



HAL
open science

Physique et application d'une source cohérente femtoseconde à 32.8 nm par interaction laser-plasma

Adeline Kabacinski

► **To cite this version:**

Adeline Kabacinski. Physique et application d'une source cohérente femtoseconde à 32.8 nm par interaction laser-plasma. Physique [physics]. Institut Polytechnique de Paris, 2022. Français. NNT : 2022IPPAE018 . tel-04528918

HAL Id: tel-04528918

<https://theses.hal.science/tel-04528918>

Submitted on 2 Apr 2024

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.



INSTITUT
POLYTECHNIQUE
DE PARIS

NNT : 2022IPPAE018

Thèse de doctorat



Physique et application d'une source cohérente femtoseconde à 32,8 nm par interaction laser-plasma

Thèse de doctorat de l'Institut Polytechnique de Paris
préparée à l'Ecole Nationale Supérieure de Techniques Avancées

École doctorale n°626 Ecole doctorale de l'Institut Polytechnique de Paris (EDIPP)
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 14 décembre 2022, par

ADELINE KABACINSKI

Composition du Jury :

Annette Calisti Directrice de recherche, PIIM (UMR 7345)	Président
Annie Klisnick Directrice de recherche, ISMO (UMR 8214)	Rapporteur
Fabien Dorchies Directeur de recherche, CELIA (UMR 5107)	Rapporteur
Olivier Guilbaud Maître de conférences, IJCLab (UMR 9012)	Examineur
Henri Vincenti Directeur de recherche, LIDYL (UMR 9222)	Examineur
Stéphane Sebban Directeur de recherche, LOA (UMR 8518)	Directeur de thèse

Remerciements

Après trois années exceptionnellement riches, tant personnellement que professionnellement, me voici arrivée au moment de rédiger les lignes qui entameront ce manuscrit et seront sans doute les plus difficiles à écrire car jamais quelques mots ne pourront égaler ce que je vous dois à tous.

Je commence par remercier très sincèrement mon jury. Merci à Annette Calisti, Annie Klisnick, Fabien Dorchies, Olivier Guilbaud et Henri Vincenti pour avoir accepté de donner de votre temps et de votre énergie pour examiner mon travail. Merci pour vos relectures de mon manuscrit, vos retours très positifs, et vos questions très pertinentes et intéressantes lors de ma soutenance. Merci en particulier à Olivier Guilbaud qui, après avoir été un excellent enseignant en Master 2 Grands Instruments à l'Université Paris-Saclay, m'a invitée à venir participer à quelques manip à LASERIX et a toujours suivi avec intérêt mes recherches.

Je vais maintenant m'adresser à toutes les personnes que j'ai pu croiser au Laboratoire d'Optique Appliquée. Vous avez rendu ces trois années particulièrement agréables et enrichissantes.

Bien évidemment, un immense merci à Stéphane Sebban. Tu as été un directeur de thèse très bienveillant et à l'écoute, et tu as su rester disponible malgré ton emploi du temps chargé de directeur du laboratoire. Merci pour toutes les connaissances que tu m'as transmises, ton dynamisme, ton ingéniosité en Salle Jaune où on aurait aimé te voir plus souvent. Enfin, merci pour ta confiance, et la liberté que tu m'as laissée au cours de ces 3 ans.

Merci à Fabien Tissandier. C'est toi qui m'a accueillie pour mon tout premier jour au laboratoire, et qui m'a guidée dans mes premiers pas en Salle Jaune. Merci pour ça, pour ton soutien sans faille depuis ce premier jour, pour tes conseils, ta bienveillance, ta disponibilité et ta patience pour répondre à mes questions.

Merci à Julien Gautier pour ta gentillesse et ta bonne humeur en toutes circonstances (même après une inondation en Salle Jaune ou pendant une manip où rien ne se passe comme prévu). Merci pour t'être toujours porté volontaire pour m'aider et pour ta détermination hors norme à vouloir faire fonctionner tout ce qui se trouve sur ton passage. N'est pas Cristal qui veut !

Merci à Jean-Philippe Goddet, notre lasériste hors pair. Merci de t'être toujours démené pour fournir le faisceau dans les meilleures conditions et pour m'avoir aidée dans bien des occasions, sur *Zemax* ou en Salle Jaune. Merci pour tes encouragements quotidiens, ta gentillesse et ta patience (même quand on te taquine sur la thermique).

Merci aussi à Amar Tafzi, notre second lasériste hors pair, pour ta sympathie et pour avoir été si présent les nombreuses fois où nous en avons besoin, entre autres pour réaligner le faisceau ou passer à 10 Hz pour la synchro.

Thank you Michaela Kozlová. You've been an incredible support during the few months you were in the lab. Thank you very much for your endless motivation (even when it's not the laser, and not the program, ...) and your unfailing good mood (Mambo N° 5!). Thank you for your ideas, your kindness and your delightful chocolates from Prague.

Merci à Eduardo Oliva pour le développement du code DAGON, pour toutes tes explications et ton aide aux simulations, pour nos multiples Zoom et pour ta venue ici depuis Madrid. Tu as toujours été à l'écoute et a su répondre à mes (nombreuses) questions avec une grande gentillesse et une immense patience.

Merci à Cédric Thauray pour ton soutien, ta pédagogie, ta rigueur et ta disponibilité que ce soit pour les manip, pour l'analyse des résultats, ou pour une correction soignée des articles.

Merci à Philippe Zeitoun pour toutes nos discussions enrichissantes, tant sur le plan professionnel que personnel. Merci pour ton temps précieux passé sur la correction de mes articles, et merci de croire en moi.

Merci à Igor Andriyash pour ta bonne humeur, les simulations FBPIC et tes explications sur les mécanismes de chauffage des électrons.

Merci à Guillaume Lambert pour ta sympathie et une agréable manip en Salle Corail.

Merci également à Antoine Rousse, embarqué dans un ambitieux périple pendant une bonne partie de mon doctorat, pour avoir soutenu ma candidature en thèse et m'avoir accueillie avec bienveillance dans le laboratoire que tu dirigeais alors.

Merci à tous les autres sympathiques membres de la Salle Jaune : Kim Ta Phuoc, Adrien Leblanc, Lena Kononenko, Alessandro Flacco et Sébastien Corde. Merci aux autres chercheurs avec qui je n'ai pas non plus eu l'opportunité de travailler, mais qui ont croisé ma route à un moment donné et ont contribué à la bonne ambiance au laboratoire : Boris Vodungbo, Ludovic Lecherbourg, Victor Malka, Stefan Haessler, Jérôme Faure, Aline Vernier, Rodrigo Lopez-Martens et Davide Boschetto.

Merci à tous les doctorants et post-doctorants que j'ai côtoyé durant ces trois années. Merci en particulier à Kosta Oubriere, notamment pour ta sympathie et ton aide sur les simulations *Fluent*, à Pablo San Miguel, pour ton soutien et tes conseils pour la fin de thèse, et à mon agréable co-bureau Lorenzo Martelli. Merci également à Ronan Lahaye, Lucas Rovige, Thomas Clark, Marco Cavallone, Aimé Matheron, Juliette Dubois, Rostyslav Danylo, Alex Knetsch, Pierre Walch, et à tous les autres. Thank you Alok Kumar Pandey for having welcomed me on your experiment at LASERIX and for our interesting discussions. Merci aussi à Irene Papagiannouli et Laïla Dakroub.

Merci à mes stagiaires Mohamed Atouife et Sébastien Quistrebert pour leur écoute et pour avoir patiemment traité une grande quantité d'interférogrammes et de hauts flux.

Thanks to the German team from Jena for the fruitful collaboration concerning the second harmonic generation.

Merci à toute l'équipe administrative, Catherine Buljore, Magali Tutou, Patricia Toullier et Sandrine Tricaud, pour votre très grande efficacité et votre disponibilité.

Merci à l'atelier mécanique pour votre aide dès que j'en avais besoin. Merci à Jean-Lou Charles, Bernard Allali, et Sébastien Brun. Merci aussi à Thomas Lavergne, Mouhcine Adraoui, Maxence Le Sourd et Pascal Rousseau pour votre assistance à un moment ou un autre.

Merci à François Sylla et Paul Dumont pour m'avoir donné l'opportunité de présenter en conférence pour la première fois et pour l'aide apportée à sa préparation.

Pendant cette thèse, j'ai eu l'opportunité d'enseigner le MODAL Holographie à l'Ecole Polytechnique. Je remercie toute l'équipe TREX Physique, en particulier Guilhem Gallot du LOB pour les nombreux échanges que nous avons eu et Géraud Chandeze pour son aide technique. Merci aussi à Ambra Morana et à Auriane Perrin avec qui j'ai partagé l'enseignement.

Merci à toutes et à tous pour ce bout de chemin passé ensemble. Je vous souhaite le meilleur.

Enfin, je remercie l'Ecole Polytechnique et l'EUR PLASMA Science (ANR-18-EURE-0014) d'avoir financé mes recherches.

Voici maintenant les remerciements plus personnels, adressés à tous mes proches, qui m'ont soutenue pendant cette thèse comme ils l'ont fait tout au long de mon parcours. Je remercie les professeurs qui m'ont encouragée dans cette voie, mes amis et bien sûr toute ma famille. Je pense à vous tous et j'espère vous rendre fiers.

En particulier, je souhaite remercier mes parents. Merci infiniment pour vos encouragements en toutes circonstances depuis le premier jour. Merci pour les valeurs et les savoirs que vous m'avez transmis et qui m'ont permis d'arriver jusqu'ici. Merci aussi à ma petite sœur Sarah pour son soutien depuis toujours. Je vous aime très fort.

Merci aux parents et à la famille de Randy pour vos encouragements permanents et enfin, merci infini à Randy. Merci pour la douceur de vivre, pour ton soutien quotidien, pour ta présence dans les hauts et dans les bas malgré ta propre thèse. Merci de partager ma vie depuis plus de 3 ans, et d'avoir fait de cette aventure la plus belle.

Table des matières

Introduction générale	7
1 Introduction aux sources XUV cohérentes	9
1.1 Le rayonnement synchrotron	10
1.1.1 Sources synchrotron	10
1.1.2 Lasers à électrons libres	10
1.2 Sources XUV cohérentes par génération d’harmoniques	12
1.2.1 Génération d’harmoniques sur cible solide	12
1.2.1.1 Régime non relativiste	12
1.2.1.2 Régime relativiste	13
1.2.2 Génération d’harmoniques sur cible gazeuse	15
1.3 Sources lasers XUV par interaction laser-plasma	17
1.3.1 Schémas de pompage de l’inversion de population	17
1.3.1.1 Pompage par recombinaison	17
1.3.1.2 Pompage par photoionisation en couche interne	19
1.3.1.3 Pompage par collisions électroniques	19
1.3.2 Etat de l’art des lasers XUV collisionnels	21
1.3.2.1 Lasers XUV en régime quasi-stationnaire	21
1.3.2.2 Lasers XUV en régime transitoire	22
1.3.2.3 Lasers XUV en régime d’ionisation par le champ	24
1.3.2.4 Lasers XUV par décharge capillaire	25
1.3.3 Performances et applications des lasers XUV collisionnels OFI injectés	26
1.3.3.1 Principe de l’injection par une source harmonique externe	26
1.3.3.2 Performances et limitations	27
1.3.3.3 Applications et perspectives pour les lasers XUV	30
1.4 Conclusion	33
2 Physique des lasers XUV collisionnels OFI injectés par harmoniques	35
2.1 Effet laser et physique de l’amplificateur	36
2.1.1 Effet laser à 32,8 nm	36
2.1.2 Evolution des populations atomiques	37
2.1.3 Amplification de l’émission en régime ASE	39
2.1.3.1 Largeur spectrale, emissivité et coefficient de gain	39
2.1.3.2 Transfert radiatif	40
2.1.4 Dépendance à la densité électronique	42
2.1.4.1 Evolution temporelle des populations atomiques	42
2.1.4.2 Evolution temporelle du gain	43
2.2 Interaction laser-plasma en champ intense	44
2.2.1 Mécanismes d’ionisation par le champ laser	45
2.2.1.1 Ionisation multiphotonique	45
2.2.1.2 Ionisation par abaissement de la barrière de potentiel : effet tunnel et suppression de la barrière de potentiel	46
2.2.2 Distribution énergétique des électrons et des ions	49
2.2.2.1 Chauffage des électrons arrachés par OFI	49
2.2.2.2 Distribution énergétique des ions	51
2.3 Cinétique du plasma	52
2.3.1 Principaux mécanismes régissant la dynamique du plasma	52
2.3.1.1 Phénomène d’écrantage	52
2.3.1.2 Force pondéromotrice	52
2.3.1.3 Phénomènes collisionnels	53

2.3.2	Evolution des températures électroniques et ioniques	54
2.3.2.1	Evolution de la température électronique	54
2.3.2.2	Evolution de la température ionique	55
2.4	Propagation du champ laser dans un plasma et nécessité d'un guidage	56
2.4.1	Propagation naturelle du champ	56
2.4.2	Techniques de guidage de l'impulsion pompe	60
2.4.2.1	Autofocalisation relativiste	60
2.4.2.2	Guide plasma dans un capillaire	61
2.4.2.3	Guide plasma créé par laser	62
2.5	Physique de l'amplification en régime injecté	64
2.5.1	Equations de Maxwell-Bloch	65
2.5.1.1	Equation de propagation du champ dans un plasma	65
2.5.1.2	Polarisation induite par un champ résonant	65
2.5.1.3	Equations d'évolution des populations atomiques	66
2.5.1.4	Système d'équations de Maxwell-Bloch	66
2.5.2	Amplification du champ harmonique résonant	66
2.5.2.1	Description du code DAGON	66
2.5.2.2	Régimes de l'amplification	67
2.6	Conclusion	71
3	Réalisation d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques	73
3.1	Présentation de la Salle Jaune	74
3.2	Installation laser infrarouge	75
3.3	Description de la chaîne laser XUV	77
3.3.1	Génération de l'amplificateur	77
3.3.1.1	Faisceau pompe	77
3.3.1.2	Jet de gaz	78
3.3.2	Création d'un canal plasma	79
3.3.3	Génération du rayonnement harmonique et injection	81
3.4	Diagnostics	83
3.4.1	Diagnostics du guidage	83
3.4.1.1	Imagerie du plasma et mesure de la densité électronique du canal	83
3.4.1.2	Mesure de l'efficacité du guidage par imagerie du faisceau pompe à haut flux	84
3.4.2	Diagnostics du rayonnement	85
3.4.2.1	Spectroscopie XUV sur l'axe	85
3.4.2.2	Distribution d'énergie en champ lointain	85
3.5	Conclusion	88
4	Caractérisation d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques	91
4.1	Caractérisation simple du rayonnement	92
4.1.1	Spectres et facteur d'amplification	92
4.1.2	Distribution en énergie	93
4.1.3	Stabilité de la source	94
4.2	Paramètres essentiels à l'optimisation de la source	95
4.2.1	Influence du faisceau pompe	95
4.2.1.1	Energie du faisceau pompe	95
4.2.1.2	Polarisation du faisceau pompe	96
4.2.2	Influence du délai d'injection de l'harmonique dans l'amplificateur	99
4.2.2.1	Dynamique temporelle de l'amplification	99
4.2.2.2	Balance en énergie ASE/harmonique amplifiée	100
4.2.3	Influence de la longueur de jet	101
4.2.3.1	Energie du faisceau XUV	101
4.2.3.2	Divergence du faisceau XUV	102
4.2.4	Influence de la densité électronique	103
4.3	Caractérisation du guidage	104
4.3.1	Guide créé par une impulsion longue unique	105
4.3.1.1	Caractérisation du canal	105
4.3.1.2	Caractérisation du guidage	106
4.3.2	Guide créé par une double impulsion : "ignitor + heater"	107
4.3.2.1	Caractérisation du canal	107
4.3.2.2	Caractérisation du guidage	111

4.4	Conclusion	116
5	Caractérisation temporelle d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques	117
5.1	Diagnostic de mesure du profil temporel d'une impulsion laser XUV	118
5.1.1	Etat de l'art	118
5.1.2	Principe du diagnostic	121
5.1.3	Alignement du diagnostic	123
5.1.4	Mesure de la calibration	124
5.1.5	Méthodes de reconstruction du profil temporel	126
5.1.5.1	Reconstruction de l'enveloppe du profil temporel	127
5.1.5.2	Reconstruction du profil temporel par lissage	132
5.2	Influence de la densité électronique sur la durée	138
5.2.1	Interruption anticipée du gain	140
5.2.2	Réduction de la durée d'impulsion à haute densité	141
5.3	Conclusion	143
6	Contrôle de la vitesse de groupe du faisceau pompe et influence sur les performances du laser à 32,8 nm	145
6.1	Limitations induites par la dispersion naturelle du plasma	146
6.2	Ajustement de la vitesse de groupe de l'impulsion pompe	148
6.2.1	Etat de l'art	148
6.2.2	Ajustement de la vitesse de groupe par les couplages spatio-temporels	149
6.2.2.1	Définition des couplages spatio-temporels utilisés	149
6.2.2.2	Ajustement et mesure de ces couplages spatio-temporels	150
6.2.2.3	Ajustement de la vitesse de groupe par les couplages spatio-temporels	153
6.3	Application dans le cas du laser XUV	155
6.3.1	Principe	155
6.3.2	Impact de la vitesse de groupe sur l'extraction de l'énergie	156
6.3.3	Impact de la vitesse de groupe sur le profil temporel	159
6.3.3.1	Etude de la durée d'impulsion	159
6.3.3.2	Allure du profil temporel en fonction de la vitesse de groupe	163
6.3.4	Impact de la vitesse de groupe sur la dynamique de l'amplification	172
6.4	Conclusion	178
	Conclusion générale et perspectives	179
	Annexes	181
	A OFIKinRad	181
	B Axiparabole	183
	C Dispersion angulaire / Chirp spatial	186
	D Doublet chromatique	189
	E Evolution de la durée d'impulsion avec le délai d'injection harmoniques	191
	F Application à la génération de seconde harmonique dans l'XUV	193
	G Liste des publications et communications	197
	Bibliographie	239

Introduction générale

L'effet laser a été démontré expérimentalement pour la première fois en 1960 dans un rubis [1]. Depuis, la diversification des sources de ce type et l'amélioration de leurs performances ont révolutionné de nombreux pans de la physique et ont permis à de multiples applications de voir le jour.

Le développement d'un tel rayonnement dans la gamme spectrale des XUV a rapidement suscité un vif engouement en raison de ses propriétés, en particulier de sa courte longueur d'onde promettant d'excellentes résolutions spatiales. Bien que ce phénomène ait été décliné rapidement de l'infrarouge aux ultraviolets, notamment grâce à l'avènement de l'optique non linéaire, l'extension de l'effet laser aux XUV a été plus laborieuse puisque l'architecture conventionnelle, composée d'un cristal inséré dans une cavité optique résonante, s'est avérée inappropriée. En effet, l'émission de photons XUV nécessite une transition énergétique de quelques dizaines d'eV, seulement accessible dans un plasma constitué d'ions multi-chargés. Ce milieu amplificateur possède des durées de vie courtes (typiquement de la picoseconde à la nanoseconde) qui, en plus de la faible réflectivité des XUV sur presque tous les matériaux, rendent l'utilisation d'une cavité et l'amplification en plusieurs passages impossibles. Fort heureusement, les gains offerts par ces plasmas sont importants et promettent une amplification conséquente en un passage unique en régime d'Amplification de l'Emission Spontanée (ASE).

Les lasers XUV par interaction laser-plasma reposent sur l'interaction entre une cible, solide ou gazeuse, et une impulsion laser suffisamment intense pour ioniser les atomes et ainsi générer une population d'ions lasants disposant d'une transition susceptible d'émettre dans cette gamme spectrale. Il est ensuite essentiel de pomper cette transition pour réaliser les conditions d'inversion de population et favoriser l'émission stimulée. De nombreux schémas d'inversion de population ont été proposés. Parmi eux, seul le schéma de pompage dit collisionnel a permis une amplification à fort gain, démontrée pour la première fois à 20,6 nm dans le sélénium néonoïde en 1985 [2]. Ce schéma permet d'atteindre le régime saturé dans une large gamme spectrale, typiquement entre 5 et 60 nm. De multiples géométries ont été proposées pour les lasers XUV collisionnels de manière corrélée à l'évolution des technologies des lasers de puissance. Dans cette thèse, nous nous sommes particulièrement intéressés au régime dit OFI pour "Optical Field Ionization" démontré pour la première fois en 1995 à 41,8 nm dans le xénon palladiumoïde [3], puis sept ans plus tard à 32,8 nm sur la transition $3d^94d - 3d^94p$ du krypton nickeloidé [4] que nous étudions ici.

L'émission XUV résultante de l'interaction laser-plasma en régime ASE est de façon inhérente divergente, inhomogène et peu spatialement cohérente. Pour améliorer les propriétés spatiales du rayonnement, tout en tirant profit des qualités énergétiques de l'amplificateur, une architecture inspirée des lasers de puissance dans l'infrarouge a été proposée en 1995 [5] et démontrée expérimentalement au Laboratoire d'Optique Appliquée en 2004 [6]. Cette technique consiste en l'injection, dans le milieu amplificateur pendant le temps de vie du gain, d'une source harmonique externe cohérente résonante avec la transition laser. Elle a permis l'obtention d'un faisceau collimaté cohérent proche de la limite de diffraction [7].

Dès 2015, des études ont montré que l'amélioration des performances de ces sources repose sur notre capacité à augmenter la densité électronique du plasma amplificateur [8][9]. En effet, la hausse des collisions électrons-ions, responsables du pompage de la transition laser XUV, favorisent l'inversion de population. Dans le même temps, ces collisions provoquent une surionisation de l'ion lasant et donc une interruption anticipée du gain. Il a ainsi été démontré expérimentalement que la durée de vie du gain pouvait être considérablement réduite jusqu'à des durées de quelques centaines de femtosecondes en accord avec des simulations numériques. Ces dernières ont également annoncé une réduction importante de la durée d'impulsion XUV, ouvrant pour la première fois la voie à des lasers XUV collisionnels femtosecondes. C'est dans ce contexte que débute cette thèse.

Les principaux objectifs de ce travail consistent en l'étude de la physique, la caractérisation et l'amélioration des performances d'un laser XUV OFI injecté à 32,8 nm. S'il a d'ores et déjà été démontré expérimentalement que l'énergie par impulsion était croissante avec l'augmentation de la densité, la réduction de la durée d'impul-

sion n'avait, jusqu'ici, été observée que par le biais de simulations. Un des axes majeurs de cette thèse a donc résidé en l'étude de la durée d'impulsion à 32,8 nm avec la densité électronique. D'autres paramètres influant sur la durée ont également pu être identifiés et étudiés. Cela a nécessité le développement d'un diagnostic original permettant de mesurer systématiquement le profil temporel de l'impulsion XUV.

Bien qu'extrêmement bénéfiques pour ce type de source, les hautes densités électroniques nous confrontent à une nouvelle limitation dont il nous faut absolument nous affranchir. La dispersion naturelle du plasma induit une différence de vitesse de propagation entre l'XUV et l'infrarouge qui augmente avec la densité. Ceci résulte en une désynchronisation entre l'harmonique injectée et la zone de gain créée par le faisceau pompe. Cette désynchronisation est d'autant plus critique que les gains sont courts, ce qui réduit considérablement la longueur effective d'amplification. Pour s'acquitter de l'impact néfaste de cette désynchronisation sur les performances de la source et compenser la dispersion naturelle du plasma, un enjeu important de ce travail a donc été d'ajuster la vitesse de groupe du faisceau de pompe à l'aide du contrôle des couplages spatio-temporels.

Ce manuscrit s'articule en six chapitres :

- Le chapitre 1 est dédié à un état de l'art général des sources XUV cohérentes existantes. Nous y décrirons notamment le rayonnement synchrotron, la génération d'harmoniques et bien sûr les différents types de lasers XUV obtenus par interaction laser-plasma, notamment les lasers XUV collisionnels OFI injectés par une source harmonique externe qui sont au cœur de ce travail.
- Le chapitre 2 introduit les principes physiques régissant les lasers XUV collisionnels OFI injectés par une source harmonique externe. Nous y étudierons la physique de l'amplification en régime ASE et des mécanismes permettant la réalisation des conditions requises (en termes d'ionisation et de chauffage) pour qu'elle ait lieu ainsi que la cinétique du plasma, la propagation du faisceau pompe en particulier dans un milieu haute densité, et enfin la physique de l'amplification en régime injecté.
- Le chapitre 3 détaille le contexte expérimental de la thèse, avec la présentation de l'installation laser infrarouge, de la chaîne laser XUV injectée, et des différents diagnostics utilisés dans la suite du manuscrit.
- Le chapitre 4 concerne la caractérisation générale du laser XUV collisionnel OFI injecté. On s'intéressera en particulier à la caractérisation du rayonnement et du guidage du faisceau pompe en fonction de différents paramètres, essentiels à l'optimisation de cette source.
- Le chapitre 5 est consacré à la caractérisation temporelle du laser XUV collisionnel OFI injecté grâce au développement d'un diagnostic innovant permettant de mesurer le profil temporel de l'impulsion XUV en un tir unique avec une résolution de l'ordre quelques centaines de femtosecondes. Ce diagnostic nous permettra d'étudier l'influence de la densité électronique sur la durée d'impulsion, avec l'espoir d'atteindre la gamme femtoseconde promise par l'interruption anticipée du gain.
- Le chapitre 6 présente les conséquences néfastes de la dispersion naturelle du plasma qui devient problématique à haute densité en induisant une désynchronisation conséquente entre la zone de gain et l'harmonique injectée. L'ajustement de la vitesse de groupe du faisceau pompe grâce aux couplages spatio-temporels sera utilisé pour surpasser cette limitation.
- Enfin, nous concluons et évoquerons les perspectives du travail présenté, autant en termes d'améliorations futures de la source que d'applications.

Chapitre 1

Introduction aux sources XUV cohérentes

Le rayonnement électromagnétique dans la gamme spectrale des XUV (3 - 60 nm) est un outil puissant pour explorer la matière. Le développement des sources cohérentes dans cette région du spectre a ouvert de nombreuses voies inexplorées jusqu'alors comme l'imagerie à très haute résolution spatiale offerte par la courte longueur d'onde courte du rayonnement, ou encore l'étude de la dynamique ultra-rapide des processus élémentaires.

Dans ce chapitre, nous présenterons les principales sources cohérentes de rayonnement XUV et leurs performances respectives afin de comprendre le contexte scientifique dans lequel s'inscrit cette thèse. On peut distinguer les sources obtenues par rayonnement synchrotron que nous présenterons brièvement dans un premier temps, et les sources plus compactes se basant sur l'interaction laser-plasma. Ces dernières incluent les harmoniques, sur lesquelles nous nous pencherons en un deuxième temps et qui peuvent être générées sur cible solide ou sur cible gazeuse, et les sources lasers XUV. Celles-ci sont au cœur de cette thèse. Elles seront étudiées en un troisième temps et reposent sur l'inversion de population entre deux niveaux d'énergie d'une espèce lasante obtenue par interaction laser-plasma. Nous décrirons les différents schémas de pompage permettant de réaliser l'inversion de population, avant de nous attarder en particulier sur les techniques de pompage existantes dans le cas des lasers XUV collisionnels. Nous verrons ensuite l'intérêt de l'injection d'un amplificateur XUV OFI collisionnel par une source harmonique externe. Nous nous pencherons enfin sur les applications possibles de telles sources, après avoir évoqué leurs performances. Tout ceci nous amènera naturellement aux perspectives de ce travail.

Sommaire

1.1	Le rayonnement synchrotron	10
1.1.1	Sources synchrotron	10
1.1.2	Lasers à électrons libres	10
1.2	Sources XUV cohérentes par génération d'harmoniques	12
1.2.1	Génération d'harmoniques sur cible solide	12
1.2.2	Génération d'harmoniques sur cible gazeuse	15
1.3	Sources lasers XUV par interaction laser-plasma	17
1.3.1	Schémas de pompage de l'inversion de population	17
1.3.2	Etat de l'art des lasers XUV collisionnels	21
1.3.3	Performances et applications des lasers XUV collisionnels OFI injectés	26
1.4	Conclusion	33

1.1 Le rayonnement synchrotron

Le rayonnement synchrotron [10] est un rayonnement produit par des électrons relativistes dont la trajectoire est courbe. Les photons sont émis dans la direction du mouvement des particules, dans un cône dont l'ouverture est d'autant plus petite que l'énergie des électrons est grande. Ce rayonnement peut couvrir une grande partie du spectre électromagnétique entre l'infrarouge et les X durs. Nous décrivons ici deux types de sources produisant ce rayonnement.

1.1.1 Sources synchrotron

Un synchrotron [11][12] est un grand instrument qui permet d'accélérer des particules chargées, en l'occurrence des électrons jusqu'à des vitesses relativistes (typiquement quelques GeV), et de les maintenir sur une trajectoire circulaire à haute énergie. Pour cela, un fin faisceau d'électrons, émis par un canon à électrons, est d'abord accéléré par un accélérateur linéaire (LINAC) jusqu'à typiquement 100 MeV, puis par un accélérateur circulaire appelé "booster" jusqu'à l'énergie nominale. Les électrons sont ensuite injectés dans un anneau de stockage où des éléments magnétiques permettent de courber leur trajectoire ou de les faire osciller, ce qui produit le rayonnement synchrotron. L'énergie perdue par les électrons est compensée à chaque tour par des cavités radiofréquences, tandis que le rayonnement synchrotron est dirigé vers des lignes de lumière, tangentes à l'orbite des électrons, pour être exploité par des utilisateurs. Il existe aujourd'hui une vingtaine de synchrotrons dans le monde, dont deux en France : l'ESRF à Grenoble et le Synchrotron SOLEIL à Saint-Aubin représenté sur la figure 1.1. Ces sources sont très attractives en raison notamment de leur important taux de répétition (quelques dizaines de MHz), de leur haute brillance (10^{20} photons/(s · mm² · mrad² · 0,1% bandwidth)), de leur accordabilité en polarisation, et de la gamme de longueurs d'onde disponibles (de l'infrarouge lointain aux X durs accessibles par un fort décalage Doppler induit par la vitesse des électrons). Les électrons étant regroupés en paquets, le rayonnement émis est pulsé avec un espacement variant de quelques nanosecondes à quelques microsecondes et une durée d'impulsion relativement longue de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes. Malgré leurs nombreux avantages, ces sources sont faiblement cohérentes transversalement, même si cela tend à s'améliorer avec la réduction de l'émittance permise par le développement des synchrotrons de quatrième génération, et temporellement.

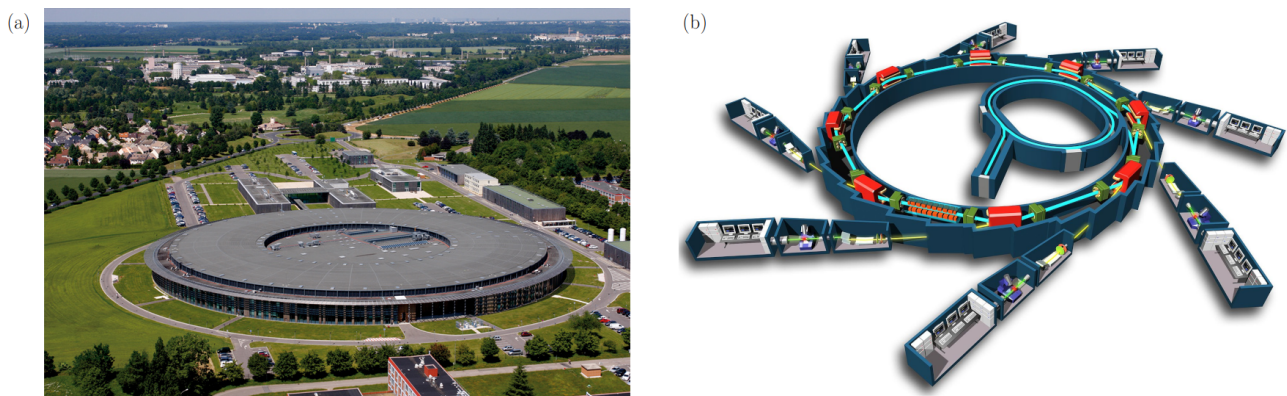


FIGURE 1.1 – Photo (a) et schéma (b) du synchrotron SOLEIL, Saint-Aubin, France [13].

1.1.2 Lasers à électrons libres

Les lasers à électrons libres (LELs ou FELs pour "Free Electron Lasers") permettent l'émission d'un rayonnement synchrotron cohérent grâce à son interaction dans un onduleur avec le faisceau d'électrons qui permet de le générer. Les premières études théoriques à ce sujet datent de 1950 [14], et la première démonstration expérimentale a été réalisée dans l'infrarouge en 1977 [15]. Initialement, les LELs étaient constitués d'un unique onduleur inséré dans une cavité optique et ne permettaient donc pas de générer un rayonnement dans l'XUV en raison de l'absence d'optiques adaptées. Plus tard, l'utilisation de courants électriques élevés et de faisceaux d'électrons de faible divergence ont permis d'augmenter le gain de façon conséquente et ainsi d'adapter les LELs aux courtes longueurs d'ondes [16] en travaillant en simple passage en régime dit SASE ("Self-Amplified Spontaneous Emission").

Le principe du LEL est illustré sur la figure 1.2 : un paquet d'électrons est accéléré jusqu'à des vitesses relativistes avant d'être injecté dans un onduleur, une structure magnétique périodique de période λ_u qui force les électrons à osciller transversalement ce qui leur permet de rayonner. Les électrons étant déphasés à leur

entrée dans l'onduleur, le rayonnement émis est initialement incohérent. Mais les photons créés interagissent avec les électrons ce qui induit un transfert d'énergie. Cela résulte en une modulation périodique de la densité électronique dans la direction de propagation, qu'on appelle microbunching, qui permet aux électrons d'émettre des photons en phase et donc un rayonnement plus intense et cohérent.

Contrairement aux lasers conventionnels dont la longueur d'onde est déterminée par les niveaux atomiques du milieu amplificateur, les LELs présentent l'avantage d'une grande accordabilité en longueur d'onde en ajustant l'énergie des électrons γ (normalisée par rapport à l'énergie des électrons au repos) et le paramètre de déflexion de l'onduleur noté κ qui dépend du champ magnétique appliqué et de λ_u . Le spectre du rayonnement d'un onduleur est constitué d'une série de raies discrètes, situées à la longueur d'onde de résonance de l'émission spontanée de l'onduleur donnée par [17] :

$$\lambda_R = \frac{\lambda_u}{2\gamma} \left(1 + \frac{\kappa^2}{2}\right) \quad (1.1)$$

et à λ_R/q avec q l'ordre harmonique. L'ordre 1 correspond au fondamental et présente le plus fort gain. Les ordres supérieurs sont appelés harmoniques non linéaires et sont rayonnés à un niveau bien plus faible que le fondamental. La structure du spectre dépend de la force de l'onduleur, la contribution harmonique étant croissante avec le paramètre κ : pour $\kappa < 1$ le rayonnement est essentiellement constitué du fondamental, pour $\kappa > 1$ le spectre est constitué du fondamental et des premières harmoniques, pour $\kappa \gg 1$ le nombre d'harmoniques augmente considérablement et peut même rendre le spectre quasiment continu.

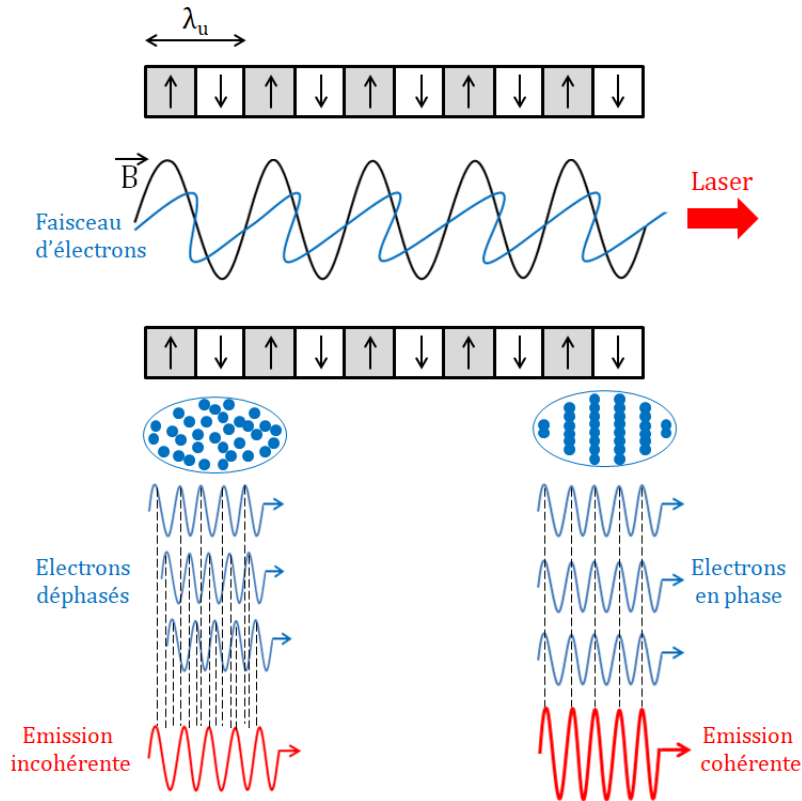


FIGURE 1.2 – Schéma de principe du laser à électrons libres.

Bien que le régime SASE fournisse un faisceau de photons intense et de bonne cohérence transverse, sa cohérence temporelle est limitée par le bruit initial du rayonnement synchrotron. Pour pallier à ce problème, la technique d'injection par harmoniques, qui a été initialement proposée dans le cas des lasers XUV générés par interaction laser-plasma [6] et qui sera détaillée plus loin (1.3.3.1) car nous l'emploierons dans le cadre de cette thèse, a été appliquée avec succès aux LELs [18]. Cette technique permet d'une part d'utiliser un onduleur plus court pour un même nombre de photons en sortie puisque la saturation est plus rapidement atteinte, et d'autre part de conserver les propriétés de la source harmonique injectée qui est cohérente. Dans la gamme spectrale des X durs où les sources harmoniques ne sont pas disponibles, il a été démontré qu'un LEL pouvait même être auto-injecté par le rayonnement produit dans la première moitié de l'onduleur [19].

Un des LELs les plus emblématiques est certainement le LCLS (Linac Coherent Light Source) [20], mis en service en 2009 à Stanford en Californie et représenté sur la figure 1.3 (a). Cette source permet de délivrer, avec une cadence comprise entre 50 et 120 Hz, des photons entre 200 eV et 25 keV (i.e. entre 6,2 nm et 0,5 Å) dans des impulsions de l'ordre de quelques mJ et de durées comprises entre la dizaine et la centaine de femtosecondes [21]. Une brillance pic de l'ordre de 10^{33} photons/(s · mm² · mrad² · 0,1% bandwidth) a été démontrée en régime SASE. Le LCLS peut être auto-injecté entre 4,5 et 11 keV ce qui lui permet d'atteindre, pour une même durée d'impulsion, 2 à 4 fois plus de photons par unité de bande passante qu'en régime SASE. De nombreux autres LELs ont vu le jour depuis 2009 comme l'European XFEL à DESY en Allemagne [22] dont le hall des onduleurs est illustré sur la figure 1.3 (b). Inauguré en 2017, ses performances sont similaires à celle du LCLS. Dans les X mous et les XUV, le LEL FLASH [23][24], également situé en Allemagne, offre des impulsions de quelques dizaines de μJ et quelques dizaines de femtosecondes entre 7 et 50 nm. Des performances équivalentes sont proposées à FERMI [25][26] en Italie qui dispose de deux lignes : l'une couvrant la gamme 4 - 20 nm, et l'autre la gamme 20 - 100 nm.



FIGURE 1.3 – (a) Photo des installations du LCLS, Stanford, Californie, Etats-Unis [27]. (b) Photo du hall des onduleurs de DESY, Hamburg, Allemagne [28].

Les LELs sont très performants mais les infrastructures nécessaires sont imposantes et extrêmement coûteuses à la construction et en fonctionnement. Nous nous tournons donc vers l'interaction laser-matière qui constitue une bonne alternative. Celle-ci offre en effet des possibilités uniques pour le développement de sources XUV à la fois ultra-courtes, cohérentes, et intenses mais avec l'avantage d'être plus compactes et à coût plus modéré.

1.2 Sources XUV cohérentes par génération d'harmoniques

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un phénomène non linéaire qui permet d'obtenir à partir d'un faisceau pompe de fréquence ω_{pompe} , un rayonnement constitué des fréquences ω_q avec q l'ordre harmonique telles que $\omega_{pompe} = q \cdot \omega_q$. Un tel rayonnement est obtenu lors de l'interaction de l'impulsion pompe avec une cible qui peut être gazeuse (première démonstration expérimentale à l'ordre 3 en 1969 [29], et jusqu'à l'ordre 300 en 1997 [30]) ou solide (première démonstration expérimentale en 1977 [31]).

1.2.1 Génération d'harmoniques sur cible solide

Lors de la focalisation d'une impulsion laser intense sur une cible solide, le champ électromagnétique est suffisant pour arracher les électrons des atomes neutres dès les premiers cycles optiques. La cible solide est ionisée, et devient un plasma qui se détend vers le vide. Si ce plasma présente un gradient de densité suffisamment court devant la longueur d'onde du laser, il réfléchit le reste de l'impulsion laser dans la direction spéculaire. On parle alors de miroir plasma. Notons que la génération d'un miroir plasma nécessite une impulsion laser ultra-courte (typiquement quelques dizaines de fs) au cours de laquelle le gradient n'a pas le temps de trop se détendre. Au cours de l'interaction, des mécanismes non linéaires génèrent des harmoniques d'ordres élevés émises elles aussi dans la direction spéculaire de réflexion du laser. On distingue ici deux mécanismes de génération d'harmoniques distincts, décrits dans [32][33], en fonction de l'intensité de l'impulsion pompe.

1.2.1.1 Régime non relativiste

Pour des intensités typiquement supérieures à quelques 10^{15} W · cm⁻², le mécanisme de génération harmonique est l'émission cohérente de sillage, aussi appelée CWE pour "Coherent Wake Emission", dont le principe physique a été découvert en 2006 [34]. Les différentes étapes de ce phénomène sont illustrées sur la figure 1.4. En (a), l'impulsion arrivant sur le miroir plasma avec une incidence oblique arrache les électrons appelés électrons

de Brunel [35] autour de la surface critique. Ces électrons sont accélérés par le champ, - notons que la vitesse des électrons est ici bien inférieure à c - puis renvoyés vers le plasma (figure (b)). Lorsqu'ils pénètrent le plasma, ces électrons tendent à former des pics de densité attosecondes. L'incidence de l'impulsion sur le plasma étant oblique, il en résulte un front de densité oblique, symbolisé en jaune sur la figure (c), qui se propage dans le plasma. Ce front de densité excite des oscillations plasma, visibles en (d). Un accord de phase transitoire et local peut alors se produire entre ces oscillations plasma et les modes électromagnétiques du plasma, ce qui résulte en une émission dans l'XUV dont le front d'onde est représenté en vert. Ce phénomène se produit périodiquement une fois par cycle optique, le spectre du rayonnement est donc constitué de toutes les harmoniques (paires et impaires) de la fréquence pompe. Soulignons que le rayonnement étant généré par les oscillations plasmas, aucune harmonique de fréquence supérieure à la pulsation plasma ne peut être obtenue.

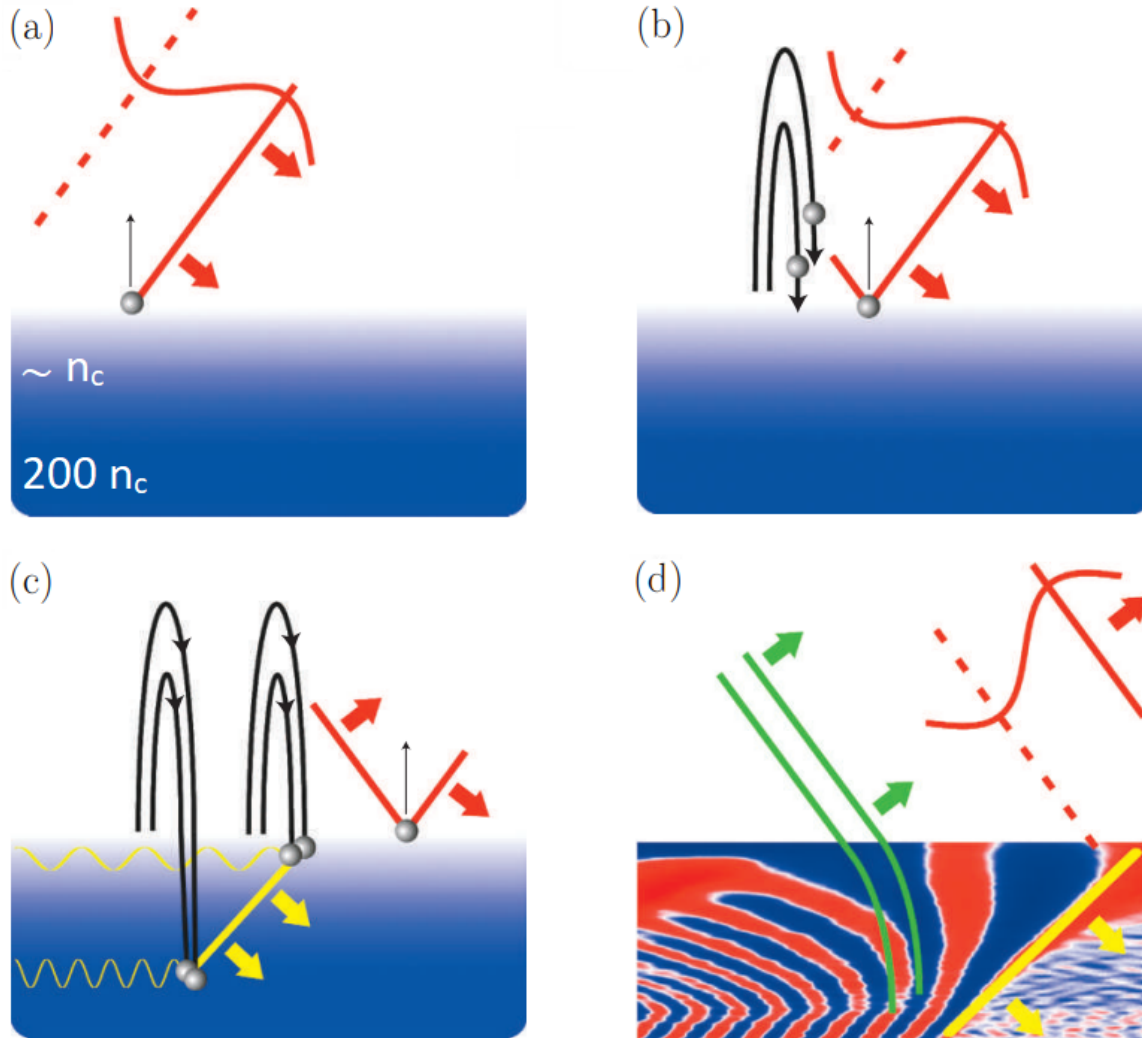


FIGURE 1.4 – Différentes étapes de l'émission cohérente de sillage. (a) Les électrons autour de la surface critique sont arrachés au plasma par le laser. (b) Les électrons de Brunel sont renvoyés vers le plasma. (c) Ces électrons se propagent dans le plasma suivant un front de densité oblique représenté en jaune. (d) Ils excitent des oscillations plasmas qui rayonnent en émettant une impulsion attoseconde, dont le front d'onde est représenté en vert, par cycle. Ce schéma est issu de [36].

