interferometry is used to separately measure this scale length.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.175001

PACS numbers: 52.38.-r, 42.65.Ky, 52.27.Ny, 52.65.Rr

Laser technology now makes it possible to generate femtosecond (fs) laser pulses with peak intensities such that the motion of electrons in the laser field is relativistic. Plasma mirrors (PMs), created when such ultraintense pulses are focused on a solid target, can be considered as test beds of this extreme regime of laser-plasma interaction [1,2]. They specularly reflect the incident laser light, and their nonlinear response to the intense field can lead to high-order harmonics generation (HHG) of the incident laser frequency in this reflected beam [1,3]. This constitutes a fine *in situ* probe of the interaction to investigate the underlying physics [4–7]. In addition, it has long raised interest as a source of coherent short-wavelength radiation [1], revived recently by the prospect of producing intense attosecond pulses of light [8–11].

The recent improvements in the temporal contrast of ultraintense fs pulses have allowed significant progress in the understanding of HHG on plasma mirrors. In particular, two distinct generation mechanisms have been identified, in simulations as well as in experiments [3]. Both are associated with the energetic electron population that is coherently driven at the plasma surface by the laser field, predominantly by its *p*-polarized component. As these electrons are pulled out of the plasma by the laser, during a fraction of the laser optical cycle, they can induce a Doppler upshift on the reflected field, leading to the emission of high frequencies, temporally bunched in the form of an attosecond burst. When the laser field changes sign later in the optical cycle, these electrons get pushed back toward the target. A fraction of them form attosecond charge bunches as they penetrate the dense plasma, where they impulsively excite collective electron oscillations. In the inhomogeneous plasma formed by the density gradient at the plasma-vacuum interface, these high-frequency oscillations can emit light, again in the form of an attosecond burst, through linear mode conversion. These two different elementary processes, respectively called relativistic oscillating mirror (ROM) [2,12] and coherent wake emission (CWE) [13], repeat every laser cycle resulting in the emission of attosecond pulse trains, associated with spectra of harmonics of the laser frequency.

The relative weight of these two mechanisms in the total harmonic signal is most often considered to be entirely determined by the laser intensity. Since ROM is based on a Doppler effect, it becomes efficient only when the velocity of outgoing electrons approaches c [2,12]. This typically requires a normalized vector potential $a_0 = eA_L/mc \ge 1$ for the laser field (A_L amplitude of laser vector potential, e and m electron charge and mass), which corresponds to intensities exceeding $\sim 2 \times 10^{18}$ W/cm² for an 800 nm laser field. In contrast, electron energy plays little role in CWE, which has thus been observed experimentally for intensities as low as a few 10^{15} W/cm² [13].

A less evident, but equally crucial physical parameter is the steepness of the density gradient at the plasma-vacuum interface, precisely where HHG occurs. While there are some experimental indications [14–17], clear evidence of the influence of this parameter has so far relied on simulations [3,16]. In this Letter, we present a direct, quantitative experimental investigation of the influence of the interface steepness on HHG from PMs, and demonstrate the dramatic and contrasted dependences of the HHG mechanisms on this parameter.

The experiment is carried out using the 100 terawatt UHI100 Ti:sapphire laser (25 fs pulses, central wavelength $\lambda = 800$ nm) at IRAMIS (Commissariat à l'Energie Atomique). The contrast of the beam, initially better than 10^8 at times $t \ge 10$ ps before the main pulse, is raised by 4 orders of magnitude by using a double plasma mirror setup [18]. A weak prepulse is then introduced at an adjustable delay τ before the main pulse, to ionize the target and initiate controlled plasma expansion, leading to an exponential [19] density gradient at the plasma-vacuum interface, $n \propto \exp(x/L)$. When the main pulse arrives, it thus interacts

0031-9007/13/110(17)/175001(5)

with a target with an initial density gradient, whose scale length L can be continuously tuned by changing τ . Both pulses are p polarized and incident at 55° on the target.

A simple and stable scheme is used to introduce this controlled prepulse (Fig. 1). A 1/2 inch diameter mirror (M_1) is placed on an edge of the main laser beam (3 inches diameter), at a variable distance δ in front of a mirror (M_2) used for the transport of the main beam [Fig. 1(a)]. The small fraction of the main beam intercepted by M_1 produces the required prepulse. M_1 and M_2 are made exactly parallel, so that the main and prepulse beams are focused at the same position on the target by an off-axis parabola (f = 200 mm). Due to its smaller diameter, the prepulse beam produces a larger focal spot than the main beam [Fig. 1(b)]: the density gradient that it creates can thus be considered as homogeneous all across the HHG source. Its peak intensity is $\sim 10^{16}$ W/cm², which is high enough to strongly ionize the surface of the silica target used in the experiment.

To be able to reach zero or even negative delays (i.e., no prepulse) between the two beams, the prepulse reflects off the metal-coated rear face of M_1 . As a result, it propagates twice through the d = 2 mm thick glass substrate of M_1 , accumulating a retardation of $\Delta \tau \propto 2d(1/v_g - 1/c)$ $(v_g \approx 2c/3$ group velocity in glass) with respect to the main pulse. Zero delay can then be obtained very easily when $\delta = d(c/v_g - 1) \approx d/2$. The front face of M_1 is antireflection coated, and slightly tilted with respect to the back face, to avoid the creation of a parasite prepulse.



FIG. 1 (color online). (a) Experimental scheme for density gradient control. Two mirrors M_1 and M_2 are used to separate the prepulse and main pulse in time, before the focusing parabola. Side and front views of the full laser beam are shown in red. (b) Resulting intensity distributions of the prepulse beam (gray scale) and main beam (bright central spot) at the focus. (c) Temporal evolution of the spatially resolved phase shift induced on the FDI probe pulse by the plasma expansion triggered by the prepulse. (d) Temporal evolution of the density gradient scale length L at the center of the prepulse beam, as deduced from the measured phase shifts.

The initial density gradient L is determined as a function of delay τ , by measuring the phase shift it induces on a probe beam, using time-resolved frequency-domain interferometry (FDI) [20] in the spatial-shearing configuration. For these measurements, the scheme of Fig. 1(a) is again used, but now most of the main beam is blocked, and a weak probe $(I \approx 10^9 \text{ W/cm}^2)$ is obtained by selecting a very small fraction of this beam with a 200 μ m diaphragm. Figure 1(c) shows the spatially resolved phase shift, $\Delta \Phi(r, \tau)$ induced by the expanding plasma on the FDI probe, where r is the transverse distance from the center of the laser focus (r = 0) at the target plane. This gives the displacement of the critical density surface with respect to the initial target plane at each delay τ , from which the gradient scale length L can be deduced. We observe that Lvaries linearly with τ [Fig. 1(d)], and the slope of the linear fit gives an ion sound speed of $C_s = dL/d\tau = 37$ nm/ps at the center of the prepulse beam. This value is used to make the correspondence between the delay and the gradient scale length for the rest of the experiment.

The harmonic beam produced by the main laser pulse on the gradient-controlled plasma mirror is spectrally dispersed using a 1200 lines/mm varied line spacing concave extreme ultraviolet grating (Shimadzu 30-002). This provides angularly resolved harmonic spectra $S(\omega, \theta)$, which are detected using a large 69 mm × 88 mm rectangular microchannel plate coupled to a phosphor screen, imaged on a CCD camera. This large detector made it possible to measure the full angular profile of the harmonic beam (detection window of \pm 70 mrad).

The first series of measurements were carried out slightly below the relativistic interaction limit, by placing a 1 inch aperture in the main beam, leading to a 15.8 μ m focal spot on the target and a peak intensity of $\sim 1 \times 10^{18}$ W/cm² ($a_0 \approx 0.7$). The prepulse beam passed through a separate hole in the aperture and was thus unaffected. In this regime, the contribution of CWE to the HHG signal is generally assumed to dominate over ROM. In contrast, we find that this balance strongly depends on the density gradient: the harmonic signal can be totally dominated either by CWE, for the shortest scale lengths ($L/\lambda \leq 0.02$), or by ROM, for larger scale lengths ($L/\lambda \geq 0.04$), as observed numerically in Ref. [16].

There are two main signatures that enable one to distinguish the CWE and ROM contributions to the HHG signal. The first one is in the spectral domain: CWE can only generate harmonics up to the maximum plasma frequency ω_p^{max} of the plasma mirror ($\approx 20\omega_L$ for fully ionized silica at the initial solid density), while no such limitation applies to ROM. As a result, any harmonic frequency above ω_p^{max} can only be attributed to ROM. The second signature is in the spatial domain: CWE produces harmonics with a larger divergence than those originating from ROM. This is because the CWE harmonic phase has a stronger dependence on laser intensity than ROM one [21]. Combined with the nonuniform spatial intensity profile of the laser at focus, this leads to a spatially curved harmonic wavefront in the source plane, which considerably increases the CWE beam divergence compared to ROM.

We now examine the experimental results, with these two signatures in mind. Figures 2(a)-2(c) show the angularly resolved harmonic spectra $S(\omega, \theta)$ measured for three different density gradients. The complete evolution of $S(\omega, \theta)$ with scale length L is presented in Ref. [22]. As L is increased, there is a complete transition from CWE to ROM, for all observed harmonic orders, which is revealed by (i) a dramatic reduction of the harmonic beam divergence for all measured orders and (ii) a simultaneous change in the highest observed harmonic frequency, which moves from ω_p^{max} initially, to slightly higher values ($\approx 25\omega_L$). When both mechanisms coexist, their contributions to the harmonic signal can interfere [3]. This can explain the clear interference fringes that are observed experimentally in the transition regime [see zoom in Fig. 2(e)].

Since the measured signal $S(\omega, \theta)$ only corresponds to a 1D lineout out of a 2D spatial distribution, the total spatially integrated emission from the plasma mirror, $S'(\omega)$, is given by $S'(\omega) \propto \int S(\theta, \omega)\theta d\theta$, where θ is the propagation angle. Figures 2(d)-2(f) show the evolution of $S'(\omega)$ for three harmonic orders, below and above $\omega_p^{max} = 20\omega_L$. Above ω_p^{max} [Fig. 2(f)], the harmonic signal only exceeds the detection threshold for $L/\lambda \ge 0.02$, implying a better efficiency of ROM for density gradients that are not too sharp. In contrast, below ω_p^{max} [Fig. 2(d)], $S'(\omega)$ first strongly drops up to $L/\lambda \approx 0.03$, and then keeps decreasing but at a much slower pace. According to our previous



FIG. 2 (color online). Effect of the initial gradient scale length L at moderate laser intensity ($a_0 \approx 0.7$). Upper row: measured angularly resolved harmonic spectra for three different values of L. The lower graphs show the evolution of the total emission $S'(\omega)$ for three different harmonic orders, below (d) and above (f) the maximum plasma frequency ω_p^{max} of fully ionized silica ($\approx 20\omega_L$). Each point corresponds to a single laser shot. Inset (e) shows a zoom on fringes observed in (b), right at the transition between CWE and ROM (see arrows), attributed to interferences between the harmonic signals associated with these two mechanisms.

discussion, the first part of this curve (gray area) is dominated by CWE, whose efficiency decreases with *L*. In the second part (white area), the signal is due to ROM, whose efficiency only slowly decreases for $L/\lambda \ge 0.02$, as observed in Fig. 2(f). Thus we see that in this intensity regime, much higher overall efficiencies can be achieved with CWE than with ROM using very short gradients, at the expense of a larger beam divergence.

This interpretation of the experimental observations is clearly supported by 2D particle-in-cell (PIC) simulations carried out under comparable physical conditions. Figure 3 presents angularly resolved harmonic spectra $S(\omega, \theta)$ obtained from such PIC simulations. In these simulations, the harmonic signal can be unambiguously associated predominantly with CWE for short gradients [Fig. 3(a)], and with ROM for long gradients [Fig. 3(b)], through a spatiotemporal analysis of the reflected field and plasma density, as was demonstrated in Ref. [13]. Like in the experiment, this transition results in a dramatic reduction of the harmonic beam divergence with increasing *L*.

We now move to a much higher laser intensity range, which is of great interest for the generation of intense attosecond pulses [23,24]. To this end, we focus the entire main beam onto a spot size of 4.7 μ m (FWHM) using an adaptive optics system, reaching a peak intensity of $\approx 5 \times 10^{19}$ W/cm² ($a_0 \approx 4.9$). We observe that longer gradients lead to a significant increase of ROM signal and to an extension of the spectral cutoff. This is illustrated in Fig. 4, where the angularly resolved harmonic spectra $S(\omega, \theta)$ measured without (a) and with (b) prepulse are compared. Figure 4(c) shows the variation of the spatially integrated signal $S'(\omega)$ with L, for three harmonic orders above ω_p^{max} .

A striking feature is that even at this intensity, CWE has a comparable efficiency to ROM for very sharp gradients [Fig. 4(a)]. As the density gradient is increased [Fig. 4(b)], the CWE signal drops, whereas ROM signal quickly rises, up to $L/\lambda \approx 0.06$, and then grows at a slower pace [Fig. 4(c)]. As a result, ROM contribution totally dominates that of CWE over the whole observed spectral range as soon as $L/\lambda \approx 0.025$. The relative gain in signal is stronger for the two highest orders of Fig. 4(c),



FIG. 3 (color online). Angularly resolved harmonic spectra obtained from 2D PIC simulations (CALDER code) for two different values of *L*, at the onset of the relativistic interaction regime ($a_0 = 0.9$). All physical parameters are comparable to those of the experiment of Fig. 2 except for the maximum plasma density, which is $n_e^{\text{max}} = 200n_c$ (n_c critical plasma density for the laser), leading to a maximum plasma frequency (and hence a CWE cutoff) of $\sqrt{n_e^{\text{max}}/n_c} \times \omega_L \approx 14\omega_L$.



FIG. 4 (color online). Effect of the initial gradient scale length L at maximum laser intensity ($I = 5 \times 10^{19}$ W/cm², $a_0 \approx 4.9$). (a),(b) Measured angularly resolved harmonic spectra for two different values of L/λ , 0 in (a) (no prepulse) and 0.06 in (b). Graph (c) shows the evolution of the total emission $S'(\omega)$ for three different harmonic orders above the 20th harmonic. In (d), the divergence of the 24th harmonic is plotted as a function of L. For comparison, this graph also shows the divergences of two harmonics (gray region) in the moderate intensity regime of Fig. 2, for gradients where ROM dominates the signal. Each point corresponds to a single laser shot.

indicating that the extent of the harmonic spectrum increases with L.