1.2.1.2 Régime relativiste

Au delà de quelques $10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, la vitesse des électrons oscillant dans le champ se rapproche de la vitesse de la lumière. L'impulsion pompe est alors réfléchi par un miroir plasma oscillant à une vitesse relativiste (on parle de mécanisme ROM pour "Relativistic Oscillating Mirror"), ce qui provoque un effet Doppler périodique élargissant le spectre du faisceau réfléchi [37], comme illustré sur la figure 1.5. Il est à noter que la lumière réfléchi est comprimée temporellement, donnant lieu à des impulsions attosecondes. Simultanément à la production d'harmoniques, le laser accélère des paquets d'électrons relativistes de durée attoseconde [258][259] ainsi que des paquets d'ions.

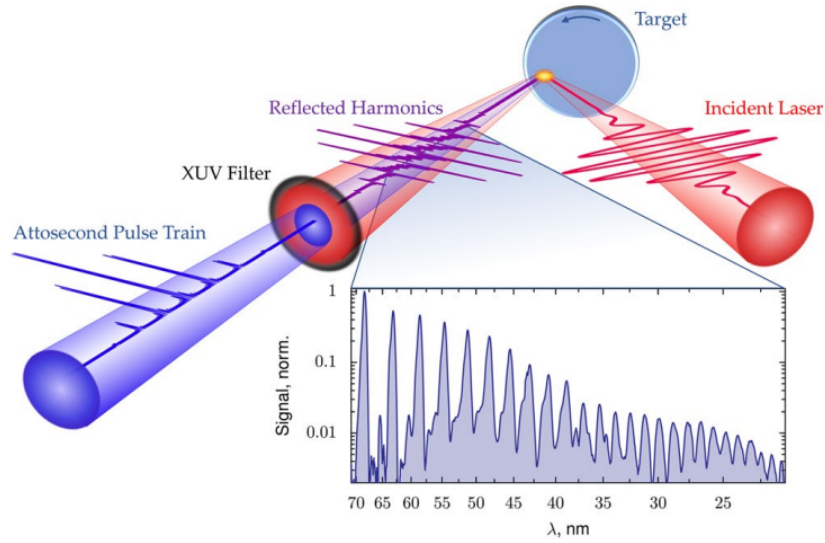


FIGURE 1.5 – Schéma de principe de la génération d’harmoniques sur cible solide issu de [38]. Le spectre montré ici est obtenu en régime relativiste avec une intensité laser de $8 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

Le spectre d’harmoniques générées sur cible solide dépend donc fortement de l’intensité de l’impulsion pompe utilisée, comme le montre la figure 1.6 issue de [39] pour des intensités de respectivement 3 et $8 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ sur une cible en plastique. Dans le cas d’une intensité laser de $3 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, le régime CWE non relativiste est responsable de la génération d’harmoniques de fréquences inférieures à la pulsation plasma. Lorsqu’on augmente l’intensité jusqu’à $8 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, les deux régimes coexistent : les harmoniques produites par CWE sont rejointes par des harmoniques plus étroites générées en régime ROM pour les fréquences supérieures à la pulsation plasma. Les harmoniques ROM sont en effet générées toutes en phase, contrairement aux harmoniques CWE qui sont générées à des positions différentes dans le gradient.

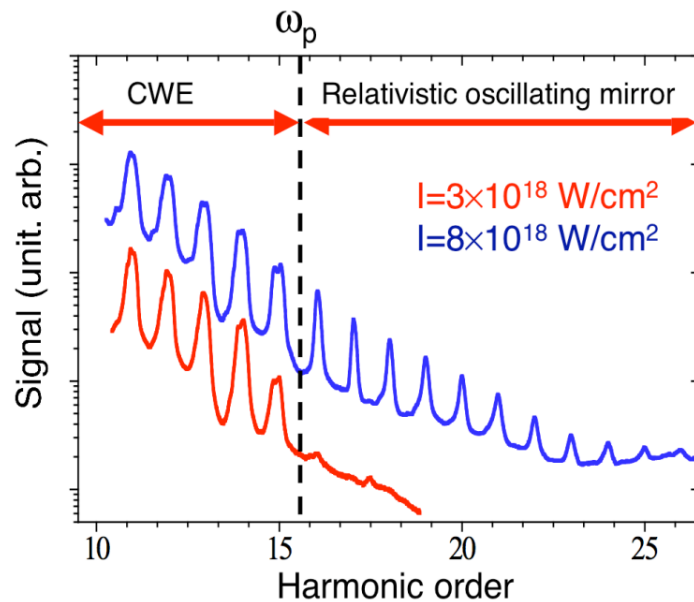


FIGURE 1.6 – Spectres harmoniques obtenus par focalisation d’une impulsion pompe sur une cible en plastique, issu de [39] pour deux intensités lasers différentes, respectivement 3 et $8 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

La génération d’harmoniques sur cible solide est un excellent candidat pour obtenir des impulsions énergétiques femtosecondes / attosecondes avec des impulsions pompes d’intensités modérées. L’article [40] rapporte la génération d’harmoniques par mécanisme ROM dans la gamme 40 - 80 nm et l’accélération corrélée d’électrons via ce processus au kHz. Des énergies de l’ordre de quelques dizaines de μJ ont été démontrées en régime relativiste dans la gamme 17 - 80 nm [41]. De récentes études numériques ont montré que des efficacités de 10^{-2} pourraient être atteintes autour de 80 nm [38].

1.2.2 Génération d'harmoniques sur cible gazeuse

Nous nous intéressons maintenant à la génération d'harmoniques sur cible gazeuse qui est au cœur de cette thèse puisque nous utilisons ce type de source pour l'injection d'un amplificateur XUV. Il est à noter qu'il est possible de générer des harmoniques dans des gaz moléculaires [42] mais nous nous concentrerons ici sur les gaz monoatomiques. Contrairement à la génération d'harmoniques sur cible solide qui peut être obtenue en régime non relativiste et en régime relativiste, la génération d'harmoniques sur cible gazeuse requiert une ionisation partielle du gaz et n'est donc possible qu'en régime non relativiste.

Le principe est illustré sur la figure 1.7. Une impulsion infrarouge intense est focalisée par une lentille longue focale dans une cellule remplie de gaz, dans notre cas d'argon. L'intensité au niveau du foyer est typiquement de l'ordre de quelques $10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'émission harmonique est due à la réponse hautement non linéaire d'un atome à un champ intense.

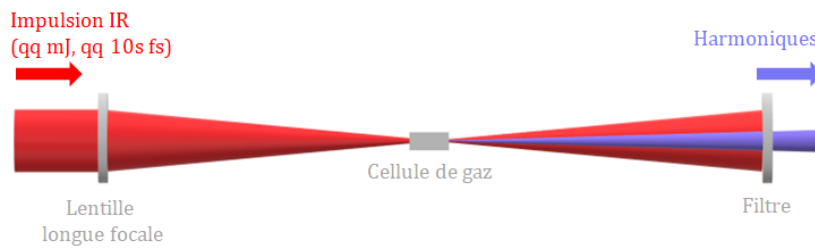


FIGURE 1.7 – Principe de la génération d'harmoniques d'ordres élevés sur cible gazeuse.

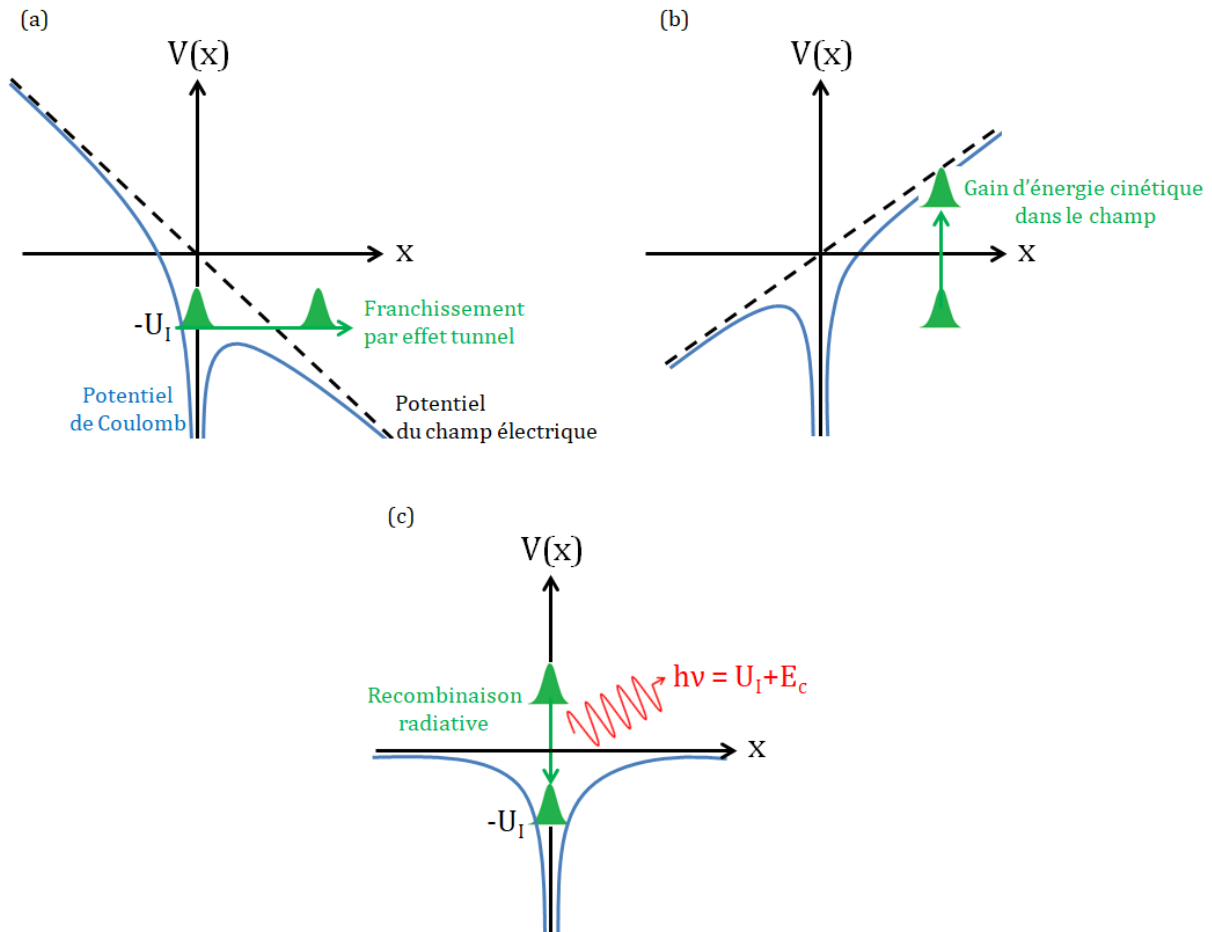


FIGURE 1.8 – Processus de génération d'harmoniques sur cible gazeuse en trois étapes. (a) Ionisation par effet tunnel. (b) Accélération de l'électron arraché par le champ laser. (c) Recombinaison radiative de l'électron avec l'ion parent et émission d'un photon harmonique.

Le modèle le plus utilisé pour décrire le processus de génération d'harmoniques dans un gaz monoatomique d'un point de vue microscopique est représenté sur la figure 1.8. Il s'agit d'une approche semi-classique proposée par P. Corkum en 1993 [43], généralisée rapidement après dans le cadre de la mécanique quantique [44]. En (a), le champ laser intense abaisse la barrière de potentiel vue par l'électron, ce qui permet à ce dernier de la franchir par effet tunnel. Ce mécanisme est expliqué plus en détails dans la section 2.2.1.2. Le potentiel attracteur du noyau est alors négligeable, et l'électron est accéléré par le champ (figure (b)) et gagne une énergie cinétique E_c dans le continuum. Lors du changement de signe du champ, l'électron est décéléré et se recombine avec l'ion parent en (c), en émettant un photon dont l'énergie dépend de l'énergie cinétique gagnée par l'électron et du potentiel d'ionisation U_I de l'atome :

$$h\nu = U_I + E_c \quad (1.2)$$

L'énergie cinétique accessible pour l'électron dépend de sa trajectoire, illustrée sur la figure 1.9, et forme un continuum. C'est la périodicité du phénomène, qui se produit à chaque demie période laser lorsque l'amplitude du champ est suffisante pour l'ionisation, qui donne la structuration du spectre à 2ω . En raison de la nature centro-symétrique et isotrope du gaz, seules les harmoniques impaires interfèrent constructivement et sont donc émises. L'énergie cinétique acquise par les électrons étant bornée, l'énergie maximum d'un photon harmonique est donnée par :

$$\epsilon_{cut-off} = U_I + 3,17U_p \quad (1.3)$$

Cela définit un ordre de coupure $N_{cut-off} = \epsilon_{cut-off}/\hbar\omega$ au delà duquel on n'observe plus d'harmoniques.

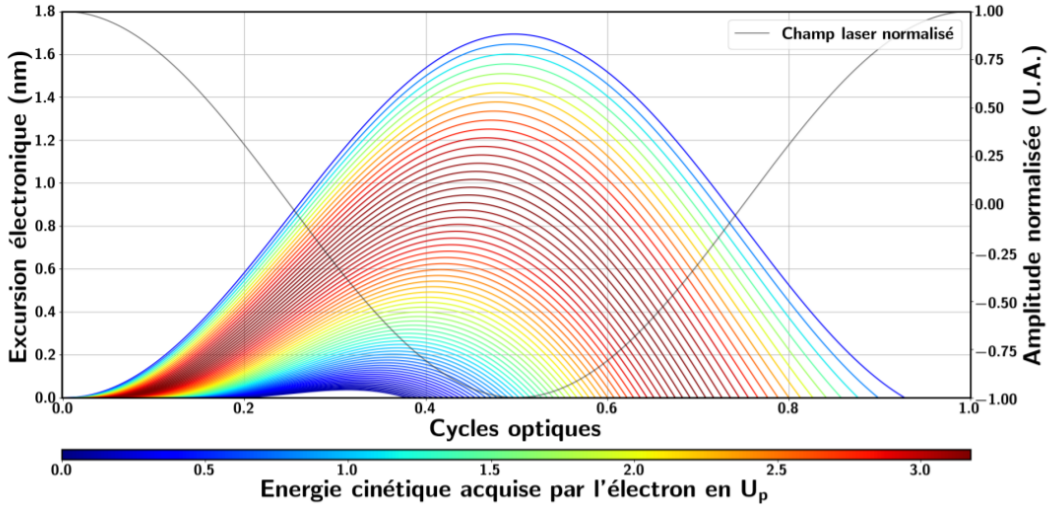


FIGURE 1.9 – Trajectoires électroniques calculées dans [45] dans le continuum pour une intensité laser $I = 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ à 800 nm. La recombinaison est possible lorsque la trajectoire recoupe l'axe des abscisses correspondant à la position de l'ion parent. L'échelle de couleur des trajectoires est liée à la quantité d'énergie cinétique acquise par l'électron dans le continuum. Cette dernière est exprimée en U_p qui représente le potentiel pondérateur.

Il est à noter que le régime de l'ionisation tunnel est absolument indispensable à une génération efficace d'harmoniques, afin que la trajectoire de l'électron émis dans le continuum soit contrôlée via la phase d'émission ce qui est impossible en régime de suppression de la barrière (voir section 2.2.1.2). Cela requiert donc d'avoir une intensité laser inférieure à l'intensité seuil de suppression de la barrière définie en (2.28).

On considère maintenant une approche macroscopique, la réponse de l'atome unique étant insuffisante pour expliquer le processus de génération d'harmoniques. Il est nécessaire de considérer tous les dipôles non linéaires existants au niveau microscopique. Une bonne efficacité de conversion est obtenue lorsque tous ces dipôles sont en phase les uns avec les autres et peuvent interférer constructivement. C'est le cas lorsqu'il y a accord de phase entre le champ harmonique généré et le champ générateur. Les conditions favorisant l'accord de phase ont été décrites dans [46][47]. En pratique, l'optimisation du respect de la condition d'accord de phase est effectuée en variant la durée et l'énergie du faisceau pompe, la pression du gaz, et en ajustant la phase de Gouy (déphasage connu induit par la focalisation du laser) grâce à l'ouverture du faisceau et la position du plan focal dans la cellule.

En plus d'être compactes, aisées à mettre en place expérimentalement et peu coûteuses, les harmoniques générées sur cible gazeuse offrent d'excellentes performances dans de nombreux domaines. Ces sources offrent en

effet une excellente cohérence temporelle [48] et spatiale [5][49]. Le faisceau harmonique est hautement collimaté, présente un profil quasiment gaussien avec une divergence de l'ordre du mrad, comme nous le verrons dans le chapitre 4, et un front d'onde limité par la diffraction [50]. L'émission harmonique est entièrement polarisée et de polarisation ajustable [51]. D'un point de vue spectral, la gamme dans laquelle l'efficacité de conversion est maximale dépend de la longueur d'onde du laser de pompe, mais aussi du gaz utilisé. L'émission harmonique sur cible gazeuse a été démontrée dans une très large gamme en dessous de 80 nm. Les harmoniques de longueurs d'onde les plus basses (i.e. d'ordres les plus élevés) sont produites dans les gaz légers tels que l'hélium dans lequel des harmoniques jusqu'à l'ordre 125 ont été générées [52]. La "fenêtre de l'eau" a été même atteinte plus récemment, toujours dans l'hélium [53]. La durée typique de telles harmoniques est de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, mais peut descendre jusqu'à quelques centaines d'attosecondes [54]. Néanmoins, l'efficacité de conversion de ce type de source reste faible (typiquement comprise entre 10^{-8} et 10^{-4}). Celle-ci dépend en effet d'une part de la réponse d'un atome unique soumis à un champ intense, et est d'autre part limitée par le déphasage entre les dipôles individuels dans un contexte macroscopique. La volonté de gagner en photons justifie ainsi le choix de ce rayonnement, aux excellentes propriétés par ailleurs, pour l'injection d'un amplificateur XUV.

1.3 Sources lasers XUV par interaction laser-plasma

Depuis la première démonstration expérimentale de l'effet laser réalisée en 1960 dans un rubis à 694,3 nm [1], de très nombreuses tentatives d'élargir la plage de longueurs d'onde disponibles ont vu le jour, notamment dans les XUV. La longueur de pénétration des XUV est très courte dans presque tous les matériaux (typiquement inférieure au micron). De fait, la réflectivité de ces longueurs d'onde sur des surfaces optiques est extrêmement faible. Cette propriété a rendu pendant longtemps l'effet laser dans l'XUV plus difficile à réaliser que dans d'autres gammes spectrales. Pourtant, il est démontré expérimentalement en 1985 [2], suite aux premiers soupçons de P. Jaeglé d'une inversion de population responsable d'une anomalie d'absorption dans le spectre d'un plasma d'aluminium en 1971 [55]. Depuis, un nombre considérable de transitions ont été étudiées.

Comme pour les lasers émettant dans le visible ou l'infrarouge, le principe des lasers XUV repose sur l'inversion de population entre deux niveaux d'énergie d'une espèce lasante. Les lasers XUV nécessitent néanmoins quelques adaptations par rapport aux lasers classiques, liées aux particularités de la gamme spectrale considérée. D'abord, les longueurs d'onde souhaitées sont courtes et correspondent à des gaps en énergie importants entre les deux niveaux de la transition. Typiquement quelques dizaines à quelques centaines d'eV sont requis, alors que les énergies de liaison des solides ou des molécules sont limitées à quelques eV seulement. La solution consiste en l'utilisation d'un plasma, constitué d'ions multichargés et qui dispose de ce type de transition, en temps que milieu amplificateur. Ensuite, comme nous l'évoquons plus tôt, les propriétés du rayonnement XUV rendent l'architecture laser conventionnelle, constituée du milieu amplificateur et d'une cavité optique résonante, inappropriée. De plus, le temps de vie du gain du plasma est trop court (quelques picosecondes à quelques centaines de picosecondes) pour permettre une amplification en plusieurs passages. Fort heureusement, les gains promis par ce type de milieu amplificateur sont élevés et permettent une amplification conséquente en un passage unique.

Suite à l'inversion de population, le plasma va émettre un rayonnement en régime d'Amplification (par l'émission stimulée) de l'Emission Spontanée. Ce régime, aussi nommé régime ASE, est le mode de fonctionnement historique des lasers XUV. Nous décrivons ici en un premier temps les différents schémas de pompage de l'inversion de population qui ont été proposés.

1.3.1 Schémas de pompage de l'inversion de population

1.3.1.1 Pompage par recombinaison

Le schéma de pompage par recombinaison est le premier schéma à avoir été proposé théoriquement [56], puis à avoir été étudié expérimentalement de manière intensive dans le cas des espèces hydrogénoïdes [57] et lithioïdes [58]. La figure 1.10 donne les longueurs d'onde des transitions accessibles par ce schéma pour ces ions. Le principe du schéma de pompage par recombinaison est illustré sur la figure 1.11 : on génère un plasma d'état de charge $Z + 1$ et le mécanisme de recombinaison collisionnelle peuple préférentiellement les niveaux excités de l'ion d'état de charge inférieur Z . Une désexcitation très rapide par cascade radiative collisionnelle vers les niveaux inférieurs permet de peupler le niveau supérieur de la transition, tandis qu'une transition radiative rapide permet de dépeupler le niveau inférieur de la transition, et ainsi de bâtir l'inversion de population. Le taux de recombinaison collisionnelle varie en n_e^3/T_e avec respectivement n_e et T_e la densité et la température électroniques du plasma. L'inversion de population nécessite donc un plasma très dense (tout en restant sous la densité critique à la longueur d'onde considérée) et froid (quelques eV).

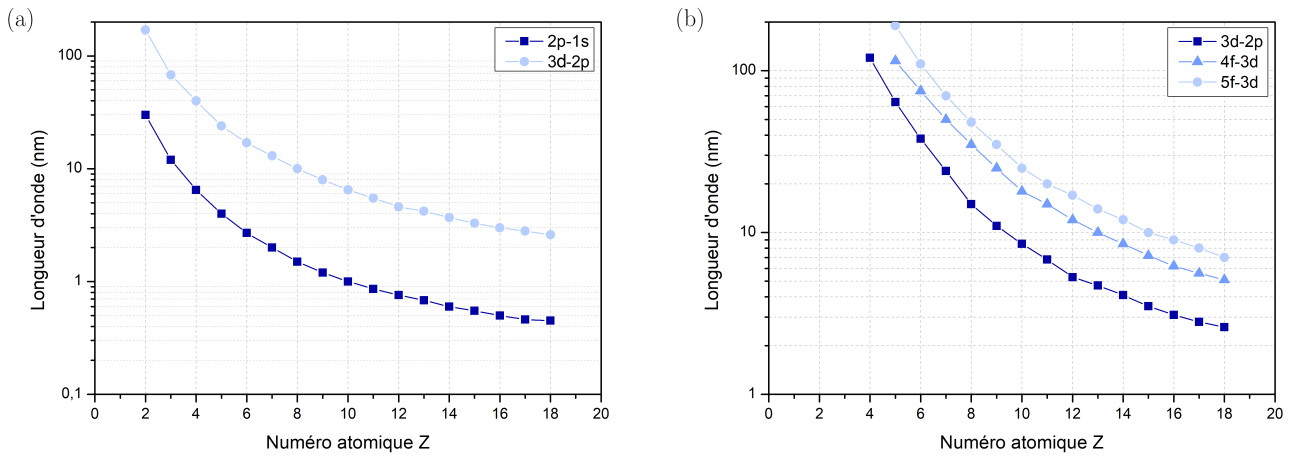


FIGURE 1.10 – Longueurs d’onde des transitions XUV accessibles en schéma de pompage par recombinaison pour les espèces (a) hydrogénoïdes, et (b) lithiuoïdes.

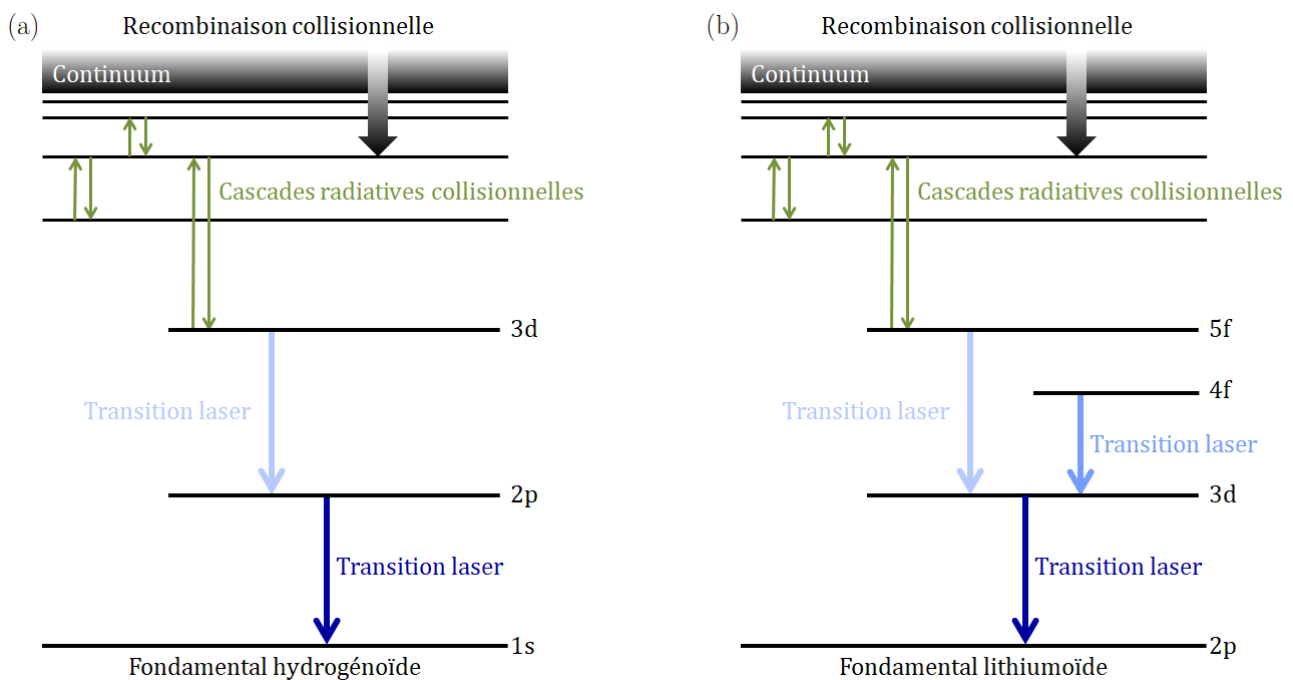


FIGURE 1.11 – Principe du schéma d’inversion de population par recombinaison dans le cas (a) des ions hydrogénoïdes, (b) des ions lithiuoïdes.

Dans un premier temps, le mécanisme d’ionisation permettant d’atteindre les densités requises pour ce schéma de pompage (typiquement 10^{20} cm^{-3}) était purement collisionnel, dû aux durées d’impulsions pompes disponibles relativement longues (entre quelques nanosecondes et quelques dizaines de picosecondes), entraînant alors un chauffage conséquent du plasma en contradiction avec les conditions requises. Seul un refroidissement rapide du plasma permettait alors d’obtenir les conditions thermodynamiques souhaitées. Diverses techniques ont été proposées dans ce but. Un design particulier de cible a permis de démontrer un gain de l’ordre de 10 cm^{-1} dans l’Al¹¹⁺ à 12,9 nm [59]. Le confinement électromagnétique du plasma suggéré dans [60][61] a, quant à lui, permis d’atteindre des gains similaires dans le carbone VI à 18,2 nm. Soulignons que dans ce schéma de recombinaison collisionnelle standard, le niveau inférieur de la transition laser est le premier niveau excité de l’ion. C’est le cas pour la transition 3d - 2p de l’ion hydrogénoïde, et les transitions 5f - 3d et 4f - 3d de l’ion lithiuoïde.

Le développement de la technique CPA ("Chirped Pulse Amplification") [62] a ensuite apporté les intensités suffisantes pour un autre mécanisme d’ionisation, basé sur l’effet tunnel (voir 2.2.1.2), permettant d’obtenir de fortes densités tout en limitant le chauffage du plasma. Cela a permis de démontrer des gains de 20 cm^{-1} à 13,5 nm dans le lithium [63][64]. A ce jour, les produits gain-longueur mesurés avec ce schéma de pompage restent cependant faibles (typiquement compris entre 3 et 6) même en utilisant des impulsions pompes ultra-courtes, et

le régime saturé n'a pas été démontré. Notons que dans cette configuration, le niveau inférieur de la transition est le fondamental comme c'est le cas pour les transitions $2p - 1s$ de l'ion hydrogénoïde et $3d - 2p$ de l'ion lithiomoïde. L'inversion de population n'est alors possible que si le fondamental n'est pas du tout peuplé avant recombinaison.

1.3.1.2 Pompage par photoionisation en couche interne

Le schéma de pompage par photoionisation en couche interne a été proposé en 1967 [65]. Son principe est exposé schématiquement sur la figure 1.12 dans le cas du néon. Il est basé sur la photoionisation du plasma, qui se produit lorsque l'énergie d'un photon incident est supérieure ou égale à l'énergie de liaison entre un électron et un atome. Le photon est alors absorbé, et son énergie permet de libérer l'électron. Dans ce schéma, l'électron est arraché de la couche interne notée K. Le trou ainsi créé est comblé par désexcitation d'un électron d'une couche externe notée L, ce qui résulte en l'émission d'un photon de haute énergie (typiquement autour du keV). Il est à noter que ce phénomène ne se produit qu'en présence de photons de pompe suffisamment énergétiques dans la gamme spectrale des rayons X. L'inconvénient principal de ce schéma réside dans la nécessité d'utiliser une source pompe suffisamment intense et brève pour assurer la création de l'inversion de population et contrebalancer deux phénomènes qui limitent son temps de vie : d'une part, le peuplement du niveau inférieur de la transition par ionisation collisionnelle à partir du fondamental, et d'autre part le dépeuplement du niveau supérieur de la transition par effet Auger (L'énergie émise par désexcitation est alors transférée à un électron). De plus, la durée ultra-courte de l'inversion de population et donc du gain implique soit un pompage longitudinal, soit un pompage par un faisceau présentant un front d'onde incliné [66].

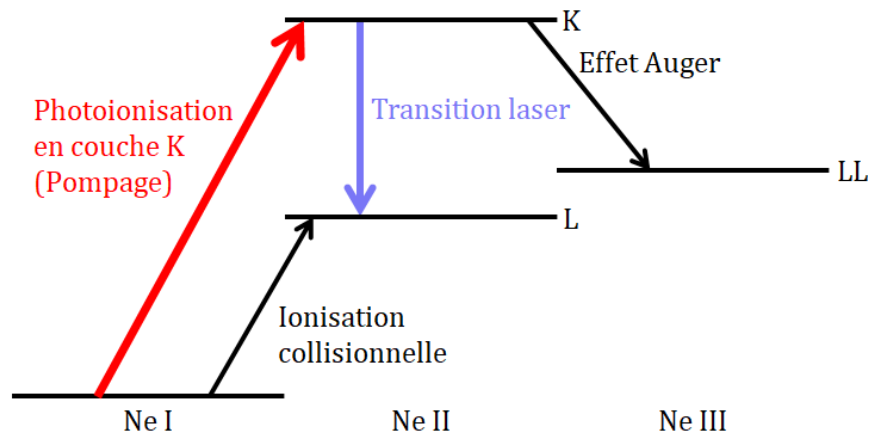


FIGURE 1.12 – Principe du schéma d'inversion de population par photoionisation en couche interne pour le néon.

La faisabilité de ce schéma a été démontrée en 1992 par Kaypten [67], mais il faudra attendre 2012 pour la première démonstration expérimentale d'un laser XUV par photoionisation en couche interne [68]. Elle a été réalisée au LCLS, grâce à un XFEL en régime SASE émettant à 960 eV qui a permis une inversion de population dans le néon ionisé une fois résultant en une émission à 849 eV soit 1,46 nm. Le coefficient de gain est estimé à 70 cm^{-1} , la durée du gain à quelques dizaines de femtosecondes seulement.

Une autre approche proposée consisterait à utiliser le rayonnement bêtatron comme pompe [69]. Des simulations prédisent des gains de l'ordre de 60 cm^{-1} à 3,2 nm dans l'azote, ainsi qu'à 1,5 nm dans le néon, bien que ceux-ci n'aient jamais été observés en pratique.

1.3.1.3 Pompage par collisions électroniques

Le schéma sur lequel nous nous focaliserons dans cette thèse est le schéma de pompage collisionnel, proposé en 1975 [70]. La première amplification a été observée en 1985 [2], et la saturation de l'amplification à, quant à elle, été atteinte en 1992 [71]. C'est aujourd'hui le schéma le plus utilisé puisqu'il est robuste, permet d'obtenir des gains élevés dans des plasmas de natures très différentes et qu'il est le seul à permettre d'atteindre la saturation à l'heure actuelle. Le principe de ce schéma est représenté sur la figure 1.13, par un système à trois niveaux. Le niveau supérieur de la transition laser est peuplé par excitation collisionnelle à partir du niveau fondamental de l'ion lasant. La désexcitation du niveau supérieur vers le fondamental est interdite. La transition radiative entre le niveau inférieur et le fondamental est en revanche très probable et rapide. Une inversion de population

peut alors être obtenue entre ces deux niveaux excités, résultant en une émission laser. Pour permettre le pompage de la transition, il est nécessaire que l'énergie moyenne des électrons du plasma soit supérieure ou égale à l'énergie du niveau supérieur de la transition. Contrairement au schéma de pompage par recombinaison, les conditions thermodynamiques sont assez faciles à réaliser expérimentalement puisque le plasma doit être chaud et dense. Les fortes températures et densités électroniques augmentent en effet la probabilité de collisions entre les électrons et les ions, et favorisent le pompage de la transition.

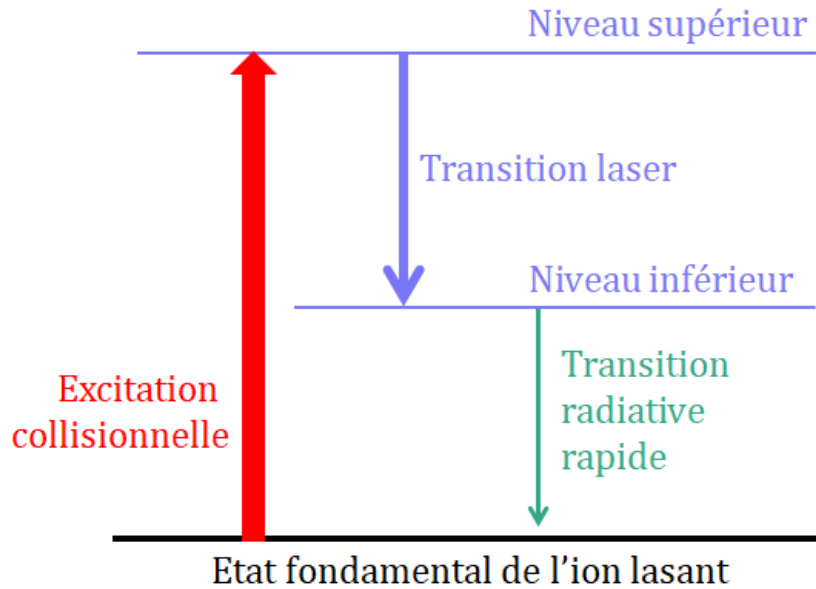


FIGURE 1.13 – Principe du schéma d'inversion de population par collisions.

Les ions néonoïdes, nickeloïdes et palladiumoïdes sont d'excellents candidats pour ce schéma de pompage puisqu'ils sont très stables sur une large gamme de densité et de température grâce à leur structure électronique constituée d'une couche ou d'une sous-couche complète. Les ions néonoïdes et nickeloïdes ont été particulièrement étudiés et ont permis de démontrer expérimentalement l'effet laser sur une très large gamme spectrale, allant de 3 à 90 nm, comme le montre la figure 1.14. Il est à noter que les ions nickeloïdes sont particulièrement adaptés pour les courtes longueurs d'onde.

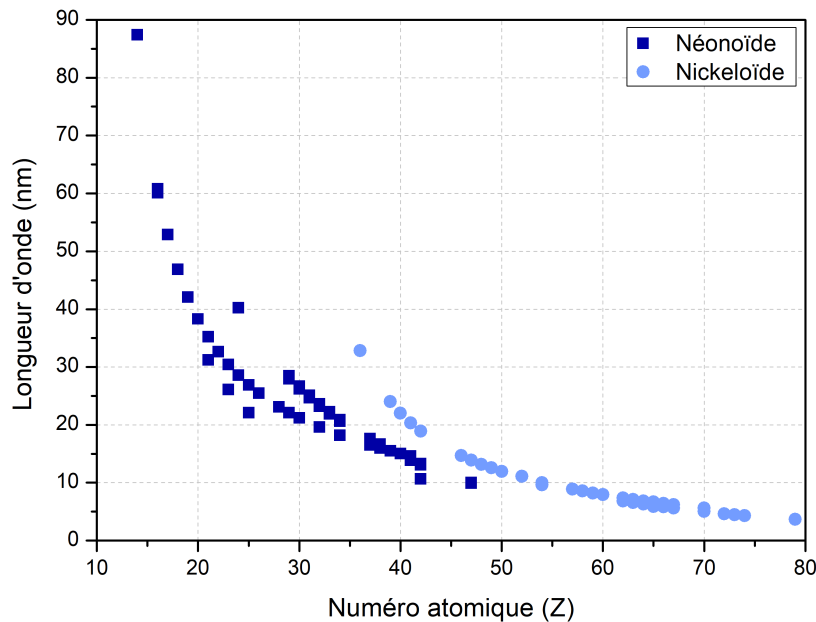


FIGURE 1.14 – Longueurs d'onde des transitions démontrées expérimentalement en schéma de pompage collisionnel pour les ions néonoïdes et les ions nickeloïdes. Données issues de [72].

1.3.2 Etat de l'art des lasers XUV collisionnels

Les lasers XUV à schéma de pompage collisionnel ont été réalisés avec différentes architectures, que nous étudions dans cette section, et dont l'évolution est en grande partie corrélée au développement des lasers de pompe.

1.3.2.1 Lasers XUV en régime quasi-stationnaire

Les premiers lasers XUV collisionnels ont été réalisés sur des installations lasers de hautes énergies (quelques centaines de J) et de longues durées d'impulsions (quelques centaines de ps). Ces impulsions sont focalisées en une ligne focale sur une cible solide, créant ainsi un plasma de quelques centimètres de long sur quelques centaines de microns de large. La durée longue de l'impulsion pompe permet le chauffage des électrons par Bremsstrahlung inverse. Le plasma atteint ainsi des conditions de densité et de température favorables à un pompage efficace de la transition laser et donc à une inversion de population. Un rayonnement XUV est alors émis depuis les deux extrémités de la colonne de plasma, comme illustré sur la figure 1.15. Ce régime est appelé régime quasi-stationnaire, ou QSS pour "Quasi-Steady State", en raison des faibles variations du gain durant le pompage.

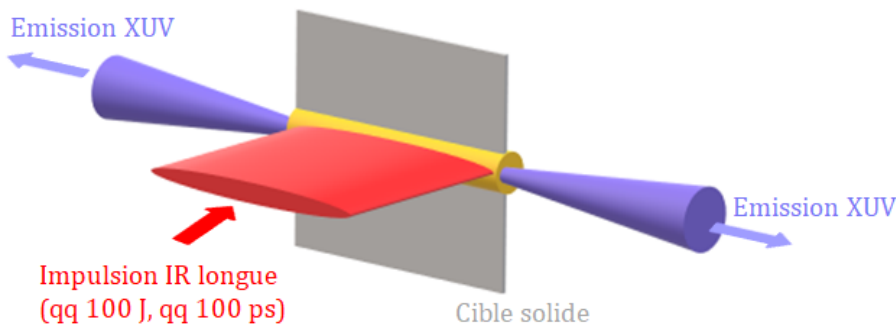


FIGURE 1.15 – Principe du laser XUV collisionnel en régime QSS.

La première démonstration de ce schéma date de 1985 [2] et a été réalisée au LLNL (Lawrence Livermore National Laboratory) dans du sélénium néonoïde à 20,86 nm et 20,93 nm avec un gain de 6 cm^{-1} . Quelques années plus tard, des longueurs plus courtes ont été atteintes : respectivement 6,6 nm et 7 nm dans l'euprécium nickelé [73], et 3,56 nm dans l'or nickelé [74]. Néanmoins, les gains obtenus restaient faibles (quelques cm^{-1}). L'utilisation d'impulsion de pompe plus courtes ($< 100 \text{ ps}$) ont permis d'augmenter les coefficients de gains atteints, par exemple 15 cm^{-1} dans le fer néonoïde à 25,5 nm [75], et même d'atteindre la saturation notamment dans l'argent nickelé à 13,9 nm [76], dans l'étain nickelé à 11,9 nm [77], ou encore dans le zinc néonoïde à 21,2 nm [78].

Pour atteindre la saturation, l'un des challenges inhérent à l'architecture qu'il a fallu relever est la réfraction du faisceau XUV par le plasma, qui présente un fort gradient de densité électronique dans la direction orthogonale à la cible. Les photons XUV sortent par conséquent rapidement de l'étroite zone de gain, ce qui réduit la longueur d'amplification effective et donc l'énergie des impulsions émises. Différentes méthodes ont été proposées pour compenser cet effet, telle que l'utilisation de cibles incurvées [79] ou encore de façon plus efficace l'utilisation d'une ou de plusieurs préimpulsions [80], ce qui permet en effet de créer un pré-plasma de faible gradient de densité et d'améliorer l'absorption de l'impulsion principale. La longueur d'amplification a ainsi pu être considérablement augmentée, jusqu'à quelques centimètres.

Le seul laser XUV QSS actuellement toujours en fonctionnement est celui de PALS, situé à Prague. C'est un laser à zinc néonoïde qui émet à 21,2 nm et fonctionne en double passage avec une demi-cavité [78] grâce à un miroir multicouches placé à une extrémité de la colonne de plasma, comme le montre la figure 1.16. Cette architecture présente l'avantage d'augmenter l'énergie de l'impulsion émise et d'améliorer la qualité du faisceau, sans utiliser d'énergie de pompe supplémentaire. Les lasers en régime QSS sont parmi les lasers XUV les plus énergétiques : celui de PALS permet d'atteindre typiquement entre 4 et 10 mJ [81][82].

Cependant, la durée de vie du gain, liée à la durée de l'impulsion pompe, est longue. Cela mène à des impulsions de quelques centaines de picosecondes empêchant l'utilisation de ce régime pour l'étude de phénomènes physiques ultra-rapides, comme par exemple la dynamique atomique ou moléculaire. De plus, l'énergie pompe importante requise nécessite l'utilisation d'installations lasers de grandes tailles à l'accès limité, et basse cadence

(un tir toutes les 30 minutes à PALS). Les recherches se sont alors tournées vers l'utilisation de lasers de pompe plus compacts, offrant un taux de répétition plus élevé à moindre coût.

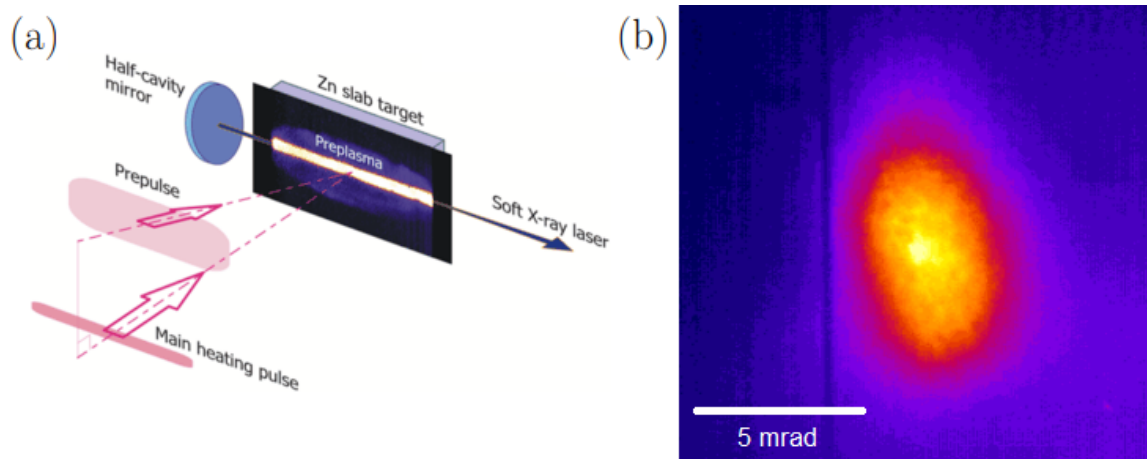


FIGURE 1.16 – (a) Schéma à demie cavité du laser QSS à zinc néonoïde de PALS (Prague, République tchèque). (b) Profil spatial du faisceau XUV : divergence de $3,5 \text{ mrad} \times 5,5 \text{ mrad}$, énergie de 4 mJ [81][83].

1.3.2.2 Lasers XUV en régime transitoire

Le régime transitoire a permis de réduire de façon significative l'énergie nécessaire au pompage en comparaison des lasers XUV QSS. Ce schéma a principalement été étudié dans le cas de cibles solides, mais est également applicable aux cibles gazeuses [84]. Il a été proposé en 1989 [85], puis démontré expérimentalement en 1997 à 32,6 nm dans du titane néonoïde [86][87]. La saturation a été atteinte dans ce régime pour la première fois à 30,2 nm dans du germanium néonoïde avec une onde inhomogène (présentant un front d'énergie non parallèle à la cible) [88]. Le principe est ici de découpler la génération des ions lasants et le pompage de la transition laser grâce à l'utilisation de deux impulsions de quelques joules, séparées de quelques centaines de picosecondes. La première impulsion est longue (quelques centaines de ps) et d'intensité modérée ($\approx 10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$). Elle permet de générer un pré-plasma constitué d'ions néonoïdes ou nickeloides à basse température électronique. La seconde impulsion est courte (de l'ordre de la ps) et permet de chauffer les électrons, assurant ainsi le pompage efficace de la transition. La brutale augmentation de température des électrons permet d'induire de fortes inversions de population et donc de forts gains (typiquement plusieurs dizaines de cm^{-1}). Grâce à ces gain élevés, la saturation de l'amplification est atteinte en quelques millimètres, au lieu de quelques centimètres en régime QSS. Un autre atout de ce schéma est que les durées d'impulsions sont relativement courtes : des impulsions de durée 2 ps ont été mesurées à 13,9 nm dans l'argent nickeloides [89]. Les ions lasants étant détruits par surionisation, le gain ne dure en effet que quelques picosecondes.

Initialement, les deux impulsions étaient focalisées en incidence quasi-normale en deux lignes focales superposées sur la cible solide [86], comme sur la figure 1.17 (a). Dans cette configuration, les gains courts limitent naturellement la longueur effective d'amplification : typiquement pour un gain de 10 ps, les photons XUV ne peuvent se propager que sur une distance de l'ordre de 3 mm avant d'expérimenter un gain local significativement plus faible. L'utilisation d'un schéma de pompage en onde progressive (en anglais, *traveling-wave pumping*) a permis la synchronisation du chauffage du plasma par l'impulsion courte avec la propagation des photons XUV dans la colonne de plasma, résultant en un allongement de la longueur d'amplification effective et en une amélioration conséquente de l'émission [90]. Peu de temps après ça, un schéma de pompage en incidence rasante, aussi appelé GRIP pour "*Grazing Incidence Pumping*" et illustré sur la figure 1.17 (b), a vu le jour [91]. Cet arrangement permet d'allonger le chemin parcouru dans la zone de gain par l'impulsion courte en la réfractant. Cela résulte en une optimisation de l'efficacité de couplage entre la pompe et le pré-plasma, et donc en une amélioration de l'efficacité de couplage entre la pompe et le pré-plasma, ce qui permet de produire un effet laser avec moins de 100 mJ par impulsion infrarouge. Par ailleurs, l'angle d'incidence de l'impulsion principale peut être ajusté pour maximiser le trajet parcouru et la densité électronique à laquelle l'énergie pompe est absorbée [92]. Plus récemment, il a été montré que la stabilité des lasers XUV transitoires pouvait être améliorée grâce au schéma DGRIP, dans lequel les deux impulsions sont envoyées en incidence rasante [93] : une énergie de plus de 2 μJ par impulsion a pu être maintenue pendant plusieurs heures de tirs à 10 Hz.

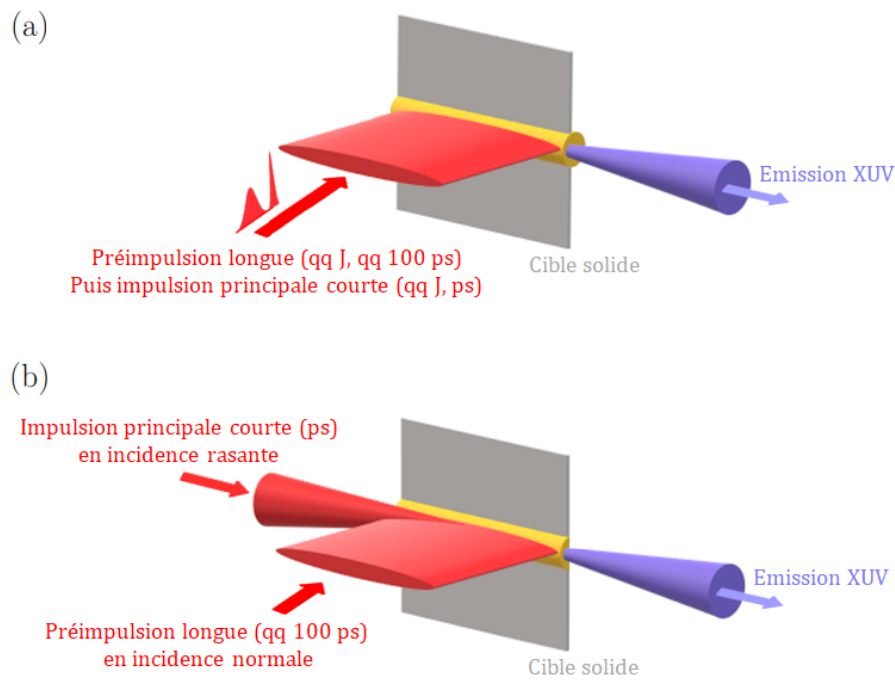


FIGURE 1.17 – Principe du laser XUV collisionnel en régime transitoire : (a) schéma initial, (b) schéma GRIP.

Un autre atout de ces sources est le taux de répétition disponible : celui-ci a pu être considérablement amélioré jusqu'à atteindre 100 Hz en 2014 à des longueurs d'onde inférieures à 15 nm [94], puis 200 Hz et même 400 Hz en 2017 à 18,9 nm [95] comme l'illustre la figure 1.18 (a). Tous ces résultats ont été obtenus par l'équipe de J. Rocca au Colorado State University, qui a également établi l'accessibilité d'une large gamme spectrale en régime transitoire [96][97]. Comme on peut le voir sur la figure 1.18 (b), la saturation a été démontrée jusqu'à 6,85 nm dans du gadolinium nickelé, et l'amplification jusqu'à 5,85 nm dans un plasma de dysprosium [98].

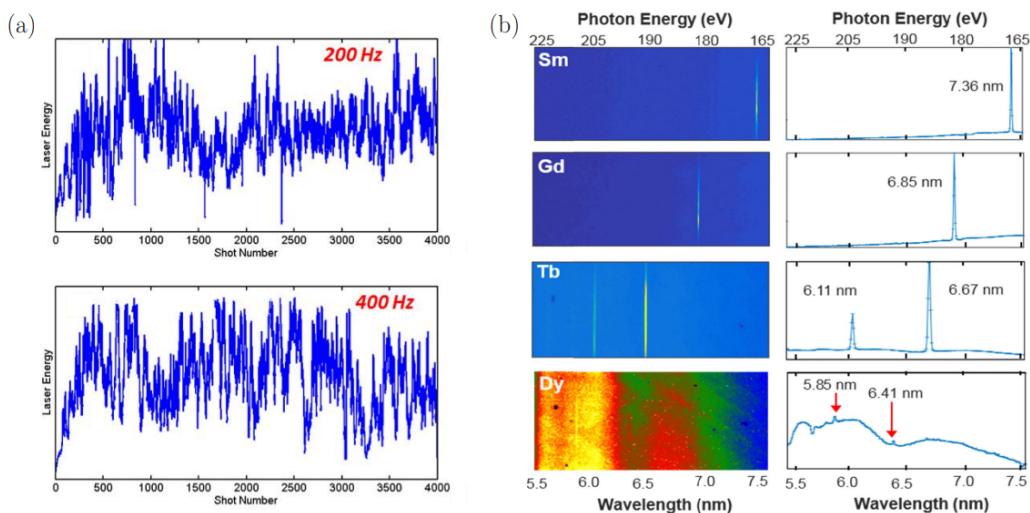


FIGURE 1.18 – Résultats obtenus au Colorado State University en régime transitoire : (a) Cadence de 200 Hz et 400 Hz démontrées dans du molybdène à 18,9 nm [95]. (b) Spectres obtenus dans des plasmas de lanthanides [98].

Comme les lasers XUV produits en régime QSS, les lasers transitoires disposent d'une faible cohérence spatiale couplée à une forte cohérence temporelle. Dans le cas des lasers transitoires, bien plus courts que les lasers QSS, cela se traduit par un faisceau fortement inhomogène, semblable à du speckle [99]. Ce phénomène ne se produit en effet que pour des durées d'impulsions typiquement inférieures à quelques picosecondes, et disparaît par effet de moyennage temporel. Les propriétés spatiales des lasers transitoires ont pu être améliorées grâce à l'injection d'harmoniques d'ordres élevés (voir 1.3.3.1), démontrée pour la première fois dans ce régime en 2006 dans un plasma de titane néonoïde [100].

1.3.2.3 Lasers XUV en régime d'ionisation par le champ

Nous en venons maintenant à un schéma d'un intérêt tout particulier, puisqu'il est au cœur de cette thèse. Le développement des lasers XUV en régime d'ionisation par le champ, ou régime OFI pour "Optical Field Ionization", a été rendu possible par le développement des lasers Ti :Sa délivrant des impulsions ultra-courtes et intenses. Le principe de ce schéma est représenté sur la figure 1.19. Une impulsion ultra-brève (quelques dizaines de fs) est focalisée dans un gaz avec une intensité suffisante (typiquement supérieure à quelques 10^{16} - 10^{17} $\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$) pour permettre l'ionisation de ce gaz par suppression de la barrière de potentiel. Ainsi, contrairement aux schémas précédents, l'ionisation n'est pas induite par les collisions mais directement par le champ laser. Les électrons libérés sont chauffés et permettent le pompage, ici en géométrie longitudinale, de la transition laser par excitation collisionnelle, ce qui assure l'inversion de population.



FIGURE 1.19 – Principe du laser XUV collisionnel en régime OFI.

Ce régime a été proposé en 1994 [101] pour trois ions multichargés différents dont les longueurs d'onde et les transitions sont répertoriées dans le tableau 1.1 et dont les schémas sont représentés sur la figure 1.20. Historiquement, la première génération d'une émission laser en régime OFI a été réalisée dans le xénon palladiumoïde en 1995 [3]. La saturation de l'amplification a été démontrée cinq ans plus tard avec ce même ion [102], et peu après dans le cas d'une émission à 32,8 nm [4] correspondant à la transition $3d^9 4d - 3d^9 4p$ du krypton nickeloïde à laquelle nous nous intéressons en particulier dans ce manuscrit. Le pompage OFI n'a en revanche pas encore été démontré expérimentalement dans l'argon néonoïde.

Ion	Transition	Longueur d'onde	Energie du photon
Ar^{8+} (néonoïde)	3p - 3s	46,9 nm	26,9 eV
Kr^{8+} (nickeloïde)	4d - 4p	32,8 nm	37,8 eV
Xe^{8+} (palladiumoïde)	5d - 5p	41,8 nm	29,7 eV

TABLE 1.1 – Longueurs d'onde associées à quelques transitions courantes obtenues en schéma collisionnel OFI et énergies des photons correspondants.

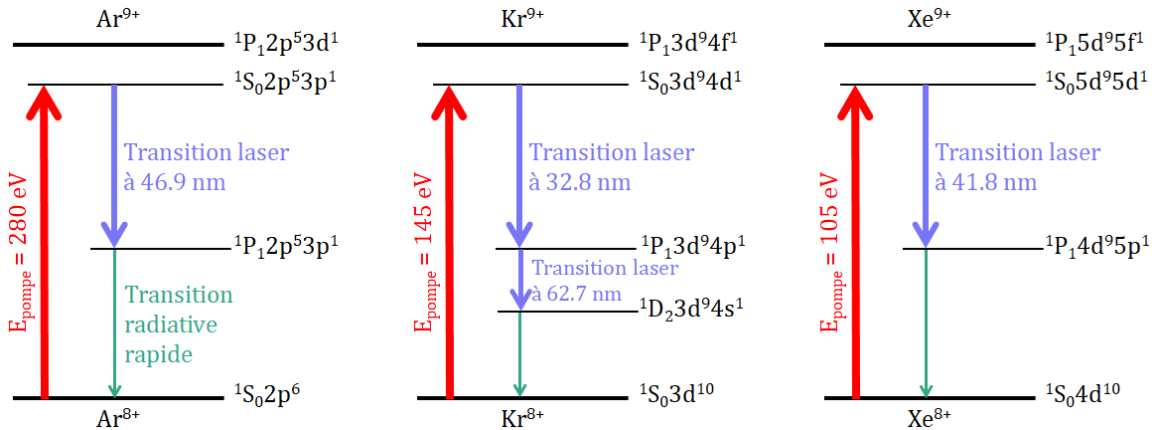


FIGURE 1.20 – Schéma de pompage collisionnel respectivement des ions Ar^{8+} , Kr^{8+} , Xe^{8+} .

On peut souligner que le schéma de pompage de l'ion Kr^{8+} , au centre sur la figure 1.20, diffère un peu du schéma classique présenté dans [101] puisqu'on y observe deux transitions lasers en cascade : la transition traditionnelle entre les niveaux 4d et 4p à 32,8 nm, et la transition entre les niveaux 4p à 4s à 62,7 nm. Cette dernière a en effet été observée expérimentalement par notre équipe en 2020 [103]. Notons qu'il a également été démontré que cet amplificateur à deux couleurs pouvait être injecté par la même source harmonique. Dans ces conditions, une énergie de 0,3 μJ par impulsion a été mesurée avec une contribution égale des deux transitions.

Dans le régime OFI originel, l'impulsion pompe était focalisée dans une cellule de gaz de densité électronique relativement basse (quelques $10^{18} - 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) [104][105]. Le chauffage des électrons à une température suffisante pour permettre le pompage de la transition laser était alors assuré, comme l'ionisation, directement par le champ laser, ce qui imposait que l'impulsion pompe soit polarisée circulairement (voir 2.2.2.1). Récemment, ce schéma a été implémenté, non plus dans une cellule, mais dans un jet de gaz [8][9]. Cela a permis d'atteindre des densités électroniques plus conséquentes, typiquement quelques $10^{19} - 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ qui demandent de guider l'impulsion pompe pour éviter sa réfraction par le plasma (voir 2.4) mais qui présentent des avantages considérables sur lesquels nous reviendrons dans les chapitres suivants. Le chauffage des électrons n'est alors plus principalement assuré par OFI, comme c'est le cas à basse densité, mais surtout par la diffusion Raman stimulée qui est favorisée à haute densité, et est donc indépendant de la polarisation du laser de pompe. Ce résultat sera présenté dans la section 4.2.1.2.

Comme nous le verrons dans la suite de ce manuscrit, les performances des lasers XUV OFI dépendent d'un grand nombre de paramètres. En particulier, la propagation du laser de pompe dans le plasma amplificateur joue un rôle crucial en influant la longueur d'amplification effective. Un autre paramètre essentiel que nous venons d'évoquer est la densité électronique, dont l'impact sera étudié en détail dans les chapitres suivants et dont dépend fortement le gain. Néanmoins, les coefficients de gain obtenus en régime OFI ont toujours été très élevés comparativement aux régimes QSS et transitoires (typiquement entre quelques dizaines et quelques centaines de cm^{-1}). Le produit gain-longueur est, quant à lui, de l'ordre de 15 - 20, ce qui permet d'atteindre la saturation dans ce régime en quelques centaines de microns seulement.

Pour clôturer cet état de l'art des lasers OFI, notons l'existence d'un régime hybride basé sur une ionisation OFI et un pompage collisionnel classique proposé dans [106][107]. Le faisceau pompe est focalisé dans du krypton avec une intensité de $1,8 \times 10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, ce qui permet l'ionisation par OFI. La durée de l'impulsion pompe est picoseconde, ce qui permet le chauffage des électrons par Bremsstrahlung inverse.

1.3.2.4 Lasers XUV par décharge capillaire

Avant de revenir aux lasers générés en régime OFI, nous clôturons cet état de l'art des lasers XUV collisionnels par une technique singulière, démontrée expérimentalement pour la première fois en 1994 dans de l'argon néonoïde à 46,9 nm [108]. Elle diffère des schémas présentés jusqu'à présent puisque le plasma n'est pas créé par laser mais par une décharge, induite par un courant de plusieurs kA et de temps de montée environ quelques dizaines de nanosecondes, produite dans un gaz confiné dans un tube capillaire. Le plasma est chauffé par effet Ohm, ce qui lui permet d'atteindre des températures électroniques suffisantes pour un pompage efficace de la transition laser. Malgré des coefficients de gain faibles, la très grande longueur du plasma (jusqu'à plusieurs dizaines de centimètres) permet d'atteindre la saturation.

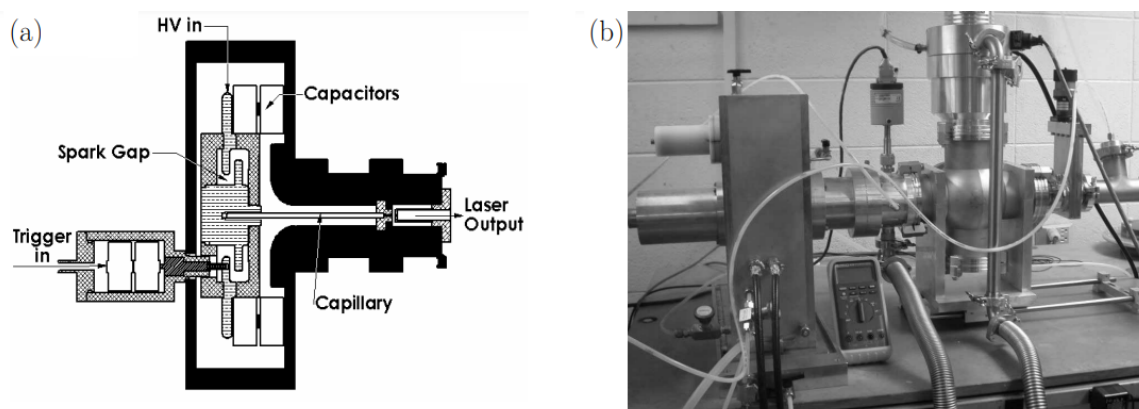


FIGURE 1.21 – Principe du laser XUV collisionnel par décharge capillaire [109] : (a) Principe, (b) Photo d'une installation expérimentale au Colorado State University.

En 1999, [110] rapporte des impulsions de l'ordre du millijoule à 4 Hz. En 2005, le plus petit laser XUV, photographié sur la figure 1.21, a démontré la capacité de délivrer des impulsions de l'ordre de la dizaine de microjoules à une cadence de 12 Hz [109].

Bien que cette technique n'ait été démontrée que pour la transition 3p - 3s de l'argon néonoïde à 46,9 nm pour le moment et qu'elle soit limitée aux longues durées d'impulsions (de l'ordre de la ns), sa compacité, la gamme d'énergie disponible et son taux de répétition en font une source remarquable.

1.3.3 Performances et applications des lasers XUV collisionnels OFI injectés

1.3.3.1 Principe de l'injection par une source harmonique externe

Comme le montre la figure 1.22 (a), l'émission XUV résultante de l'interaction laser-plasma est obtenue par Amplification de l'Emission Spontanée (régime ASE). Les photons émis ont une phase et une direction aléatoire. Cette émission est donc, de façon inhérente, très divergente et faiblement spatialement cohérente (i.e. vecteurs d'onde non alignés). Elle est néanmoins temporellement cohérente, le temps de cohérence étant inversement proportionnel à la largeur spectrale de la source. Dans le cas de sources relativement courtes (durées inférieures à quelques ps) comme les lasers XUV transitoires et OFI, cela se traduit par un profil spatial inhomogène semblable à du speckle (voir 1.3.3.2 et 4.1.2). En raison de ces faiblesses, le plasma ne peut pas être raisonnablement envisagé comme une source à part entière. Il dispose néanmoins de grandes qualités énergétiques et peut donc être considéré comme un milieu amplificateur dans lequel on injecte une source externe cohérente, résonante avec la transition laser (figure (b)), permettant ainsi de combiner les forts gains offerts par l'amplificateur et les qualités optiques du faisceau injecté. Le principe de l'injection a été démontré expérimentalement pour la première fois en 1995 [111], et appliqué en 2004 au cas des lasers XUV [6]. Le schéma de principe de cette technique est représenté sur la figure 1.23. La source utilisée pour l'injection est une source harmonique externe générée dans un gaz monoatomique, telle que décrite dans la section 1.2.2. Sous certaines conditions (spatiales, temporelles et spectrales) que nous étudierons en 3.3.3, il y a amplification cohérente de l'harmonique injectée.

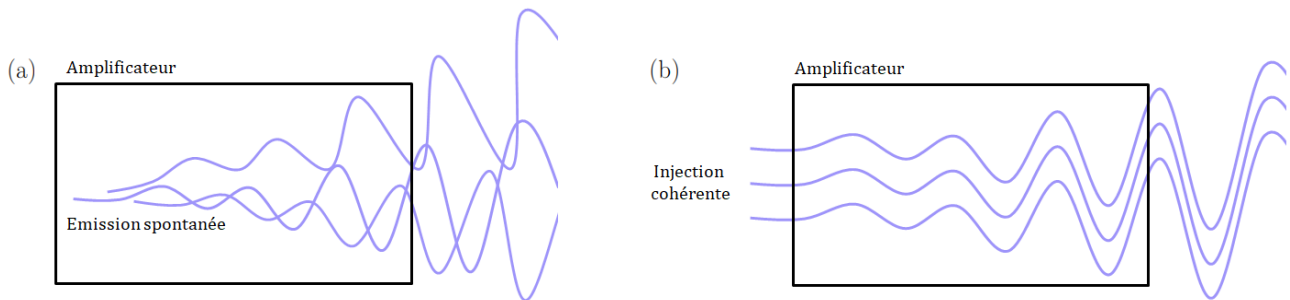


FIGURE 1.22 – (a) Emission spatialement incohérente générée par amplification de l'émission spontanée. (b) Emission cohérente obtenue par amplification d'un rayonnement injecté résonant cohérent.

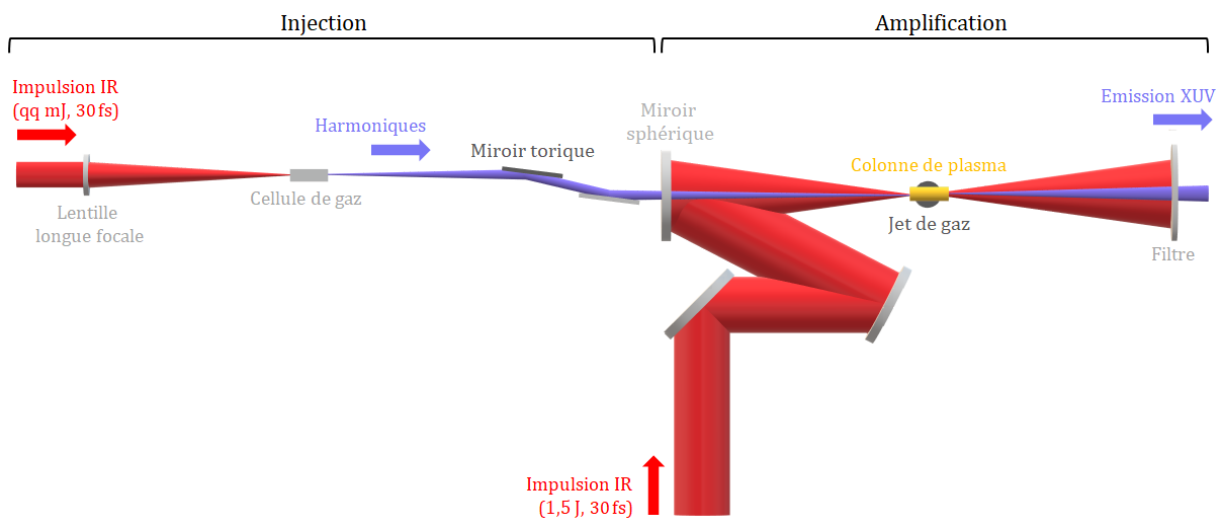


FIGURE 1.23 – Schéma de principe de l'injection d'un laser XUV OFI par harmoniques d'ordres élevés.

1.3.3.2 Performances et limitations

Nous présentons dans cette section les performances et accomplissements récents obtenus avant le début de cette thèse sur le laser XUV OFI collisionnel sur lequel nous travaillons. Cette thèse s'inscrit dans la poursuite de ces travaux.

Distribution spatiale d'énergie

Comme nous venons de l'expliquer et comme le montre la figure 1.24 issue de [9], l'injection par une source harmonique externe a permis de démontrer une nette amélioration des propriétés spatiales du laser XUV. En (a), on observe le rayonnement en régime ASE très inhomogène et de divergence supérieure à 10 mrad tandis que le rayonnement en régime injecté (figure (c)) conserve les excellentes propriétés spatiales du rayonnement harmonique (figure (b)) avec un faisceau très collimaté et une divergence de l'ordre de 1,5 mrad.

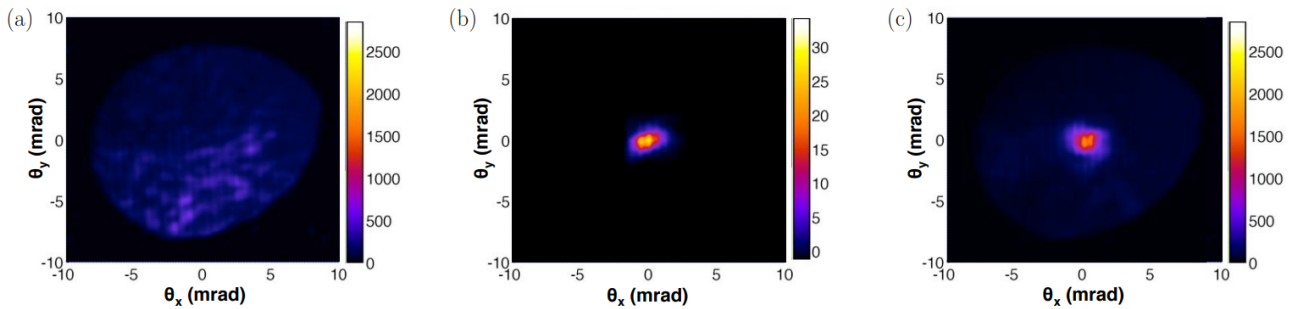


FIGURE 1.24 – Distributions spatiales en énergie (a) du faisceau XUV en régime ASE, (b) du faisceau harmonique, (c) du faisceau XUV en régime injecté. Issues de [9]. L'amplificateur est un jet de 5 mm de densité électronique $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

D'un point de vue énergétique, la thèse précédente [9] rapporte jusqu'à 14 μJ obtenus en régime ASE avec un jet de 20 mm et une densité électronique proche de $3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, et jusqu'à 2 μJ obtenus en régime injecté avec un jet de 5 mm et une densité électronique proche des 10^{20} cm^{-3} .

Qualité du front d'onde

Il a été démontré que le laser XUV injecté présentait un front d'onde sans aberrations en limite de diffraction, permis par le filtrage spatial des harmoniques par l'amplificateur [7]. L'écart normal aberrant RMS passe de $\lambda/3$ pour le faisceau harmonique (figure 1.25 (a)) à $\lambda/17$ pour le faisceau XUV injecté (figure (b)). Rappelons que le critère de Maréchal définit que la limite de diffraction correspond à un écart RMS maximum de $\lambda/14$.

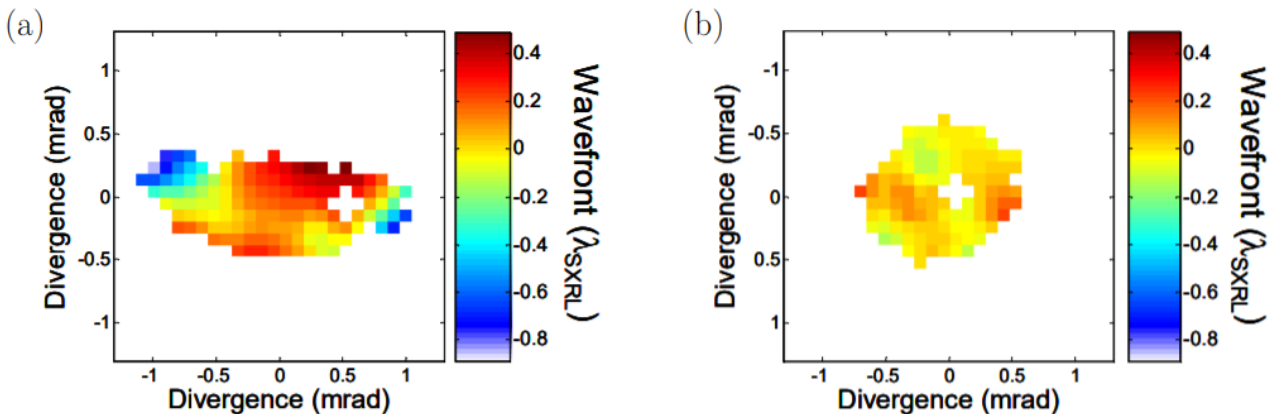


FIGURE 1.25 – Front d'onde mesuré (a) du faisceau harmonique, (b) du faisceau XUV en régime injecté [7].

Cohérence spatiale

La cohérence spatiale d'une source peut être mesurée en envoyant le faisceau étudié sur un dispositif de fentes d'Young et en observant la figure d'interférences ainsi produite. On mesure l'évolution du contraste des franges en fonction de l'espacement entre les fentes. La longueur de cohérence est la distance caractéristique sur laquelle

les ondes émises par la source restent en phase. On la définit comme la distance au bout de laquelle le contraste de la figure d'interférences est divisé par 2. La figure 1.26 illustre des mesures de longueur de cohérence spatiale de la source harmonique, du laser XUV en régime ASE et en régime injecté effectuées dans [104]. La longueur de cohérence du laser XUV en régime ASE est faible (autour de 100 μm). L'injection par une source harmonique cohérente permet une amélioration drastique de la cohérence de la source ASE, la longueur de cohérence en régime injecté étant alors de l'ordre de 400 μm .

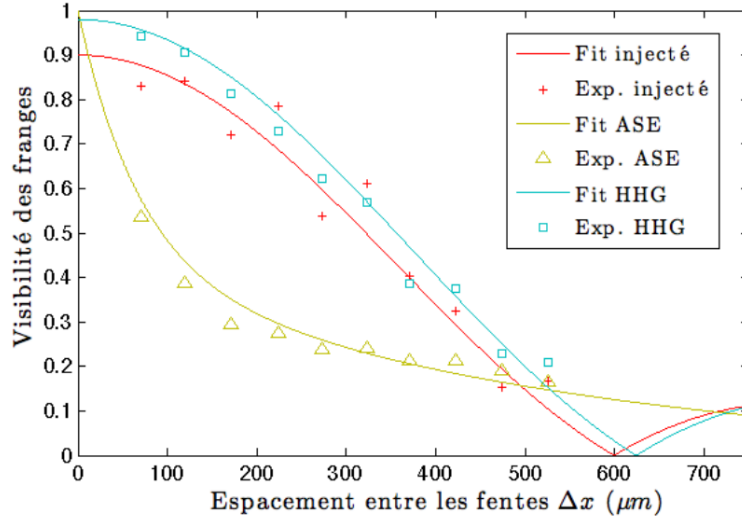


FIGURE 1.26 – Mesures de la cohérence spatiale de la source harmonique, du laser XUV en régime ASE et en régime injecté réalisées dans [104] par interférométrie de type fentes d'Young.

Cohérence temporelle et largeur spectrale

La cohérence temporelle a également été mesurée dans [104], de manière analogue à la cohérence spatiale. Le principe est le suivant : le faisceau à étudier est envoyé sur un interféromètre à bi-dièdres de Fresnel dont l'un est mobile par rapport à l'autre. On mesure le contraste des franges d'interférences ainsi produites en fonction de la différence de marche entre les deux faisceaux. Le temps de cohérence correspond à la différence de marche limite pour observer des interférences. On le définit comme le temps au bout duquel le contraste des franges est divisé par 2, soit ici environ 5 ps que ce soit en régime ASE ou en régime injecté comme le montre les figures 1.27 (a) et (b).

On rappelle le théorème de Wiener-Kintchine qui relie la fonction d'autocorrélation C d'un signal s à sa densité spectrale S par une relation de transformée de Fourier :

$$C(\tau) = \langle s(t)s^*(t + \tau) \rangle = \int S(\nu)e^{2j\pi\nu\tau} d\nu \quad (1.4)$$

On peut souligner que la fonction d'autocorrélation représente physiquement l'interférence entre le signal s au temps t et le même signal s au temps $t + \tau$, et est donc reliée au contraste de la figure d'interférences pour une différence de marche de τ . En pratique, le contraste des franges donne seulement le module de la fonction d'autocorrélation, l'information de phase est perdue.

On peut ainsi calculer sur la figure 1.27 (c) le profil spectral de la raie laser en régime ASE et en régime injecté grâce au théorème de Wiener-Kintchine à partir de la mesure du contraste de la figure d'interférences en fonction de la différence de marche. Notons que ce profil spectral ne présente pas d'épaulements, contrairement aux profils mesurés dans [112][113][114], où ils sont induits par une durée d'impulsion proche du temps de cohérence et une mesure intrinsèquement multi-tirs. La largeur spectrale de la source est inversement proportionnelle au temps de cohérence, qui n'est autre que le temps caractéristique de décroissance de la fonction d'autocorrélation. La largeur à mi-hauteur de la raie ASE est ici estimée à $2,6 \pm 0,4 \text{ m\AA}$, et celle de la raie injectée à $3,1 \pm 0,3 \text{ m\AA}$, ce qui correspond dans les deux cas à $\Delta\lambda/\lambda \approx 10^{-5}$. Soulignons que l'amplification entraîne un fort rétrécissement spectral par le gain, la largeur spectrale de la source harmonique étant de l'ordre de l'angström [115]. Notons aussi que des mesures réalisées entre 2007 et 2014 sur la source étudiée ici, malheureusement non publiées, ont montré une nette augmentation de la largeur spectrale avec la densité électronique.

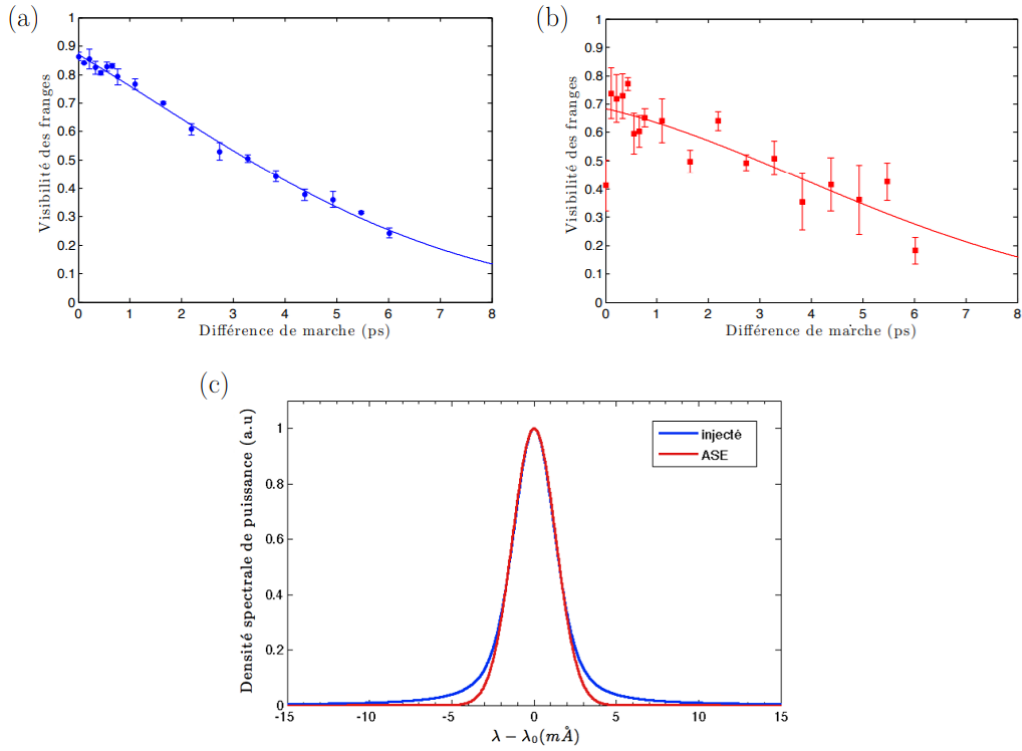


FIGURE 1.27 – Mesures de la cohérence temporelle du laser XUV en régime ASE (a) et en régime injecté (b) réalisées dans [104] par interférométrie à bi-dièdres de Fresnel. (c) Profil spectral de la raie laser en régime ASE et en régime injecté.

Polarisation

Contrairement à l'émission spontanée amplifiée qui est non polarisée, l'émission XUV en régime injecté peut être polarisée linéairement [6] ou circulairement [116], puisqu'elle peut conserver l'état de polarisation du faisceau harmonique injecté comme le montre la figure 1.28.

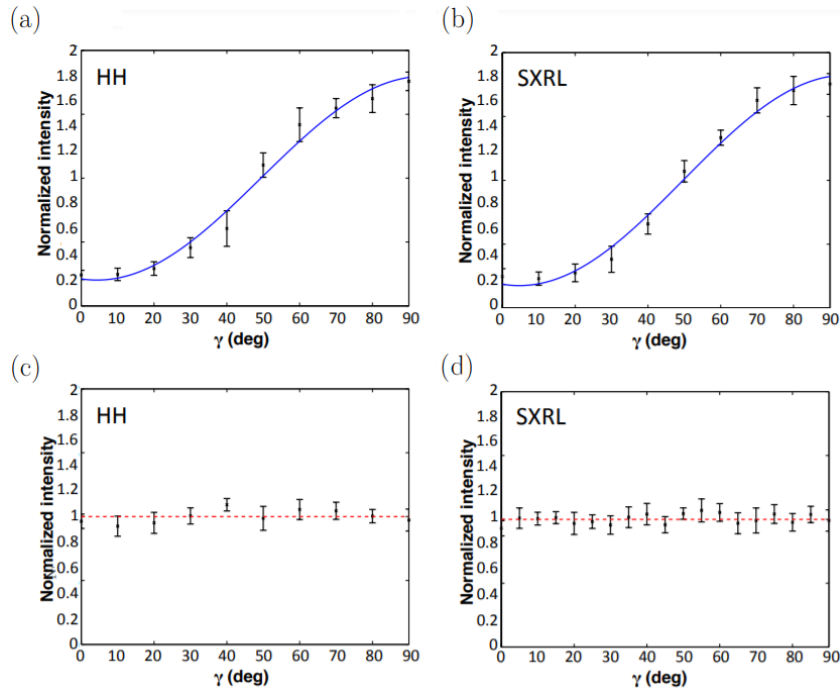


FIGURE 1.28 – Investigation de la polarisation d'un laser XUV injecté en (b) et (d), respectivement pour une polarisation linéaire P (a) ou circulaire (c) du faisceau harmonique [116].

Durée du gain, durée d'impulsion

En 2005, une technique permettant d'évaluer l'évolution temporelle du gain en mesurant l'énergie du laser XUV injecté en fonction du délai d'injection harmoniques est proposée [117]. Cette technique a été utilisée en 2015, sur le laser XUV OFI injecté sur lequel nous travaillons dans le cadre de cette thèse, pour étudier l'impact de la densité électronique du plasma amplificateur sur la dynamique du gain, et a non seulement permis de démontrer des facteurs d'amplification plus élevés à haute densité, mais aussi de mettre en évidence l'interruption anticipée du gain induite par la surionisation des ions lasants dans ces conditions [8]. Ce résultat est représenté sur la figure 1.29 (a). La durée du gain est considérablement réduite, passant de 7 ps FWHM à $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ à 450 fs FWHM à $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Il est à noter que l'augmentation de la densité jusqu'à de telles valeurs a été permise [9] grâce à l'utilisation d'un jet de gaz, et non plus d'une cellule comme c'était le cas avant 2015, et au développement d'un canal plasma permettant de guider l'impulsion pompe (voir 2.4). Des simulations présentées sur la figure 1.29 (b) prédisent que la diminution de la durée du gain à haute densité impacte la durée d'impulsion de l'harmonique amplifiée, elle aussi réduite jusqu'à des durées subpicosecondes. Ce résultat est sans précédent. La durée des lasers collisionnels a en effet longtemps été limitée à des durées bien supérieures à la picoseconde, restreignant le champ des applications possibles : la durée des lasers XUV par décharge capillaire est de l'ordre de la nanoseconde [109], 100 ps ont été mesurées en régime QSS dans [81], des durées de 2 ps et 1,1 ps ont été observées pour des lasers transitoires respectivement en régime ASE [89] et en régime injecté [118]. Quant au cas des lasers OFI injectés, les simulations, effectuées jusque là à basse densité (quelques 10^{18} cm^{-3}), prédisaient des valeurs du même ordre de grandeur [104]. Pour le moment observée uniquement numériquement, nous tenterons de prouver cette réduction de la durée d'impulsion à haute densité expérimentalement dans le chapitre 5. Un des objectifs principaux de cette thèse consiste en effet en l'étude de la durée d'impulsion du laser XUV injecté en régime OFI en fonction de différents paramètres, notamment la densité électronique du plasma amplificateur, grâce au développement d'un diagnostic de mesure du profil temporel d'une résolution de quelques centaines de femtosecondes.

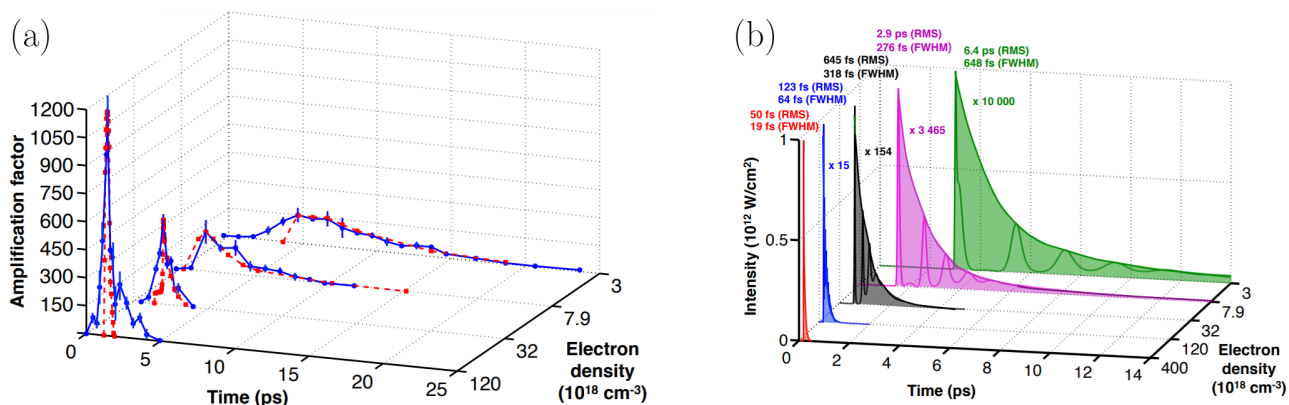


FIGURE 1.29 – (a) Dynamiques de l'amplification mesurées en bleu, simulées en rouge en fonction de la densité électronique du plasma amplificateur. (b) Profils temporels simulés de l'harmonique amplifiée en fonction de la densité électronique du plasma amplificateur. Résultats issus de [8][9].

Limitations induites en régime injecté par la dispersion naturelle du plasma à haute densité

L'injection du plasma amplificateur par une source harmonique externe a de nombreux avantages, comme nous venons de le voir. Néanmoins, un phénomène naturel limite ces bénéfices. Le plasma est un milieu à dispersion négative, dans lequel les courtes longueurs d'onde se propagent plus rapidement que les grandes longueurs d'onde. Ce phénomène, néfaste pour les performances de notre source en schéma de pompage longitudinal, est d'autant plus prononcé pour les hautes densités que les gains y sont courts, des conditions extrêmement bénéfiques et favorables par ailleurs. Naturellement, l'harmonique injectée XUV se propage plus vite que le faisceau pompe infrarouge, créant une désynchronisation entre la fenêtre de gain et l'harmonique, restreignant ainsi l'amplification de cette dernière. Ces considérations seront au cœur du chapitre 6, dans lequel nous étudierons les effets de cette désynchronisation sur les performances de la source et nous proposerons un moyen de dépasser ces limitations.

1.3.3.3 Applications et perspectives pour les lasers XUV

Les applications permises par le développement des lasers XUV sont nombreuses et variées. Les très courtes longueurs d'onde offertes par ces sources, alliées à leurs excellentes propriétés de cohérence, en font un très bon choix pour l'holographie de microstructures biologiques, une des premières applications démontrée sur un

laser XUV QSS en 1987 [119]. En 2008, des images holographiques de nanostructures (voir figure 1.30) ont été obtenues avec une résolution spatiale de l'ordre de la longueur d'onde (autour de 40 nm) grâce à un laser à décharge capillaire [120].