These studies in two different intensity regimes highlight the contrasted dependences of CWE and ROM with respect to the gradient scale length. This result is consistent with 1D PIC simulations [3,16]. For CWE, these simulations predict first a fast rise in signal, from a steplike interface, where no mode conversion and hence no CWE can occur, to very sharp density gradients where the efficiency is optimum, followed by a slower decrease [3]. In our experiment, we only observe the second part of this curve. This is because, even in the absence of the prepulse $(\tau \leq 0)$, plasma expansion during the main pulse leads to a finite density gradient δL at the peak of this pulse, which prevents us from reaching sharper gradients during the interaction. This also explains why the CWE signal does not vanish for L = 0 in Figs. 2(a) and 4(a): L is the initial density gradient at the onset of the interaction, not the actual one at the peak of the main pulse. The high contrast of the main pulse ensures that this affects our measurements only for the smallest values of L. This is why the optimum of ROM harmonics appears at similar scale lengths for both low and high peak intensity cases.

Qualitatively, the decrease of the CWE signal with L observed in our experiment is due to two reasons. First, the trajectory crossings of laser-accelerated electrons occur efficiently only over a small range of distances from the critical density surface (Fig. 9 in Ref. [3]), which is almost

independent of the gradient scale length. As *L* increases, electron bunching thus progressively occurs in regions of the plasma of lower and lower densities, contributing to the reduction of the signal in the highest CWE harmonic orders (corresponding to high plasma densities). Second, the conversion of plasma waves into light is also optimal for rather short gradients $(L/\lambda \approx 0.02)$ [3].

In contrast, in the case of ROM, 1D PIC simulations predict an increase of efficiency for increasing *L*, followed by a progressive saturation. Qualitatively, this is because longer gradients are observed to lead to higher Lorentz factors for outgoing electrons, and hence the generation of higher harmonic orders. This can be attributed to the smaller restoring force exerted by the ion background against the laser field for softer gradients. This behavior is broadly consistent with our experimental findings. However, in both intensity regimes, we eventually observe a sharp drop of the harmonic signal for $L/\lambda \ge 0.1$ [Figs. 2(f) and 4(c)]. Such a decrease does not occur in 1D simulations [3,17], but we do observe it in 2D simulations. Further investigations with 2D codes will be required to explain this behavior.

While the dependences of the efficiencies with L are similar in the moderate and high intensity regimes, a very distinct difference is the evolution of ROM beam divergence with L, as illustrated in Fig. 4(d). At $a_0 \simeq 0.7$, ROM harmonic divergence hardly changes with L (gray area), whereas at $a_0 \simeq 4.9$, it grows approximately linearly with L (white area). Previous studies [25] have shown that at high intensities $(a_0 \sim 3)$, this divergence is mostly determined by the curvature of the plasma mirror surface, induced by the spatially inhomogenous radiation pressure exerted by the laser field as it reflects. This imposes a curvature on the wave fronts of ROM harmonics, which increases their divergence, akin to the intensity-dependent phase of the CWE harmonics. As in the CWE case, it can in principle be compensated by slightly defocusing the laser on the target [21]. This effect is intuitively expected to get stronger for longer gradients (i.e., softer plasmas), as confirmed by PIC simulations [25]. Our observation of ROM divergence growth with L in the high intensity case is thus consistent with a predominant influence of the plasma mirror curvature. In the lower intensity case, this influence becomes negligible, and the divergence is mostly determined by diffraction. The slight decrease in divergence with L might then be attributed to an increase in the harmonic source size.

In the geometrical limit where the mirror curvature totally dominates diffraction, the measured divergence $\Delta\theta$ can actually be exploited to estimate the denting of the plasma. In this limit, $\Delta\theta = w_q/f$, where w_q is the source diameter of harmonic q, and f the focal length of the curved plasma mirror. A simple geometrical calculation shows that $f = \cos\theta w_L^2/2\zeta$, where $w_L = 4.7 \ \mu$ m is the laser focal spot diameter, θ the incidence angle, and ζ the denting of the plasma surface. Using a ratio of $w_q = 0.5w_L$ for q = 24



Investigation of amplitude spatio-temporal couplings at the focus of a 100 TW-25 fs laser

S. Kahaly,^{a),b)} S. Monchocé,^{a)} V. Gallet, O. Gobert, F. Réau, O. Tcherbakoff, P. D'Oliveira, Ph. Martin, and F. Quéré^{c)}

Commissariat à l'Energie Atomique, Service des Photons, Atomes et Molécules, DSM/IRAMIS, CEN Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France

(Received 21 October 2013; accepted 7 January 2014; published online 4 February 2014)

We address the on target focal spot spatio-temporal features of an ultrashort, 100 TW class laser chain by using spectrally resolved imaging diagnostics. The observed spatio-spectral images, which we call rotating imaging spectrographs, are obtained single shot to reveal the essential information about the spatio-temporal couplings. We observe nontrivial effects in the focal plane due to compressor defects which significantly affect the maximum on target intensity. This diagnostic might become an essential tool for improving compressor alignment in many upcoming multi-petawatt short pulse laser facilities. © 2014 AIP Publishing LLC. [http://dx.doi.org/10.1063/1.4863828]

The advent of chirped pulse amplified high power, ultrashort lasers has opened up multitude of pioneering research domains. The extreme intensity attainable at their focus can instantly ionise matter and form plasma. Such short lived plasmas can give rise to coherent XUV (Extreme Ultraviolet)^{1–3} and incoherent^{4,5} X-ray emissions, accelerate charged^{6,7} as well as neutral⁸ particle bunches reaching very high energies and house huge ultrashort magnetic pulses.^{9–11} They also constitute test beds for exotic studies on coherent structures,¹² relativistic optics,^{1,13} and hot electron transport.^{14,15}

In all these applications, one of the most important issues is to obtain the maximal intensity possible at focus. This is usually obtained by independent control in spatial and temporal domains: minimising the focal spot size by aberration correction using adaptive optics and independent optimisation of pulse duration by adjusting grating translation in the compressor just before the experiment. However, the local temporal or spectral characteristics of the ultrashort pulse might be spatially dependent, i.e., the spatial and temporal properties might be interlinked¹⁶ leading to dramatic effects at focus. This might arise from unwanted compressor misalignment or defects having detrimental effects in limiting the peak intensity achievable at laser focus. But in controlled form, it can be extremely beneficial for attractive schemes of laser assisted particle acceleration¹⁷ or in new implementations of attoscience experiments like photonic streaking¹⁸ or attosecond light house.¹⁹

In spite of their significance, a direct, easy access to simple spatio-temporal couplings (STC)²⁰ and their control/optimisation has remained difficult. Several techniques have been developed in recent years for STC characterization: those that allow a complete field reconstruction like SEA TADPOLE, STRIPED FISH, 2D SPIDER, HAMSTER,^{21–24} or the ones that provide partial information like the folded Mach-Zehnder.²⁵ These methods are generally either based on interferometry between a reference pulse and a signal pulse or combines an acousto-optics module with a Hartmann-Shack wavefront sensor. They are usually demanding in terms of alignment procedure and have their own limitations. STC diagnostics are thus generally not employed in big laser facilities on a regular basis. In this letter, we implement the method of rotating imaging spectrograph (RIS)²⁶ to look at complex focal plane STC features of a 100 TW laser system. The RIS encodes in its structure information on STC at laser focal plane. Though this method is not sensitive to the phase of the pulse, it allows us to detect quickly the presence of certain types of spatio-temporal distortions in the laser beam.