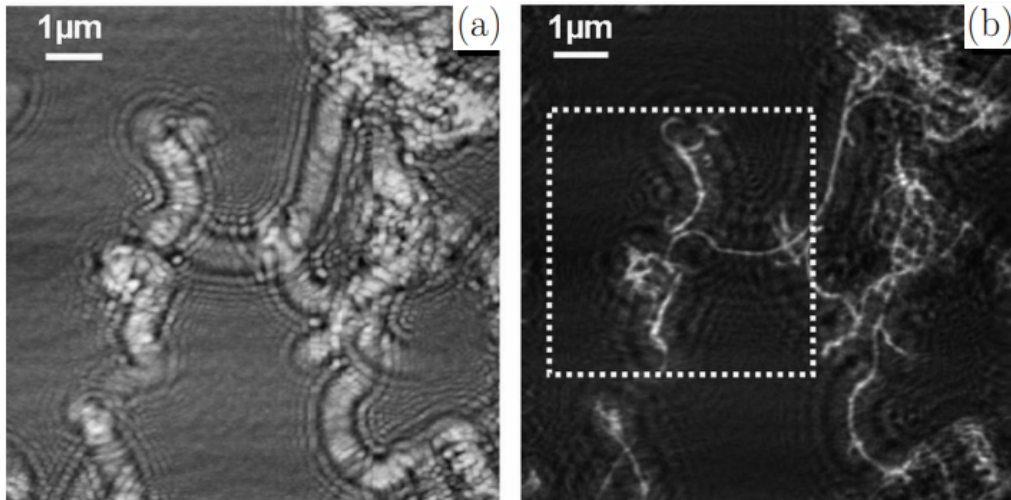


FIGURE 1.30 – (a) Hologramme de nanotubes de carbone enregistré par un laser capillaire. (b) Reconstruction des nanotubes de carbones. Résultats issus de [120].

Les expériences de microscopie XUV, basées sur l'utilisation de lasers à décharge capillaire [121][122] ou transitoires [123], ont vu le jour en abondance au Colorado State University, en parallèle du développement d'optiques dans cette gamme spectrale. De telles expériences ont notamment permis d'imager à haute résolution le mouvement d'une pointe de nanosonde oscillant à plusieurs centaines de kHz avec une amplitude de ± 250 nm [124], comme illustré sur la figure 1.31.

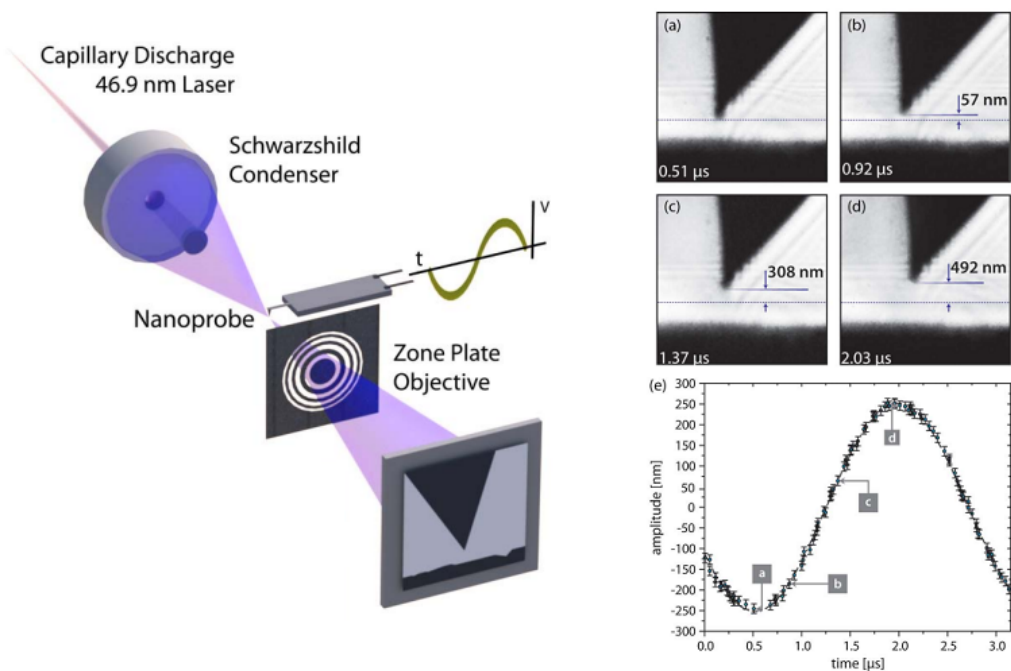


FIGURE 1.31 – À gauche, schéma de principe du microscope XUV. A droite, de (a) à (d) images d'une pointe de nanosonde oscillant à 318,6 kHz avec une amplitude de ± 250 nm pour différents délais. (e) Séquence de 100 images reproduisant le mouvement de la nanosonde sur une période. Résultats issus de [124].

Les courtes longueurs d'onde de cette gamme spectrale permettent également d'accéder à des densités critiques très élevées et donc de sonder des plasmas denses (jusqu'à 10^{25} cm⁻³ à 10 nm) par déflectométrie [125], par radiographie [126][127], ou encore par interférométrie [128][129][130][131]. La figure 1.32 représente par exemple des interférogrammes d'un plasma d'aluminium obtenus par un laser à décharge capillaire à différents instants de sa création, et les cartes de densité électronique déduites de ces mesures [132].

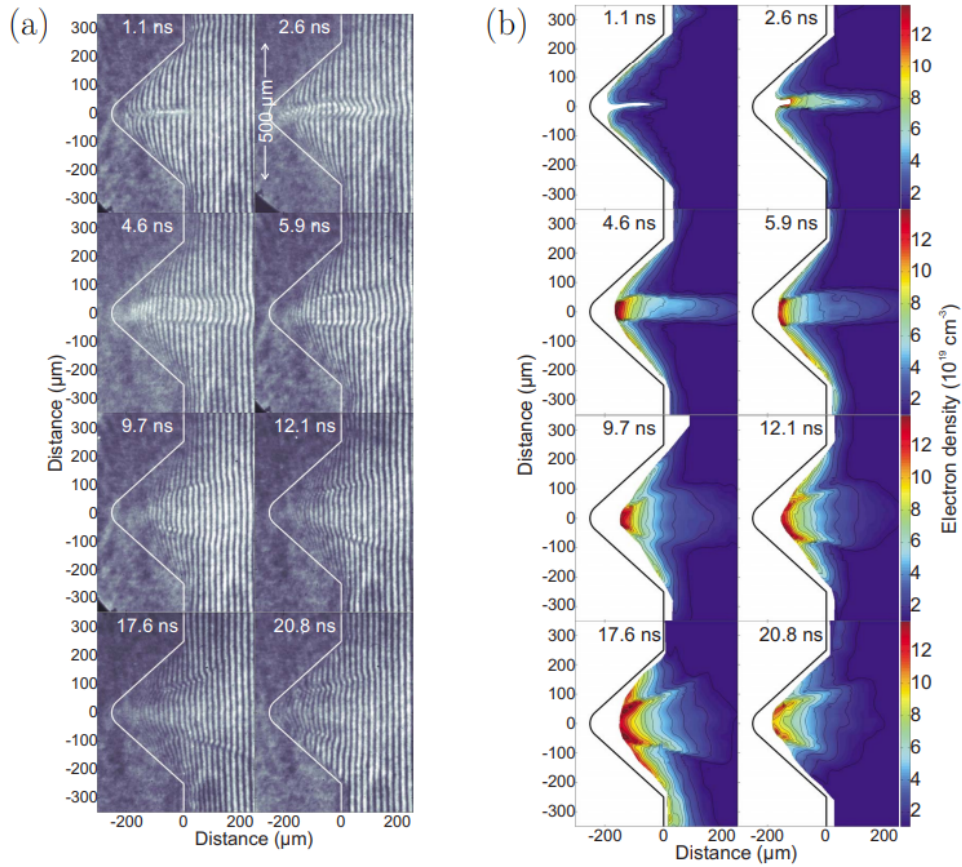


FIGURE 1.32 – (a) Interférogrammes obtenus par un laser à décharge capillaire à 46,9 nm à différents instants de la création d’un plasma d’aluminium. (b) Cartes de densité électronique correspondantes. Résultats issus de [132].

Toujours grâce à la courte longueur d’onde du rayonnement, les dimensions sur lequel on peut focaliser ce dernier sont très petites. Cela a notamment permis l’étude des mécanismes d’ablation XUV à l’échelle nanométrique [133], l’imagerie moléculaire par spectrométrie de masse réalisée grâce à l’ablation produite par une impulsion EUV [134], ou encore le développement d’une technique de nanolithographie sans défaut [135].

Vers d’autres applications

Un très grand nombre d’applications résolues en temps intéressantes ont pu être démontrées dans la gamme spectrale des rayons X avec des sources présentant des durées d’impulsion bien inférieures à la picoseconde. Notons par exemple la diffraction à rayons X [136][137][138] réalisée avec une résolution femtoseconde grâce à des rayonnements incohérents tel que celui produit par diffusion Thompson [139] ou encore tel que le rayonnement bêtatron [140]. Dans l’XUV, l’observation directe de la dynamique de phénomènes ultra-rapides à une échelle nanométrique, comme la démagnétisation ultra-rapide induite par laser [141] ou la photoionisation d’une molécule d’azote [142], a été rendu possible grâce aux sources harmoniques d’ordres élevés. Enfin, le développement d’une technique d’holographie hautement résolue en temps sur un laser à électrons libres [143] offre également des opportunités uniques d’étudier les aspects fondamentaux de phénomènes transitoires complexes dans les matériaux.

D’autres applications nécessitent de fortes intensités sur cible, comme c’est le cas pour l’observation des phénomènes non linéaires [144], et ont toujours été restreintes aux XFEL, citons par exemple la génération de seconde harmonique, réalisée récemment sur laser à électrons libres autour de 7 keV [145] et à 284 eV [146], qui présente des perspectives importantes pour la spectroscopie et pour la physique des matériaux.

Cependant, comme nous le verrons en conclusion de ce manuscrit avec la première démonstration de génération de seconde harmonique à partir d’un laser OFI collisionnel injecté à 32,8 nm [147], ces applications peuvent être rendues accessibles aux lasers XUV produits par interaction laser-plasma grâce à l’amélioration de leurs performances, notamment énergétiques et temporelles, ce qui constituera notre objectif tout au long de ce manuscrit.

1.4 Conclusion

Le développement de sources XUV cohérentes a été motivé par de nombreuses perspectives. Elles offrent en effet des possibilités sans précédent pour l'imagerie cohérente à la résolution nanométrique, ou encore pour l'étude de phénomènes ultra-rapides se produisant dans la matière.

Les lasers à électrons libres sont actuellement les sources qui fournissent les meilleures performances, avec des faisceaux de brillances inégalables qui permettent de considérables innovations dans des domaines très variés. Ces sources sont néanmoins extrêmement imposantes, et donc coûteuses et peu nombreuses. Par opposition, les sources XUV produites par interaction laser-plasma ou par générations d'harmoniques sont compactes, peu onéreuses et pourraient devenir plus facilement accessibles. Elles sont donc très complémentaires aux lasers à électrons libres.

Les sources harmoniques sont assez aisées à mettre en place expérimentalement et offrent des impulsions cohérentes énergétiques (jusqu'à quelques dizaines de μJ sur cible solide), ultra-courtes (femtosecondes à attosecondes), produites à un taux de répétition élevé (couramment jusqu'au kHz). Elles constituent donc une très bonne alternative aux LELs. Toutefois, le fait qu'elles soient composées de plusieurs fréquences peut être problématique pour certaines applications. Leur efficacité de conversion est également assez faible autour des plus courtes longueurs d'onde de l'XUV, typiquement autour de 10 nm.

Du côté des lasers XUV produits par interaction laser-plasma, on dénombre différents schémas d'inversion de population dont le seul qui ait réellement fait ses preuves jusqu'à présent est le schéma collisionnel qui permet d'atteindre facilement la saturation. Diverses géométries de pompage, avec leurs avantages et inconvénients respectifs, ont été proposées. Les lasers QSS sont très énergétiques (jusqu'à 10 mJ) mais ils requièrent des impulsions pompes de plusieurs centaines de joules, et donc des installations contraignantes aux taux de répétition très bas. Les lasers par décharge capillaire sont des sources atypiques. Ils fonctionnent également en régime quasi-stationnaire et ont démontré des propriétés très intéressantes, mais sont pour le moment limités en termes de longueur d'onde et proposent, comme les lasers QSS classiques, de longues durées d'impulsion. Les lasers en régime transitoire présentent des impulsions beaucoup plus courtes (de l'ordre de quelques picosecondes) et disposent de quelques μJ . C'est aussi un régime très robuste qui fonctionne pour une grande variété de longueurs d'onde. Néanmoins, contrairement au schéma de pompage longitudinal, le pompage en cible solide introduit un gradient transverse à la propagation qui dévie le faisceau amplifié.

Dans la suite de ce manuscrit, nous nous intéresserons en particulier aux lasers XUV OFI qui présentent l'avantage d'un schéma de pompage longitudinal simple et ont démontré des gains forts. L'injection de ces sources par une source harmonique externe résonante à la transition laser permet non seulement de tirer profit des qualités énergétiques de l'amplificateur avec l'obtention d'impulsions de quelques μJ , mais également d'améliorer considérablement les propriétés spatiales du faisceau. Récemment, le développement de jets de gaz et d'une technique de guidage du faisceau pompe ont permis de travailler à des densités proches des 10^{20} cm^{-3} . Cette augmentation de la densité rend le plasma très dispersif, ce qui cause une désynchronisation naturelle entre le gain produit par l'impulsion pompe infrarouge et l'harmonique injectée XUV dont il nous faudra nous affranchir. Néanmoins, les hautes densités ont d'ores et déjà permis une nette amélioration des performances de la source, et sont encore pleines de promesses. Des gains plus forts mais aussi plus courts ont pu être démontrés, apportant l'espoir de durées d'impulsion subpicosecondes.

Chapitre 2

Physique des lasers XUV collisionnels OFI injectés par harmoniques

Ce chapitre a pour objectif de décrire la théorie régissant les lasers XUV collisionnels OFI. Nous étudierons d'abord les principes physiques sous-jacents à l'émission et à l'amplification d'un rayonnement à 32,8 nm par interaction laser-plasma. Nous verrons en quoi la densité électronique du plasma amplificateur est un paramètre crucial. Nous examinerons dans un deuxième temps les conditions requises à la création d'un tel milieu amplificateur, à savoir la génération de l'espèce lasante et la réalisation de la condition de pompage permettant de bâtir l'inversion de population. Puis, nous détaillerons les principaux mécanismes de la cinétique du plasma. Ayant décrit la physique gouvernant le milieu amplificateur, nous nous pencherons sur la réfraction induite par le plasma qui empêche la propagation du laser de pompe, et les moyens de surpasser cette difficulté. Enfin, en vue de l'amélioration des propriétés spatiales de la source, nous nous intéresserons à la physique de l'amplification en régime injecté.

Sommaire

2.1 Effet laser et physique de l'amplificateur	36
2.1.1 Effet laser à 32,8 nm	36
2.1.2 Evolution des populations atomiques	37
2.1.3 Amplification de l'émission en régime ASE	39
2.1.4 Dépendance à la densité électronique	42
2.2 Interaction laser-plasma en champ intense	44
2.2.1 Mécanismes d'ionisation par le champ laser	45
2.2.2 Distribution énergétique des électrons et des ions	49
2.3 Cinétique du plasma	52
2.3.1 Principaux mécanismes régissant la dynamique du plasma	52
2.3.2 Evolution des températures électroniques et ioniques	54
2.4 Propagation du champ laser dans un plasma et nécessité d'un guidage	56
2.4.1 Propagation naturelle du champ	56
2.4.2 Techniques de guidage de l'impulsion pompe	60
2.5 Physique de l'amplification en régime injecté	64
2.5.1 Equations de Maxwell-Bloch	65
2.5.2 Amplification du champ harmonique résonant	66
2.6 Conclusion	71

2.1 Effet laser et physique de l'amplificateur

2.1.1 Effet laser à 32,8 nm

La compréhension de l'effet laser repose sur une notion de mécanique quantique qui établit l'existence de niveaux d'énergie quantifiés : l'état d'un atome est décrit par la disposition de ses électrons qui occupent des niveaux d'énergie discrets. Lorsque la lumière interagit avec un atome, ce dernier va changer d'état. Si l'on considère un système simple à deux niveaux d'énergie, trois processus, illustrés sur la figure 2.1, peuvent se produire :

- Absorption : Un électron du niveau inférieur gagne de l'énergie et monte au niveau supérieur sous l'effet de l'absorption d'un photon.
- Emission spontanée : Un électron excité se désexcite naturellement pour retrouver son état d'équilibre. Il passe du niveau supérieur au niveau inférieur en émettant un photon dont l'énergie correspond à l'écart entre les 2 niveaux. Ce photon a une phase et une direction aléatoire.
- Emission stimulée : Un électron excité se désexcite sous l'effet d'un photon incident, en émettant un second photon de même phase, même énergie, même fréquence et même polarisation.

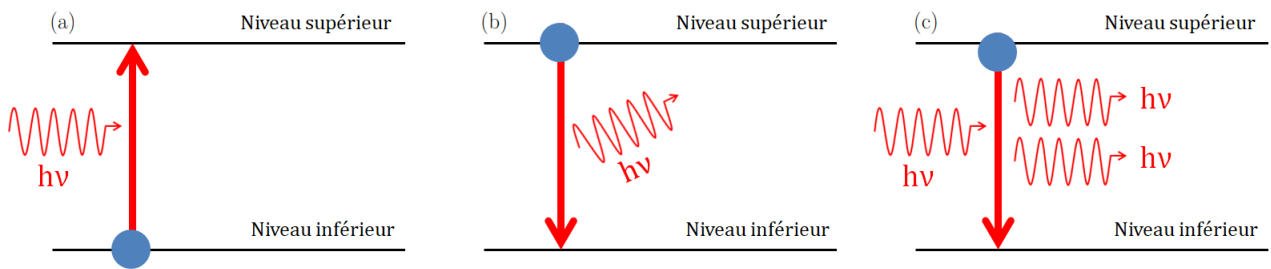


FIGURE 2.1 – Mécanismes d'interaction pour un système à 2 niveaux, séparés d'une énergie $E = h\nu$: (a) Absorption. (b) Emission spontanée. (c) Emission stimulée.

Si le niveau inférieur est plus peuplé que le niveau supérieur, le phénomène d'absorption va dominer. Une condition nécessaire pour obtenir un effet laser est donc d'avoir plus d'électrons dans le niveau supérieur que dans le niveau inférieur. Cette situation, appelée inversion de population, requiert d'induire une situation hors équilibre en pompant la transition afin d'exciter les électrons. Il est à noter que réaliser cette condition d'inversion de population est impossible dans un système à deux niveaux puisque la probabilité d'un saut d'énergie d'un niveau à l'autre est le même dans les deux sens. Trois niveaux d'énergie minimum sont dès lors requis.

La longueur d'onde du rayonnement émis dépend du gap énergétique entre les deux niveaux d'énergie de la transition laser. Si l'on souhaite une émission dans la gamme spectrale des XUV, des gaps de quelques dizaines d'eV sont nécessaires. De telles transitions sont disponibles dans des plasmas constitués d'ions multichargés. En raison de ce choix de milieu amplificateur qui a une courte durée de vie et des limitations intrinsèques liées à la longueur d'onde du rayonnement émis, l'architecture laser conventionnelle est bannie. Cette dernière est constituée d'un milieu amplificateur placé dans une cavité optique résonante, et permet de favoriser l'émission stimulée par passages successifs dans le milieu à gain. Dans notre cas, on effectue un unique passage dans le plasma. Le rayonnement est alors émis par amplification par l'émission stimulée de l'émission spontanée. A cause de la nature stochastique de l'émission spontanée, l'émission résultante de ce régime, nommé ASE pour "Amplification of Spontaneous Emission", possède de faibles qualités spatiales qui peuvent être palliées par l'injection d'une source harmonique externe à la même longueur d'onde. L'amplification est néanmoins conséquente en raison du fort coefficient de gain de l'amplificateur.

Une autre différence avec les lasers traditionnels est le pompage de la transition qui permet l'inversion de population, usuellement optique, qui est ici assuré par les collisions entre les électrons suffisamment chauds et les ions du plasma. Les ions nickeloïdes sont de parfaits candidats pour le schéma de pompage collisionnel : ils sont très stables dans une large gamme de densité et de température. Dans le cadre de cette thèse, nous travaillons avec l'ion Kr^{8+} , dont le schéma de pompage est présenté sur la figure 2.2. Il s'agit d'un système à trois niveaux constitués :

- du niveau fondamental $3d^{10}$
- du niveau inférieur de la transition $1S_03d^94p^1$ de dégénérescence 3
- du niveau supérieur de la transition $1S_03d^94d^1$ de dégénérescence 1

Les électrons du niveau fondamental ($1S_03d^{10}$) sont excités jusqu'aux niveaux d'énergies supérieures par leurs collisions avec les électrons chauds. La transition entre le niveau $1S_03d^94d^1$ et le fondamental est interdite par les règles de sélection, au contraire de la transition entre le niveau $1S_03d^94p^1$ et le fondamental qui est permise et a un temps de vie de l'ordre de 10 ps : le niveau inférieur de la transition se dépeuple donc rapidement. Il en résulte une inversion de population entre les niveaux $1S_03d^94d^1$ et $1S_03d^94p^1$, et donc une émission correspondante à 32,8 nm. La figure 2.2 montre que la température électronique joue un rôle essentiel dans le pompage de la transition. Pour réaliser la condition nécessaire d'inversion de population, les électrons doivent posséder au minimum une énergie qui correspond à la différence en énergie entre le niveau supérieur de la transition et le fondamental soit 145 eV dans notre cas.

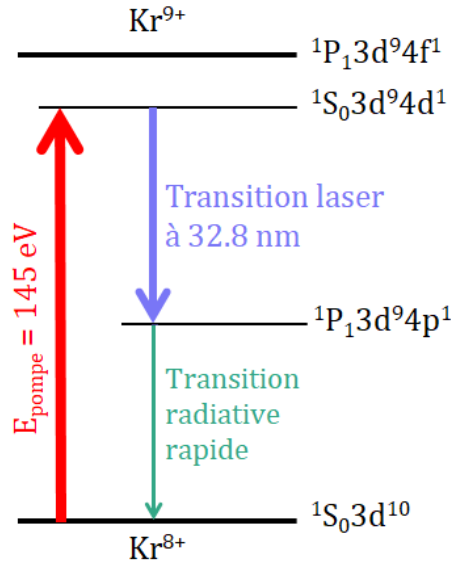


FIGURE 2.2 – Schéma de pompage de l'ion Kr^{8+} : l'excitation collisionnelle peuple le niveau $3d^94d^1$ à partir du fondamental. L'inversion de population entre les niveaux $3d^94d^1$ et $3d^94p^1$ et la transition radiative rapide entre le niveau $3d^94p^1$ et le fondamental permettent une émission à 32,8 nm. Une énergie électronique de minimum 145 eV est requise pour le pompage efficace de la transition.

2.1.2 Evolution des populations atomiques

L'évolution des populations atomiques est déterminée par l'ensemble des processus atomiques ayant lieu dans le plasma : les processus collisionnels comme l'excitation / la désexcitation collisionnelle et l'ionisation collisionnelle, et les processus radiatifs comme l'absorption, la désexcitation spontanée ou l'émission stimulée.

Le code OFIKinRad (voir annexe A) permet de calculer l'évolution des populations atomiques en considérant 36 niveaux d'ionisation du krypton et 93 niveaux atomiques du Kr^{8+} . Ce modèle dépend uniquement du temps, et ne prend donc pas en compte les phénomènes qui peuvent modifier l'état macroscopique du plasma (notamment son expansion et ses pertes radiatives). La simulation prend en compte une densité neutre de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et une intensité laser de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Le résultat de cette simulation est présentée sur la figure 2.3 qui montre l'évolution des populations atomiques à différents instants suivant l'ionisation (respectivement après 1, 5, 10 et 20 ps). On s'intéresse ici :

- au niveau 1 : le fondamental $3d^{10}$
- au niveau 14 : le niveau inférieur de la transition $1S_03d^94p^1$ de dégénérescence 3
- au niveau 35 : le niveau supérieur de la transition $1S_03d^94d^1$ de dégénérescence 1

A l'instant $t = 0$ ps, la densité de population du niveau fondamental est égale à la densité neutre de krypton, ici normalisée à 1. Les populations des niveaux excités sont nulles. L'ionisation et l'excitation collisionnelles induisent une déplétion du fondamental, dont la population décroît de manière exponentielle comme le montre la figure 2.4 (a). Les niveaux excités sont, quant à eux, peuplés par cette excitation collisionnelle. Les niveaux excités ne sont pas tous peuplés dans les mêmes proportions puisque le taux de transition collisionnelle résulte du produit entre la vitesse des électrons et la section efficace de collisions entre un niveau i et un niveau j . On peut noter que plus les électrons sont chauds, plus le taux de transition collisionnelle est élevé. A $t = 1$ ps, la densité de population des niveaux excités est comprise entre 10^{-5} et 10^{-3} . On peut noter que les niveaux 14 et

35 qui nous intéressent sont parmi les plus peuplés. Ensuite, les niveaux excités sont progressivement dépeuplés.

La figure 2.4 (b) montre l'évolution temporelle de la densité de population du niveau supérieur n_u et du niveau inférieur n_l , dont on peut déduire l'inversion de population Δn définie par :

$$\Delta n = n_u - \frac{g_u}{g_l} n_l \quad (2.1)$$

qui tient compte des dégénérescences g_u et g_l respectives des niveaux supérieur et inférieur. Il est à noter que c'est la dégénérescence du niveau inférieur qui permet de se placer en condition d'inversion de population effective, comme indiqué par la flèche de la figure 2.3. Les densités de population des niveaux supérieur et inférieur sont en effet équivalentes. La dégénérescence du niveau inférieur permet d'abaisser sa densité de population sous celle du niveau supérieur.

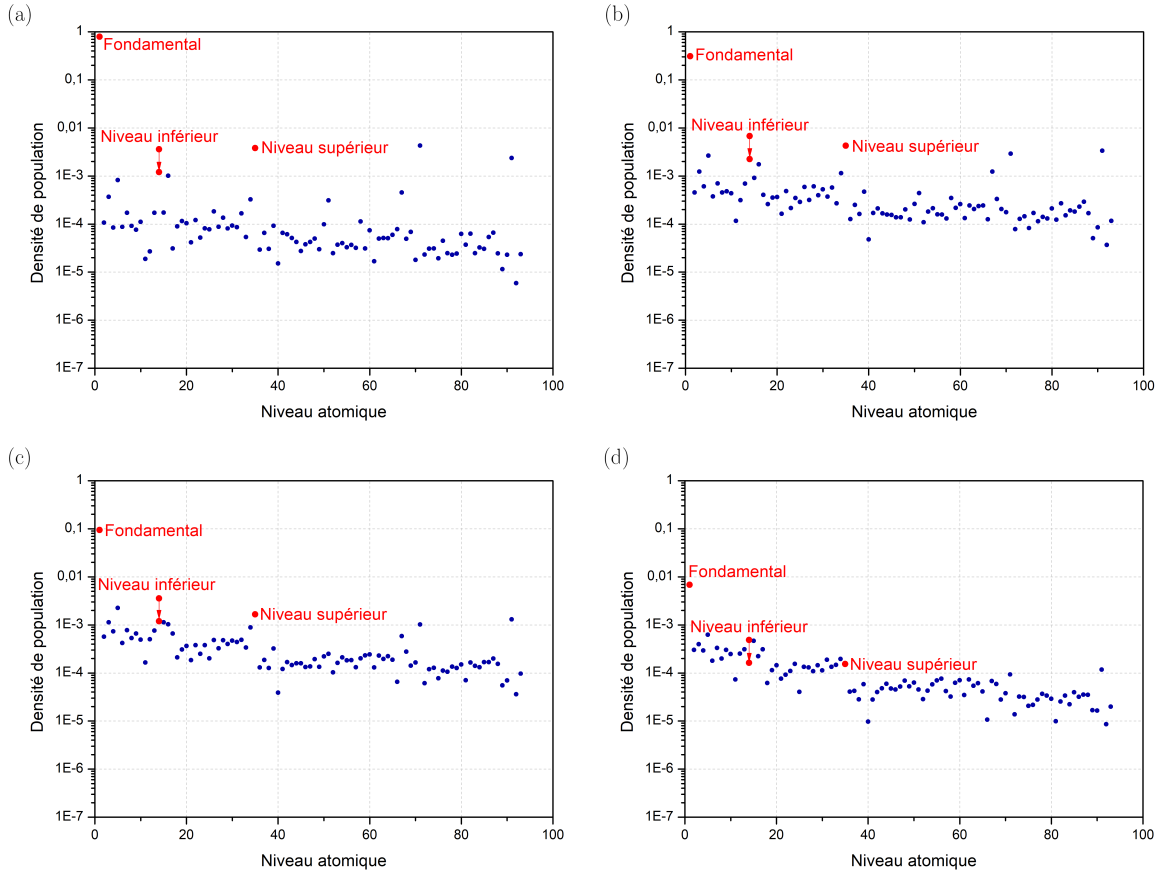


FIGURE 2.3 – Evolution des populations atomiques à différents instants après l'ionisation. La prise en considération de la dégénérescence du niveau inférieur de la transition, égale à 3, est illustrée par la flèche rouge. Simulations par OFIKinRad.

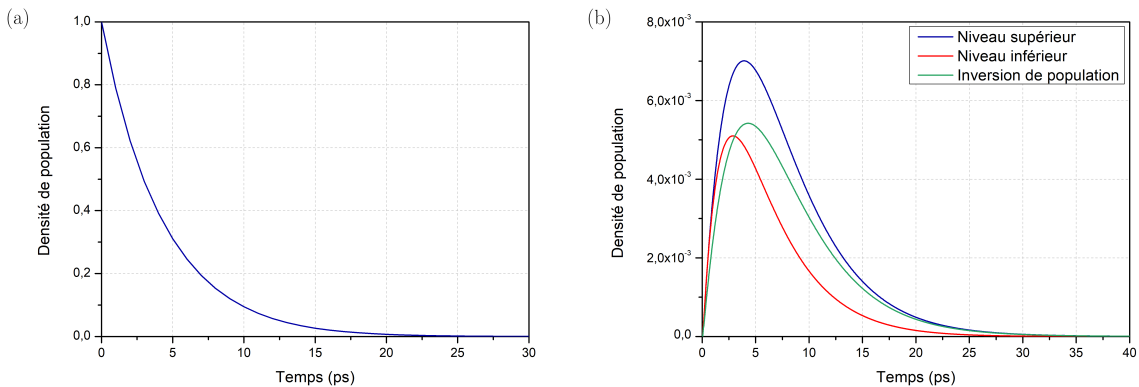


FIGURE 2.4 – (a) Densité de population de l'état fondamental. (b) Densité de population des états supérieur et inférieur de la transition $3d^9 4d^1 \rightarrow 3d^9 4p^1$, et inversion de population. Simulations par OFIKinRad.

2.1.3 Amplification de l'émission en régime ASE

2.1.3.1 Largeur spectrale, emissivité et coefficient de gain

Un rayonnement provenant d'une transition atomique peut être caractérisé par deux grandeurs spectrales : l'émissivité spectrale j et le coefficient de gain g qui dépendent de la forme de la raie spectrale de l'émission. Cette dernière est déterminée par les propriétés du plasma et deux sources d'élargissement spectral [148] :

- L'élargissement inhomogène est causé par le fait que tous les émetteurs ne rayonnent pas à la même fréquence centrale. Deux phénomènes principaux peuvent intervenir : l'effet Stark et l'effet Doppler. L'effet Stark est négligeable dans notre cas puisqu'il n'est significatif qu'à très haute densité (typiquement autour de $10^{20} / 10^{21} \text{ cm}^{-3}$) : les variations locales du champ électrostatique de l'ion induisent alors un décalage et un éclatement des raies spectrales en plusieurs composantes. Dans l'effet Doppler, la fréquence centrale d'émission est modifiée dans le référentiel du laboratoire à cause de l'agitation thermique des ions. Le code OFIKinRad donne une largeur de Doppler de $7 \times 10^9 \text{ Hz}$.
- L'élargissement homogène (ou naturel) concerne tous les émetteurs de la même manière, il est lié à la durée de vie des différents niveaux intervenant dans la transition. Cette durée de vie est limitée par la désexcitation spontanée et par les collisions. L'élargissement homogène augmente proportionnellement avec la densité électronique, comme le montre la figure 2.5, et passe de $3 \times 10^{10} \text{ Hz}$ à 10^{18} cm^{-3} à $1,4 \times 10^{13} \text{ Hz}$ à 10^{21} cm^{-3} . La largeur spectrale homogène est ici prépondérante devant la largeur inhomogène. Bien que non développé spécifiquement en vue de calculer les largeurs spectrales, OFIKinRad donne des valeurs similaires au code PPP [149] et prend bien en considération l'élargissement spectral à haute densité, qui impacte de façon importante l'émission XUV comme nous le verrons par la suite.

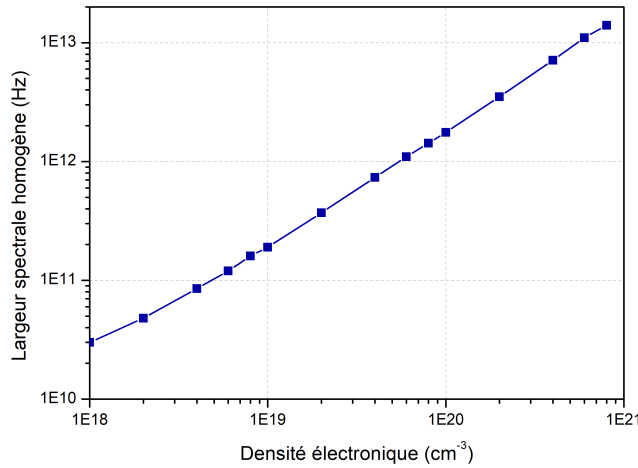


FIGURE 2.5 – Evolution de la largeur spectrale homogène en fonction de la densité électronique calculée par OFIKinRad.

La contribution des élargissements homogène et inhomogène peut être prise en compte en convoluant deux types de profils spectraux : un profil homogène lorentzien et un profil inhomogène gaussien. Il en résulte un profil de Voigt. Typiquement la largeur spectrale en régime ASE est de l'ordre de quelques mÅ. Globalement, l'amplification tend à rétrécir le spectre de la raie amplifiée [115][150].

Le gain spectral renseigne sur les qualités amplificatrices du milieu. Il correspond à la différence entre le taux d'émission stimulée et le taux d'absorption. Il s'écrit donc :

$$g(\nu) = n_u \sigma_{stim}(\nu) - n_l \sigma_{abs}(\nu) = \sigma_{stim}(\nu) \Delta n \quad [\text{cm}^{-1}] \quad (2.2)$$

avec σ_{abs} , σ_{stim} les sections efficaces d'absorption et d'émission stimulée données par :

$$\sigma_{stim}(\nu) = \frac{g_l}{g_u} \sigma_{abs}(\nu) = \frac{c^2}{8\pi\nu^2} A(\nu) \quad (2.3)$$

où $A(\nu)$ est le coefficient d'Einstein décrivant la probabilité d'émission spontanée par unité de fréquence, défini par le produit entre A le coefficient d'Einstein usuel et Φ une fonction normalisée donnant le profil de la raie spectrale :

$$A(\nu) = A\Phi(\nu) \quad \text{avec} \quad \int_0^{+\infty} \Phi(\nu) d\nu = 1 \quad (2.4)$$

Par définition, le gain est directement proportionnel à l'inversion de population. La figure 2.6 illustre l'évolution temporelle du gain simulée par le code OFIKinRad pour une densité neutre de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et une intensité de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Le gain présente un profil asymétrique avec une montée très raide dans les premiers moments de l'amplification, suivie d'une décroissance lente. Cette ascension rapide témoigne de l'excitation des électrons induite par collisions juste après l'ionisation par le champ. Le gain atteint une valeur optimale de 170 cm^{-1} à 2,3 ps : le niveau supérieur est alors très peuplé. La déplétion des ions Kr^{8+} induit finalement une chute de l'inversion de population et donc du gain. La durée du gain est ainsi limitée par la durée de vie des ions lasants (ici de l'ordre de 15 ps), ces ions étant ensuite surionisés par les collisions électrons-ions.

L'émissivité spectrale, dont l'évolution temporelle (similaire à celle du gain) est également illustrée sur la figure 2.6, représente la densité spectrale de puissance rayonnée par unité de volume et caractérise l'émission spontanée du milieu. Elle est donnée par :

$$j(\nu) = n_u h \nu A(\nu) \text{ [W} \cdot \text{cm}^{-3} \cdot \text{Hz}^{-1}] \quad (2.5)$$

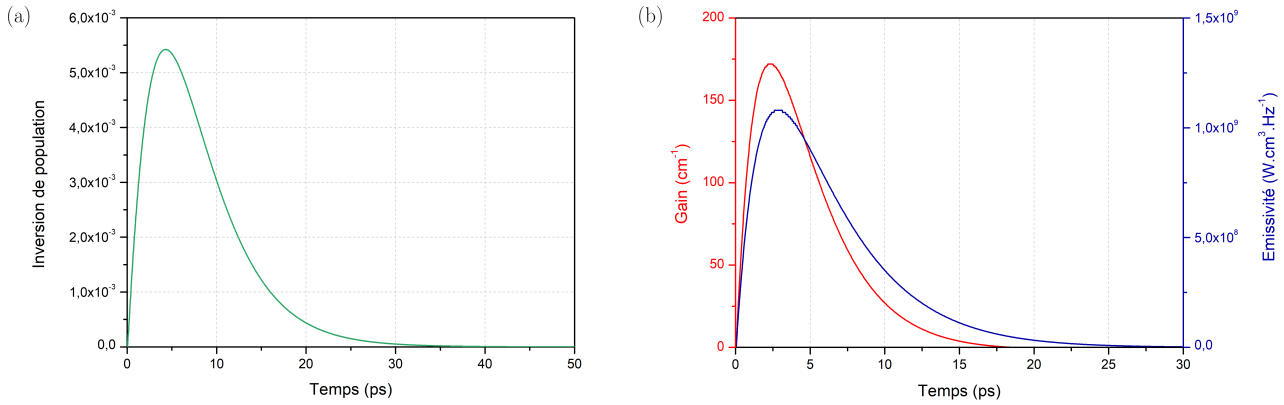


FIGURE 2.6 – (a) Dynamique de l'inversion de population de la transition $3d^9 4d^1 \rightarrow 3d^9 4p^1$. (b) Evolution temporelle du gain et de l'émissivité pour une densité neutre de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et une intensité laser de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

2.1.3.2 Transfert radiatif

L'émissivité et le gain sont deux quantités essentielles pour décrire l'amplification de l'émission laser au cours de sa propagation dans une colonne de plasma. Soit un milieu amplificateur, illustré sur la figure 2.7, homogène cylindrique de longueur L et de rayon R tel que $R < L$. Le rayonnement est émis dans tout l'espace (soit $4\pi \text{ sr}$) mais on considère que seul celui contenu dans un angle solide $\Omega = \frac{\pi R^2}{4L-z^2}$ contribue significativement à l'intensité finale. L'émissivité est alors donnée par :

$$j(\nu, z) = \frac{\Omega}{4\pi} n_u h \nu A(\nu) \quad (2.6)$$

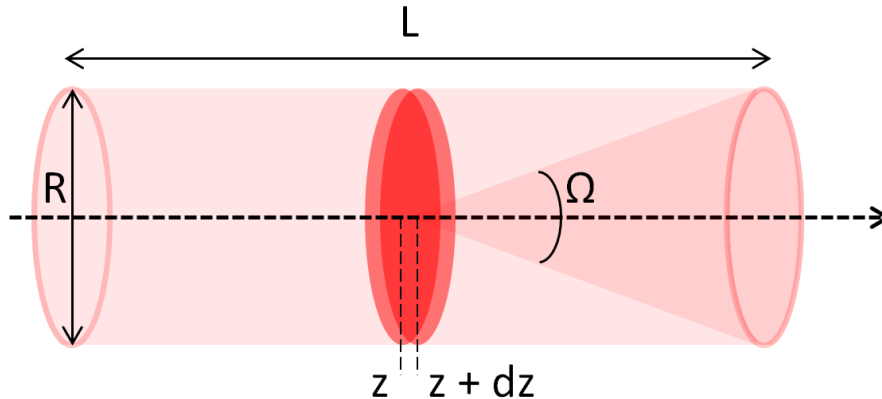


FIGURE 2.7 – Géométrie simplifiée du milieu à gain.

L'intensité I_ν du rayonnement émis à la fréquence ν dépend des processus d'absorption et d'émission stimulée et suit l'équation de transfert radiatif :

$$\frac{dI_\nu}{dz}(z) + \frac{1}{c} \frac{dI_\nu}{dt}(z) = j(\nu, z) + g(\nu, z)I_\nu(z) \quad (2.7)$$

Régime faible signal

En supposant que l'émissivité et le coefficient de gain sont constants le long de la propagation et en se plaçant en régime permanent, on peut intégrer l'équation précédente. On obtient alors :

$$I_\nu(z) = \frac{j(\nu)}{g(\nu)}(e^{g(\nu)z} - 1) + I_\nu(z=0)e^{g(\nu)z} \quad (2.8)$$

avec $I_\nu(z=0)$ la condition initiale qui vaut 0 ici puisqu'on considère le régime ASE, mais qui serait non nulle en régime injecté. En intégrant spectralement le rayonnement, et en utilisant l'approximation $\frac{j(\nu)}{g(\nu)} = \frac{j_{\nu 0}}{g_{\nu 0}}$ avec $j_{\nu 0}$ et $g_{\nu 0}$ respectivement l'émissivité et le coefficient de gain au centre de la raie laser, on a :

$$I(z) = \frac{j_{\nu 0}}{g_{\nu 0}} \int_\nu (e^{g(\nu)z} - 1) d\nu \quad (2.9)$$

Respectivement dans le cas d'une raie de forme gaussienne [151] et dans le cas d'une raie de forme Lorentzienne [152], on peut montrer que l'intensité totale peut s'écrire :

$$I_{Gauss}(L) = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi}{\ln 2}} \Delta\nu_{Gauss} \frac{j_0 (e^{g_0 L} - 1)^{3/2}}{g_0 \sqrt{g_0 L e^{g_0 L}}} \quad (2.10)$$

$$I_{Lorentz}(L) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \Delta\nu_{Lorentz} \frac{j_0 (e^{g_0 L} - 1)^{3/2}}{g_0 \sqrt{g_0 L e^{g_0 L}}} \quad (2.11)$$

avec g_0 le gain petit signal défini par $g_0 = \sigma_{stim} \Delta n_0$ où Δn_0 est l'inversion de population initiale.

L'intensité croît ici de façon exponentielle avec la longueur du milieu mais cette croissance ne peut pas durer indéfiniment. A partir d'un certain seuil qu'on appelle l'intensité de saturation, le niveau supérieur de la transition est dépeuplé, l'inversion de population diminue, ce qui engendre des gains plus faibles. L'hypothèse consistant à considérer le gain et l'émissivité constants avec la longueur d'amplification n'est plus valide, l'équation (2.9) n'est donc valable que pour de très faibles intensités.

Régime saturé

Dans le cas d'un régime quasi-stationnaire, on peut montrer que l'inversion de population décroît avec l'intensité selon :

$$\Delta n = \frac{\Delta n_0}{1 + \frac{I}{I_{sat}}} \quad (2.12)$$

avec I l'intensité intégrée spectralement telle que $I = \int_\nu \Phi(\nu) I(\nu) d\nu$ et I_{sat} , l'intensité de saturation qui correspond à l'intensité pour laquelle l'inversion de population est divisée par deux, définie par :

$$I_{sat} = \frac{h\nu_0}{\sigma_{stim} \tau_R} \quad (2.13)$$

avec τ_R le temps de recouvrement de l'inversion de population qui dépend notamment du taux de dépletion du niveau supérieur de la transition. Le gain en régime saturé est donc donné par :

$$g = \frac{g_0}{1 + \frac{I}{I_{sat}}} \quad (2.14)$$

Comme le montre la figure 2.8, contrairement au régime faible signal où l'intensité croît de manière exponentielle avec la longueur du milieu, l'intensité augmente linéairement à partir du moment où on a atteint la saturation. Le produit gain-longueur est constant pour une intensité égale à l'intensité de saturation, il est typiquement compris entre 15 et 20 en fonction des propriétés atomiques du milieu. Ainsi, plus le coefficient de gain est fort, plus on atteint le régime saturé rapidement. Typiquement, le coefficient de gain est de l'ordre de quelques centaines de cm^{-1} , le régime de saturation est donc atteint au bout de quelques centaines de microns.

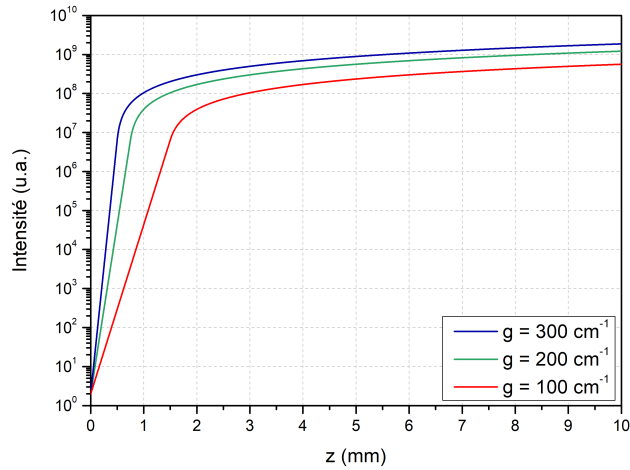


FIGURE 2.8 – Intensité intégrée spectralement en fonction de la longueur d’amplification pour différents coefficients de gain.

2.1.4 Dépendance à la densité électronique

2.1.4.1 Evolution temporelle des populations atomiques

L’inversion de population résulte de notre capacité à chauffer efficacement le plasma de sorte à ce que les électrons aient une énergie suffisante (ici supérieure à 145 eV) pour être excités dans le niveau supérieur de la transition laser. Comme nous le verrons plus loin (en 2.2.2.1 et en 4.2.1.2), le chauffage des électrons peut être effectué par OFI ou par diffusion Raman stimulée. Si à basse densité (typiquement inférieure à quelques 10^{18} cm^{-3}), ce dernier mécanisme est négligeable par rapport au chauffage par le champ, il devient prépondérant à haute densité (à partir de 10^{19} cm^{-3}). La température électronique est alors d’autant plus importante que la densité augmente. Cette montée en température favorise l’inversion de population. De plus, le passage des électrons du fondamental au niveau supérieur s’effectue par excitation collisionnelle, et est donc également privilégié à haute densité puisque le taux de collisions électrons-ions augmente.

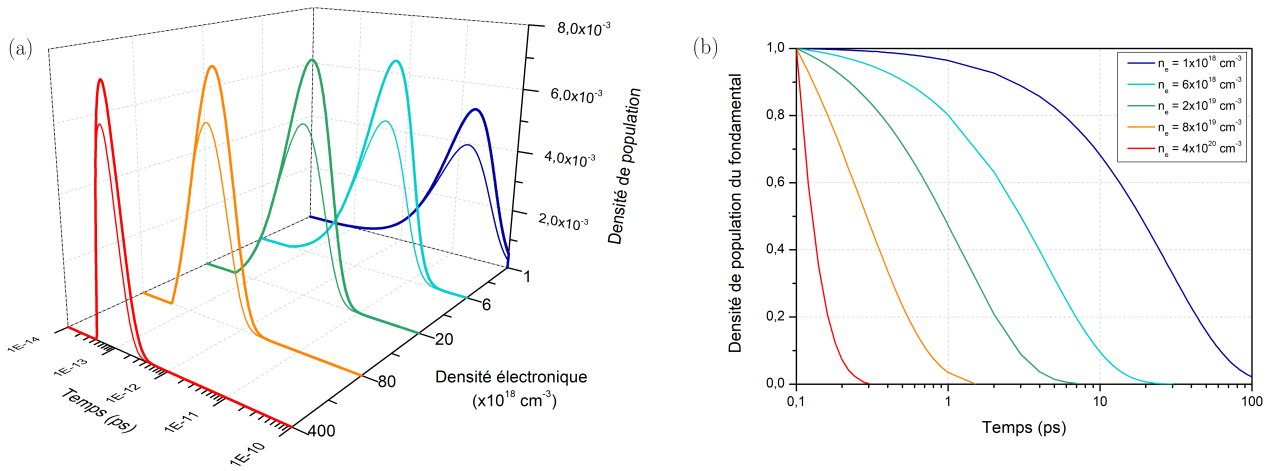


FIGURE 2.9 – (a) Densité de population du niveau supérieur (en trait gras) et du niveau inférieur (en trait fin) pour différentes densités électroniques. (b) Densité de population du niveau fondamental. Simulations par OFIKinRad.

La figure 2.9 (a) montre la densité de population des niveaux inférieur et supérieur pour différentes densités électroniques entre 10^{18} cm^{-3} et 4×10^{20} cm^{-3} . La densité de population des niveaux excités augmente d’abord dans le temps, conséquence directe de l’excitation collisionnelle. Cette croissance est favorisée à haute densité par les collisions électrons-ions : il en résulte une densité de population des niveaux excités plus importante, un front de montée plus raide et une inversion de population optimum atteinte pour des temps plus courts. La densité de population des niveaux excités décroît ensuite sous l’effet de la diminution de la densité de population du niveau fondamental (figure 2.9 (b)) induite par la déplétion des ions Kr^{8+} . Plus la densité du plasma augmente, plus le taux de collisions épuise rapidement la population d’ions lasants qui sont promus à une charge supérieure

par surionisation. Le temps de vie de la densité de population du fondamental chute drastiquement de 100 ps (10^{18} cm^{-3}) à 300 fs ($4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$).

2.1.4.2 Evolution temporelle du gain

L'allure temporelle du gain est semblable à celle de l'inversion de population, et dépend donc également de la densité électronique comme le montre la figure 2.10. Plusieurs effets peuvent être constatés. D'abord, on peut remarquer que lorsque la densité du plasma augmente, le gain monte plus tôt et avec une pente plus raide comme c'était le cas pour l'inversion de population. Il est également à noter que le coefficient maximum du gain est croissant avec la densité puisqu'il dépend de l'inversion de population. L'évolution du coefficient maximum de gain est tracée en bleu sur la figure 2.11. Il passe de 90 cm^{-1} à 350 cm^{-1} lorsque la densité électronique varie de 10^{18} cm^{-3} à 10^{21} cm^{-3} . Cette croissance est relativement modérée et peu significative puisque la saturation est, dans tous les cas, rapidement atteinte. Cette augmentation douce du gain peut également être expliquée par le fait que le gain petit signal g_0 est inversement proportionnel à la largeur spectrale, et tend donc à diminuer lorsque la densité croît en conséquence de l'élargissement spectral. Cela atténue l'augmentation globale du gain induite par une plus forte inversion de population à haute densité.

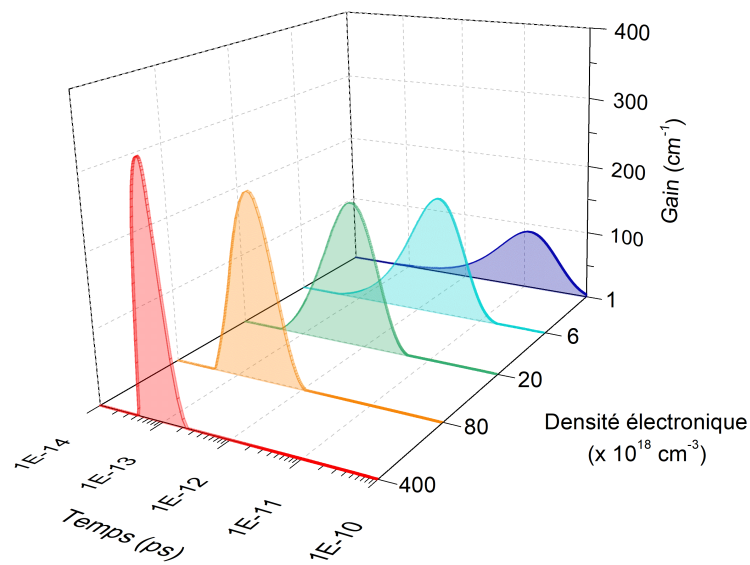


FIGURE 2.10 – Evolution temporelle du gain pour différentes densités électroniques. Simulations par OFIKinRad.

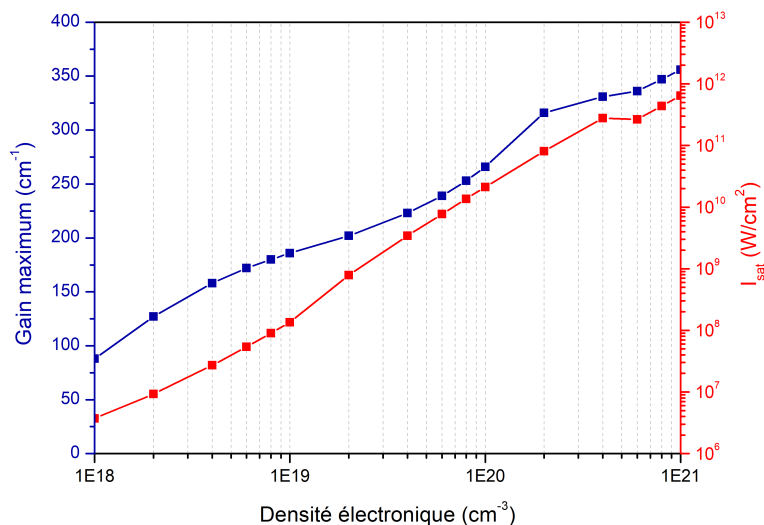


FIGURE 2.11 – Coefficient de gain maximum et intensité de saturation en fonction de la densité électronique du plasma amplificateur. Simulations par OFIKinRad.

L'intensité de saturation (en rouge sur la figure 2.11), inversement proportionnelle au produit entre la section efficace de l'émission stimulée et le temps de recouvrement de l'inversion de population, subit quant à elle une très forte augmentation : elle augmente de près de 5 ordres de grandeur lorsque la densité électronique croît d'un facteur mille. Travailler à haute densité est donc avantageux pour générer des impulsions énergétiques puisque les collisions électrons-ions permettent de bâtir l'inversion de population et d'accroître l'intensité de saturation. Les hautes densités ont également un autre rôle favorable en vue de l'optimisation des paramètres de la source.

En effet, la surionisation des ions lasants favorisée par les collisions électrons-ions induit une interruption anticipée du gain. La corrélation entre le degré d'ionisation moyen (traits pointillés) et l'évolution temporelle du gain (traits pleins) est illustrée sur la figure 2.12 (a) pour différentes densités électroniques. L'ionisation induite par le champ laser se déroule pendant les premières dizaines de femtosecondes après l'arrivée de l'impulsion, elle permet de générer les ions lasants Kr^{8+} . Ensuite, l'ionisation par collisions entre les électrons et les ions prend le relais. Bien que ces collisions favorisent l'inversion de population de la transition laser, elles entraînent aussi une surionisation de l'ion lasant d'autant plus rapide que la densité du milieu est importante. La zone représentée en jaune correspond à la fenêtre durant laquelle les ions Kr^{8+} existent. Lorsque le degré d'ionisation moyen dépasse 9, la population d'ions lasants est épuisée. Ainsi, le temps de vie des ions considérés décroît très nettement lorsque la densité électronique augmente. La déplétion de la population lasante induit une interruption anticipée de la durée de vie du gain mise en valeur sur la figure 2.12 (b) : la durée de vie du gain passe de plusieurs dizaines de ps pour une densité électronique de 10^{18} cm^{-3} , à des durées bien inférieures à la picoseconde au delà de $4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, et même inférieures à la centaine de femtosecondes à partir de $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

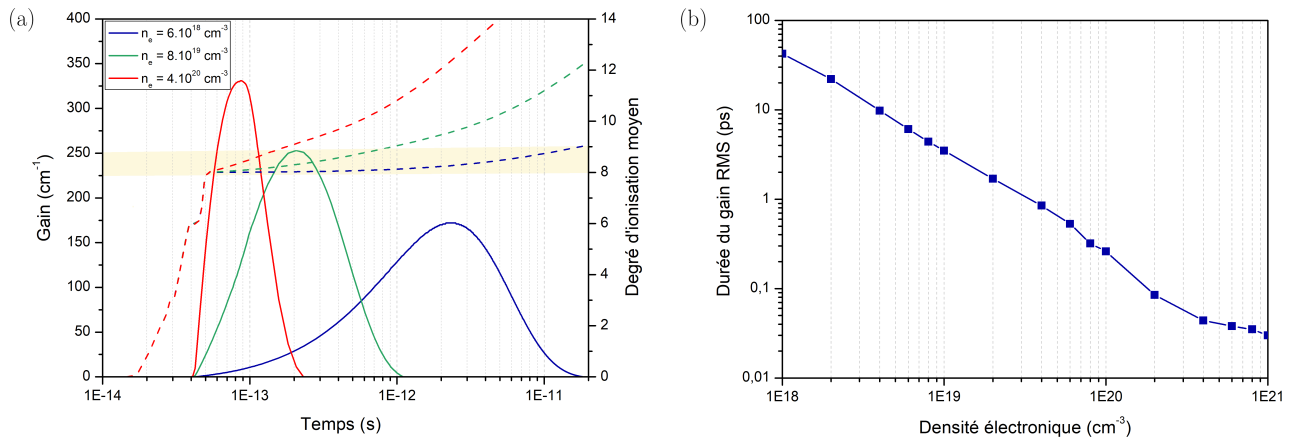


FIGURE 2.12 – (a) Interruption anticipée du gain induite par la surionisation des ions Kr^{8+} . La zone en jaune correspond au temps de vie des ions lasants. (b) Durée du gain RMS en fonction de la densité électronique.

Il est absolument crucial de souligner que ces temps de vie du gain extrêmement courts dépendent de la facilité à surioniser l'ion lasant, et donc de la distribution énergétique des électrons (qui diffère en fonction du régime de pompage) et de l'espèce lasante considérée. La surionisation de l'ion Kr^{8+} est aisée puisque seulement 270 eV sont nécessaires pour passer de l'état $8+$ à l'état $9+$. On peut légitimement supposer que des temps de vie du gain similaires peuvent être attendus dans le cas du xénon palladiumoïde qui requiert une énergie de 200 eV pour sa surionisation. En revanche, le molybdène et l'argent nickeloïde, utilisés en régime transitoire, nécessitent des énergies beaucoup plus importantes (respectivement environ 600 eV et 1000 eV) en raison de leurs degrés d'ionisation déjà élevés. Dans ces deux derniers cas, la surionisation est difficile et induit très probablement des temps de vie du gain plus longs et donc des durées d'impulsions plus longues. Notons en effet que, malgré des densités supérieures à 10^{20} cm^{-3} , des durées d'impulsion de 2 ps ont été mesurées dans le cas d'un laser transitoire dans l'argent nickeloïde [89].

Ce phénomène d'interruption anticipée du gain, ici illustré par le biais de simulations issues de OFIKinRad, a également été observé expérimentalement [8][9]. Une conséquence attendue de cet effet est la réduction de la durée d'impulsion avec l'augmentation de la densité électronique. Ce point, au cœur de cette thèse, est considéré dans la section 5.2.

2.2 Interaction laser-plasma en champ intense

Nous avons vu précédemment que la génération d'un rayonnement dans la gamme spectrale des XUV nécessite une inversion de population entre deux niveaux d'énergie d'une espèce lasante, disponible dans un plasma

constitué d'ions multichargés. Nous nous intéressons ici aux mécanismes de génération de ces ions lasants, ainsi qu'aux processus qui permettent de chauffer les électrons pour un pompage efficace de la transition laser.

2.2.1 Mécanismes d'ionisation par le champ laser

Pour mieux se représenter l'ordre de grandeur des intensités mises en jeu ici, rappelons que le champ coulombien vu par l'électron d'un atome d'hydrogène sur l'état fondamental est de l'ordre de $5 \times 10^9 \text{ V} \cdot \text{cm}^{-1}$. L'intensité I étant reliée, dans le cas d'une polarisation linéaire, au champ électrique E par la formule :

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E^2 \quad (2.15)$$

avec ϵ_0 la constante de permittivité diélectrique du vide et c la vitesse de la lumière, ce champ correspond à une intensité lumineuse de $3,3 \times 10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Cette intensité peut être considérée comme l'unité atomique d'intensité, une référence pour l'interaction avec un champ laser.

Selon l'intensité du champ, différents mécanismes d'ionisation interviennent. Dans le cas d'un champ faible devant le champ coulombien, l'ionisation est permise par l'absorption de photons. Un électron peut être arraché à un atome sous l'effet de l'absorption d'un unique photon dans le cas où ce dernier lui confère l'énergie nécessaire pour le faire : l'énergie du photon incident doit être supérieure à l'énergie de liaison de l'électron à l'atome. Ce processus, appelé photoionisation, n'entre pas en jeu dans l'infrarouge puisqu'un photon à 800 nm possède une énergie insuffisante de l'ordre de 1,5 eV. En revanche, l'ionisation multiphotonique, qui est la généralisation de ce phénomène à plusieurs photons, est possible. Dans le cas d'un champ fort, ce sont d'autres processus qui entrent en jeu comme l'effet tunnel et la suppression de la barrière de potentiel.

2.2.1.1 Ionisation multiphotonique

L'ionisation multiphotonique a été observée pour la première fois en 1965 [153]. Elle se produit pour des intensités "faibles" devant le champ coulombien, de l'ordre de $10^{10} - 10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ [154]. Ce processus, illustré sur la figure 2.13, repose sur la libération d'un électron suite à l'absorption de plusieurs photons jusqu'à ce que l'énergie acquise soit supérieure à l'énergie d'ionisation de l'atome. L'énergie cinétique finale E_f de l'électron est donnée par la formule d'Einstein :

$$E_f = nh\nu - U_I \quad (2.16)$$

avec n le nombre de photons absorbés nécessaires à l'ionisation, $h\nu$ l'énergie d'un photon de fréquence ν , et U_I le potentiel d'ionisation de l'atome qui correspond à l'énergie de liaison entre l'atome et l'électron. Le taux d'ionisation multiphotonique est proportionnel à $I^{N_{ph}}$ avec N_{ph} le nombre de photons absorbés.

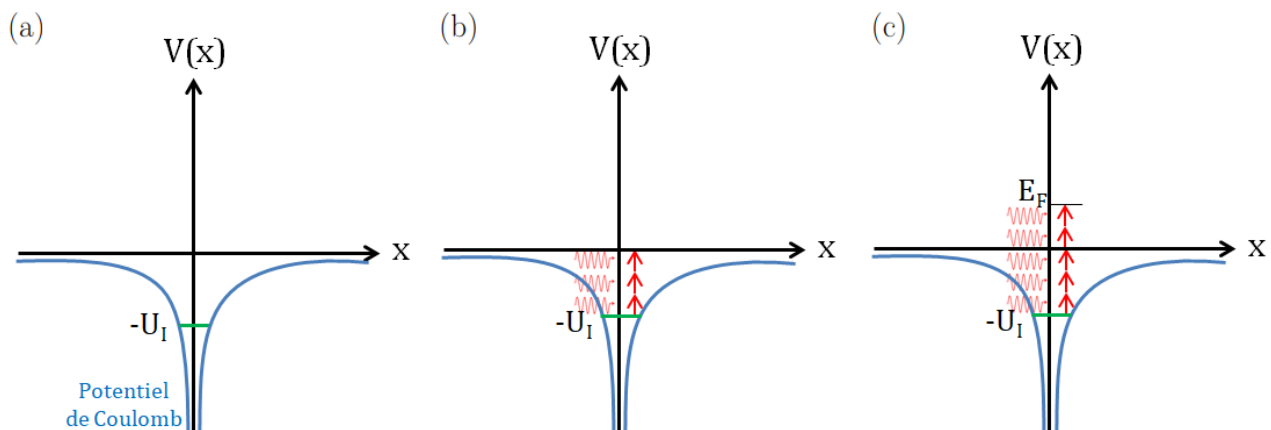


FIGURE 2.13 – (a) Potentiel de Coulomb sans perturbation. L'électron piégé a une énergie de liaison U_I . (b) Ionisation multiphotonique : l'atome absorbe n photons d'énergie $h\nu$. L'électron est libéré avec une énergie cinétique minimale. (c) Ionisation au dessus du seuil : l'atome absorbe les n photons nécessaires à l'ionisation et m photons supplémentaires.

Une fois dans le continuum, l'électron peut continuer d'acquérir de l'énergie cinétique en absorbant des photons supplémentaires si leur flux incident est suffisamment élevé. Ce phénomène, nommé ionisation au dessus

du seuil ou ATI pour "Above Threshold Ionization", est illustré sur la figure 2.13 (c) et se produit typiquement pour des intensités supérieures à $10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'énergie cinétique finale de l'électron est alors donnée par :

$$E_f = (n + m)h\nu - U_I \quad (2.17)$$

avec m le nombre de photons absorbés au dessus du seuil.

2.2.1.2 Ionisation par abaissement de la barrière de potentiel : effet tunnel et suppression de la barrière de potentiel

La première observation de l'ionisation par effet tunnel date de 1985 [155]. Ce phénomène se produit pour des intensités supérieures à $10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Le champ laser est alors suffisamment intense pour entrer en compétition avec les champs atomiques et abaisser la barrière de potentiel, permettant ainsi à l'électron de franchir par effet tunnel, un phénomène purement quantique. Le principe de ce mécanisme est illustré sur la figure 2.14. Il est à noter que, pour que la probabilité que l'électron traverse la barrière soit non nulle, il est nécessaire que le champ laser soit suffisamment basse fréquence de sorte que la période d'oscillation laser soit supérieure au temps de traversée de l'électron (de l'ordre de 10^{-15} s).

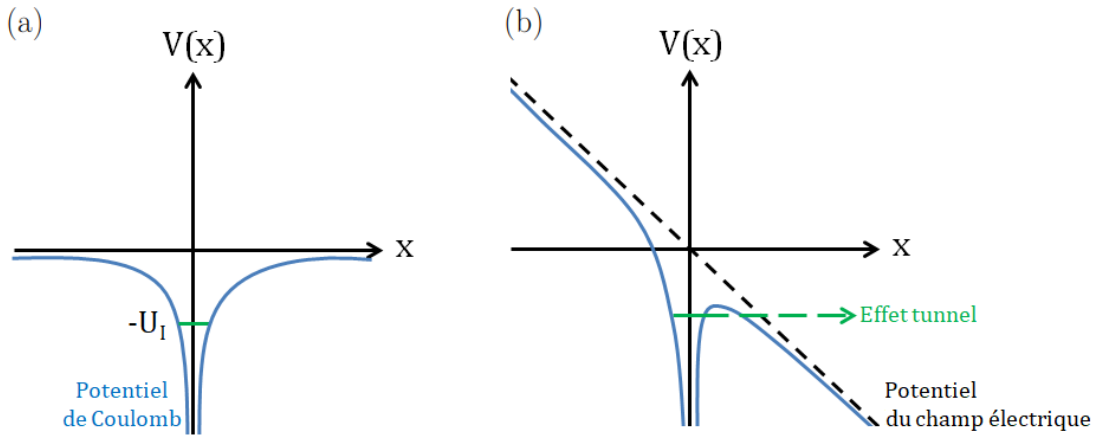


FIGURE 2.14 – (a) Potentiel de Coulomb sans perturbation. L'électron piégé a une énergie de liaison U_I . (b) Ionisation par effet tunnel : le champ laser abaisse la barrière de potentiel que l'électron peut alors franchir par effet tunnel.

La limite entre le régime d'ionisation multiphotonique et le régime d'ionisation par effet tunnel est déterminé par le paramètre adimensionnel de Keldysh [156]. Sachant que l'épaisseur de la barrière de potentiel peut s'écrire :

$$l_{tunnel} = \frac{U_I}{eE} \quad (2.18)$$

et que la vitesse moyenne v de l'électron peut être déduite de l'expression de l'énergie cinétique qui est égale à l'énergie d'ionisation :

$$v = \sqrt{\frac{2U_I}{m_e}} \quad (2.19)$$

où m_e est la masse de l'électron, on peut définir le temps de traversée de la barrière de potentiel $\tau = l_{tunnel}/v$ et donc la fréquence tunnel ω_{tunnel} correspondante :

$$\omega_{tunnel} = \frac{\sqrt{2}eE}{\sqrt{m_e U_I}} \quad (2.20)$$

Le paramètre de Keldysh noté γ est défini comme :

$$\gamma = \frac{\omega_{laser}}{\omega_{tunnel}} = \omega \frac{\sqrt{m_e U_I}}{\sqrt{2}eE} \quad (2.21)$$

avec ω_{laser} la fréquence du champ laser. Lorsque $\gamma \ll 1$, la période d'oscillation du champ est grande devant le temps de traversée de la barrière. Le champ coulombien est alors modifié sous l'effet du champ laser, le processus d'ionisation par effet tunnel est prédominant. Lorsque $\gamma \gg 1$, l'ionisation est de nature multiphotonique.

Le paramètre de Keldysh peut aussi être réécrit sous la forme d'un ratio énergétique :

$$\gamma = \sqrt{\frac{U_I}{2U_p}} \quad (2.22)$$

avec U_p le potentiel pondérateur du champ laser, qui correspond à l'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans un champ de pulsation ω , donné par :

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} \quad (2.23)$$

Le régime d'ionisation tunnel se produit donc lorsque le potentiel pondérateur du laser est grand devant le potentiel d'ionisation.

Dans le cas où le champ laser est beaucoup plus intense que le champ coulombien, la barrière de potentiel est complètement abaissée (voir fig. 2.15). L'électron n'est plus piégé dans le potentiel attracteur du noyau, son ionisation est immédiate. Ce régime, cas limite de l'effet tunnel, est appelé régime de suppression de la barrière, ou BSI pour "Barrier Suppression Ionization".

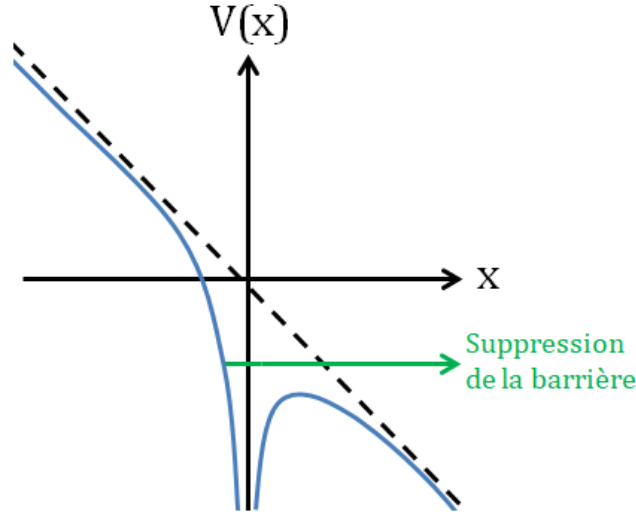


FIGURE 2.15 – Ionisation par suppression de la barrière : le champ laser est tellement intense que la barrière de potentiel est complètement abaissée.

En régime OFI, les impulsions utilisées pour générer le plasma d'ions multichargés sont bien plus longues que l'unité atomique de temps (de l'ordre de 10^{-17} s). On peut donc considérer que le champ laser est quasi-statique aux premiers instants de l'interaction laser-plasma : le paramètre de Keldysh est grand, l'ionisation multiphotonique domine avec cependant un taux d'ionisation modéré puisque l'intensité laser est encore faible. La probabilité d'ionisation tunnel augmente ensuite dans le temps avec l'intensité, jusqu'à atteindre finalement le régime BSI. Globalement, l'ionisation par abaissement de la barrière de potentiel domine dans les plasmas OFI.

Les intensités seuils I_{BSI} à partir desquelles la barrière de potentiel peut être supprimée peuvent être calculés par un modèle hydrogénoïde simple [157]. Le champ est ici considéré comme quasi-statique, une approximation valide puisque le temps caractéristique de l'ionisation (de l'ordre de 10^{-2} fs) est bien inférieur à la période du champ laser infrarouge (quelques fs).

En notant Z la charge atomique effective, le potentiel vu par l'électron s'écrit :

$$V(r) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0 r} - eEr \quad (2.24)$$

Le premier terme représente le potentiel coulombien et le second est un terme dipolaire dû à la présence du champ E . Le potentiel vu par l'électron est maximum en r_{max} lorsque $(\delta V/\delta r)_{r=r_{max}} = 0$. La position du maximum de potentiel est alors donnée par :

$$r_{max} = \pm \sqrt{\frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 E}} \quad (2.25)$$

et le maximum de potentiel par :

$$V(r_{max}) = -2\sqrt{\frac{Ze^3E}{4\pi\epsilon_0}} \quad (2.26)$$

Le champ électrique nécessaire pour libérer un électron par suppression de la barrière est donc :

$$E_{BSI} = \pi\epsilon_0 \frac{U_I^2}{Ze^3} \quad (2.27)$$

et l'intensité seuil de suppression de la barrière :

$$I_{BSI}[\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}] = C \frac{U_I^4[\text{eV}]}{Z^2} \quad (2.28)$$

avec $C \approx 4 \times 10^9$ en polarisation linéaire et $C \approx 8 \times 10^9$ en polarisation circulaire. Il est à noter que ce calcul ne prend pas en compte l'effet Stark, qui modifie le potentiel d'ionisation de l'électron de manière non négligeable pour des intensités supérieures à $10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Néanmoins, il permet une estimation de l'intensité nécessaire à la création des ions lasants.

Le tableau 2.1 et la figure 2.16 donnent les potentiels d'ionisation et les intensités seuils de suppression de la barrière des 10 premiers états de charge du krypton dans le cas d'une polarisation circulaire. Une intensité de $3,1 \times 10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ est nécessaire à la création de l'ion Kr^{8+} auquel on s'intéresse ici. On peut noter que l'intensité requise pour atteindre l'état de charge IX est supérieure d'un ordre de grandeur, ce qui illustre la stabilité des ions lasants que nous souhaitons produire. Cette stabilité s'explique par la configuration électronique du Kr^{8+} ($1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 3d^{10}$) dont les couches $n = 1, 2$ et 3 sont complètes.

Ion	U_I [eV]	I_{BSI} [$\text{W} \cdot \text{cm}^{-2}$]
Kr I	14.00	3.10×10^{14}
Kr II	24.36	7.00×10^{14}
Kr III	35.67	1.44×10^{15}
Kr IV	50.85	3.34×10^{15}
Kr V	64.69	5.60×10^{15}
Kr VI	78.49	8.43×10^{15}
Kr VII	109.13	2.32×10^{16}
Kr VIII	125.80	3.13×10^{16}
Kr IX	233.00	2.91×10^{17}
Kr X	268.20	4.14×10^{17}

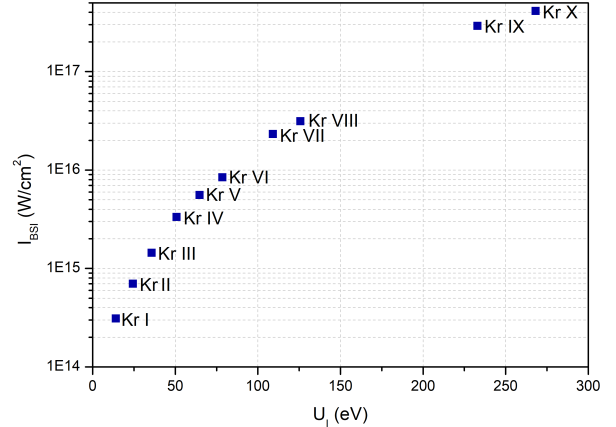


TABLE 2.1 – Potentiels d'ionisation et intensités seuil de suppression de la barrière des 10 premiers états de charge du krypton pour une polarisation circulaire du champ.

FIGURE 2.16 – Intensité seuil de suppression de la barrière pour obtenir les différents degrés d'ionisation dans le krypton.

Ce modèle est cependant très simpliste : il donne une probabilité d'ionisation nulle pour $I < I_{BSI}$, et une probabilité de 1 lorsque $I \geq I_{BSI}$. Il ne renseigne donc pas sur la quantité d'ions créés. Pour cela, il faut calculer les taux d'ionisation tunnel à partir de la théorie ADK Ammosov-Delone-Krainov [158]. Ce modèle suppose que les électrons sont éjectés les uns après les autres, et que chaque atome passe par tous les états de charge intermédiaires jusqu'à l'état de charge final. La densité ρ_k d'un ion ionisé k fois peut donc être obtenue en résolvant le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{d\rho_0}{dI} = -W_0(I)\rho_0(I) \\ \frac{d\rho_k}{dI} = -W_k(I)\rho_k(I) + W_{k-1}(I)\rho_{k-1}(I) \end{cases} \quad (2.29)$$

avec W_k la probabilité d'ionisation tunnel par unité de temps, définie dans [159], qui dépend du nombre quantique principal n , azimutal l , magnétique m et de la polarisation du champ.

L'évolution du degré d'ionisation moyen du krypton soumis à une impulsion de 35 fs et d'intensité $5 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ est montrée sur la figure 2.17. Comme dit précédemment, une intensité de quelques $10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ est requise pour la création des ions Kr^{8+} . La stabilité de ces ions est illustrée par la zone jaune : le degré d'ionisation moyen vaut 8 entre 2×10^{16} et $2 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, soit sur près d'un ordre de grandeur en terme d'intensité. La création et la déplétion successive des ions krypton est présentée sur la figure 2.18.

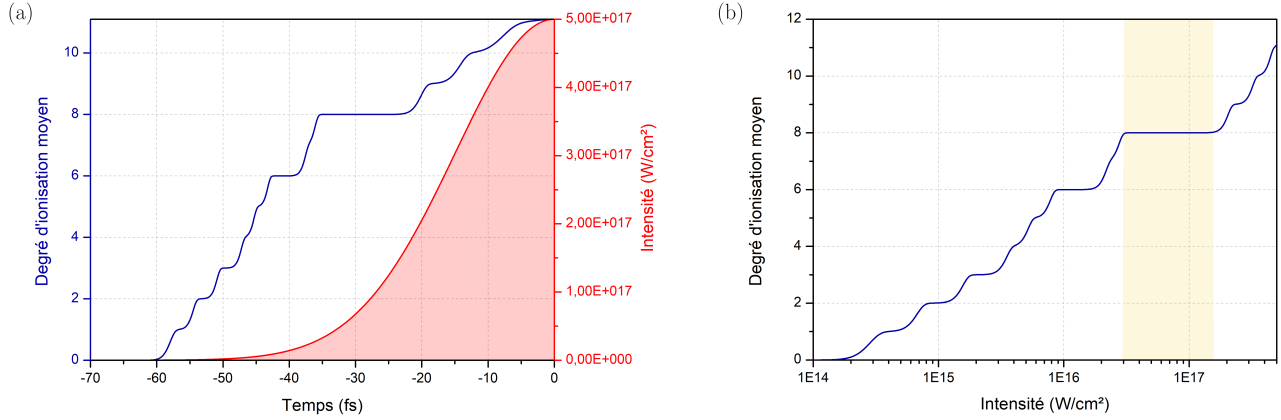


FIGURE 2.17 – (a) Evolution temporelle de l'intensité laser et du degré d'ionisation moyen. (b) Evolution du degré d'ionisation moyen en fonction de l'intensité instantanée. La zone en jaune représente la plage d'intensité sur laquelle l'ion Kr^{8+} est présent.

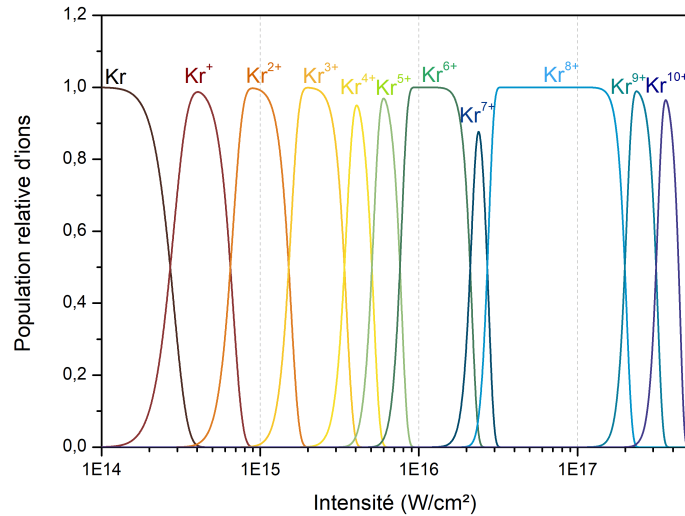


FIGURE 2.18 – Evolution des états d'ionisation du krypton soumis à une impulsion de 35 fs et $5 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

2.2.2 Distribution énergétique des électrons et des ions

2.2.2.1 Chauffage des électrons arrachés par OFI

Le pompage de la transition laser requiert dans notre cas une température électronique minimum de 145 eV. Soulignons qu'on appelle température électronique l'énergie cinétique moyenne des électrons. Nous étudions ici les différents mécanismes qui permettent de chauffer les électrons en vue d'atteindre cette énergie.

Chauffage par OFI

Une fois ionisé, l'électron est accéléré dans une direction aléatoire par la force du champ laser jusqu'à ce que ce dernier l'ait complètement traversé [160]. Cela concerne chaque électron individuellement, et ne dépend donc pas de la densité du plasma. Considéré sur l'ensemble des électrons, ce phénomène constitue un chauffage

global. La polarisation du champ a un impact décisif sur l'énergie cinétique acquise par l'électron comme le montre le calcul suivant.

On considère un champ électrique d'intensité I de polarisation quelconque :

$$\mathbf{E}(t) = \sqrt{\frac{2I(t)\Phi}{\epsilon_0 c}} \cos(\omega t) \cdot \mathbf{x} + \sqrt{\frac{2I(t)(1-\Phi)}{\epsilon_0 c}} \sin(\omega t) \cdot \mathbf{y} \quad (2.30)$$

avec Φ la polarisation du champ qui vaut 0 pour une polarisation linéaire et 1/2 pour une polarisation circulaire. Sous l'hypothèse que l'électron n'est soumis qu'au champ électrique, que les électrons sont relâchés indépendamment les uns des autres et que les collisions secondaires de l'électron avec son ion parent sont négligées, la vitesse de l'électron dans le champ laser est donnée par l'équation du mouvement :

$$\frac{d\mathbf{v}(t)}{dt} = -\frac{e}{m_e} \mathbf{E}(t) \quad (2.31)$$

Si l'on résout cette équation vectorielle, sachant à l'instant d'ionisation ($t = 0$) l'électron a une vitesse nulle, on peut déterminer l'énergie cinétique E_c de l'électron :

$$E_c(t) = \begin{cases} \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega^2} \cos^2(\omega t) & \text{pour } \Phi = 0 \text{ (Polarisation linéaire)} \\ \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} & \text{pour } \Phi = 1/2 \text{ (Polarisation circulaire)} \end{cases} \quad (2.32)$$

avec $E_0(t) = \sqrt{\frac{2I(t)}{\epsilon_0 c}}$ supposé constant égal à E_0 dans le temps en considérant l'enveloppe du champ lentement variable. L'énergie cinétique d'un électron soumis à un champ polarisé linéairement dépend du temps, elle est maximale lorsque le champ $E(t)$ est minimal. Or la probabilité d'ionisation tunnel est optimale lorsque le champ est maximal. Le chauffage des électrons en polarisation linéaire est donc peu efficace, comparativement à celui obtenu en polarisation circulaire. En effet, l'énergie cinétique acquise par l'électron soumis à un champ polarisé circulairement est constante sur un cycle optique. On peut aussi souligner que le chauffage par le champ laser est proportionnel à λ^2 : une grande longueur d'onde (typiquement autour de 800 nm pour les lasers Ti :Sa) est donc favorable aux schémas collisionnels.

Transfert d'énergie entre le champ laser et les électrons

Une particule chargée soumise à un champ oscillant inhomogène subit une force, la force pondéromotrice (voir section 2.3.1.2), qui pousse la particule des zones de champ fort vers les zones de champ faible. Il y a alors transfert d'énergie entre le champ laser et cette particule par excitation des ondes plasma. Comme la force pondéromotrice, ce transfert d'énergie ne dépend pas de la polarisation du champ laser. Il existe deux mécanismes de transfert d'énergie de ce type :

- l'amortissement Landau : une particule, dont la vitesse de phase est proche mais légèrement inférieure à celle de l'onde plasma, est accélérée par cette onde. Ce phénomène ne peut pas contribuer au chauffage des électrons dans notre cas, puisque ceux-ci ont une vitesse non relativiste alors que les ondes plasma ont une vitesse proche de celle de la lumière.
- la diffusion Raman stimulée qui correspond à une diffusion inélastique d'un photon par une particule : la particule absorbe l'énergie d'un photon incident et subit une relaxation vibrationnelle lors de sa désexcitation au cours de laquelle elle perd de l'énergie sous forme de chaleur. La particule relâche ensuite un photon d'une énergie inférieure à celle du photon incident. L'efficacité de ce phénomène est proportionnel à la densité du plasma et à l'amplitude du champ laser. Nous verrons par la suite (4.2.1.2) que ce phénomène chauffe significativement les électrons pour des densités typiquement supérieures à quelques 10^{19} cm^{-3} .

Chauffage par Bremsstrahlung inverse

Lorsqu'un électron oscillant dans un champ laser entre en collision avec un ion, il peut absorber un photon pour conserver son moment cinétique [161]. L'énergie absorbée est alors convertie en énergie thermique. Le changement de température induit par ce mécanisme dépend de la densité ionique, ainsi que de la durée d'impulsion du laser. Il a été montré que la contribution du Bremsstrahlung inverse est négligeable par rapport au chauffage par le champ [162]. De façon générale, le chauffage par Bremsstrahlung inverse se produit sur un temps caractéristique long (supérieur à la picoseconde), et n'a lieu que pour des durées d'impulsion longues.

Chauffage par effets relativistes

En présence d'un champ ultra-intense (de l'ordre de $10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$), des effets relativistes peuvent modifier la distribution énergétique des électrons. Cette contribution est négligeable dans le cas d'une polarisation linéaire [163], mais elle induit un décalage du pic d'énergie dans le cas d'une polarisation circulaire [164]. Ce décalage est croissant avec la longueur d'onde et avec l'intensité du champ, il est de l'ordre de quelques eV par rapport aux prédictions classiques pour un laser Ti :Sa.

Distribution énergétique des électrons

A basse densité, le chauffage des électrons est principalement induit par OFI. La figure 2.19 est un résultat du code de cinétique plasma OFIKinRad. Elle montre la distribution énergétique des électrons du plasma pour une densité neutre de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et pour un champ incident d'intensité $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ de polarisation linéaire ou circulaire. Seuls les électrons d'une énergie supérieure à 145 eV, représentés par la zone en jaune, peuvent pomper la transition laser. Seulement 10 % des électrons sont suffisamment chauds en polarisation linéaire, contre plus de 70 % en polarisation circulaire. Il est donc particulièrement important de travailler avec un champ pompe polarisé circulairement pour chauffer efficacement le plasma. Nous verrons dans le chapitre 4 que ce résultat est à nuancer lorsqu'on augmente la densité du plasma : nous avons montré que le chauffage par diffusion Raman stimulée devient alors prédominant, ce qui rend le pompage indépendant de la polarisation.

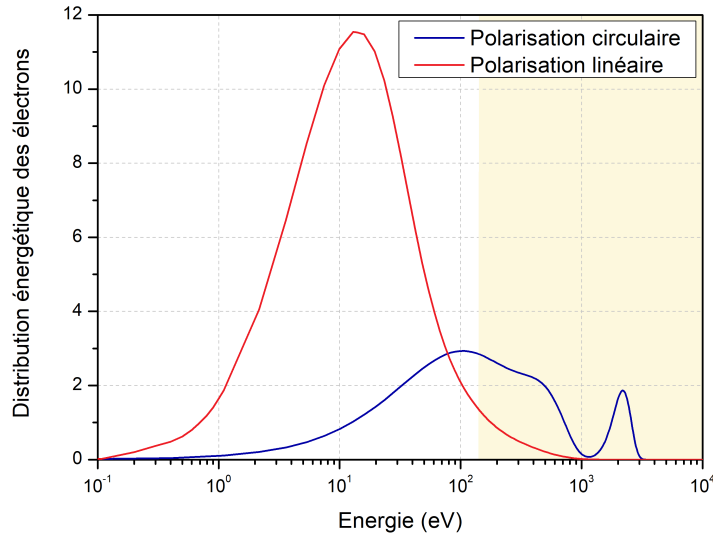


FIGURE 2.19 – Distribution énergétique des électrons du plasma en fonction de la polarisation utilisée. L'intensité du laser de pompe est ici $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, la densité neutre de krypton est $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. La zone en jaune représente les électrons dont l'énergie est supérieure aux 145 eV requis pour le pompage efficace de la transition laser.

2.2.2.2 Distribution énergétique des ions

Le chauffage des ions par le champ laser se base sur le même principe que le chauffage des électrons, à cela près qu'il faut prendre en compte leur état de charge qui va être modifié dans le temps. Ainsi, les vitesses \mathbf{v}_e et \mathbf{v}_Z respectives de l'électron et de l'ion de charge Z sont données par :

$$\begin{cases} \frac{d\mathbf{v}_e(t)}{dt} = -\frac{e}{m_e} \mathbf{E}(t) \\ \frac{d\mathbf{v}_Z(t)}{dt} = \frac{Ze}{m_i} \mathbf{E}(t) \end{cases} \quad (2.33)$$

avec m_e et m_i les masses respectives de l'électron et de l'ion considéré. On peut donc en déduire que :

$$\mathbf{v}_Z = -Z \frac{m_e}{m_i} \mathbf{v}_e \quad (2.34)$$

La vitesse finale de l'ion dépend de sa vitesse après chaque ionisation aux instants t_1, t_2, \dots, t_Z . En appelant \mathbf{v}_0 la vitesse initiale de l'électron, déterminée par la distribution de Maxwell-Boltzmann à la température du gaz ($\approx 300 \text{ K}$), on peut montrer qu'à un instant t supérieur à t_Z , la vitesse de l'ion de charge Z est :

$$\mathbf{v}_Z(t) = \mathbf{v}_0 + \frac{m_e}{m_i} \sum_{i=1}^Z \mathbf{v}_e(t_i) \quad (2.35)$$

Le ratio m_e/m_i étant très faible (7×10^{-6} pour le krypton) et la vitesse de l'électron à un instant t_i étant de direction aléatoire, la vitesse finale de l'ion sera bien plus faible que la vitesse de l'électron. La distribution de l'énergie ionique garde une forme Maxwellienne après l'ionisation, et se décale légèrement vers les hautes énergies. Une étude [165] a montré que le chauffage des ions par le champ laser est limité à 9 meV.

2.3 Cinétique du plasma

2.3.1 Principaux mécanismes régissant la dynamique du plasma

La dynamique des plasmas résulte de deux comportements en apparence contradictoires mais complémentaires en analyse : d'une part une tendance à l'organisation due aux processus collectifs, d'autre part une tendance au désordre due à l'agitation thermique.