The experimental setup of this technique is shown in Fig. 1. It is fairly simple using only a microscope objective and an imaging spectrometer (IS) coupled to a CCD camera. With this setup, one carries out measurements in the focal plane of the optics that focuses the ultrashort intense laser on target for real interaction. The laser focal spot is corrected for aberration using adaptive optics. The final focused laser beam is imaged using a microscope objective onto the entrance slit of an imaging spectrometer as depicted in Fig. 1. An



FIG. 1. Schematic of the experimental setup. The focused laser beam is imaged with an objective onto the entrance slit of the imaging spectrometer. The blue dashed and red lines present vertical and horizontal tag lines on the beam transverse profile at different locations 1, 2, and 3. In (a), a vertical (*y*) slice of the beam is the source of the spatially resolved spectrum on the CCD camera. In (b), a set of mirrors allow us turning the beam 90° letting an orthogonal section (*x*) of the beam through the spectrometer.

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP: 132 166 25 227 On: Thu, 11 Sep 2014 13:48:27

104.054103-1

^{a)}S. Kahaly and S. Monchocé contributed equally to this work.

^{b)}E-mail: subhendu.kahaly@cea.fr

^{c)}E-mail: fabien.quere@cea.fr

^{0003-6951/2014/104(5)/054103/4/\$30.00}

interchangeable mirror combination allows us to rotate the laser beam by 0° or 90° and to choose to align a vertical slice (Fig. 1(a)) or a horizontal one (Fig. 1(b)) with the entrance slit of the IS. The entrance slit selects one transverse dimension of the beam which is thus spectrally resolved by the IS and finally recorded on a camera. With this single-shot technique, the spectral intensity of the pulse is therefore measured along two orthogonal transverse dimensions in the focal plane. It is of course also possible to visualize the usual spectrally integrated focal spot in 2D just by rotating the grating of the imaging spectrometer in order to use it at 0th order.

In a high-power CPA (Chirped Pulse Amplification) femtosecond laser chain, one of the main issues is to set the compressor in order to optimally recompress the pulse after amplification. Typically, a laser compressor consists of two gratings and one roof-mirror such that the laser beam hits each grating twice. The misalignment of these gratings can induce STC,²⁶ for example, pulse front tilt in the collimated beam. At focus, pulse front tilt becomes spatial chirp.¹⁶ The latter occurs when the different frequencies constituting the laser pulse focus at different points in space. This is responsible for spatio-temporal broadening of the focused laser, leading to a reduction of the peak intensity for the same power delivered by the laser chain.

To apply RIS technique to this particular case, we slightly rotate horizontally one of the gratings in the compressor of our 100 TW UHI100 Ti:Sa laser (\sim 25 fs centered at 800 nm). This introduces spatial chirp in the laser beam at focus, which is clearly visible in the focal spot images presented in Figs. 2(a)–2(c). As we increase the rotation angle of

the grating, the spatial chirp increases. The different frequencies of the laser spectrum spread more and more spatially in the focal plane explaining the elongation of the focal spot along the horizontal direction (Figs. 2(b) and 2(c)). Now, we look at the spectra obtained along two orthogonal spatial axis: the horizontal axis x which is in the grating rotation plane and the vertical dimension y (Fig. 1). In Figs. 2(d)-2(f), we clearly see that the local spectrum at a particular x decreases with increasing grating rotation. As observed on the focal spot in Fig. 2(c), the whole spectrum is tilting along x in Fig. 2(f) and now we are able to quantify it. For example in Fig. 2(e), the spatial chirp $\Delta x/\Delta \lambda$ is $\sim -1.6 \times 10^2$, whereas in Fig. 2(f), it is $\sim -2.8 \times 10^2$. Here, we clearly see that the spatial chirp induced by this misalignment becomes stronger as the misalignment angle increases. The RIS obtained along horizontal direction starts rotating with increasing spatial chirp as depicted in Figs. 2(d)-2(f). We also verified that changing the direction of compressor grating rotation changes the sense of rotation of the RIS. The RIS in the vertical direction shows no such rotation (Figs. 2(g)-2(i)) validating the absence of spatial chirp in this case. On the other hand, the RIS in Figs. 2(g)-2(i) shows spectral narrowing with increasing grating rotation. We would like to comment here that the original focal spot of $\sim 5.6 \,\mu m$ (full width at half maxima) is magnified and imaged having a spot size of $\sim 905 \,\mu\text{m}$ at the entrance slit of the spectrometer which is opened to sample a slice of $\sim 90 \,\mu \text{m}$ width near the peak of the focal spot image. Since a spatial chirp along horizontal direction focuses the different available spectral components at different places horizontally in the focal plane of the laser, it depletes the available spectral



FIG. 2. Rotating imaging spectrograph. (a)–(c) Focal spot images with increasing compressor grating rotation. The resulting increase in spatial chirp at the laser focal plane elongates the focal spots. RIS for imaging along ((d)–(f)) the horizontal axis (x in Fig. 1(b)) and ((g)–(i)) the vertical axis (y in Fig. 1(a)) for three different rotations of one grating of the compressor. The spatial chirp induced by the compressor misalignment rotates one of the orthogonal RIS while leaving the other unaltered. In all the figures, the colour scale is linear and normalised to unity.

This article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP 132.166.25.227 On: Thu, 11 Sep 2014 13:48:27

content for the vertically sampled spectrograph. This results in spectral narrowing in spectrograph for y-direction in Fig. 2. Additionally, sampling only orthogonal slices of the beam may hide more complex 2-dimensionally interlinked spatial features.

Through this simple example, we have shown that the RIS method can be used as a powerful tool for proper alignment of a laser compressor as well as for measuring certain types of STCs. However, it is important to note here that we only access amplitude couplings at focus and not phase couplings using the technique of RIS. Thus, all the spatiotemporal distortions affecting the phase are not measured. For "complete" spatio-temporal characterization, one has to use more involved scanning techniques like SEA TADPOLE which needs multiple shots or single shot ones like STRIPED FISH which is difficult to implement for ultrashort pulses due to bandwidth constraints.²² While these methods reveal full spatio-temporal structure, they have higher degree of complexity in terms of alignment and data processing. RIS is comparatively much simpler but captures only amplitude dependent couplings in the focal plane.

There are advantages of working in the focal plane. As a matter of fact, pulse front tilt in the *X*-*t* domain becomes angular dispersion in the spectral $(X-\omega)$ domain. And since this spatio-temporal distortion is not visible on amplitude but on spectral phase, we could not have detected the presence of this distortion if we have made the choice to work with collimated beams. But in focal plane ($k-\omega$ domain), this STC (spatial chirp) translates to spectral amplitude variation imprinting its signature on the RIS. Thus, it is a very useful diagnostic to optimize wavefront rotation at focus, a very crucial parameter to generate isolated attosecond pulses through the attosecond light house effect.^{18,27} In fact this is what has been used in Ref. 19.