2.3.1.1 Phénomène d'écrantage

Lorsqu'un champ extérieur \mathbf{E}_{ext} est appliqué à un plasma, la force de Coulomb induite par ce champ va créer une séparation des charges. Sous l'effet des répulsions électrostatiques mutuelles, il y a alors une tendance à l'éclatement coulombien. Mais cette séparation résultante des charges est source d'un champ d'origine interne \mathbf{E}_{int} de direction opposée au champ extérieur qui va contrebalancer cet éclatement. Un équilibre électrostatique est atteint lorsque $\mathbf{E}_{ext} + \mathbf{E}_{int} \approx 0$, on parle alors d'écrantage. Le temps caractéristique de cet équilibre électrostatique est donné par l'inverse de la pulsation plasma ω_p (ou fréquence de Langmuir) définie par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e}} \quad (2.36)$$

avec n_e la densité électronique du plasma. L'extension spatiale de la région où il y a écrantage est donnée par la longueur de Debye λ_D :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{n_e e^2}} \quad (2.37)$$

2.3.1.2 Force pondéromotrice

Le mouvement d'une particule de charge q et de masse m dans un champ électrique \mathbf{E} de pulsation ω dans le cas non relativiste est donné par :

$$\frac{d\mathbf{v}}{dt} = \frac{q\mathbf{E}}{m} \quad (2.38)$$

La vitesse maximale que peut atteindre cette particule en considérant une vitesse initiale nulle et en notant E_0 l'amplitude du champ est alors :

$$v_{max} = \frac{q|E_0|}{m\omega} \quad (2.39)$$

Le potentiel pondéromoteur U_p est défini par la moyenne de l'énergie cinétique maximale sur une période laser :

$$U_p = \frac{q^2}{4m\omega^2} |E_0|^2 \quad (2.40)$$

La dérivée spatiale de ce potentiel donne l'expression de la force pondéromotrice non relativiste :

$$\mathbf{F}_p = -\frac{q^2}{4m\omega^2} \nabla E^2 \quad (2.41)$$

Cette force est une force non linéaire qui apparaît lorsqu'une particule chargée est soumise à un champ oscillant inhomogène. La particule est alors poussée des zones de champ fort vers les zones de champ faible. Elle présente une composante longitudinale calculée ici (qui dépend uniquement du champ électrique et qui est utilisée en vue de l'accélération d'électrons), et une composante radiale de même expression (qui est due pour partie au champ magnétique). Les électrons, très mobiles, vont être expulsés par cette deuxième composante vers la périphérie du plasma où les champs sont moins forts. La force pondéromotrice contribue aux effets collectifs qui vont altérer la température des électrons, et des ions dans une bien moindre mesure.

2.3.1.3 Phénomènes collisionnels

On distingue deux types de collisions, élastiques ou inélastiques, selon que l'énergie cinétique est ou non conservée. Les collisions coulombiennes dominent dans un plasma : lorsqu'une particule de masse m et charge q interagit avec un centre diffuseur constitué par une charge fixe Q , il y a transfert d'impulsion i.e. déflexion de la particule suivant une trajectoire hyperbolique. La particule de charge q subit une diffusion élastique (dite de Rutherford) induite par l'interaction coulombienne. La fréquence de collision coulombienne ν est donnée par :

$$\nu = \frac{nq^2Q^2\Lambda}{4\pi\epsilon_0^2m^2v^3} \quad (2.42)$$

avec Λ le logarithme coulombien défini comme le logarithme du ratio entre la longueur de Debye et la distance minimale entre deux particules.

Dans le cas d'un électron de masse m_e et de charge $-e$ interagissant avec un ion de charge fixe Z , on peut montrer que la fréquence de collisions ν_{ei} entre ces particules est :

$$\nu_{ei} = \frac{Zn_e e^4 \Lambda}{3\epsilon_0^2 m_e^2} \left(\frac{2\pi k_B T_e}{m_e} \right)^{-3/2} \quad (2.43)$$

La fréquence ν_{ei} est fondamentale en physique des plasma car elle détermine les conductivités électrique et thermique électroniques. On peut noter que cette fréquence diminue avec la température, ce qui peut paraître contre-intuitif. Néanmoins, le transfert d'impulsion au cours d'une collision est proportionnel au temps d'interaction. Or plus un électron est chaud, plus il est rapide et plus ce temps est court.

Les autres fréquences de collisions sont définies comme [166] :

$$\begin{cases} \nu_{ie} = \frac{m_e}{m_i} \nu_{ei} \\ \nu_{ee} \approx \nu_{ei} \\ \nu_{ii} \approx \sqrt{\frac{m_e}{m_i}} \nu_{ei} \end{cases} \quad (2.44)$$

où le facteur $\sqrt{m_e/m_i}$ résulte du rapport des vitesses thermiques qui déterminent le flux incident donc le taux de collisions. Ces collisions mènent à un échange d'énergie, et donc à une thermalisation sur un temps τ_{eq} défini par [167]. Dans notre cas, les électrons libérés ont, juste après l'ionisation par le champ, une énergie moyenne largement supérieure (750 eV, cf figure 2.20) à l'énergie d'ionisation des ions (230 eV). Le plasma est donc initialement dans un état fortement hors équilibre thermodynamique. Les phénomènes d'excitation et d'ionisation collisionnelle vont induire un transfert d'énergie des électrons chauds vers les ions jusqu'à atteindre un état d'équilibre.

Espèce ionique de charge Q	n_{Q+1}/n_Q
Kr ⁸⁺	$1,2 \times 10^6$
Kr ⁹⁺	$7,4 \times 10^5$
Kr ¹⁰⁺	$4,3 \times 10^5$
Kr ¹¹⁺	$2,3 \times 10^5$
Kr ¹²⁺	$1,2 \times 10^5$
Kr ¹³⁺	$5,1 \times 10^4$
Kr ¹⁴⁺	$1,9 \times 10^4$
Kr ¹⁵⁺	$5,2 \times 10^3$
Kr ¹⁶⁺	$8,7 \times 10^2$
Kr ¹⁷⁺	$5,9 \times 10^1$
Kr ¹⁸⁺	$1,1 \times 10^{-1}$

TABLE 2.2 – Ratio entre les populations ioniques de charge $Q + 1$ et Q en fonction du degré d'ionisation.

L'équation de Saha-Langmuir décrit l'équilibre thermodynamique entre les électrons et les différents ions. Elle donne le ratio entre les populations n_{Q+1} et n_Q de deux espèces ioniques respectivement de charge $Q + 1$ et Q en fonction de la température électronique T_e et l'énergie d'ionisation U_Q de l'ion de charge Q :

$$n_e \frac{n_{Q+1}}{n_Q} = 2 \frac{2\pi m_e k_B T_e^{3/2}}{h^3} \exp\left(-\frac{U_Q}{k_B T_e}\right) \quad (2.45)$$

Le tableau 2.2 donne ce ratio en fonction du degré d'ionisation pour une densité électronique de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. On constate que le plasma est fortement hors équilibre à l'état initial puisque $n_{\text{Kr}^{9+}}/n_{\text{Kr}^{8+}}$ est de l'ordre de 10^6 . L'équilibre $n_{Q+1} = n_Q$ est en revanche atteint pour un état d'ionisation entre 17 et 18.

2.3.2 Evolution des températures électroniques et ioniques

2.3.2.1 Evolution de la température électronique

Comme nous l'avons vu dans la section 2.2.2.1, la distribution énergétique initiale (juste après l'ionisation par le champ) des électrons est obtenue par différents mécanismes de chauffage, principalement le chauffage par OFI à basse densité et le chauffage par diffusion Raman stimulée à haute densité. Les collisions vont ensuite modifier progressivement cette distribution énergétique, notée f_e , dans le temps selon l'équation de Fokker-Planck dont l'expression, sans champ appliqué, est la suivante :

$$\frac{\partial f_e}{\partial t} = S + C(f_e, f_i) + C(f_e, f_e) \quad (2.46)$$

avec f_i la distribution énergétique des ions, S un terme de source qui dépend de l'ionisation, et C un terme de collisions entre deux ensembles de particules, respectivement $C(f_e, f_i)$ et $C(f_e, f_e)$ décrivant les collisions électrons-ions et les collisions électrons-électrons [168][169]. Ces termes de collisions prennent en considération un terme de diffusion et un terme de frottement qui tend à ralentir les particules.

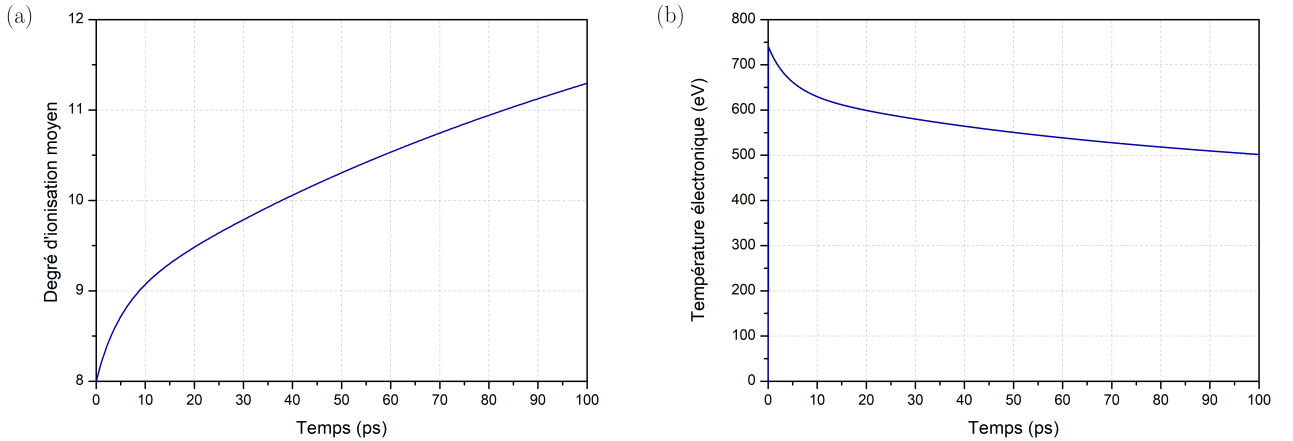


FIGURE 2.20 – Evolution temporelle (a) du degré d'ionisation moyen, (b) de la température électronique après ionisation par le champ laser. Simulations par OFIKinRad pour une densité neutre de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et une intensité laser de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

La figure 2.20 (a) montre l'évolution temporelle du degré moyen d'ionisation simulée par OFIKinRad pour une densité de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et une intensité laser de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Le champ est polarisé circulairement. Elle illustre les effets des collisions électrons-ions juste après l'ionisation par le champ avec une augmentation du degré d'ionisation moyen d'abord très rapide puis plus lente au fur et à mesure que les électrons perdent de l'énergie et que les états de charges supérieures sont de plus en plus difficiles à atteindre.

Le temps de vie des ions Kr^{8+} , qui représente la durée pendant laquelle l'amplification peut avoir lieu, est ici de l'ordre de 10 ps. En parallèle sur la figure (b), on observe l'évolution temporelle de la température électronique : on observe une diminution de la température électronique due aux transferts d'énergie par collisions et à une augmentation du nombre d'électrons.

La figure 2.21 donne l'évolution temporelle de la distribution énergétique des électrons dans le cas d'un champ incident polarisé circulairement, respectivement en (a) pour une densité neutre de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et en (b) pour une densité neutre de $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Juste après l'ionisation, à $t = 0$, la distribution d'énergie (a)

correspond à celle montrée en 2.19. L'évolution temporelle de la distribution électronique est similaire pour les deux densités illustrées ici. Dans les deux cas, les collisions électron-électron font ensuite tendre la distribution électronique vers une distribution Maxwellienne, signe de la thermalisation des électrons. Néanmoins, cette thermalisation est plus rapide à haute densité : le temps caractéristique nécessaire à la thermalisation est de l'ordre de 30 ps à basse densité et de l'ordre de 200 fs à haute densité, soit un temps supérieur à la durée de vie du gain de l'amplificateur à ces densités respectives (voir figure 2.12 (b)).

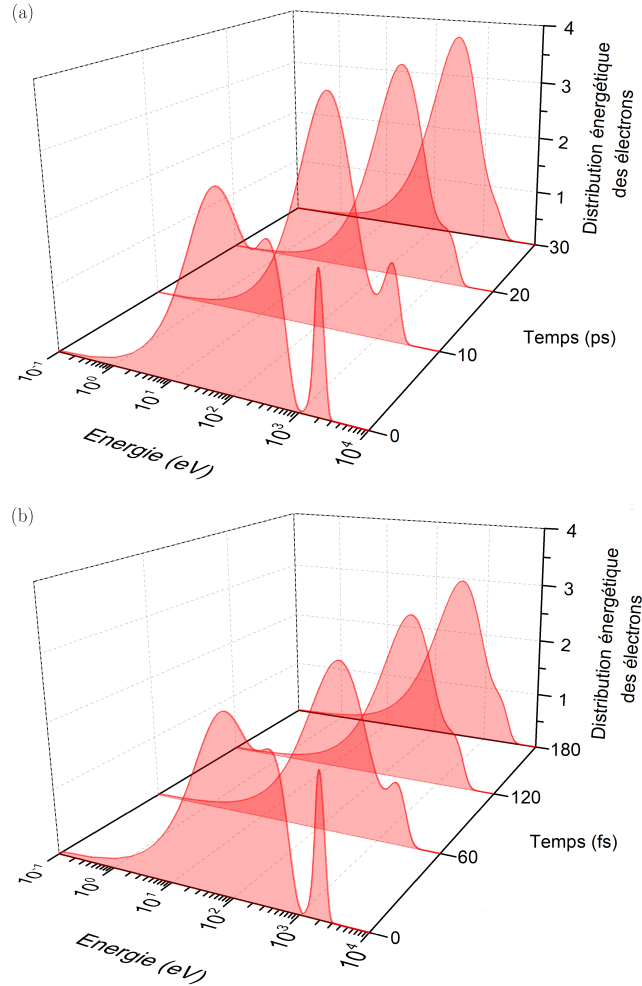


FIGURE 2.21 – Evolution temporelle de la distribution énergétique des électrons simulée par OFIKinRad pour une intensité laser de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ et une densité neutre de krypton de (a) $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, (b) $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

2.3.2.2 Evolution de la température ionique

Les contributions au chauffage des ions sont discutées dans [165]. Il est relativement peu affecté d'une part par la force pondéromotrice par rapport aux électrons puisque $m_e \ll m_i$, et d'autre part par les collisions électrons-ions. En effet, l'augmentation de la température ionique induite par ces collisions, en considérant que $T_i \ll T_e$, est donnée par :

$$\frac{dT_i}{dt} = \nu_{ei} T_e \quad (2.47)$$

Elle est donc négligeable, de l'ordre de 10^{-3} eV/ps pour une densité de krypton de $7,5 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Le chauffage des ions est en fait principalement dû au couplage initial entre ces ions, évalué par la constante de couplage de Coulomb Γ . Elle est représentative de la force électrique qui lie les ions entre eux et assure la cohésion du plasma, et est définie comme le ratio entre l'énergie potentielle moyenne d'interaction coulombienne et l'énergie cinétique moyenne des ions :

$$\Gamma = \frac{Z^2}{\langle r_{ii} \rangle T_i} \quad (2.48)$$

avec $\langle r_{ii} \rangle$ la distance moyenne entre les ions. Si $\Gamma \gg 1$, l'énergie potentielle domine et le plasma est dit corrélé. Initialement, Γ est proche de 400 dans notre cas. Cette énergie potentielle va se dissiper : la répartition spatiale initiale des ions est la même que celle des atomes, mais ne correspond pas à la répartition la plus stable. Les ions vont donc se relaxer vers un équilibre. Durant cette relaxation, l'énergie potentielle va être transformée en énergie cinétique ce qui va contribuer au chauffage des ions. On peut montrer [9][165] que la température finale des ions T_i^f est donnée par :

$$T_i^f = 0,45 \frac{Z^2}{\langle r_{ii} \rangle} \approx 7,5 \times n_i^{1/3} [\text{cm}^{-3}] \quad (2.49)$$

La figure 2.22 montre l'évolution de la température ionique, en fonction de la densité neutre de krypton, induite par les couplages ions-ions.

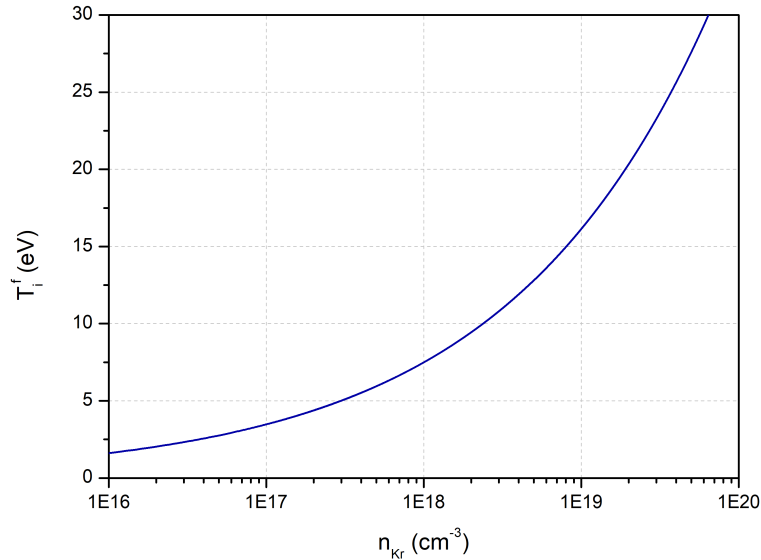


FIGURE 2.22 – Evolution de la température ionique finale due aux couplages ions-ions en fonction de la densité neutre de krypton.

2.4 Propagation du champ laser dans un plasma et nécessité d'un guidage

Dans un schéma de pompage longitudinal, schéma que nous utilisons ici, la problématique de la propagation du laser de pompe est un point essentiel. Nous verrons en effet que les électrons libres du plasma induisent une réfraction du champ, limitant ainsi la longueur d'interaction laser-plasma, et ce d'autant plus qu'on travaille à haute densité. Ces conditions sont pourtant hautement favorables, comme nous l'avons vu dans la section 2.1.4. Nous étudierons donc dans un second temps les moyens de pallier à ce phénomène défocalisant via différentes techniques de guidage, en particulier la création d'un canal plasma par une double impulsion laser.

2.4.1 Propagation naturelle du champ

Equation de propagation paraxiale

Dans un milieu diélectrique, les équations de Maxwell s'écrivent :

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.50)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (2.51)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (2.52)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{J} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad (2.53)$$

avec \mathbf{E} et \mathbf{B} les champs électrique et magnétique, ρ la densité de charge volumique, \mathbf{J} la densité de courant électronique, ϵ_0 la permittivité diélectrique du vide et μ_0 la perméabilité magnétique du vide qui vérifient $\mu_0\epsilon_0c^2 = 1$. En injectant (2.53) dans l'expression du rotationnel de (2.52), on obtient la formule de propagation du champ :

$$\Delta\mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} \quad (2.54)$$

On considère un champ \mathbf{E} d'amplitude \mathbf{A} qu'on suppose indépendante du temps, de direction de propagation z , et de direction de polarisation \mathbf{e}_r contenue dans le plan xy . Ce champ peut s'écrire :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{r})e^{ikz - i\omega t} \mathbf{e}_r \quad (2.55)$$

Propagation dans le vide

Dans le vide, en l'absence de charges l'équation (2.54) devient :

$$(\Delta + k^2)\mathbf{E} = \mathbf{0} \quad (2.56)$$

Dans le cadre de l'approximation paraxiale, on estime que les variations de A suivant z sont lentes devant les variations transverses et devant l'oscillation du champ décrite par e^{ikz} :

$$\left| \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} \right| \ll \left| \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} \right|, \left| \frac{\partial^2 A}{\partial y^2} \right|, \left| 2k \frac{\partial A}{\partial z} \right| \quad (2.57)$$

L'équation de propagation dans l'approximation paraxiale s'écrit alors :

$$\Delta_{\perp} A + 2ik \frac{\partial A}{\partial z} = 0 \quad (2.58)$$

avec $\Delta_{\perp} = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right)$ le Laplacien transverse.

Dans le cas d'un faisceau gaussien, l'onde sphérique définie par :

$$A(r, z) = A_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} e^{-\frac{x^2+y^2}{\omega^2(z)}} e^{-ik \frac{x^2+y^2}{2R(z)}} e^{-ikz + i\xi(z)} \quad (2.59)$$

est solution de l'équation (2.58). On définit $\omega(z)$ la largeur transverse du faisceau et $R(z)$ le rayon de courbure de l'onde sphérique :

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \frac{z^2}{Z_R^2}} \quad (2.60)$$

$$R(z) = z \left(1 + \frac{Z_R^2}{z^2} \right) \quad (2.61)$$

ω_0 est le waist du faisceau. Dans le cas où un faisceau de diamètre D est focalisé par une optique de focale f' n'introduisant pas d'aberrations optiques, le rayon de la tache focale est donné par la première annulation de la fonction d'Airy :

$$\omega_0 = 1,22 \frac{\lambda f'}{D} \quad (2.62)$$

Si on considère un faisceau à 800 nm de 90 mm de diamètre, focalisé par une optique de focale 700 mm, la limite de diffraction donnée par le rayon de la tache d'Airy vaut 8 μm .

Z_R est la distance de Rayleigh, définie comme la distance à laquelle la largeur du faisceau est augmentée d'un facteur $\sqrt{2}$:

$$Z_R = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda} \quad (2.63)$$

La divergence du faisceau notée θ est donnée par :

$$\theta = \lim_{z \rightarrow +\infty} \left(\frac{\omega(z)}{z} \right) = \frac{\lambda}{\pi\omega_0} \quad (2.64)$$

L'ensemble de ces paramètres sont représentés sur la figure 2.23 qui montre la propagation d'un faisceau Gaussien dans le vide autour de la zone focale.

$\xi(z)$ est un déphasage longitudinal appelé déphasage de Gouy, caractérisant le fait qu'une onde d'extension transverse non nulle acquiert un déphasage d'un demi-cycle lorsqu'elle traverse la région focale. Il est donné par :

$$\xi(z) = \arctan\left(\frac{z}{Z_R}\right) \quad (2.65)$$

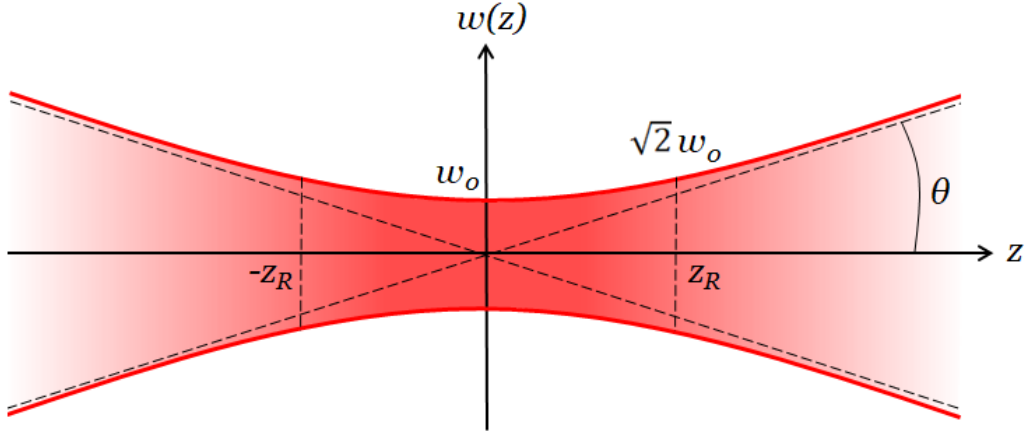


FIGURE 2.23 – Propagation d'un faisceau Gaussien dans le vide autour de la zone focale.

Propagation dans un plasma

Dans un plasma, il faut tenir compte de la densité de courant. On néglige celle induite par les électrons liés, et la densité de courant induite par les électrons libres respecte la loi d'Ohm généralisée $\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}$ avec σ la conductivité électrique. Dans le cas d'une onde transverse, cette dernière peut s'écrire :

$$\sigma = \frac{e^2 n_e}{\nu_{ee} - i\omega} \left(\frac{1}{m_e} - \frac{Z}{m_i} \right) \quad (2.66)$$

En négligeant le mouvement des ions ($\frac{1}{m_e} - \frac{Z}{m_i} \approx \frac{1}{m_e}$), et sachant que le temps caractéristique de collisions est de l'ordre de la picoseconde (ce qui implique $\nu_{ee} \ll \omega$), on a :

$$\mathbf{J} = \frac{e^2 n_e}{-i\omega m_e} \mathbf{E} = i\epsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\omega} \mathbf{E} \quad (2.67)$$

L'équation de propagation peut donc être réécrite :

$$\Delta \mathbf{E} + k^2 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \right) \mathbf{E} = 0 \quad (2.68)$$

On note η l'indice de réfraction du milieu :

$$\eta = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}} = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}} \quad (2.69)$$

avec n_c la densité critique du plasma, au-dessus de laquelle les ondes de pulsation ω ne peuvent plus se propager donnée par :

$$n_c(\omega) = \frac{\epsilon_0 m_e \omega^2}{e^2} \quad (2.70)$$

Dans le cas où $n_e \ll n_c$, l'indice de réfraction du milieu peut être réécrit :

$$\eta \approx 1 - \frac{n_e}{2n_c} \quad (2.71)$$

En pratique, si une onde rencontre un plasma de densité supérieure à n_c , elle est réfléchiée par ce plasma. A 800 nm et 32,8 nm, la densité critique du plasma vaut respectivement $n_c \approx 1,7 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ et $n_c \approx 10^{24} \text{ cm}^{-3}$.

Réfraction du faisceau

Lorsque le faisceau pompe est focalisé dans le gaz, un grand nombre d'électrons libres est généré sur l'axe optique. L'indice de réfraction du milieu est alors plus faible sur cet axe. Or, un gradient d'indice dans la direction perpendiculaire à la direction de propagation d'un rayon lumineux va courber ce dernier vers les zones de fort indice. La trajectoire d'un rayon lumineux est en effet déterminée par l'équation eikonale, équation fondamentale régissant le trajet de la lumière dans un milieu :

$$\frac{d}{ds} \left(\eta \frac{d\mathbf{u}}{ds} \right) = \nabla \eta \quad (2.72)$$

avec \mathbf{u} un vecteur tangent au rayon, et s l'abscisse curviligne telle que $ds = \sqrt{dx^2 + dy^2 + dz^2}$.

Le plasma va alors agir comme une lentille divergente et défocaliser le faisceau, comme illustré sur la figure 2.24 : la longueur de Rayleigh est raccourcie, le waist est déplacé en amont de sa position originale, il est élargi, et la divergence du faisceau augmente. Ce phénomène de défocalisation est d'autant plus important que l'indice de réfraction est grand. Cet effet est donc très critique pour les grandes longueurs d'onde et les fortes densités électroniques.

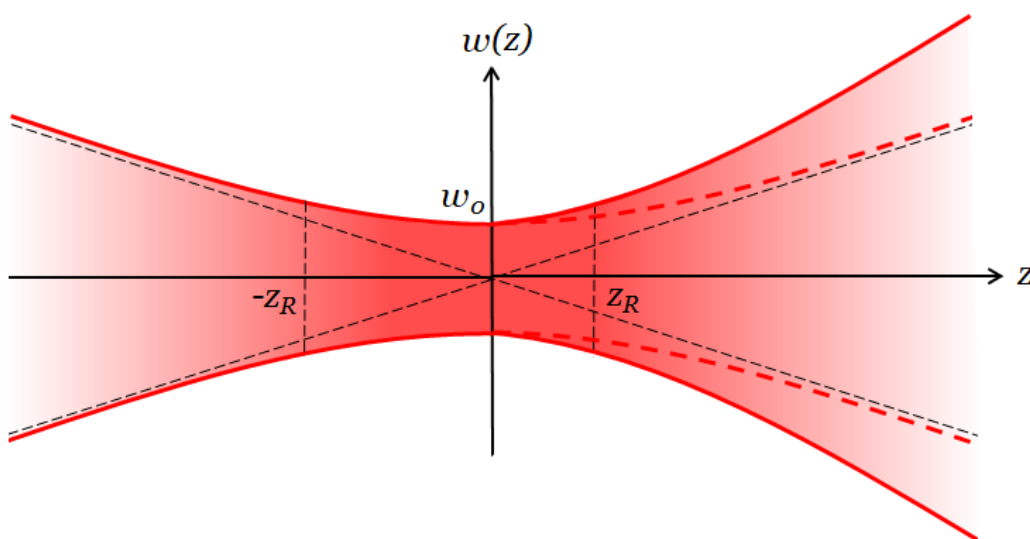


FIGURE 2.24 – Défocalisation du faisceau dans un plasma, induite par un fort gradient de densité électronique.

On définit L_D la distance au bout de laquelle la phase de l'impulsion sur l'axe est modifiée de $\pi/2$:

$$L_D = \frac{\lambda n_e}{2 n_c} \quad (2.73)$$

Si cette distance est supérieure à la longueur caractéristique des effets de diffraction, c'est-à-dire la distance de Rayleigh Z_R , alors la réfraction peut être négligée [170]. Ainsi, la défocalisation n'est plus négligeable dès lors que :

$$n_e > n_c \frac{\lambda^2}{2\pi\omega_0^2} \quad (2.74)$$

En considérant un waist de $8 \mu\text{m}$ et une longueur d'onde de 800 nm , la réfraction est significative à partir de $2,7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

L'effet de la réfraction est clairement illustré sur la figure 2.25 qui montre des cartes d'ionisation calculées par le code OFI-PROP [105] pour une intensité du laser de pompe de $8 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ et différentes densités neutres de krypton. La défocalisation du faisceau pompe est de plus en plus importante à mesure que la densité augmente : le déplacement du foyer vers les courtes longueurs longitudinales et l'élargissement du waist entraînent une diminution de l'intensité déposée, et limitent ainsi la longueur effective du milieu amplificateur (ici représentée en rouge) laissant la place à une zone (ici en bleu) majoritairement constituée d'ions Kr^+ , Kr^{2+} , Kr^{3+} absorbants le rayonnement amplifié.

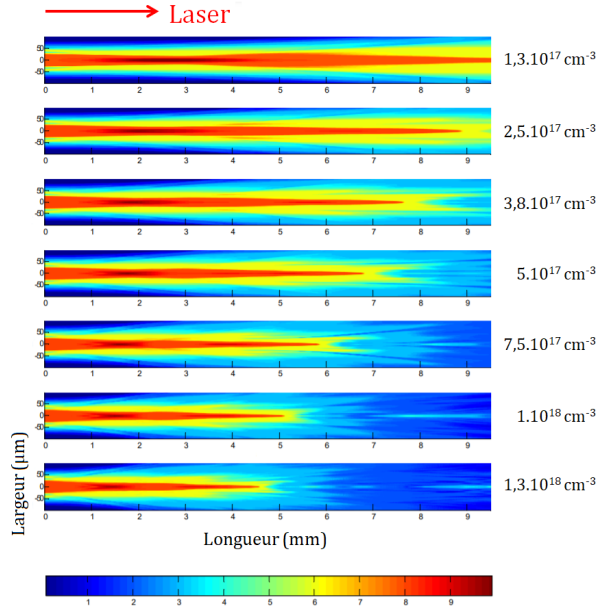


FIGURE 2.25 – Cartes d’ionisation calculées par OFI-PROP pour différentes densités neutres de krypton issues de [105]. Le laser se propage de la gauche vers la droite. La zone de gain correspond à la région en rouge.

2.4.2 Techniques de guidage de l’impulsion pompe

Dans cette thèse, nous allons être particulièrement intéressés par les hautes densités, où la propagation de l’impulsion pompe est rendue difficile par la réfraction induite par les électrons libres du plasma. Nous allons étudier ici comment pallier à ce problème, qui limite de façon très significative les performances de notre source, et ainsi augmenter la longueur d’interaction laser-plasma.

2.4.2.1 Autofocalisation relativiste

Nous venons d’évoquer le phénomène de défocalisation d’une impulsion laser se propageant dans un plasma. Néanmoins, sous certaines conditions, le faisceau peut être autofocalisé par une modification favorable de l’indice de réfraction du milieu considéré [171][172]. Dans un milieu diélectrique, un effet non linéaire appelé effet Kerr peut induire une augmentation de l’indice de réfraction avec l’intensité du champ. Dans un plasma, deux effets simultanés peuvent intervenir :

- Pour des intensités laser relativistes (i.e. supérieures à $10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$), la vitesse d’oscillation v des électrons dans le champ se rapproche de la vitesse de la lumière. La masse des électrons est alors modifiée par le facteur relativiste $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$, et est alors plus importante sur l’axe optique qu’en périphérie. L’indice de réfraction étant dépendant de la vitesse des électrons et donc de leur masse, un gradient radial favorable peut être obtenu.
- La force pondéromotrice, décrite dans la section 2.3.1.2, tend à expulser les électrons de l’axe optique, diminuant ainsi la densité électronique sur l’axe et créant un profil d’indice de réfraction favorisant le guidage.

Ces deux effets contrebalancent la réfraction lorsque la puissance du faisceau est supérieure à la puissance critique :

$$P_c \approx 17 \times \frac{n_c}{n_e} [GW] \quad (2.75)$$

Pour une densité électronique de 10^{19} cm^{-3} , la puissance critique est de l’ordre de 3 TW.

Ce phénomène d’autofocalisation se produit uniquement à haute intensité. Un guidage de l’impulsion pompe grâce à cet effet nécessiterait donc de maintenir l’intensité laser au dessus du seuil requis pendant toute la propagation, ce qui est difficile au vu entre autres de la diffraction naturelle, de la diffraction induite par la surionisation et de la réfraction du plasma. De plus, à de telles intensités, des instabilités non linéaires ou des effets de filamentation peuvent se produire et conduire à une chute soudaine de l’intensité. Il faut donc de se tourner vers d’autres techniques.

2.4.2.2 Guide plasma dans un capillaire

Décharge capillaire

Le guidage d'impulsions laser par décharge capillaire a été démontré avec succès dans les années 2000 [173]. Dans cette approche, un capillaire de quelques millimètres de diamètre est rempli par un gaz à basse pression. Un courant de décharge (intensité pic : quelques kA, temps de montée : quelques dizaines de nanosecondes) génère par effet de peau des électrons primaires en périphérie du capillaire. Ce courant induit un fort champ magnétique qui comprime le plasma par la force $\mathbf{J} \times \mathbf{B}$ jusqu'à créer un canal plasma. Cette méthode a permis de générer des guides sur plus de 50 mm avec des intensités laser de l'ordre de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ [174][175], et a un grand intérêt pour l'accélération d'électrons [176]. En revanche, elle présente des limitations dans le cas des lasers XUV puisque le gaz utilisé contient de l'hydrogène. Or, les électrons de l'hydrogène ont une énergie faible et diminuent la température électronique, ce qui résulte en un gain et une intensité de saturation faible. De plus, cette technique est limitée aux faibles pressions et donc aux basses densités électroniques ($< 2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$).

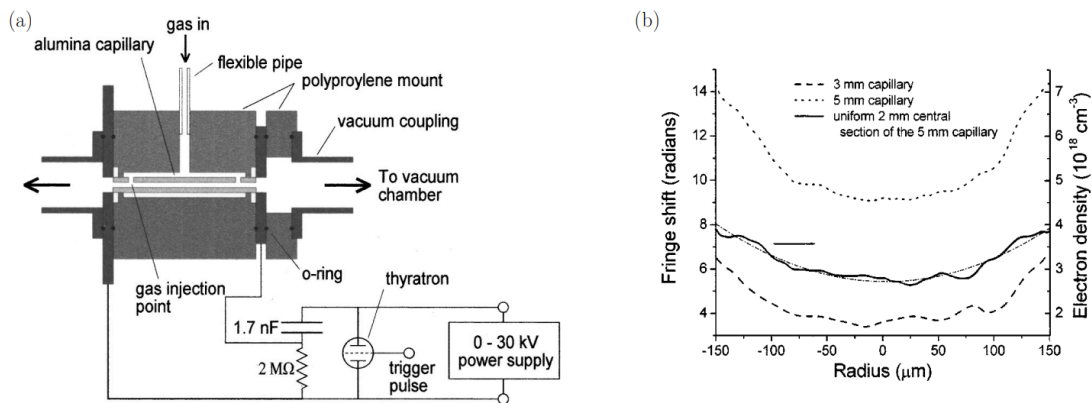


FIGURE 2.26 – (a) Schéma de principe du guidage par décharge capillaire. (b) Profil de densité électronique transverse. Issus de [173].

Tube capillaire creux

Le guidage d'une impulsion laser peut être réalisé par l'utilisation de tubes capillaires creux. Comme dans le cas d'une fibre optique, la lumière se propage par réflexion interne totale à l'interface entre le cœur du tube constitué d'un plasma et la gaine solide. Cette approche a permis de guider des impulsions de l'ordre de $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ sur plus de 120 mm avec une transmission de 25% [177][178], et aussi de démontrer une augmentation de la longueur du milieu à gain dans le cas d'un laser OFI collisionnel [179]. Toutefois, comme la précédente technique, cette méthode est optimum pour de faibles densités comme on le voit sur la figure 2.27 (10 mbar) et ne convient donc pas dans notre cas. De plus, ces tubes capillaires ne conduisent pas bien la chaleur et ne peuvent donc être utilisés qu'à basse cadence. Cette technique est également très sensible au pointé du laser puisque de très faibles fluctuations peuvent mener à la destruction du tube.

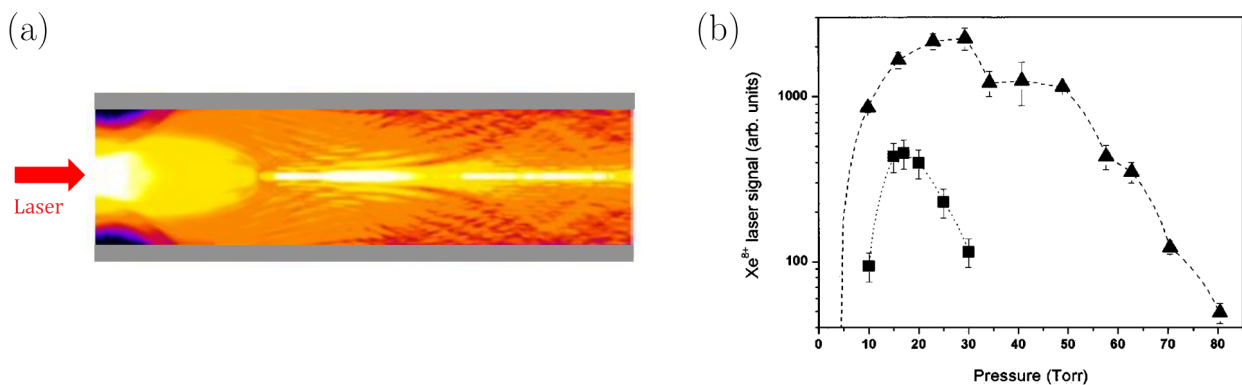


FIGURE 2.27 – (a) Simulations par le code COFIXE du guidage d'un faisceau focalisé dans un tube capillaire [180]. (b) Signal XUV en fonction de la pression de gaz pour une cellule de 15 mm (carrés), et un capillaire de 15 mm (triangles) [179].

2.4.2.3 Guide plasma créé par laser

La réalisation d'un guidage à haute densité et à des températures suffisamment élevées pour obtenir un pompage efficace de l'inversion de population nécessite une méthode de création particulière que nous décrivons ici.

Principe

Le guidage d'une impulsion lumineuse requiert un profil de densité électronique qui permet de compenser les effets de la diffraction et de la réfraction. La défocalisation du faisceau est induite par un profil de densité présentant un fort gradient radial et une forte densité électronique sur l'axe optique. On cherche donc à créer le profil de densité opposé, présentant un creux de densité électronique sur l'axe comme le montre la figure 2.28.

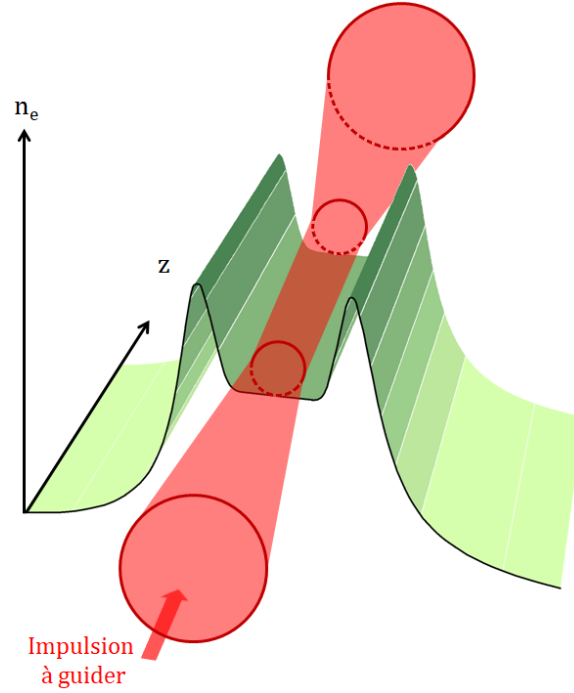


FIGURE 2.28 – Guidage de l'impulsion pompe par un canal plasma qui présente un creux de densité électronique sur l'axe optique.

On considère un faisceau gaussien de waist ω_0 traversant un milieu présentant un gradient d'indice de réfraction $\Delta\eta = n(0) - n(\omega_0)$. En notant R_{diff} le rayon de courbure de l'onde induit par la diffraction le long d'une élément δz , et R_n celui induit par le gradient d'indice, la compensation exacte de la diffraction sur le guidage est obtenue par $R_{diff} + R_n = 0$. Ces deux rayons de courbure sont respectivement donnés par :

$$R_{diff} = \delta z \left(1 + \frac{z^2}{\delta z^2} \right) \quad (2.76)$$

$$R_n \approx \frac{\omega_0}{2\Delta\eta\delta z} \quad (2.77)$$

On obtient ainsi la condition de guidage sur le gradient d'indice de réfraction :

$$\Delta\eta \geq \frac{\lambda^2}{2\pi^2\omega_0^2 n(0)^2} \quad (2.78)$$

dont on peut déduire la condition de guidage sur le gradient de densité :

$$\Delta n_e \geq \frac{1}{r_e \pi \omega_0^2} \quad (2.79)$$

avec r_e le rayon classique de l'électron. Ainsi, pour un faisceau de waist $10 \mu\text{m}$, le gradient de densité électronique requis pour assurer le guidage est 10^{18} cm^{-4} .

Mise en forme du canal plasma

Le profil de densité électronique creux sur l'axe qui permet le guidage de l'impulsion pompe est obtenu par expansion hydrodynamique. On focalise un faisceau d'intensité relativement modérée ($10^{13} - 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$) dans le gaz. Suite à l'ionisation, les électrons sont chauffés par Bremsstrahlung inverse ce qui entraîne une ionisation collisionnelle en cascade. Après un temps caractéristique de l'ordre de la nanoseconde, le plasma se détend et les électrons vont être éjectés de l'axe optique. Le profil de densité est alors favorable à la propagation et au guidage de l'impulsion pompe. Ce schéma est très utilisé depuis les années 1990 [181][182]. Historiquement, le faisceau utilisé pour créer le guide était focalisé par une lentille. Néanmoins, il est apparu plus avantageux de le focaliser en une ligne focale sur toute la longueur du jet de gaz pour obtenir un guide de longueur plus importante.

La technique "ignitor + heater"

L'efficacité de l'ionisation collisionnelle en cascade dépend de la température du plasma, mais aussi de la densité électronique à partir de laquelle s'amorce l'avalanche électronique. Par analogie avec les lasers XUV en régime transitoire (cf section 1.3.2.2), on utilise deux impulsions qui vont permettre de découpler les processus d'ionisation et de chauffage. Cette technique, proposée en 1999 [183], a été démontrée expérimentalement quelques années plus tard [184][185]. La génération du canal est illustrée sur la figure 2.29 et s'effectue de la manière suivante :

- Génération d'un pré-plasma : La première impulsion, appelée "ignitor", est une impulsion ultra-courte (30 fs) et intense qui a pour fonction de générer un pré-plasma de densité électronique conséquente. L'ionisation est réalisée par le champ, et est peu coûteuse en terme d'énergie (quelques dizaines de mJ).
- Chauffage du plasma : La seconde impulsion, appelée "heater", est une impulsion longue (typiquement 600 ps) et modérément intense. Elle a pour seul rôle d'assurer le chauffage du plasma par Bremsstrahlung inverse : lorsqu'un électron oscillant dans le champ laser entre en collision avec un ion, il absorbe un photon pour conserver son moment cinétique. L'énergie absorbée est convertie en énergie thermique. La distance caractéristique entre un électron et un ion dans un plasma est définie par le rayon de Wigner-Seitz :

$$l_{ei} = \sqrt[3]{\frac{3}{4\pi n_e}} \quad (2.80)$$

La vitesse thermique moyenne de l'électron est donnée par :

$$\langle v_e \rangle = \sqrt{\frac{k_B T_e}{m_e}} \quad (2.81)$$

Le temps caractéristique de collision électron-ion, pour un plasma de densité électronique quelques 10^{19} cm^{-3} et de température 200 eV, est donc de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, faisant ainsi de l'effet Bremsstrahlung inverse le principal mécanisme de chauffage si on considère une impulsion incidente longue. Le taux moyen d'absorption de l'énergie par l'électron est [186] :

$$\frac{d\epsilon}{dt} = \epsilon_0 \nu_{ei} \quad (2.82)$$

avec ν_{ei} la fréquence de collisions électron-ion définie en (2.43) et ϵ_0 l'énergie thermique gagnée lors de la collision donnée par :

$$\epsilon_0 = \frac{e^2 E_0^2}{2m_e \omega_0^2} \quad (2.83)$$

On peut alors montrer [9] que, pour une impulsion longue (quelques centaines de ps) et d'énergie E_p , l'augmentation de la température électronique dépend en grande partie de l'énergie contenue dans l'impulsion :

$$\Delta T_e \propto \lambda^{4/5} E_p^{2/5} \quad (2.84)$$

- Avalanche électronique : Le chauffage du plasma favorise l'ionisation collisionnelle, ce qui génère une hausse de la densité électronique donnée par :

$$\frac{dn_e}{dt} = n_e(n_0 - n_e)S(T_e) \quad (2.85)$$

avec n_0 la densité neutre initiale et S le taux d'ionisation collisionnelle qui dépend de la température électronique. La durée caractéristique de cette ionisation en cascade est donnée par $\tau_e = \frac{1}{n_0 S(T_e)}$ qui

est de l'ordre de quelques picosecondes, soit bien inférieure à la durée de la seconde impulsion. Ainsi, l'augmentation de la densité électronique est limitée par le temps de chauffage des électrons. Le temps nécessaire pour atteindre la saturation d'un état d'ionisation peut être estimé en fixant $n_e = n_0/2$: on obtient alors $\tau_{sat} = \tau_e \ln \left[\frac{n_0 - n_{e0}}{n_{e0}} \right]$ avec n_{e0} la densité électronique à partir de laquelle s'amorce l'ionisation collisionnelle. Cela justifie l'utilisation de la première impulsion pour la génération d'un pré-plasma suffisamment ionisé.

- Expansion hydrodynamique du plasma : Le canal plasma est finalement obtenu par expansion hydrodynamique : les électrons chauds, de masse faible, diffusent rapidement vers la périphérie du plasma. Les ions, de masse plus conséquente, sont plus lents. Cela va induire la création d'une charge d'espace, génératrice d'un champ électrique de direction opposée qui va ralentir la diffusion des électrons et accélérer les ions vers l'extérieur. Un équilibre est finalement atteint : les électrons et les ions se déplacent à la même vitesse moyenne, donnée par la vitesse acoustique ionique du milieu :

$$c_s = \sqrt{\langle Z \rangle \frac{k_B T_e}{m_i}} \quad (2.86)$$

avec $\langle Z \rangle$ le nombre atomique moyen. On peut assimiler l'expansion du plasma à la propagation d'une onde de choc radiale de vitesse c_s , de l'ordre ici de quelques dizaines de microns par nanoseconde. Ainsi, après un temps caractéristique de l'ordre de la nanoseconde, on profite du creux de densité électronique provoqué par l'expansion du plasma pour guider l'impulsion pompe.

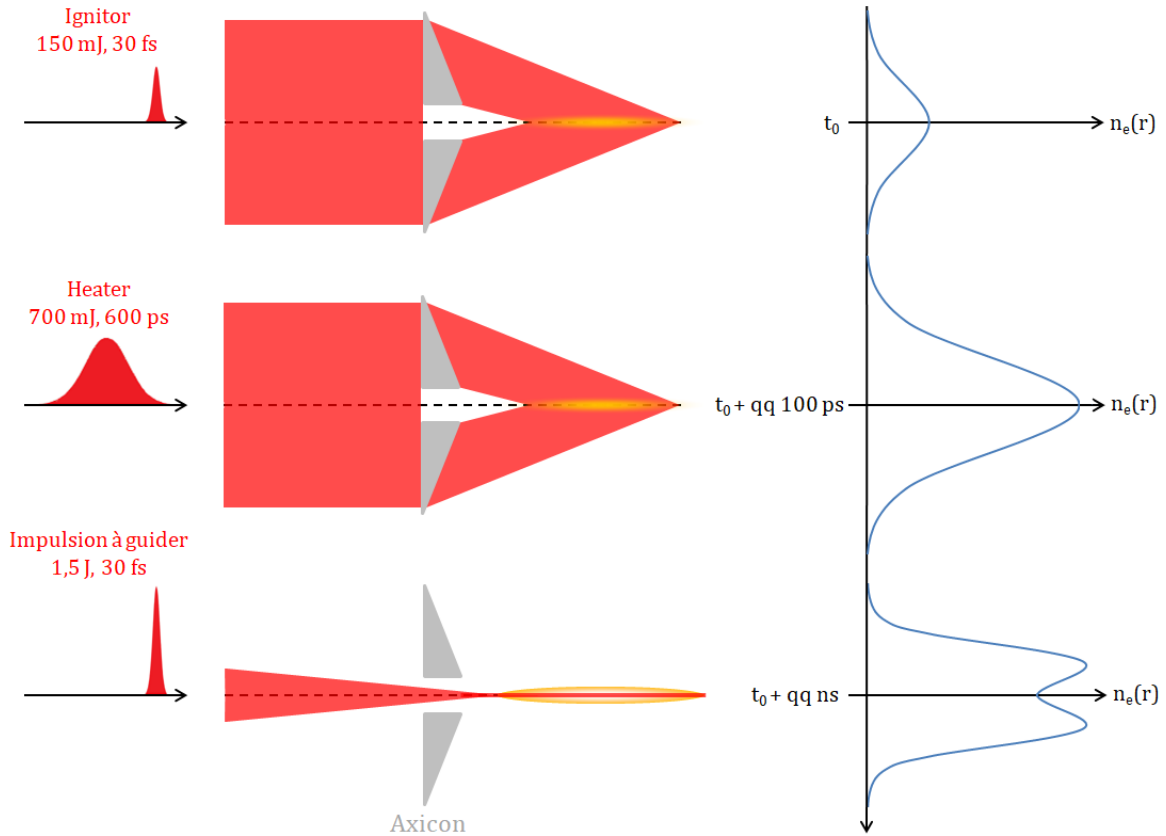


FIGURE 2.29 – Principe du schéma "ignitor + heater"

2.5 Physique de l'amplification en régime injecté

Comme nous l'avons évoqué plus haut (voir 1.3.3.1), le rayonnement émis par le plasma amplificateur seul possède des qualités spatiales assez pauvres dues à la nature stochastique de l'émission spontanée. L'injection d'une source harmonique externe permet d'exploiter les excellentes qualités énergétiques de l'amplificateur, tout en améliorant les qualités spatiales de l'émission [6]. Nous étudions ici la physique de l'amplification en régime injecté.

2.5.1 Equations de Maxwell-Bloch

Lorsqu'un champ résonant se propage dans un milieu, il induit une polarisation de ce milieu en déplaçant les électrons, notamment les électrons liés aux ions, et en créant ainsi des dipôles. Dans le même temps, ce champ interagit au niveau atomique, ce qui mène à un transfert d'énergie correspondant soit à de l'absorption, soit à de l'émission stimulée. L'amplification d'un champ résonant est donc décrite par trois quantités couplées :

- le champ électrique \mathbf{E}
- la polarisation \mathbf{P} induite par ce champ
- l'inversion de population ΔN entre les deux niveaux de la transition laser

2.5.1.1 Equation de propagation du champ dans un plasma

En présence d'une densité de courant \mathbf{J} , liée au déplacement des électrons libres et liés du plasma, l'équation de propagation d'un champ \mathbf{E} s'écrit :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} \quad (2.87)$$

La densité de courant possède une contribution de la part des électrons libres (qu'on considère soumis uniquement à la force du champ incident), notée \mathbf{J}_f , et une contribution de la part des électrons liés, notée \mathbf{J}_b . Ces contributions sont respectivement données par :

$$\frac{\partial \mathbf{J}_f}{\partial t} = \frac{1}{\mu_0} \frac{\omega_p^2}{c^2} \mathbf{E} \quad (2.88)$$

$$\mathbf{J}_b = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (2.89)$$

\mathbf{P} est ici la polarisation du milieu, définie comme le moment dipolaire volumique qui peut s'écrire, dans le cas où tous les dipôles oscillent en phase et dans la même direction :

$$\mathbf{P} = -n_D e \mathbf{r} \quad (2.90)$$

où n_D est la densité de dipôles oscillants (i.e. d'électrons liés), et \mathbf{r} la position de l'électron lié par rapport à son noyau.

Après quelques calculs, l'équation de propagation du champ peut finalement se mettre sous la forme :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \frac{\omega_p^2}{c^2} \right) \mathbf{E} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (2.91)$$

On considère un champ \mathbf{E} de pulsation ω se propageant suivant l'axe z et de direction de propagation \mathbf{e}_r , défini par :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = E(\mathbf{r}) \times e^{i\omega t - ikz} \mathbf{e}_r \quad (2.92)$$

et un vecteur de polarisation \mathbf{P} de même fréquence, dont on néglige l'évolution temporelle par rapport à la variation du champ, donné par :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, t) = P(\mathbf{r}) \times e^{i\omega t - ikz} \mathbf{e}_r \quad (2.93)$$

Sous l'approximation de l'enveloppe lentement variable, l'équation (2.91) devient :

$$\left[\Delta_{\perp} + 2ik \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) - \frac{\omega_p^2}{c^2} \right] E = -\mu_0 \omega^2 P \quad (2.94)$$

avec Δ_{\perp} le Laplacien transverse, tel que $\Delta = \Delta_{\perp} + \frac{\partial^2}{\partial z^2}$.

2.5.1.2 Polarisation induite par un champ résonant

On souhaite déterminer ici l'évolution temporelle de la polarisation du milieu induite par le champ résonant. Il faut prendre en compte le fait que le moment dipolaire est associé à la transition laser, et dépend des données atomiques qui la décrivent. Nous utilisons donc une approche quantique. L'équation de Schrödinger décrit l'évolution temporelle d'un état quantique $|\Psi\rangle$ par :

$$\hat{H} |\Psi\rangle = i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi\rangle \quad (2.95)$$

\hat{H} est l'opérateur hamiltonien représentant l'énergie du système. Il est défini par $\hat{H} = \hat{H}_A - \mathbf{d} \cdot \mathbf{E}$ avec \hat{H}_A l'hamiltonien en l'absence de champ et \mathbf{d} le dipôle électrique atomique. L'équation de Schrödinger peut se réécrire sous la forme de l'équation Liouville-Von Neumann :

$$[\hat{H}, \hat{\rho}] = i\hbar \frac{d}{dt} \hat{\rho} \quad (2.96)$$

avec $\hat{\rho}$ la matrice densité qui décrit l'état du système.

On peut montrer que l'élément ρ_{ul} de la matrice $\hat{\rho}$ est alors gouverné par :

$$\frac{\partial \rho_{ul}}{\partial t} = -\gamma \rho_{ul} - \frac{E}{i\hbar} d_{ul} (n_u - n_l) \quad (2.97)$$

avec γ le taux de dépolarisation collisionnelle, n_u et n_l les densités de population des niveaux respectivement supérieur et inférieur de la transition laser, et d_{ul} le moment dipolaire. Le vecteur polarisation \mathbf{P} est donné par $\mathbf{P} = \text{Tr}(\hat{\rho} \mathbf{d})$, Tr représentant la trace de la matrice. On note $|M|$ le module des éléments de matrice diagonaux du moment dipolaire. On en déduit finalement l'équation suivante :

$$\frac{\partial P}{\partial t} = \Gamma - \gamma P - \frac{E}{i\hbar} |M|^2 (n_u - n_l) \quad (2.98)$$

avec l'ajout de Γ , un terme de source stochastique représentant l'émission spontanée.

2.5.1.3 Equations d'évolution des populations atomiques

Les équations standards de taux, donnent l'évolution des populations atomiques des niveaux supérieur et inférieur :

$$\begin{cases} \frac{\partial n_u}{\partial t} = \sum_k C_{ku} n_k + \frac{i}{2\hbar} E^* P \\ \frac{\partial n_l}{\partial t} = \sum_k C_{kl} n_k - \frac{i}{2\hbar} E^* P \end{cases} \quad (2.99)$$

On peut noter deux contributions. La première est représentée par la somme sur les k niveaux interagissant fortement avec les niveaux de la transition laser. n_k est la densité de population du niveau k , et C_{ku} , C_{kl} sont les taux d'excitation et de désexcitation collisionnelles et radiatives entre le niveau k et respectivement les niveaux u et l . La seconde représente le transfert d'énergie entre le champ et le dipôle.

2.5.1.4 Système d'équations de Maxwell-Bloch

L'amplification d'un champ résonant est finalement décrite par :

$$\begin{cases} \left[\Delta_{\perp} + 2ik \left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) - \frac{\omega_p^2}{c^2} \right] E = -\mu_0 \omega^2 P \\ \frac{\partial P}{\partial t} = \Gamma - \gamma P - \frac{E}{i\hbar} |M|^2 (n_u - n_l) \\ \frac{\partial n_{u,l}}{\partial t} = \sum_k C_{ku,l} n_k \pm \frac{i}{2\hbar} E^* P \end{cases} \quad (2.100)$$

2.5.2 Amplification du champ harmonique résonant

2.5.2.1 Description du code DAGON

Le code DAGON [187][188] permet de simuler l'amplification d'un champ harmonique résonant se propageant dans un plasma en résolvant le système (2.100) en 3 dimensions sous l'approximation paraxiale et l'approximation des enveloppes lentement variables, tout en prenant en compte la dynamique temporelle du plasma amplificateur. Cette dernière est simulée comme suit :

- La création et l'évolution du guide d'onde sont modélisées par un code radiatif hydrodynamique 2D nommé ARWEN [189][190]. Ce code résout les équations de dynamique des fluides compressibles couplées aux équations de transferts d'énergie. Il prend ainsi en compte la diffusion électronique, le transfert radiatif, la propagation du faisceau laser et l'absorption.
- Le profil de densité électronique issu des calculs précédents alimente ensuite un code PIC (Particle-In-Cell) axisymétrique, appelé FBPIC [191], qui permet de résoudre les équations de Maxwell et les équations du mouvement relativiste pour les macroparticules qui constituent le plasma.

- Enfin, la dynamique temporelle de l'ion lasant et de l'inversion de population sont simulées grâce au code radiatif-collisionnel OFIKinRad (voir annexe A). L'évolution de la distribution énergétique des électrons, dont dépendent les taux de collisions, est prise en compte en résolvant l'équation de Fokker-Planck.

L'aspect tridimensionnel du code est requis pour prendre en compte la structure stochastique de l'ASE, ainsi que les inhomogénéités du plasma [192]. Ces inhomogénéités résultent d'une surionisation de l'ion lasant induite par une augmentation locale de l'intensité laser. Un amplificateur de $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 10 \text{mm}$ est modélisé ici, en utilisant une maille formée de $100 \times 100 \times 2000$ cellules. Le pas de temps est fixé à 10 fs.

2.5.2.2 Régimes de l'amplification

Premiers instants : régime non saturé

La figure 2.30 représente l'évolution temporelle des trois quantités couplées que nous venons de décrire : l'inversion de population, la densité de polarisation, et l'intensité du champ, pour différentes longueurs z de propagation. Cette figure est issue d'une simulation par DAGON pour une densité électronique de $5,6 \times 10^{19} \text{cm}^{-3}$. Lorsque $z = 330 \mu\text{m}$, on observe que l'inversion de population suit la même dynamique que sans le champ résonant. En revanche, pour $z = 1 \text{mm}$, on peut commencer à voir apparaître un signe de saturation : le niveau supérieur est suffisamment dépeuplé sous l'effet du champ pour que le pompage ne permette pas de compenser ce phénomène.

La propagation du champ résonant harmonique dans le plasma induit une polarisation du milieu en déplaçant les électrons. La densité de polarisation augmente alors au fur et à mesure que des dipôles sont créés. Les électrons oscillants rayonnent, et lorsqu'ils sont en phase, il en résulte une émission cohérente. Sans perturbation, les électrons pourraient osciller pour toujours et émettre de façon continue. Le spectre de l'émission serait alors un Dirac. En réalité, les électrons perdent progressivement de l'énergie, faisant diminuer l'amplitude de leur moment dipolaire individuel. Dans le même temps, les collisions électrons-ions induisent des déphasages entre les dipôles individuels, ce qui conduit à une dépolarisation progressive du milieu. Notons que plus la densité électronique augmente, plus les collisions électrons-ions sont fréquentes, et donc plus la dépolarisation du milieu est rapide. Cette dépolarisation plus rapide se produit en parallèle de l'élargissement spectral à haute densité également provoqué par les collisions plus nombreuses (voir section 2.1.3.1), et induit une diminution de la durée d'impulsion. Cet effet s'additionne au phénomène de réduction de la durée d'impulsion entraînée par l'interruption anticipée du gain à haute densité (voir section 2.1.4).

Initialement, lorsque $z = 330 \mu\text{m}$, seule l'harmonique est présente. La polarisation induite par le champ résonant induit la création et l'amplification d'une traîne à la suite de cette harmonique : le rayonnement généré par les dipôles s'accumule à l'arrière du champ harmonique. La durée de vie de l'amplification cohérente est ainsi déterminée par le temps pendant lequel le milieu est polarisé, i.e. pendant lequel les dipôles induits par le champ résonant émettent en phase.

Régime saturé et oscillations de Rabi

Lorsque la longueur de propagation est supérieure à $z = 1 \text{mm}$, comme c'est le cas sur la figure 2.31, on observe des oscillations dont l'origine est expliquée par le calcul suivant.

On néglige ici l'ASE et les effets collisionnels, et on reprend le système (2.100) :

$$\begin{cases} \frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{E}{i\hbar}|M|^2\Delta N \\ \frac{\partial \Delta N}{\partial t} = \frac{i}{\hbar}E^*P \end{cases} \quad (2.101)$$

En négligeant les variations temporelles du champ par rapport à celles de la polarisation et de l'inversion de population, on obtient :

$$\frac{\partial^2 \Delta N}{\partial t^2} = -\frac{1}{\hbar^2}|M|^2|E|^2\Delta N \quad (2.102)$$

qui est une équation différentielle du second ordre dont le discriminant est négatif. L'inversion de population suit donc un régime pseudo-périodique, caractérisé par des oscillations d'amplitude décroissante et de fréquence Ω_R , dite de Rabi, donnée par :

$$\Omega_R = \sqrt{\frac{|M|^2}{\hbar^2} - I} \quad (2.103)$$

Cette fréquence peut également être exprimée sous la forme :

$$\Omega_R = \sqrt{\frac{I}{I_{\text{sat}} T_1 T_2}} \quad (2.104)$$

T_1 représente le temps de recouvrement du gain, qui caractérise la relaxation de l'inversion de population vers un état d'équilibre i.e. la relaxation de l'énergie. T_2 représente la relaxation de la phase, il correspond au temps de déphasage des dipôles.

Ainsi lorsqu'un champ harmonique résonant se propage dans le plasma, il sature l'inversion de population qui se met à osciller du fait de la compétition entre le dépeuplement par le champ et le repeuplement par pompage. Ces oscillations de l'inversion de population se traduisent par des oscillations de la densité de polarisation et du champ lui-même. On peut noter la forte interdépendance entre l'inversion de population et le champ : les maxima du champ correspondent aux minima de l'inversion de population et inversement. Ce phénomène prend de plus en plus d'ampleur au cours de la propagation puisque les oscillations de Rabi sont anharmoniques : leur fréquence dépend de l'intensité du champ. Plus la longueur d'amplification est grande, plus le champ est fort, et plus la période de ces oscillations est courte. Typiquement, la période de Rabi est ici de l'ordre de 100 fs à $z = 4$ mm, et passe à 50 fs pour $z = 8$ mm.

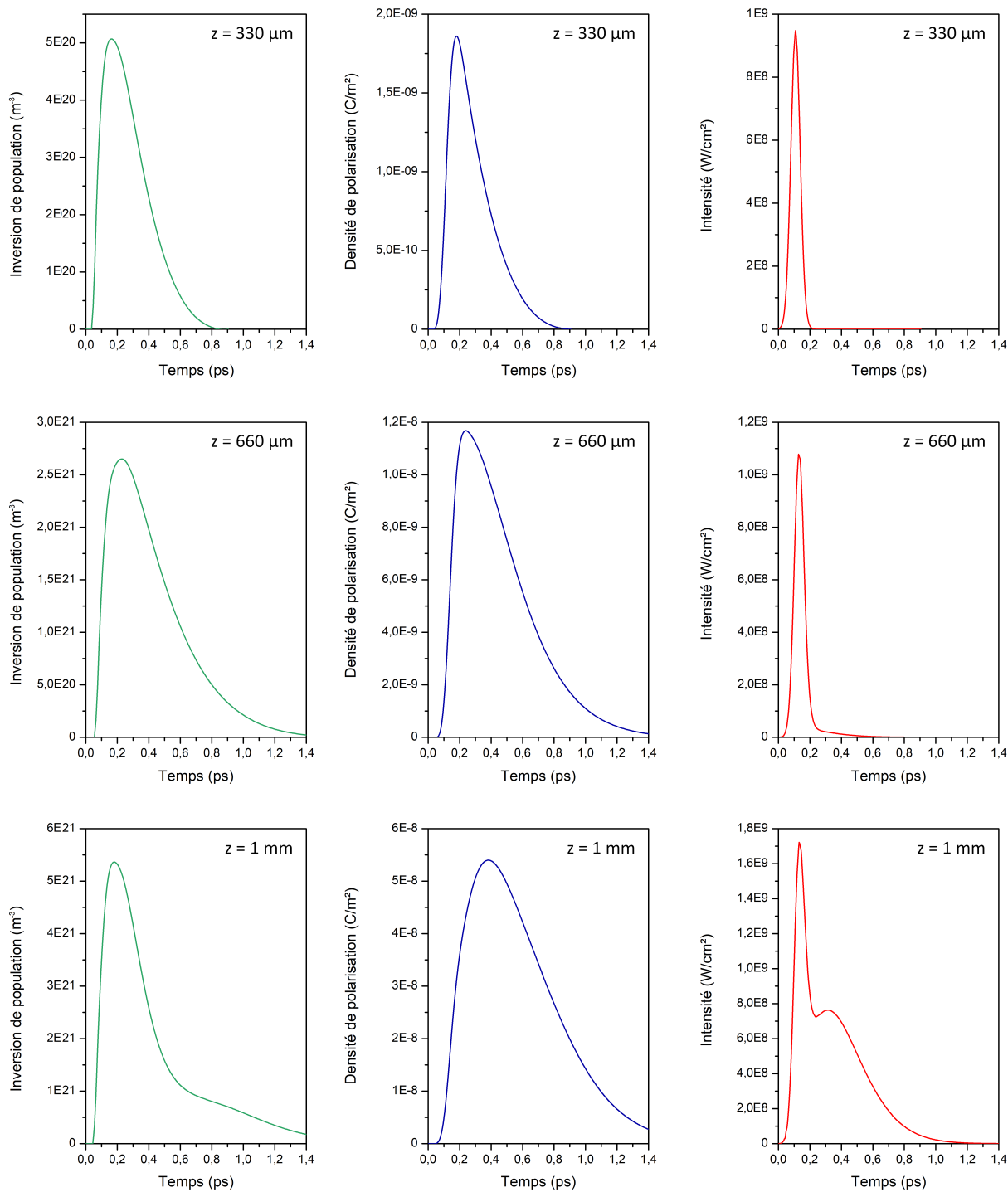


FIGURE 2.30 – Evolution temporelle de l'inversion de population (vert), de la densité de polarisation (bleu) et de l'intensité du champ (rouge) en régime non saturé.

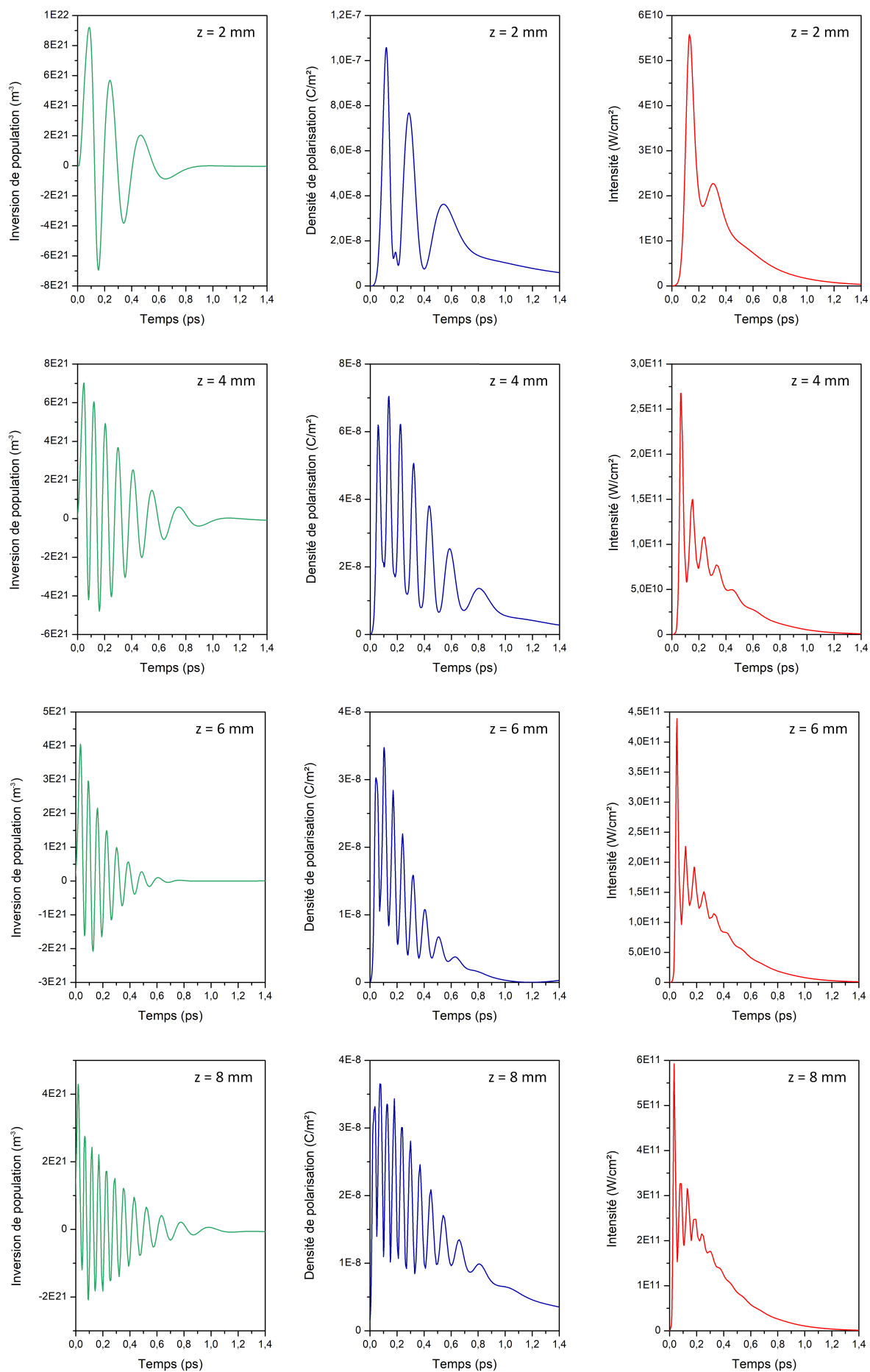


FIGURE 2.31 – Evolution temporelle de l'inversion de population (vert), de la densité de polarisation (bleu) et de l'intensité du champ (rouge) en régime saturé.

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit les phénomènes physiques à l'œuvre dans un laser XUV collisionnel ionisé par le champ. La génération d'un rayonnement dans cette gamme spectrale requiert une inversion de population entre deux niveaux d'énergie d'un ion lasant, dans notre cas le Kr^{8+} . Nous avons, dans un premier temps, étudié l'amplification de ce rayonnement en régime ASE en donnant la structure atomique de cet ion et les équations caractéristiques d'un milieu à gain. Nous avons vu que la densité électronique du plasma est un paramètre clef de l'amplification : son augmentation permet une intensité de saturation et un gain accrus. De plus, les hautes densités électroniques mènent à une surionisation de l'ion lasant qui induit une interruption anticipée de la durée de vie du gain, ce qui constitue un espoir de réduire la durée d'impulsion du laser XUV sous le seuil de la picoseconde et donc un point crucial de cette thèse.

Dans un second temps, nous nous sommes intéressés aux conditions d'obtention de l'effet laser. La génération des ions lasants est effectuée principalement par abaissement de la barrière de potentiel qui nécessite une intensité sur cible supérieure à quelques $10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'inversion de population est ensuite réalisée par excitation collisionnelle. Le pompage efficace de la transition requiert des électrons chauds, d'une énergie ici supérieure à 145 eV. Cette condition de chauffage est assurée par la polarisation circulaire du champ à basse densité (typiquement inférieure à quelques 10^{19} cm^{-3}). Nous verrons plus loin qu'à haute densité, le chauffage devient indépendant de la polarisation.

Nous nous sommes ensuite penchés sur les mécanismes régissant la dynamique du plasma, en particulier sur les processus collisionnels, impactant notamment l'évolution de la température électronique et donc l'évolution des populations atomiques décrites dans la première partie de ce chapitre.

Après cela, nous nous sommes concentrés sur la propagation du laser de pompe dans le milieu amplificateur et sur la réfraction induite par les électrons libres du plasma. Pour pallier à la défocalisation du faisceau, qui est d'autant plus importante qu'on travaille à haute densité, nous avons étudié les techniques qui permettent de guider l'impulsion pompe en créant un profil de densité électronique favorable à sa propagation, et donc d'allonger la longueur d'interaction laser-plasma.

Enfin, nous avons examiné la physique de l'amplification en régime injecté. Ce régime est extrêmement bénéfique puisqu'il permet d'exploiter les excellentes qualités énergétiques de l'amplificateur tout en améliorant les qualités spatiales du rayonnement. Nous nous sommes en particulier intéressés, via la résolution des équations de Maxwell-Bloch par le code DAGON, au profil temporel du laser XUV. Cette partie sera d'un intérêt particulier dans le chapitre 5.

Après avoir étudié en détail la théorie au cœur des lasers collisionnels injectés XUV, nous passons dans le chapitre suivant à la réalisation concrète de ce type de source.

Chapitre 3

Réalisation d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques

Dans ce chapitre, nous décrirons le contexte expérimental dans lequel s'est déroulé ce travail de thèse. Nous détaillerons la chaîne laser infrarouge de la Salle Jaune, puis la chaîne laser à 32,8 nm. En particulier, nous nous attarderons sur la génération du plasma amplificateur, la création du canal plasma permettant le guidage de l'impulsion pompe, et l'injection par une source harmonique externe. Enfin, nous évoquerons tous les diagnostics utilisés dans la suite du manuscrit, en particulier dans le chapitre 4 qui aura pour sujet la caractérisation du rayonnement XUV et du guidage.

Sommaire

3.1	Présentation de la Salle Jaune	74
3.2	Installation laser infrarouge	75
3.3	Description de la chaîne laser XUV	77
3.3.1	Génération de l'amplificateur	77
3.3.2	Création d'un canal plasma	79
3.3.3	Génération du rayonnement harmonique et injection	81
3.4	Diagnostics	83
3.4.1	Diagnostics du guidage	83
3.4.2	Diagnostics du rayonnement	85
3.5	Conclusion	88

3.1 Présentation de la Salle Jaune

La Salle Jaune du Laboratoire d'Optique Appliquée accueille le laser le plus intense du laboratoire. Le système laser (fig. 3.1) est séparé de la salle où se déroulent les expériences d'interaction laser-plasma (fig. 3.2). L'environnement de la Salle Jaune est contrôlé en hygrométrie et en température pour assurer la stabilité du laser.

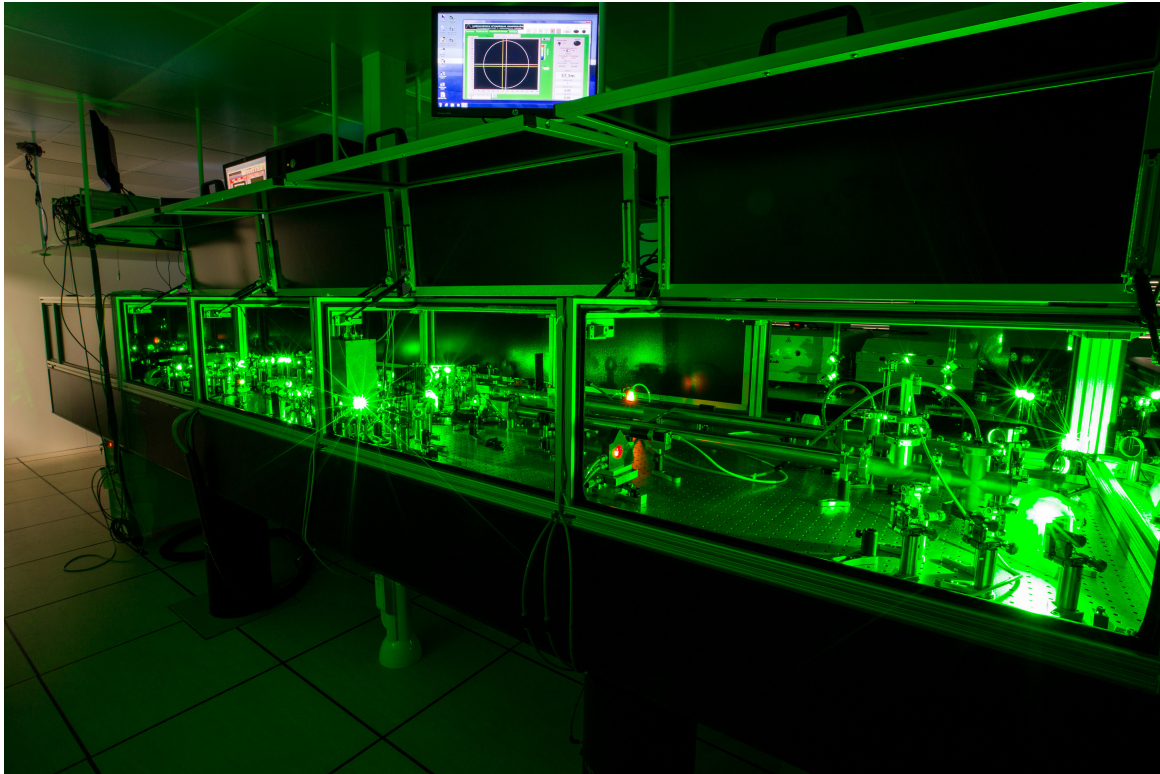


FIGURE 3.1 – Photo du système laser de la Salle Jaune.

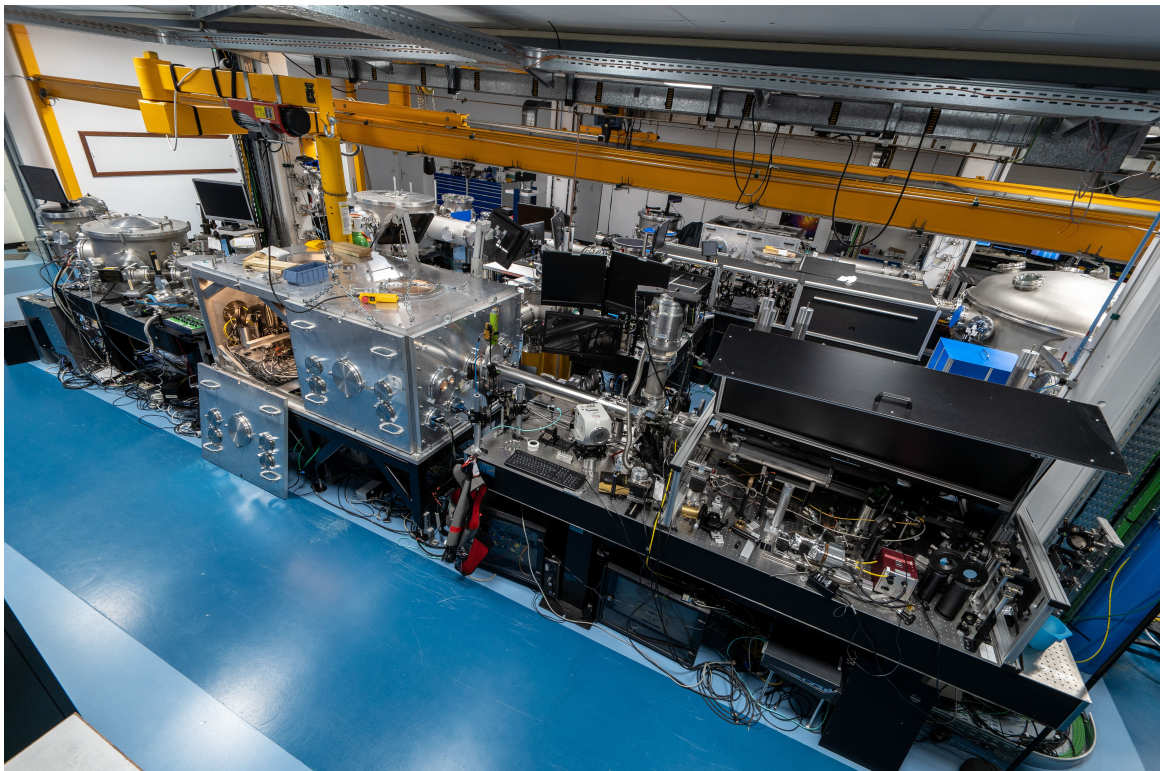


FIGURE 3.2 – Photo de la Salle Jaune. La chaîne laser à 32,8 nm est au premier plan.

3.2 Installation laser infrarouge

Le système laser utilisé est une chaîne laser Ti :Sa basée sur la méthode CPA ("Chirped Pulse Amplification") développée par Gérard Mourou et Donna Strickland en 1985 [62], et pour laquelle ils ont obtenus le prix Nobel de physique en 2018. Cette technique consiste à étirer temporellement les impulsions, avant de les amplifier puis de les recomprimer à leur durée initiale. L'amplification d'impulsions longues permet d'éviter les phénomènes non linéaires parasites, comme l'autofocalisation, qui se produisent à haute intensité.

La chaîne laser infrarouge est représentée sur la figure 3.3. Le premier élément du système est un oscillateur Ti :Sa à blocage de modes qui délivre des impulsions de 4 nJ et 9 fs à 88 MHz. Leur spectre est centré autour de 808 nm et a une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 100 nm. Ces impulsions sont ensuite étirées temporellement jusqu'à 10 ps puis amplifiées jusqu'à 2 mJ à une cadence de 10 Hz. Elles sont alors recomprimées jusqu'à 20 fs avant de passer par un filtre XPW ("Cross-Polarized Wave") qui permet l'obtention d'un contraste, ratio entre l'intensité crête et le niveau d'ASE, élevé. Il est en effet essentiel d'avoir un bon contraste pour éviter la génération d'un pré-plasma indésirable à cause d'une préimpulsion ou d'un piédestal dans l'impulsion principale. L'efficacité du XPW est de l'ordre de 15%. Les impulsions sont ensuite étirées par un système de type Öffner jusqu'à 600 ps. Un modulateur acousto-optique de type Dazzler [193] est utilisé pour contrôler la phase spectrale des impulsions et précompenser le rétrécissement spectral par le gain lors du passage dans les différents amplificateurs. Les impulsions passent alors par 5 étages d'amplification successifs jusqu'à atteindre une énergie de 7 J. Chaque étage est composé d'un cristal Ti :Sa pompé par un Nd :Yag doublé en fréquence (532 nm). La taille de ces cristaux ainsi que la taille du faisceau sont progressivement augmentées pour permettre une extraction optimale de l'énergie tout en maintenant la fluence sous le seuil de dommage (environ $100 \text{ mJ} \cdot \text{cm}^{-2}$). On utilise pour cela des systèmes afocaux, au foyer desquels sont placés des iris de quelques dizaines de μm de diamètre qui permettent de filtrer spatialement le faisceau et de le débarrasser de ses impuretés. A ce stade, la cadence du laser est limitée à 1 Hz pour éviter les effets thermiques.

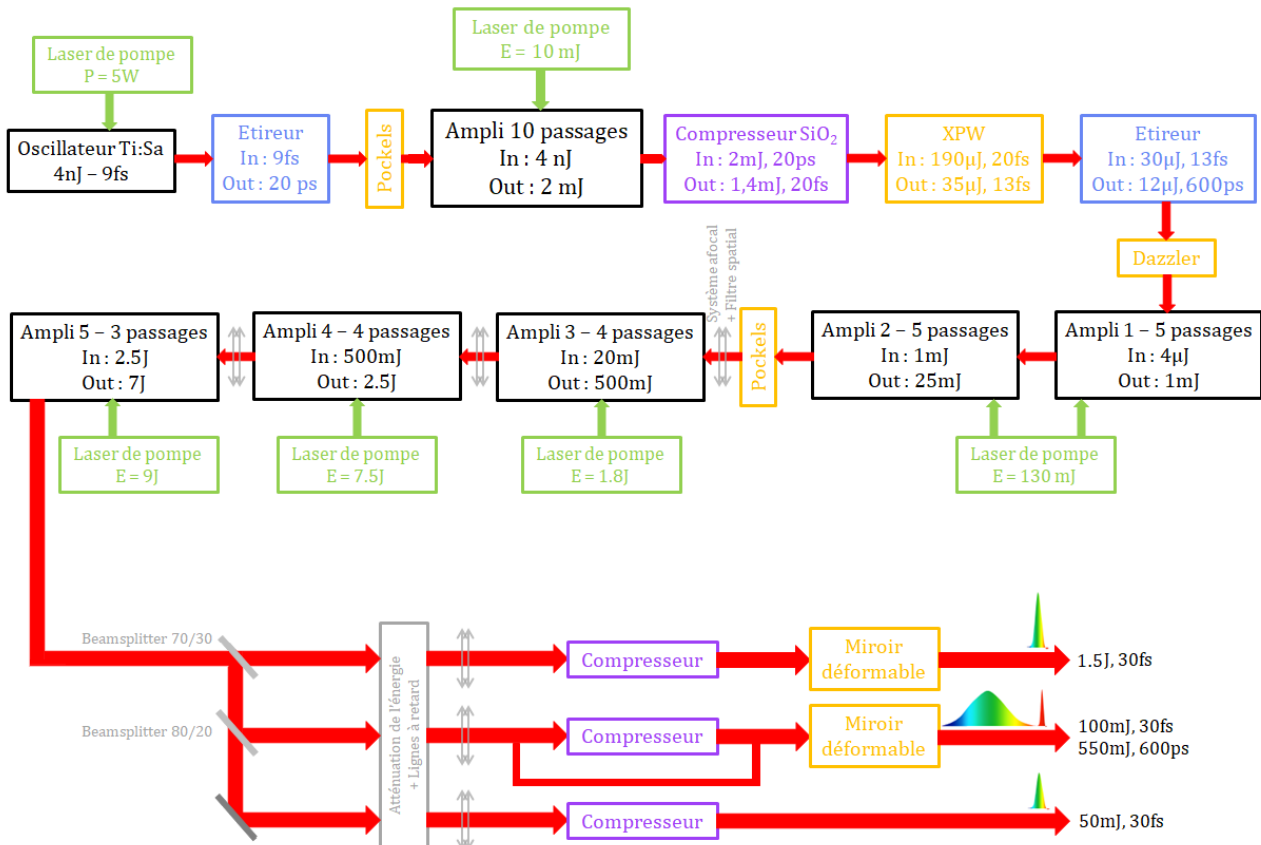


FIGURE 3.3 – Architecture du système laser de la Salle Jaune.

Le faisceau issu des 5 étages d'amplification est ensuite divisé en 3 faisceaux indépendants. Ces 3 faisceaux passent par des lignes à retard puis par des systèmes d'atténuation constitués de densités optiques et de lames $\lambda/2$. Cela permet de n'envoyer qu'une partie de l'énergie disponible, par exemple pour les alignements ou pour des scans en énergie. Enfin, leurs diamètres respectifs sont ajustés grâce à des systèmes afocaux. Le faisceau

pompe a un diamètre de 90 mm, le faisceau utilisé pour la génération du canal plasma a un diamètre de 45 mm, et celui utilisé pour la génération d'harmoniques a un diamètre de 30 mm. Ils passent ensuite par 3 systèmes de compression à réseaux indépendants pour être recomprimés à 30 fs, avant d'être envoyés vers notre expérience :

- Le premier faisceau (1,5 J, 30 fs) est le faisceau pompe utilisé pour la création du milieu amplificateur.
- Le deuxième faisceau est séparé en 2 parties (une recomprimée à 30 fs et l'autre non) qui sont ensuite recombinaées pour former la séquence "ignitor + heater" utilisée pour la création du canal plasma.
- Le dernier faisceau (50 mJ, 30 fs) sert en partie à la génération de la source harmonique externe utilisée pour l'injection, et en partie comme sonde pour le diagnostic de mesure de la densité électronique.

Le faisceau pompe et le faisceau servant à la création du guide d'onde sont ensuite réfléchis sur un miroir déformable qui permet d'améliorer leurs taches focales respectives. Le front d'onde de chacun de ces faisceaux est mesuré par un senseur de front d'onde de type Shack-Hartmann. Ce dernier est constitué de micro-lentilles qui focalisent chacune une fraction du faisceau sur un capteur CCD. Les aberrations optiques sont ainsi mesurées grâce à l'écart entre la position réelle de chaque tache focale et sa position idéale (i.e. obtenue pour un front d'onde non aberrant). Une carte de phase du front d'onde est déduite de cette mesure, puis décomposée sur la base orthogonale des polynômes de Zernike. On compense enfin les défauts, désormais connus, du front d'onde à l'aide du miroir déformable.

La figure 3.4 représente le profil spatial presque "top hat" du faisceau en sortie du 5^{ème} étage d'amplification. Le diamètre du faisceau est alors de 28 mm à $1/e^2$. Les figures 3.5 (a) et (b) montrent respectivement le spectre du faisceau en sortie d'oscillateur et en sortie du 5^{ème} étage d'amplification. On observe un décalage de la longueur d'onde centrale vers les grandes longueurs d'onde de quelques nanomètres, et un net rétrécissement de la largeur spectrale induit par l'amplification.

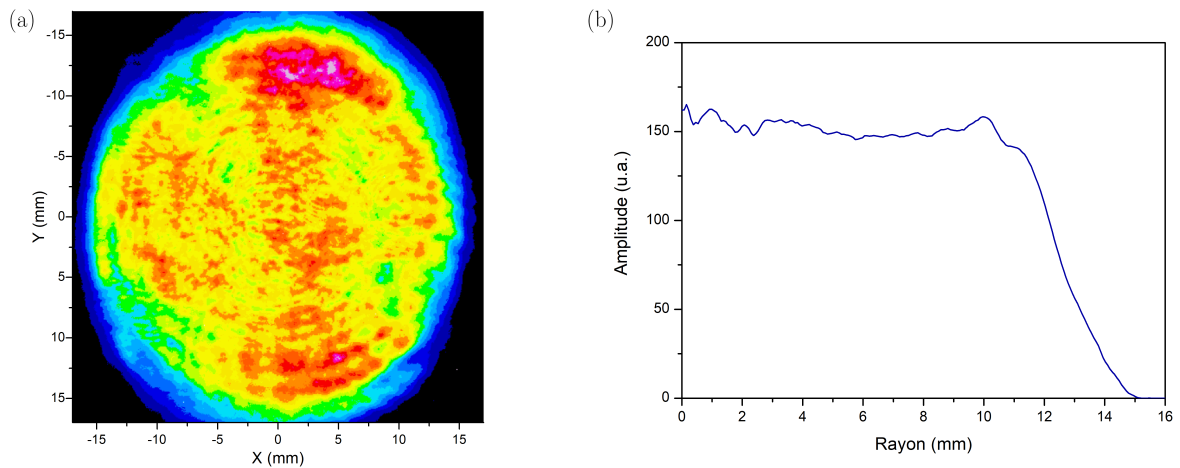


FIGURE 3.4 – (a) Profil spatial, (b) profil radial du faisceau infrarouge en sortie du 5^{ème} étage d'amplification.