In the previous sections, we have seen that RIS works well for measuring spatio-temporal couplings like the linear spatial chirp. Looking more carefully at Fig. 2(d), one can notice the presence of a certain curvature in the intensity spectrum along the horizontal axis. This defect reveals the presence of a higher order spatial chirp. This leads to spectral holes clearly visible in the line out of Fig. 3(a). This effect is not present along the vertical axis (Fig. 3(b)). We would like to emphasise here that such complex couplings are not really expected and are difficult to detect in a high power laser chain. The ability to detect this in a simple way is a crucial advantage of the measurement scheme described here. In order to identify the element in the laser chain, responsible for this distortion, we by-passed, one by one, different elements of the laser chain (amplifiers, stretcher, compressor, etc.). Figs. 3(c) and 3(d) show the spectra along the vertical and the horizontal axes when the compressor is by-passed. These two spectra are similar, indicating clearly that the compressor of the laser chain is responsible for the curvature in the RIS along the horizontal axis. The origin of this curvature might be linked to an imperfection of an optical component on which the beam is spatially chirped (i.e., the second grating or the roof mirror) inside the compressor. This possibility was qualitatively tested using ray tracing simulations taking into account imperfections on the roof mirror. No measurements of the wavefront deformation due to the roof



FIG. 3. Identification of compressor defects. Spectral intensity along different axes (x and y) with ((a) and (b)) and without ((c) and (d)) the compressor. Blue solid curves represent corresponding lineouts and red dashed ones the integrated spectra. This shows that the curvature in the RIS in (a) originates in the laser compressor.

mirror or the second grating were available to be able to make a quantitative comparison. In Fig. 3, we also notice that, even if this distortion is induced by the compressor, this later also corrects the spatial chirp we can identify on both vertical and horizontal axes. This illustrates that the process of complete correction of the spatio-temporal couplings in a big laser chain is neither obvious nor easy since an element of the laser, as the compressor for instance, can both correct distortions induced by previous components of the laser chain and induce new distortions.

To get an intuitive feeling of the STC analysis and to illustrate potential influence of spatio-temporal distortions on the pulse duration, we can calculate the transform limited time duration at each position of the focal spot in Fig. 4(a). To go in the time domain, the 1D spectral amplitude measured with our technique is Fourier transformed along the spectral axis assuming flat phase. Fig. 4(a) shows the reconstructed temporal profile of the pulse of Fig. 3(a) under this assumption. The spatio-spectral curvature in the RIS along



FIG. 4. Temporal signature of residual STC. (a) Temporal intensity profile as a function of position *x* across the focal spot corresponding to the RIS displayed in Fig. 3(a). (b) Temporal intensity for the corresponding case with no STC. (c) Variation of time duration of the pulse $\tau(x)$ along *x* for (a) (red dashed line) and for (b) (blue line).

I his article is copyrighted as indicated in the article. Reuse of AIP content is subject to the terms at: http://scitation.aip.org/termsconditions. Downloaded to IP 132.166.25.227 On: Thu. 11 Sep 2014 13:48:27

the horizontal axis makes the pulse temporally asymmetrical about x = 0, i.e., the pulse duration becomes space dependent. For simple comparison, we include in Fig. 4(b) the time domain equivalent of an ideal pulse with the same spatially integrated spectral content as in Fig. 4(a) but without any STC. As evident from Fig. 4(b), the pulse duration is independent of x. Fig. 4(c) plots the full width at half maxima (FWHM) $\tau(x)$ of the pulse temporal profile as a function of x in the two above mentioned cases. Thus, we see that the duration in the focal around maximum intensity for the pulse with inherent STC (\sim 30 fs) is 1.25 times larger than the best possible (\sim 24 fs) case leading to a reduction in peak power by a factor of 1.25. The STC also affects the focal spot size as seen by comparing Fig. 4(a) with Fig. 4(b). This finally results in a peak intensity significantly (\sim 50%) less than the ideal case in absence of any STC. Thus, lack of knowledge of pulse characteristics at laser focus can lead to gross miscalculation for experimental parameters. The knowledge gained using RIS is thus extremely crucial from this perspective as well.

We have demonstrated the use of RIS to capture amplitude dependent STCs in femtosecond laser pulse at focus for a 100 TW laser system. We observe higher order nontrivial spatial chirp present in the focal plane reducing significantly the on target maximum achievable intensity. A knowledge of the phase part is in fact also necessary to really evaluate the consequences of these couplings, since these amplitude couplings are very probably also associated to phase couplings. This means that in the end, "complete" techniques will be needed, but the approach we propose here is interesting because of its simplicity, and it already provides valuable information. This single shot diagnostic is suitable for quick compressor alignment checks in multipetawatt scale short pulse laser facilities which are essentially limited by the repetition rate of the laser. RIS technique can also be used to set a laser compressor for controlling pulse front tilt, a very significant parameter for attosecond physics.

We gratefully acknowledge funding from the European Research Council (ERC Grant Agreement No. 240013).

¹B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakakis, S. Moustaizis, R. Kodama, M. Tampo, C. Stoeckl, R. Clarke, H. Habara, D. Neely, S. Karsch, and P. Norreys, Nat. Phys. 2, 456 (2006).

- ²F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, P. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert, Phys. Rev. Lett 96, 125004 (2006).
- ³S. Kahaly, S. Monchocé, H. Vincenti, T. Dzelzainis, B. Dromey, M. Zepf,
- P. Martin, and F. Quéré, Phys. Rev. Lett. 110, 175001 (2013).
- ⁴J. D. Kmetec, C. L. Gordon, J. J. Macklin, B. E. Lemoff, G. S. Brown, and S. E. Harris, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 1527 (1992).
- ⁵M. Anand, S. Kahaly, G. R. Kumar, M. Krishnamurthy, A. S. Sandhu, and P. Gibbon, Appl. Phys. Lett. **88**, 181111 (2006).
- ⁶V. Malka, J. Faure, Y. A. Gauduel, E. Lefebvre, A. Rousse, and K. T.
- Phuoc, Nature Phys. 4, 447 (2008).
- ⁷H. Daido, M. Nishiuchi, and A. S. Pirozhkov, Rep. Prog. Phys. **75**, 056401 (2012).
- ⁸R. Rajeev, T. M. Trivikram, K. P. M. Rishad, V. Narayanan, E. Krishnakumar, and M. Krishnamurthy, Nat. Phys. 9, 185 (2013).
- ⁹S. Kahaly, S. Mondal, G. R. Kumar, S. Sengupta, A. Das, and P. K. Kaw, Phys. Plasmas **16**, 043114 (2009).
- ¹⁰F. Sylla, A. Flacco, S. Kahaly, M. Veltcheva, A. Lifschitz, V. Malka, E. d'Humières, I. Andriyash, and V. Tikhonchuk, Phys. Rev. Lett. **110**, 085001 (2013).
- ¹¹M. C. Kaluza, H.-P. Schlenvoigt, S. P. D. Mangles, A. G. R. Thomas, A. E. Dangor, H. Schwoerer, W. B. Mori, Z. Najmudin, and K. M. Krushelnick, Phys. Rev. Lett. **105**, 115002 (2010).
- ¹²F. Sylla, A. Flacco, S. Kahaly, M. Veltcheva, A. Lifschitz, G. Sanchez-Arriaga, E. Lefebvre, and V. Malka, Phys. Rev. Lett. **108**, 115003 (2012).
- ¹³H. Vincenti, S. Monchocé, S. Kahaly, P. Martin, and F. Quéré, "Optical properties of relativistic plasma mirrors," e-print arXiv:1312.1908.
- ¹⁴M. A. Purvis, V. N. Shlyaptsev, R. Hollinger, C. Bargsten, A. Pukhov, A. Prieto, Y. Wang, B. M. Luther, L. Yin, S. Wang, and J. J. Rocca, Nat. Photonics 7, 796 (2013).
- ¹⁵H. Habara, K. Ohta, K. A. Tanaka, G. R. Kumar, M. Krishnamurthy, S. Kahaly, S. Mondal, M. K. Bhuyan, R. Rajeev, and J. Zheng, Phys. Rev. Lett. **104**, 055001 (2010).
- ¹⁶S. Akturk, X. Gu, P. Gabolde, and R. Trebino, Opt. Express 13, 8642 (2005).
- ¹⁷K. Zeil, J. Metzkes, T. Kluge, M. Bussmann, T. E. Cowan, S. D. Kraft, R. Sauerbrey, and U. Schramm, Nat. Commun. 3, 874 (2012).
- ¹⁸K. T. Kim, C. Zhang, T. Ruchon, J.-F. Hergott, T. Auguste, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and F. Quéré, Nat. Photonics 7, 651–656 (2013).
- ¹⁹J. Wheeler, A. Borot, S. Monchocé, H. Vincenti, A. Ricci, A. Malvache, R. Lopez-Martens, and F. Quéré, Nat. Photonics 6, 829 (2012).
- ²⁰S. Akturk, X. Gu, P. Bowlan, and R. Trebino, J. Opt. **12**, 093001 (2010).
- ²¹P. Bowlan, P. Gabolde, A. Shreenath, K. McGresham, R. Trebino, and S. Akturk, Opt. Express 14, 11892 (2006).
- ²²P. Gabolde and R. Trebino, J. Opt. Soc. Am. B 25, A25 (2008).
- ²³C. Dorrer, E. M. Kosic, and I. A. Walmsley, Opt. Lett. 27, 548 (2002).
- ²⁴S. L. Cousin, J. M. Bueno, N. Forget, D. R. Austin, and J. Biegert, Opt. Lett. **37**, 3291 (2012).
- ²⁵K. Varjú, A. P. Kovács, G. Kurdi, and K. Osvay, Appl. Phys. B 74, s259 (2002).
- ²⁶K. Osvay, A. P. Kovács, Z. Heiner, G. Kurdi, J. Klebniczki, and M. Csatári, IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron 10, 213 (2004).
- ²⁷H. Vincenti and F. Quéré, Phys. Rev. Lett. 108, 113904 (2012).

Attosecond lighthouses from plasma mirrors

Jonathan A. Wheeler^{1†}, Antonin Borot^{1†}, Sylvain Monchocé², Henri Vincenti², Aurélien Ricci^{1,3}, Arnaud Malvache¹, Rodrigo Lopez-Martens^{1*} and Fabien Quéré^{2*}

The nonlinear interaction of an intense femtosecond laser pulse with matter can lead to the emission of a train of sub-lasercycle—attosecond—bursts of short-wavelength radiation^{1,2}. Much effort has been devoted to producing isolated attosecond pulses, as these are better suited to real-time imaging of fundamental electronic processes³⁻⁶. Successful methods developed so far rely on confining the nonlinear interaction to a single sub-cycle event⁷⁻⁹. Here, we demonstrate for the first time a simpler and more universal approach to this problem¹⁰, applied to nonlinear laser-plasma interactions. By rotating the instantaneous wavefront direction of an intense few-cycle laser field^{11,12} as it interacts with a solid-density plasma, we separate the nonlinearly generated attosecond pulse train into multiple beams of isolated attosecond pulses propagating in different and controlled directions away from the plasma surface. This unique method produces a manifold of isolated attosecond pulses, ideally synchronized for initiating and probing ultrafast electron motion in matter.

All attosecond light sources developed so far rely on the sub-cycle modulation of intense infrared lightwaves induced through highly nonlinear interaction with matter. The sub-cycle modulation of near-infrared (NIR) light, for which the wave period $T_{\rm L}$ is of the order of a few femtoseconds, naturally leads to the generation of pulsed extreme ultraviolet (EUV) radiation of attosecond duration, once the low-frequency components of the modulated lightwave have been filtered out. The modulation process is periodically driven by the oscillating laser field and therefore produces trains of attosecond pulses with a periodicity of either $T_{\rm L}$ or $T_{\rm L}/2$, depending on the symmetry of the nonlinear interaction. To date, two such non-linear interaction schemes have been identified and experimentally demonstrated: electron–ion recollisions following the ionization of atoms or molecules by intense $(10^{14}-10^{15} \, {\rm W \, cm}^{-2})$ NIR light-waves¹³ and the reflection of ultra-intense ($\geq 10^{16} \, {\rm W \, cm}^{-2}$) laser pulses off solid density plasma surfaces called plasma mirrors¹⁴.

Isolating a single attosecond pulse from the generated pulse train can be achieved by limiting the nonlinear modulation process to either a single or a half cycle of the driving laser field^{7–9}. Such temporal gating techniques have been applied successfully to intense laser–atom interactions, resulting in EUV light sources that are currently the workhorses of attosecond science¹³. However, because these techniques exploit the specific nonlinear response of an atom to the amplitude or ellipticity of the laser field, they cannot easily be extended to any nonlinear laser–matter interaction scheme. In particular, this has curbed the advent of plasma mirrors as high-energy attosecond light sources for applications, despite theoretical predictions of such mirrors being capable of producing attosecond pulses with unprecedented high photon energies and flux when driven at relativistic light intensities¹⁵.

A key property of these attosecond pulse trains is that they are generated in a collimated and spatially coherent laser-like beam

(Fig. 1a), propagating along the normal to the laser wavefront direction at focus. The spatial dimension therefore constitutes an additional degree of freedom for producing isolated attosecond pulses through the spatial separation of the different pulses in the train as they diverge away from the nonlinear interaction area¹⁶. To this end, a simple and universal scheme has recently been proposed¹⁰: if the instantaneous laser wavefront direction at focus can be made to rotate in time during the pulse, a concept first explored theoretically by Akturk et al.11, then the successive attosecond pulses of the train will now be generated in slightly different directions (Fig. 1b) separated by an angle $\Delta\beta = v_r T_a$, where T_a is the time interval between successive pulses and $v_r = d\beta/dt$ is the wavefront rotation velocity. When this angle is larger than the divergence θ of the individual attosecond pulses, a collection of angularly separated beams fans out of the interaction area, each beam containing a single spatially isolated attosecond pulse. In this work, we present the first experimental demonstration of this 'attosecond lighthouse' effect, applied to the specific case of a plasma mirror driven nonlinearly by a waveform-controlled few-cycle laser field.

One of the major advantages of this scheme is that the control of wavefront rotation (WFR) at the focus of an ultrashort laser pulse is easy to implement¹⁷. The introduction of moderate angular spectral dispersion in the laser beam results in an elliptical spatial profile at focus, where the nonlinear interaction takes place. This elongation occurs because the different frequency components of the broadband laser pulse are sheared along the long axis (y) of this ellipse (Fig. 1c), leading to so-called spatial chirp, defined here as $d\omega/dy$, where $\omega(y)$ is the local central frequency of the laser field at position y across the focal spot. Expressed in the time-position domain, this means that the period of the laser field varies across the focal spot along the y-direction. As illustrated graphically in Fig. 1c, this naturally leads to a rotation of the field wavefronts during the laser pulse, that is, to WFR in time. The instantaneous direction of the wavefront is given by $\beta = k_{\perp}/k_0 = c/\omega_0 (\partial \varphi/\partial y)$, where $\varphi(t) = \omega(y)t$ is the temporal phase of the laser field at position y, and ω_0 is the average frequency of the laser field. This leads to $\beta(t) = (\partial \omega / \partial y)(ct/\omega_0)$, showing that in the presence of spatial chirp at the focus, the laser field wavefronts rotate in time with a velocity $v_r = (\partial \omega / \partial y)(c / \omega_0)$.

In our experiment (Fig. 2), waveform-controlled 7 fs, 800 nm wavelength laser pulses were focused at peak intensities just below 1×10^{18} W cm⁻² (ref. 18) onto a moving fused-silica optical glass target, at a repetition rate of 1 kHz. Temporal compression of the driving laser pulse at the target surface was finely adjusted using a pair of glass prisms placed in the beam before focusing (Fig. 2). Sliding one prism with respect to the other varied the glass thickness within the beam path and controlled the chromatic dispersion experienced by the broadband laser pulse. Usually, the outer faces of the prisms are kept parallel to one another, but in our experiment, we purposely tilted one of the prisms so as to introduce angular dispersion in the beam prior to focusing and hence induce WFR at the

¹Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-Paristech, École Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau, France, ²Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA, DSM/IRAMIS, CEN Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France, ³Laser Solutions Unit, Thales Optronique SA, 78990 Elancourt, France; ¹These authors contributed equally to this work. *e-mail: rodrigo.lopez-martens@ensta-paristech.fr; fabien.quere@cea.fr

LETTERS

NATURE PHOTONICS DOI: 10.1038/NPHOTON.2012.284



Figure 1 | Attosecond lighthouse principle. a, When an intense few-cycle laser pulse interacts nonlinearly with a plasma mirror, the sub-cycle modulation of the temporal laser wavefronts is associated with the generation of a train of attosecond light pulses, which all propagate in a collimated beam along the direction normal to the laser wavefronts at focus. **b**, When the laser wavefronts are made to rotate in time at focus (wavefront rotation), each attosecond pulse of the train is emitted in a slightly different direction. When the wavefront rotation angle is greater than the divergence of an individual attosecond pulse, this scheme produces a manifold of spatially isolated and temporally synchronized attosecond pulses¹⁰. **c**, Wavefront rotation can be induced by dispersing the different frequency components of the broadband laser pulse along one spatial dimension at focus. This dispersion can be envisioned in different ways: an elongation of the focus along the direction of dispersion, a tilted spatially resolved spectrum, or rotating wavefronts due to the spatial dependence of the laser optical period.

focus on target. The corresponding spatial chirp was diagnosed by imaging the laser focal spot (1.8 μ m full-width at half-maximum, FWHM) with large magnification onto the entrance slit of an optical spectrometer (Supplemental Section S1), yielding the local laser spectrum at focus along spatial coordinate *y*.

For every shot, the intense laser electric field ionizes the surface of the target, creating an over-dense plasma layer that reflects the incident laser light. Temporal distortion of the fundamental field induced during reflection on this plasma mirror leads to the generation of coherent sub-laser-cycle EUV light bursts. At the laser intensities used here, coherent wake emission $(CWE)^{19,20}$ is the dominating nonlinear mechanism behind this generation. Numerical simulations^{20,21} have shown that for each optical cycle of the laser field, electrons at the plasma surface are first ejected into vacuum and then driven back to the dense plasma. As they propagate in the plasma, these electrons form sub-laser-cycle bunches that trigger collective high-frequency electron oscillations in their wake, leading to the emission of EUV radiation. Nomura et al. experimentally demonstrated that the broad EUV spectrum, which cuts off at the plasma frequency (that is, around harmonic order 20 of the 800 nm driving laser wavelength for a glass target), is indeed associated with an attosecond pulse train in the time domain²². From simulations, it is known that the plasma dynamics leading to these attosecond bursts occurs during a small fraction of the laser cycle, and so their generation is largely unaffected by the introduction of WFR (Supplementary Section S3). It is only on the scale of the entire laser pulse that the effect of WFR becomes significant as the directionality of the EUV pulses rotates from one cycle to the next, enabling us to streak the pulse train into spatially separated beams.

Two diagnostic tools are used to characterize the EUV radiation produced in our experiment. The first is a microchannel plate



Figure 2 | Schematic of the experiment. A waveform-controlled few-cycle NIR laser pulse is tightly focused onto a rotating optically polished glass surface at a peak intensity of several 10^{17} W cm⁻². The intense laser electric field ionizes the surface atoms, creating a plasma mirror, which reflects the NIR light. EUV radiation, in the form of an attosecond pulse train, is nonlinearly generated in the direction of the reflected laser beam through the process of coherent wake emission²⁰. WFR is controlled at focus by rotating one of the prisms used before focusing for the fine adjustment of temporal pulse compression on target. The spectrally integrated spatial beam profile of the EUV radiation is directly imaged onto an MCP detector. With increasing WFR at focus, the generated EUV beam splits into wellseparated beamlets, each carrying a single isolated attosecond pulse. Additional diagnostics include an imaging optical spectrometer for measuring the spatially resolved laser spectrum at focus and a non-imaging EUV spectrometer for recording the spectrum of the individual attosecond light pulses (Supplementary Section S1).

NATURE PHOTONICS | VOL 6 | DECEMBER 2012 | www.nature.com/naturephotonics

NATURE PHOTONICS DOI: 10.1038/NPHOTON.2012.284

LETTERS



Figure 3 | **Experimental observation of the attosecond lighthouse effect. a–c**, Left column: spatially resolved spectra of the driving laser field at focus for an increasing relative tilt of the prisms (0, 10 and 55° for **a–c**, respectively). Second column: calculated laser electric field E(y,t) at focus (with the blue-to-red colour scale corresponding to values of $E \ge 0$, while all values of E < 0 are displayed in dark blue), deduced from the first column by a Fourier transform with respect to frequency, assuming a constant phase in space and frequency. Third column: measured spatial EUV beam profile for a fixed arbitrary value of the CEP of the laser. Rightmost column: corresponding EUV spectra recorded at the centre of the spatial beam profile.

(MCP) detector, which is located directly in the reflected beam, 20 cm away from the target face (Fig. 2), and is used to image the spatial beam profile of the radiation with photon energies larger than \sim 11 eV. Second, by removing the MCP detector, the central portion of this beam is sampled by a home-built EUV spectrometer¹⁸ (Supplementary Section S1).

Figure 3 shows how the attosecond lighthouse effect gradually arises as we increase the WFR velocity of the intense few-cycle laser field driving the plasma mirror. The left column presents the spatially resolved laser spectra measured at focus along the direction of angular dispersion, showing the amount of spatial chirp induced by tilting one of the prisms. To estimate the associated WFR velocities v_r we performed a Fourier transform with respect to frequency of the spectral amplitude obtained from these measurements, assuming there was no additional spectral or spatial aberrations on the laser beam at focus (that is, both spectral and spatial phases are constant). This provides an approximate reconstruction of the driving laser electric field E(y,t)at focus, which is plotted in the second column of Fig. 3. From this, we calculate the WFR velocity induced at focus, which grows from $8\pm 2 \text{ mrad/cycle}$ (top row), corresponding to residual angular dispersion present in the laser beam, to a maximum value of $39\pm$ 4 mrad/cycle (bottom row).

The corresponding evolution of the EUV beam properties is shown in the two last columns of Fig. 3, which display both the spatial profile of the EUV beam on the MCP detector and the spectrum measured at the centre of the beam. As the laser WFR velocity increases, the EUV beam progressively elongates along the direction of WFR and eventually splits into several small beamlets, characteristic of the attosecond lighthouse effect¹⁰. The average angular separation measured between adjacent beamlets is \sim 50 mrad, with expected variations arising due to the CWE generation mechanism²³, which is consistent with the estimated average angular separation between consecutive laser wavefronts. As the attosecond lighthouse effect unfolds, the measured spectrum at the centre of the EUV beam evolves from a strongly modulated harmonic-like spectrum into a continuous spectrum (Fig. 3). This suggests a transition, in the time domain, from a femtosecond train of attosecond pulses forming a single beam, to a group of isolated attosecond pulses spatially distributed into individual sub-beams produced via the attosecond lighthouse effect. The remaining high-frequency spectral fringes (with a periodicity of \sim 0.3 eV) observed in Fig. 3c have a weak contrast of less than 12%, indicating the presence of an extremely weak satellite attosecond pulse at a delay of ~ 12 fs, with an energy of only $\sim 0.4\%$ that of the main attosecond pulse. This pulse is most probably due to CWE induced by a weak satellite of the main driving pulse (Supplementary Section S2). This is supported by the observation of the same modulations in Fig. 3a, which prove these are not caused by the introduction of WFR.

The observation of a broad continuous EUV spectrum does not, in general, imply that isolated attosecond pulses are generated, because the temporal structure of the emission also depends on the spectral phase. However, the additional observation

LETTERS

NATURE PHOTONICS DOI: 10.1038/NPHOTON.2012.284



Figure 4 | Time-to-space mapping during the attosecond lighthouse effect. These spatial patterns show the progressive change in direction of emission of the isolated attosecond beamlets produced by the attosecond lighthouse effect, for increasing values of the relative CEP of the laser (Supplementary Movie). Changing this CEP affects the emission times of the attosecond pulses within the laser pulse envelope, which is observed through the shift of the EUV beamlets on the MCP detector due to the time-to-space mapping induced by WFR. The rightmost image shows blurring of the EUV spatial beam profile arising from the generation of attosecond pulses in uncontrolled directions as the waveform of the laser randomly fluctuates from shot to shot when the laser CEP is not locked. All images are an accumulation of 300 consecutive shots.

of well-separated beamlets in the spatial EUV emission pattern provides further evidence that isolated attosecond pulses are indeed produced in our experiment. In the attosecond lighthouse scheme, the angle of emission of the EUV radiation corresponds to a time within the driving laser pulse, leading to a mapping of time onto a transverse spatial dimension. This is best demonstrated by varying the relative carrier-envelope phase (CEP) of the driving laser pulse, that is, the phase of the NIR carrier light wave with respect to the laser pulse envelope. This phase determines the emission times of the individual attosecond pulses relative to the pulse envelope²³. As we scan through CEP values, the position of the attosecond beamlets on the MCP detector shifts linearly (Fig. 4 and Supplementary Movie), creating a pattern that repeats itself after a 2π change in CEP. This experimental observation not only confirms the time-to-space mapping, but also shows that a time interval of one laser optical period $T_{\rm L}$ corresponds to the angle between two beamlets in Figs 3c and 4. Therefore, well-separated beamlets can only be observed if the emission occurs in the form of light bursts significantly shorter than T₁. Ab initio particle-in-cell simulations indeed confirm the generation of isolated attosecond pulses with durations of the order of a few hundred attoseconds (Supplementary Section S3). These results constitute the first evidence of isolated attosecond pulses being generated from laser-driven plasma mirrors. Incidentally, the sensitivity of this effect to the laser CEP offers a unique way of spatially monitoring shot-to-shot waveform fluctuations of ultrahigh-intensity few-cycle light pulses during relativistic laser-plasma interactions.

In conclusion, we report the first experimental demonstration of the attosecond lighthouse effect from intense nonlinear light-matter interactions. Easy to implement and applicable to virtually any nonlinear interaction scheme, this technique represents a radical departure from previous methods used to produce single attosecond pulses. Indeed, it provides a manifold of independent, yet intrinsically synchronized attosecond light beams, which will greatly simplify the time-resolved study of a wealth of fundamental electronic processes¹³. In addition, this approach opens brand new opportunities for dynamic molecular imaging in strong fields²⁴⁻²⁶, as it allows direct spatial mapping of individual sub-cycle dynamics during the laser-molecule interaction. Finally, attosecond lighthouses emanating from relativistically driven plasma mirrors are the most direct route to generating intense attosecond X-ray pulses, potentially allowing the investigation of yet unexplored phenomena, such as non-perturbative inner-shell processes or exotic high-field physics at short wavelengths, and thereby triggering further progress in fundamental X-ray science.

Received 24 September 2012; accepted 11 October 2012; published online 25 November 2012

References

- 1. Paul, P. M. *et al.* Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science* **292**, 1689–1692 (2001).
- 2. Tzallas, P., Charalambidis, D., Papadogiannis, N. A., Witte, K. &
- Tsakiris, G. D. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature* **426**, 267–271 (2003).
- 3. Drescher, M. *et al.* Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature* **419**, 803–807 (2002).
- Uiberacker, M. *et al.* Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature* 446, 627–632 (2007).
- Cavalieri, A. L. *et al.* Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature* 449, 1029–1032 (2007).
- Goulielmakis, E. et al. Real-time observation of valence electron motion. Nature 466, 739–743 (2010).
- Goulielmakis, E. et al. Single-cycle nonlinear optics. Science 320, 1614–1617 (2008).
- Sansone, G. et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. Science 314, 443–446 (2006).
- 9. Ferrari, F. *et al.* High-energy isolated attosecond pulses generated by abovesaturation few-cycle fields. *Nature Photon.* **4**, 875–879 (2010).
- Vincenti, H. & Quéré, F. Attosecond lighthouses: how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.* 108, 113904 (2012).
- Akturk, S., Gu, X., Gabolde, P. & Trebino, R. The general theory of first-order spatio-temporal distortions of Gaussian pulses and beams. *Opt. Express* 13, 8642–8661 (2005).
- 12. Kostenbauder, A. G. Ray-pulse matrices: a rational treatment for dispersive optical systems. *IEEE J. Quantum Electron.* **26**, 1148–1157 (1990).
- Krausz, F. & Ivanov, M. Attosecond physics. *Rev. Mod. Phys.* 81, 163–234 (2009).
- Teubner, U. & Gibbon, P. High-order harmonics from laser-irradiated plasma surfaces. *Rev. Mod. Phys.* 81, 445–479 (2009).
- Tsakiris, G. D., Eidmann, K., Meyer-ter-Vehn, J. & Krausz, F. Route to intense single attosecond pulses. New J. Phys. 8, 19 (2006).
- 16. Naumova, N. M., Nees, J. A., Sokolov, I. V., Hou, B. & Mourou, G. A. Relativistic generation of isolated attosecond pulses in a λ^3 focal volume. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 063902 (2004).
- 17. Akturk, S., Gu, X., Bowlan, P. & Trebino, R. Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses. J. Opt. 12, 093001 (2012).
- 18. Borot, A. *et al.* High-harmonic generation from plasma mirrors at kilohertz repetition rate. *Opt. Lett.* **36**, 1461–1463 (2011).
- Thaury, C. et al. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. Nature Phys. 3, 424–429 (2007).
- Quéré, F. et al. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. Phys. Rev. Lett. 96, 125004 (2006).
- Thaury, C. & Quéré, F. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors: basic mechanisms. *J. Phys. B* 43, 213001 (2010).
- Nomura, Y. *et al.* Attosecond phase locking of harmonics emitted from laserproduced plasmas. *Nature Phys.* 5, 124–128 (2009).
- 23. Borot, A. *et al.* Attosecond control of collective electron motion in plasmas. *Nature Phys.* **8**, 416–421 (2012).

NATURE PHOTONICS | VOL 6 | DECEMBER 2012 | www.nature.com/naturephotonics