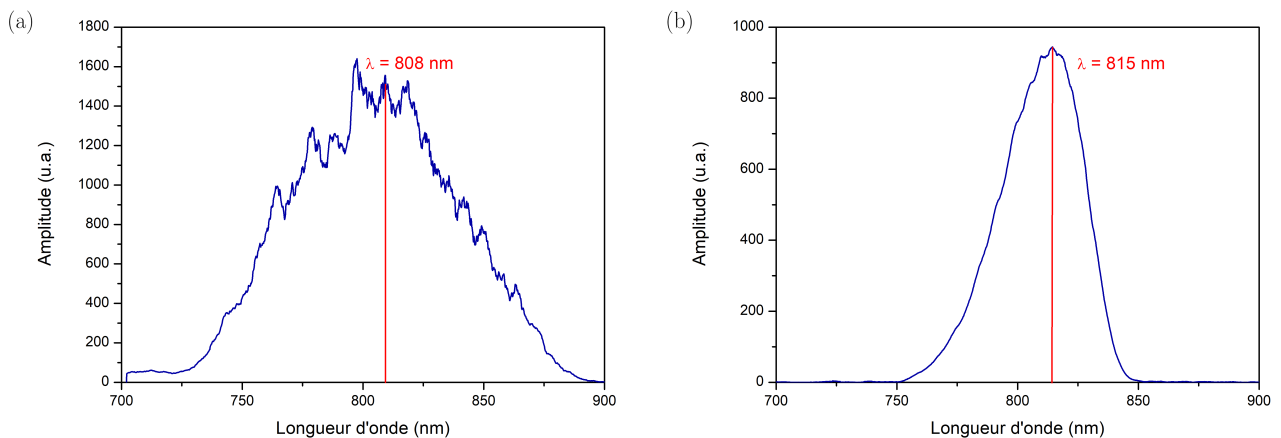


FIGURE 3.5 – Spectre du faisceau (a) en sortie de l'oscillateur, (b) en sortie du 5^{ème} étage d'amplification.

3.3 Description de la chaîne laser XUV

Le schéma de notre expérience est illustré sur la figure 3.6. Dans cette section, nous décrivons en détail les éléments qui composent la chaîne laser XUV. Celle-ci peut être décomposée en deux parties : la partie amplification d'une part, et la partie injection d'autre part. Nous commencerons par expliquer la génération du milieu amplificateur par le faisceau pompe, dont la propagation dans le plasma nécessite la création d'un guide d'onde décrite dans un deuxième temps. Enfin, nous détaillerons la technique d'injection par une source harmonique externe.

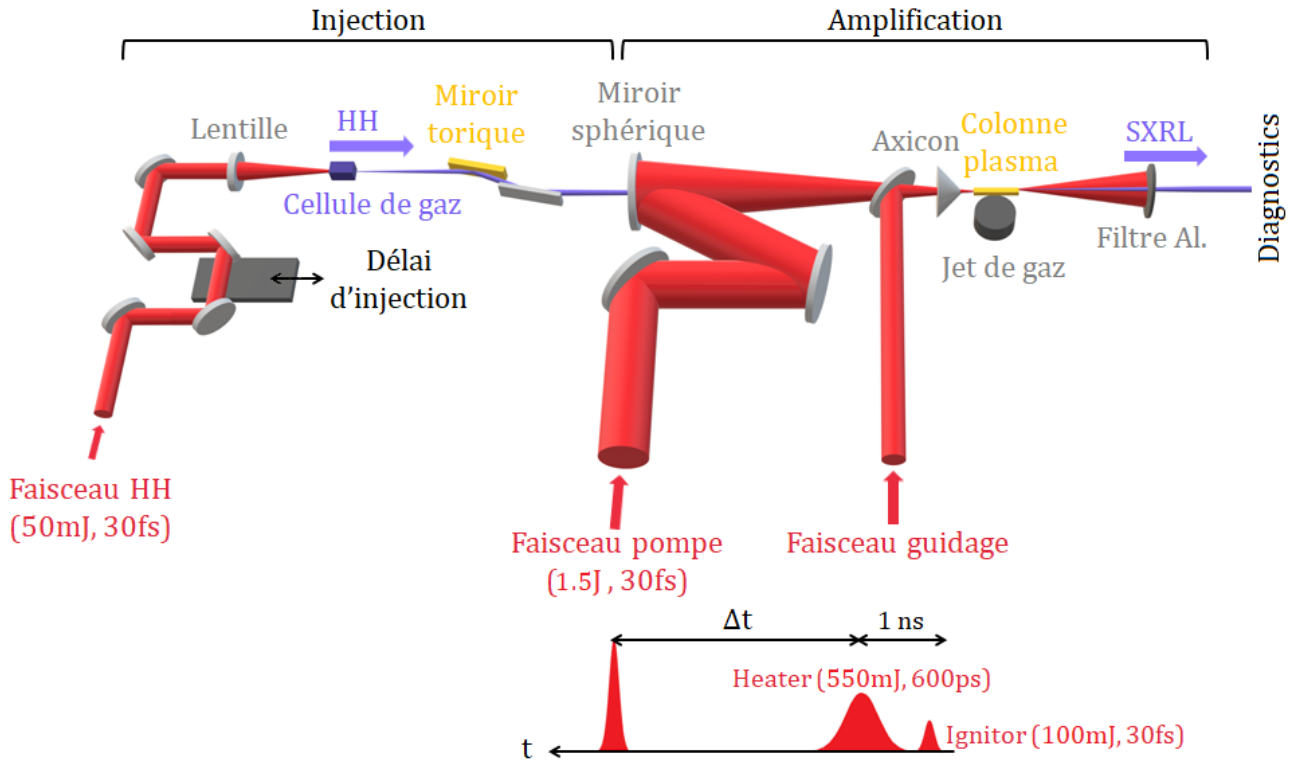


FIGURE 3.6 – Schéma de l'expérience. La séquence de guidage "ignitor + heater" (100 mJ, 30 fs puis 550 mJ, 600 ps) est focalisée par un axicon en une ligne focale sur toute la longueur du jet. Après quelques nanosecondes, un canal plasma est créé, permettant au faisceau pompe (1,5 J, 30 fs) focalisé par un miroir sphérique de se propager dans le plasma et de créer le milieu amplificateur. Le troisième faisceau infrarouge est focalisé dans une cellule d'argon. Les harmoniques d'ordres élevés ainsi générées sont ensuite injectées dans le plasma amplificateur pendant le temps de vie du gain.

3.3.1 Génération de l'amplificateur

Le milieu amplificateur est obtenu en focalisant le faisceau pompe (1,5 J, 30 fs) en entrée d'un jet de gaz, dans notre cas de krypton, à l'aide d'un miroir sphérique de focale 700 mm. Ce miroir sphérique est motorisé comme la plupart des optiques pour permettre l'alignement du faisceau sous vide, et percé en son centre pour permettre, plus tard, l'injection d'harmoniques.

3.3.1.1 Faisceau pompe

La tache focale du faisceau pompe est observée à l'aide d'une caméra CCD équipée d'un objectif de microscope $\times 20$ sur la figure 3.7 (a). Elle est optimisée grâce au miroir déformable en vue de compenser l'astigmatisme introduit par le miroir sphérique. Le rayon de la tache en limite de diffraction est donnée par la première annulation de la tache d'Airy de rayon $1,22 \lambda f'/D$ avec $f' = 700$ mm la focale du miroir sphérique, et $D = 90$ mm le diamètre du faisceau. La limite de diffraction est ici de l'ordre de $8 \mu\text{m}$. La figure 3.7 (b) montre l'évolution autour du waist du rayon contenant 90% de l'énergie totale, et de l'intensité résultante. Au foyer, 90% de l'énergie est contenue dans un rayon de $18 \mu\text{m}$. Le front d'onde présente donc quelques aberrations résiduelles qui peuvent être induites notamment par le trou du miroir sphérique. L'intensité est alors de l'ordre de $4,6 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, et est donc bien supérieure au seuil requis pour la génération des ions lasants.

La figure 3.8 montre la stabilité de pointé et la stabilité en énergie du faisceau pompe, mesurées à pleine énergie sous vide. L'écart-type du pointé vaut $1,3 \mu\text{m}$ en X et $1,9 \mu\text{m}$ en Y, soit respectivement 7% et 11% du rayon de la tache focale. L'énergie du faisceau pompe sur cible est en moyenne $1,5 \text{ J}$. L'écart-type en énergie est ici $0,03 \text{ J}$ soit 2% de l'énergie moyenne.

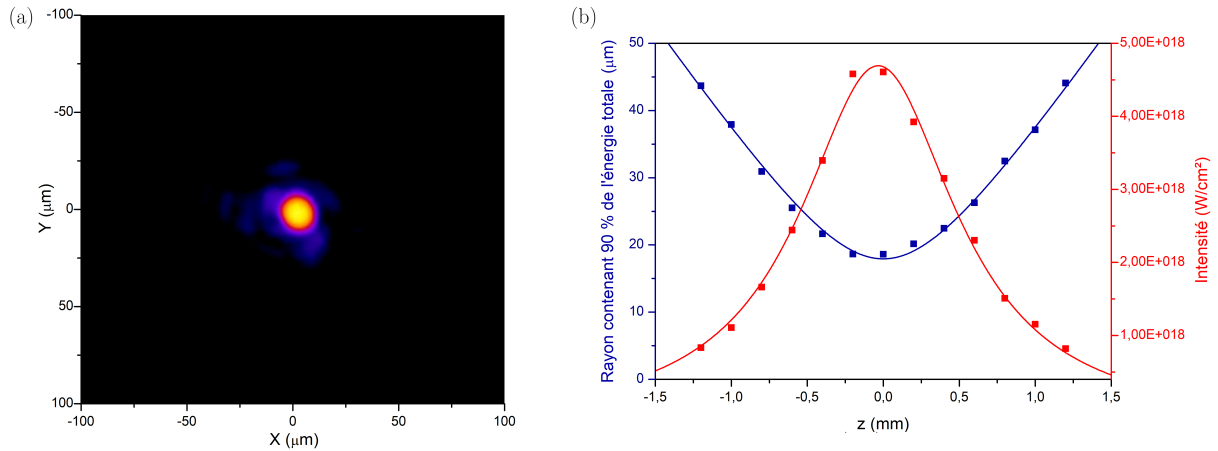


FIGURE 3.7 – (a) Tache focale du faisceau pompe. (b) Evolution longitudinale du rayon contenant 90 % de l'énergie totale en bleu et de l'intensité en rouge.

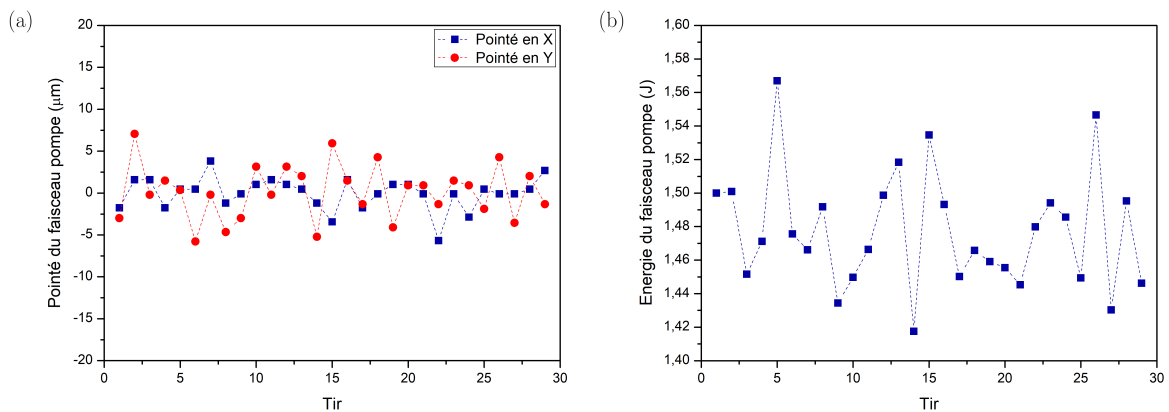


FIGURE 3.8 – Mesure à pleine énergie et sous vide (a) de la stabilité de pointé, (b) de la stabilité en énergie du faisceau pompe.

3.3.1.2 Jet de gaz

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, les hautes densités électroniques (de l'ordre de quelques $10^{19} - 10^{20} \text{ cm}^{-3}$) sont très favorables puisque les collisions électrons-ions, alors plus fréquentes, permettent de bâtir l'inversion de population et provoquent dans le même temps une interruption anticipée du gain. Pour atteindre de telles conditions en densité, le gaz est comprimé jusqu'à des pressions de l'ordre de 100 - 150 bars. On l'envoie ensuite dans une buse rectangulaire montée sur une électrovanne. Une petite bille de métal ferme cette vanne. Le gaz est libéré grâce à un champ magnétique généré par un électro-aimant lorsqu'il est alimenté par un fort courant (environ 10 A), et appliqué à cette bille. Les buses sont spécialement conçues de sorte à obtenir des plasmas homogènes, longs et denses présentant des gradients de densité raides [194]. Le design de ces buses est effectué grâce au logiciel *Fluent*, qui modélise l'écoulement hydrodynamique du gaz sur un maillage donné. La figure 3.9 représente les profils de densité neutre longitudinale et transverse simulés par *Fluent* à différentes hauteurs par rapport à la sortie d'une buse de $20 \text{ mm} \times 300 \mu\text{m}$. La pression de krypton en entrée est ici de 150 bar. On observe un profil assez homogène dans la direction longitudinale. La densité neutre à 2 mm de la buse est de l'ordre de $1,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, ce qui devrait permettre d'atteindre les densités électroniques souhaitées. La caractérisation de cette buse en particulier, et les performances obtenues avec son utilisation seront discutées dans la section 4.2.3.1.

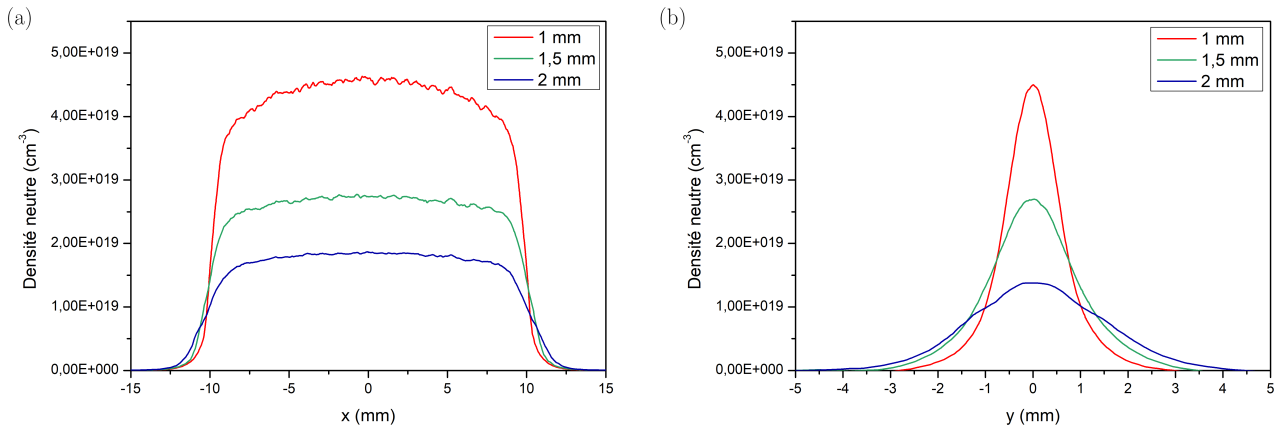


FIGURE 3.9 – Profils simulés (a) longitudinal et (b) transverse de la densité neutre de gaz à différentes hauteurs par rapport à la sortie d'une buse de 20 mm × 300 μm. La pression de krypton est ici de 150 bar.

En règle générale, nous travaillons avec un jet de 10 mm, dont la longueur peut être ajustée sous vide grâce à une platine de translation motorisée illustrée sur la figure 3.10, ce qui nous sera très utile pour la caractérisation du rayonnement dans les chapitres suivants.

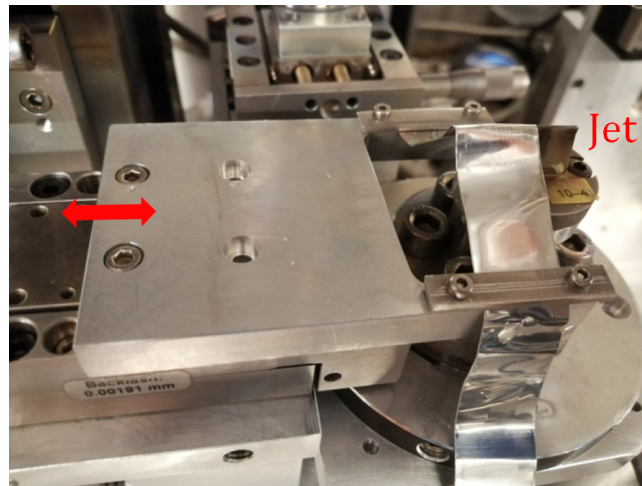


FIGURE 3.10 – Photo du jet de gaz de longueur ajustable.

3.3.2 Création d'un canal plasma

Comme expliqué précédemment, il est nécessaire de guider l'impulsion pompe dans le plasma qui a une tendance naturelle à la défocaliser. Pour cela, on crée un canal, i.e. un creux de densité électronique le long de l'axe optique, obtenu suite à l'expansion hydrodynamique du plasma sur un temps caractéristique de l'ordre de quelques nanosecondes après le passage d'un faisceau infrarouge. Ce dernier est constitué de deux impulsions ("ignitor + heater", voir 2.4.2.3) et est implémenté comme illustré sur la figure 3.11.

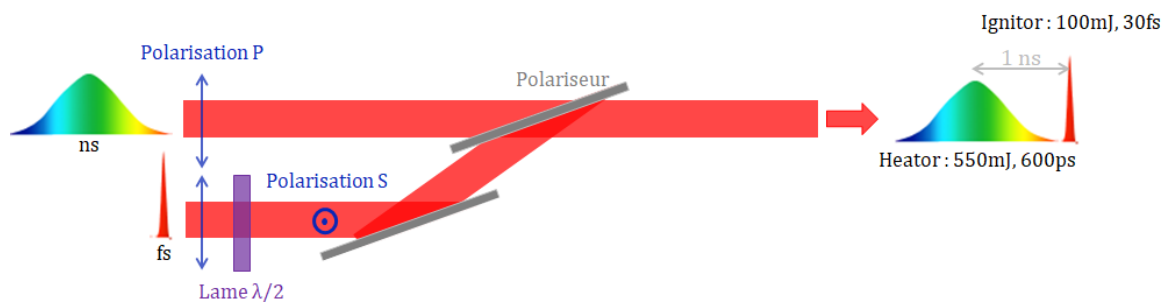


FIGURE 3.11 – Recombinaison de la séquence "ignitor + heater".

Le faisceau utilisé pour le guidage dispose initialement de plus d'1 J avant d'être divisé par une séparatrice 70/30 : 70% du faisceau ne passe pas par les réseaux (600 ps), tandis que le reste est recomprimé à 30 fs. La transmission du système de compression est de l'ordre de 60%. Les deux parties sont ensuite recombinaison grâce à un polariseur à 72° : la partie fs est polarisée S grâce à une lame $\lambda/2$ et réfléchié par le polariseur, la partie ns est polarisée P et transmise par le polariseur. En sortie du système de recombinaison, on obtient alors la séquence souhaitée composée de l'ignitor (100 mJ, 30 fs) suivie environ 1 ns plus tard par le heater (550 mJ, 600 ps). Dans le chapitre 4, nous caractériserons le guidage par cette séquence "ignitor + heater" et nous le comparerons à un guidage par une unique impulsion non recomprimée qui contiendra alors toute l'énergie disponible (820 mJ, 600 ps).

Ce faisceau est ensuite focalisé par un axicon [181][195], une lentille de forme conique qui permet de focaliser le faisceau en une ligne sur toute la longueur du jet de gaz. Une photo de la cible et de l'axicon est présentée sur la figure 3.12. L'axicon est percé en son centre pour permettre le passage du faisceau pompe focalisé et l'injection des harmoniques. Dans le cas d'un faisceau gaussien, l'axicon génère un profil radial de type Bessel dont l'intensité sur l'axe reste uniforme sur une longue distance (typiquement plusieurs mm) dans la direction longitudinale. Les figures 3.13 (a) et (b) montrent la tache focale du faisceau focalisé par l'axicon observée par une caméra CCD et un objectif de microscope $\times 20$ respectivement à l'entrée du jet de gaz ($z = 0$ mm), et à la sortie du jet ($z = 10$ mm). La structure en anneaux de Bessel, très nette en entrée du jet, est relativement bien conservée après 10 mm. Le rayon FWHM du faisceau est de l'ordre de $2 \mu\text{m}$, 90% de l'énergie du faisceau est contenue dans un rayon de $10 \mu\text{m}$.

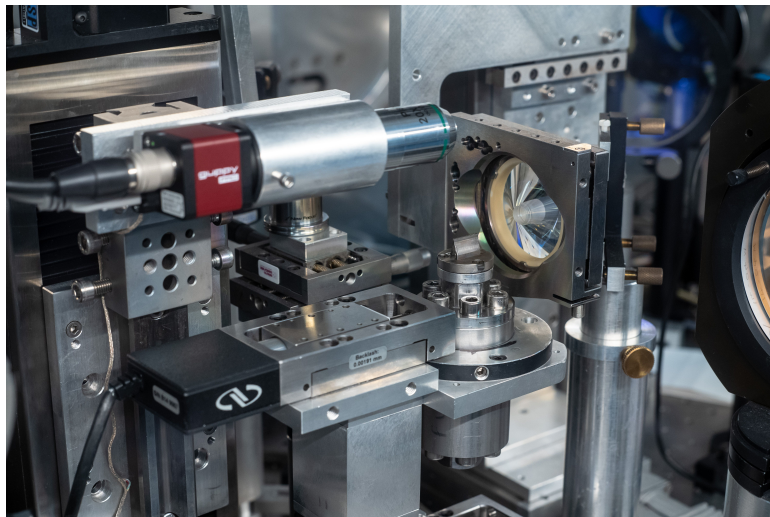


FIGURE 3.12 – Photo de la cible et de l'axicon focalisant le faisceau infrarouge utilisé pour créer le guide d'onde.

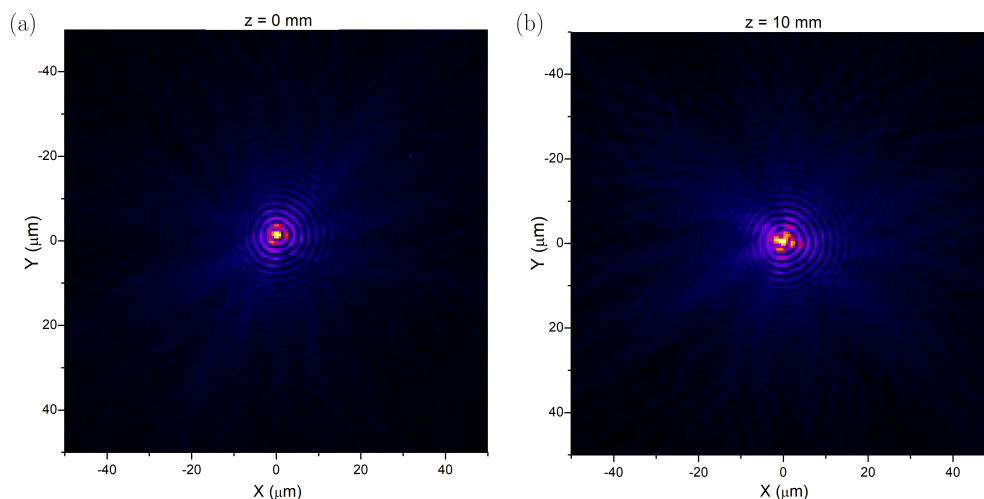


FIGURE 3.13 – Tache focale du faisceau utilisé pour créer le guide à l'axicon (a) à l'entrée du jet, (b) en sortie du jet de 10 mm.

3.3.3 Génération du rayonnement harmonique et injection

Le plasma est ensuite injecté par une source harmonique externe en vue d'améliorer les propriétés spatiales de la source, tout en tirant profit des qualités énergétiques de l'amplificateur. Les harmoniques sont générées en focalisant avec une lentille longue focale ($f' = 1,5$ m) une impulsion infrarouge moyennement intense (ici $2 \times 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$) dans une cellule d'argon de longueur 8 mm, selon le processus décrit dans la section 1.2.2. L'argon présente l'avantage d'offrir une bonne efficacité de conversion, de l'ordre de 10^{-5} dans l'harmonique 25 qui nous intéresse. L'énergie de l'harmonique 25 est optimisée en ajustant la pression de la cellule d'argon, l'énergie et le diamètre du faisceau infrarouge générateur, et la position longitudinale de la lentille. En pratique, les paramètres optimaux sont typiquement une pression comprise entre 20 et 40 mbar, un faisceau de l'ordre de la dizaine de mJ ouvert à $\phi \approx 20$ mm, et une focalisation quelques centimètres en amont de la cellule d'argon.

La source harmonique est finalement imagée à l'entrée du plasma en géométrie 1,5 m - 1 m. Cette géométrie permet d'assurer un bon recouvrement de la zone de gain dont les dimensions transverses sont inférieures à $100 \mu\text{m}$. Elle est obtenue à l'aide d'un miroir torique recouvert d'une couche d'or à 5° d'incidence rasante qui présente une réflectivité de l'ordre de 80% autour de 32 nm, et d'un miroir plan en SiO_2 .

Afin d'obtenir une amplification satisfaisante de la source harmonique, il est nécessaire de réaliser trois conditions de couplage respectivement dans les domaines spectral, spatial et temporel.

Couplage spectral

L'harmonique injectée dans le plasma ne peut être amplifiée que si sa longueur d'onde correspond à celle de la raie laser ASE à 32,8 nm. Les harmoniques étant essentiellement créées sur le front montant de l'impulsion laser, cette condition est réalisée en optimisant la phase spectrale du faisceau infrarouge générateur d'harmoniques [196][197] grâce à la distance entre les réseaux du compresseur. L'harmonique 25, initialement à 32,6 nm pour un spectre centré à 815 nm, peut ainsi être câlée spectralement sur la raie ASE comme le montre la figure 3.14.

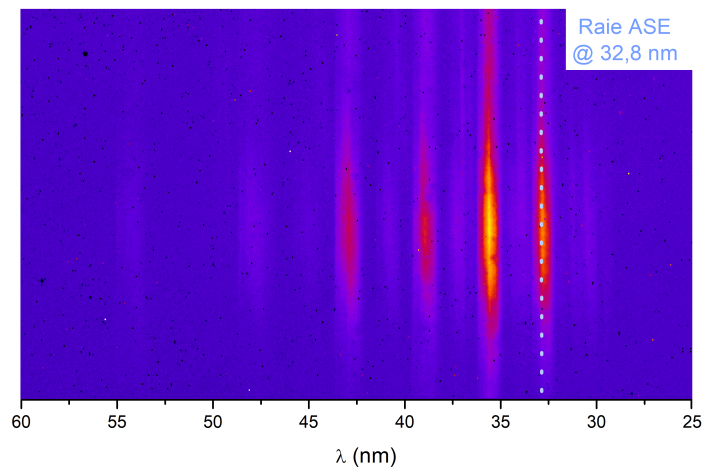


FIGURE 3.14 – Spectre harmoniques. La ligne en pointillés représente la raie d'ASE à 32,8 nm.

Couplage spatial

Les trois faisceaux infrarouges (pompe, générateur du canal plasma et générateur des harmoniques) étant alignés de sorte à ce qu'ils soient colinéaires, le couplage spatial est réalisé en les superposant dans le plan focal du faisceau pompe. La superposition est observée grâce à une CCD équipée d'un objectif de microscope $\times 20$. Le faisceau générant les harmoniques définit l'axe optique de l'expérience. Les taches focales du faisceau pompe et du faisceau créant le canal plasma sont superposées au centre du faisceau utilisé pour la génération d'harmoniques, comme on le voit sur la figure 3.15, grâce respectivement aux tilts du miroir sphérique et au centrage de l'axicon. En raison de la faible acceptation angulaire du système imageant la source harmonique, on travaille ici avec un faisceau générateur d'harmoniques fermé. La tache focale de ce dernier est bien plus étendue spatialement que les taches focales des deux autres faisceaux dans ce plan. La superposition spatiale fine est donc réalisée directement sur l'optimisation de la raie ASE en utilisant le miroir plan du système d'imagerie de la source harmonique.

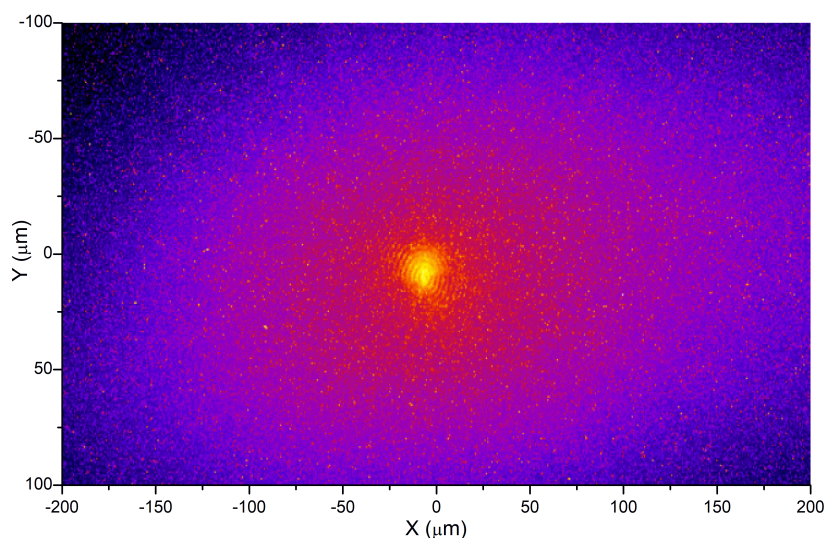


FIGURE 3.15 – Superposition spatiale de la tache focale du faisceau pompe, de la tache focale du faisceau créateur du guide d'onde, et du faisceau générateur d'harmoniques.

Couplage temporel

Un premier réglage grossier des délais séparant les différentes impulsions est obtenu grâce à une photodiode rapide reliée à un oscilloscope. La synchronisation fine entre le faisceau pompe et le faisceau infrarouge utilisé pour les harmoniques est ensuite réalisée grâce à un montage de type "trous d'Young" en plaçant un disque percé de deux trous devant le miroir sphérique. Le faisceau générateur d'harmoniques passe par un trou centré sur l'axe optique. Une partie du faisceau pompe passe par un trou excentré de quelques millimètres. Lorsqu'il y a recouvrement spatial et temporel des impulsions, il y a production d'une figure d'interférences. On utilise le même système d'imagerie (CCD + objectif de microscope) que celui employé précédemment et on superpose spatialement les deux faisceaux. On ajuste leurs intensités respectives de sorte à ce qu'elles soient comparables pour permettre un contraste optimal de la figure d'interférences. On fait alors varier le délai entre les deux impulsions à l'aide d'une ligne à retard installée sur une platine de translation motorisée jusqu'à observer ces interférences (voir figure 3.16). La synchronisation est alors effectuée avec une précision de l'ordre 30 fs.

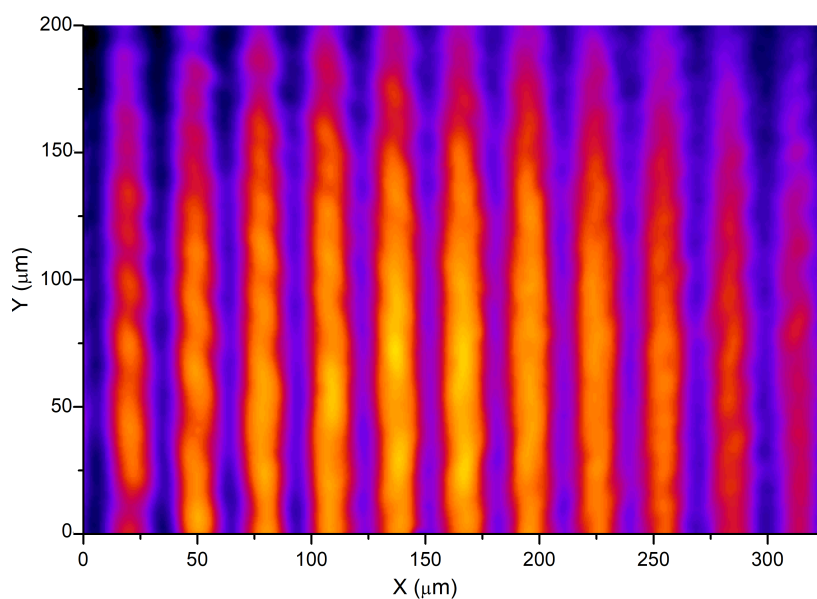


FIGURE 3.16 – Synchronisation du faisceau pompe et du faisceau infrarouge utilisé pour la génération d'harmoniques.

3.4 Diagnostics

Dans cette section, nous présentons tous les diagnostics qui seront utilisés dans les chapitres suivants pour la caractérisation du guidage et du rayonnement XUV.

3.4.1 Diagnostics du guidage

3.4.1.1 Imagerie du plasma et mesure de la densité électronique du canal

La densité électronique du plasma est un paramètre clef dans cette thèse. Elle est mesurée grâce à un interféromètre de type Mach-Zender, comme illustré sur la figure 3.17. Le faisceau sonde utilisé ici est un faisceau infrarouge (quelques mJ, 30 fs) doublé en fréquence par un cristal KDP afin de limiter la réfraction par le plasma et d'augmenter la plus haute densité ainsi mesurable ($n_c = 7 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ à 400 nm, contre $n_c = 1,7 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ à 800 nm). Il est séparé en deux bras par une séparatrice : le premier sert de référence, le second traverse le plasma. Les deux bras sont ensuite recombinaés avec l'introduction d'un léger angle qui permet d'observer des franges fines perpendiculaires à l'axe de propagation du plasma. La synchronisation des deux bras est ajustée par une ligne à retard motorisée. Une autre ligne à retard, en amont de l'interféromètre, permet de régler l'instant auquel on effectue la mesure. Le contraste des franges est optimisé en ajustant l'intensité respective des deux bras grâce à des densités optiques. La dimension transverse du plasma (environ $100 \mu\text{m}$) étant très différente de sa dimension longitudinale (plusieurs mm), le plasma peut être imagé sur deux voies de grandissements différents (environ 1 et 10).

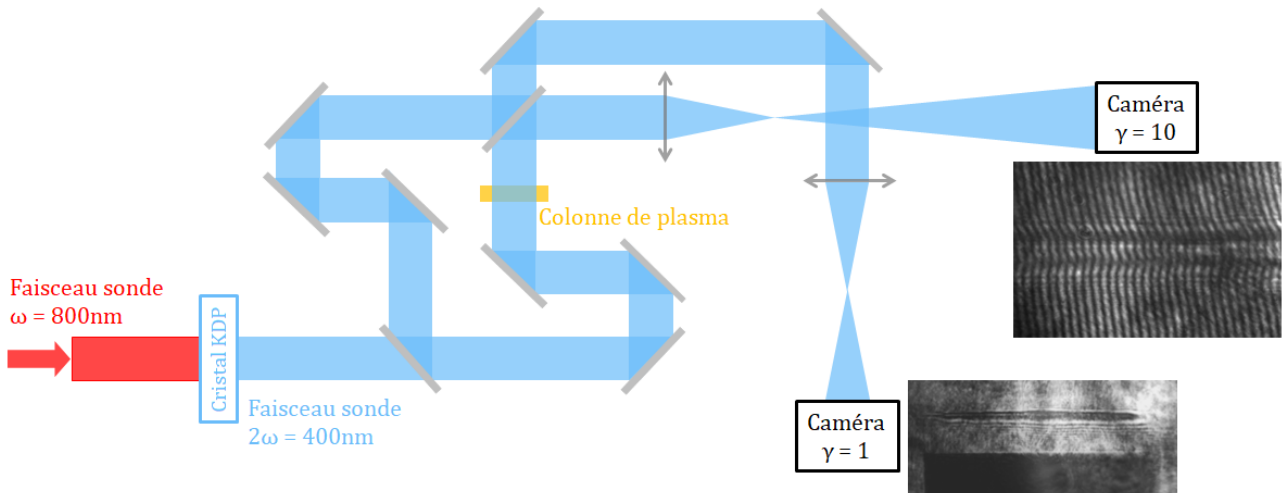


FIGURE 3.17 – Principe du diagnostic de mesure de densité : interféromètre de Mach-Zender et imagerie du plasma avec deux grandissements différents.

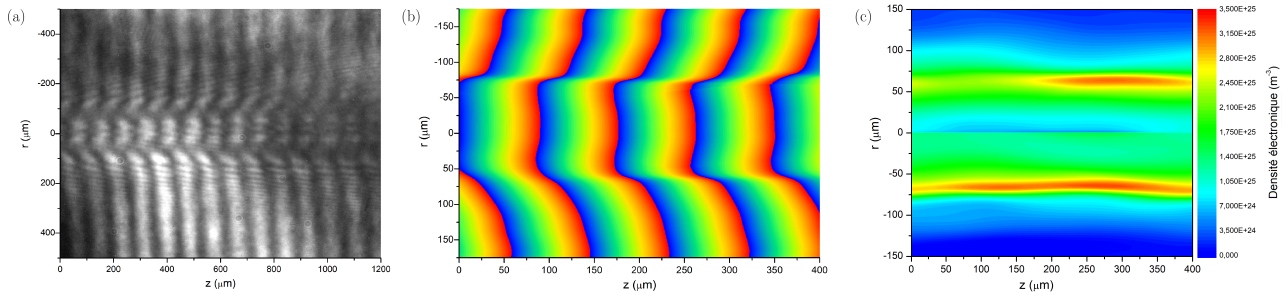


FIGURE 3.18 – (a) Interférogramme obtenu. (b) Franges reconstruites à partir de cet interférogramme. (c) Carte de densité électronique du canal.

L'interférogramme (fig. 3.18 (a)) ainsi obtenu sur la voie de plus fort grandissement permet de mesurer la densité électronique du canal grâce au logiciel *Neutrino*. Ce dernier reconstruit numériquement les franges (fig. 3.18 (b)) avant de calculer le déphasage local introduit par le plasma, puis l'indice de réfraction du plasma par inversion d'Abel. On en déduit alors directement la carte de densité 2D du canal (fig. 3.18 (c)), et la densité électronique du canal est calculée comme la valeur de densité moyennée longitudinalement sur quelques centaines

de μm , et transversalement à l'intérieur du canal. Dans la suite du manuscrit, les valeurs de densité électronique données correspondent, sauf mention contraire, à la densité électronique du plasma après propagation du faisceau pompe, estimée à 4 fois la densité électronique du canal plasma. La mesure directe de la densité électronique après propagation du faisceau pompe n'est, en effet, pas possible : *Neutrino* ne parvient pas à reconstruire correctement les franges très distordues par les hautes densités.

3.4.1.2 Mesure de l'efficacité du guidage par imagerie du faisceau pompe à haut flux

L'optimisation de l'efficacité du guidage est crucial pour obtenir un nombre conséquent de photons à 32,8 nm. En effet, comme nous l'avons expliqué dans la section 2.4, la réfraction naturelle du plasma, d'autant plus importante qu'on travaille à haute densité, résulte en une limitation de la longueur effective du milieu amplificateur et même en une réabsorption critique du rayonnement dans les zones faiblement ionisées.

La qualité et la quantité d'impulsion pompe guidée à travers le canal plasma sont évaluées à l'aide du système présenté sur la figure 3.19. Il est constitué d'une paire de wedges de réflectivité chacun 4% environ qui permet d'atténuer le faisceau infrarouge, d'un système optique composé de deux doublets, et d'une caméra CCD. Le premier wedge est percé pour permettre le passage du faisceau XUV. Le premier doublet est motorisé. Sa simple translation permet d'imager soit le plan focal du faisceau pompe en entrée du plasma, soit la sortie du plasma.

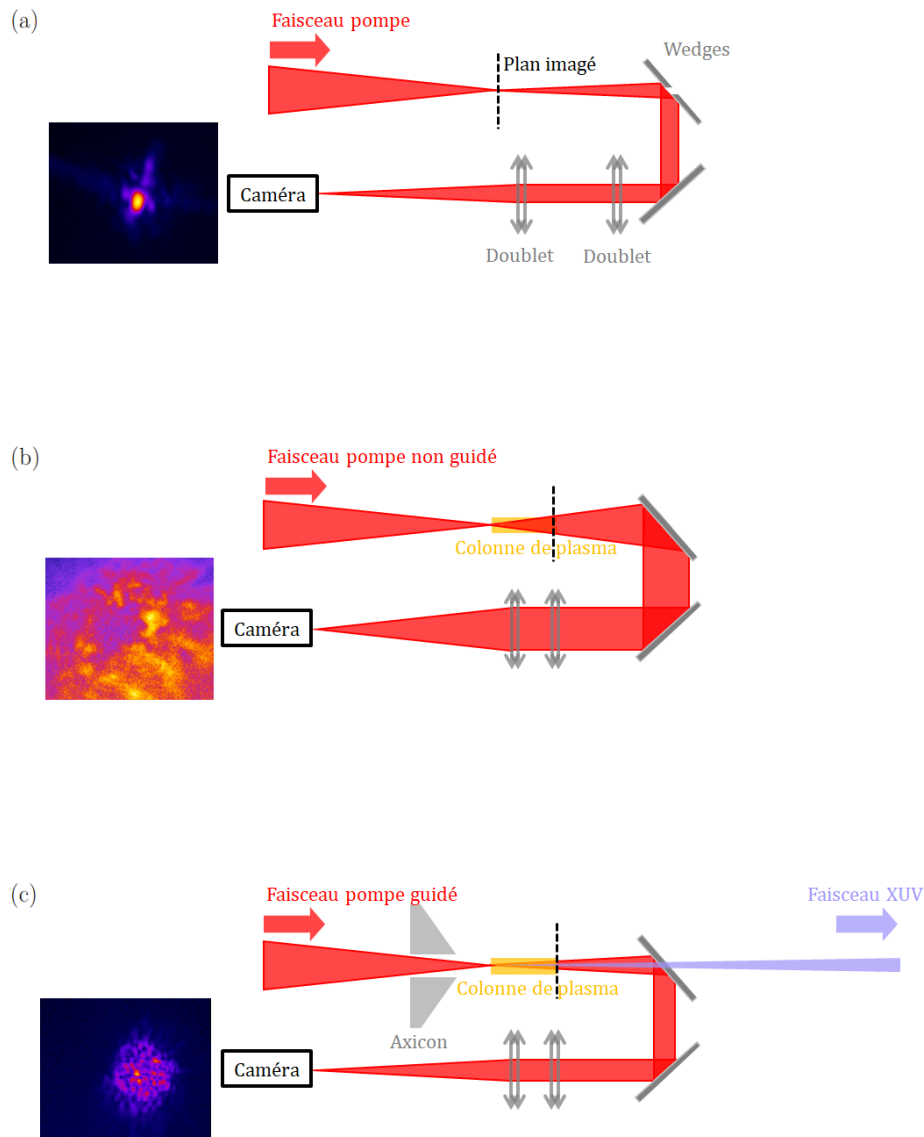


FIGURE 3.19 – Principe du diagnostic de mesure d'efficacité du guidage. (a) Imagerie de la tache focale du faisceau pompe à haut flux sans gaz. Imagerie du faisceau infrarouge transmis par le plasma (b) sans guidage, (c) avec guidage.

On mesure alors l'énergie initiale contenue dans le faisceau pompe en observant sa tache focale à haut flux et sous vide (configuration (a)). On mesure également l'énergie infrarouge en sortie du plasma et on déduit du ratio entre ces deux quantités la transmission du guide d'onde. La figure (b) représente le cas où le faisceau pompe n'est pas guidé et est fortement réfracté, contrairement à la figure (c) où le guidage permet à l'infrarouge de rester globalement collimaté. Dans le cas (c), on peut observer un profil irrégulier constitué de petites taches bien distinctes qui reflète un guidage multimode.

3.4.2 Diagnostics du rayonnement

Nous disposons d'autres diagnostics qui permettent la caractérisation du rayonnement à 32,8 nm. Les diagnostics permettant de caractériser le rayonnement XUV sont séparés de l'amplificateur par des filtres en aluminium qui permettent de couper le rayonnement infrarouge.

3.4.2.1 Spectroscopie XUV sur l'axe

Le spectromètre que nous utilisons est présenté sur la figure 3.20. Il consiste en un miroir plan en SiO_2 à $77,5^\circ$ d'incidence, un miroir sphérique de focale $f' = 400$ mm recouvert d'une fine couche d'or à 80° d'incidence, un réseau de diffraction en transmission ($5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$, 1000 traits/mm), et une caméra CCD XUV. Le spectre est observé dans le plan focal sagittal (horizontal) du miroir sphérique. La dimension verticale donne la divergence angulaire de la source. La résolution du spectromètre est estimée à $\Delta\lambda/\lambda \approx 5 \times 10^{-2}$. Notons que la raie laser ASE possède typiquement une largeur spectrale de quelques mÅ, et ne pourra donc pas être résolue par ce système. Ce diagnostic permet néanmoins de repérer la position de la raie d'ASE, et d'accorder spectralement l'harmonique 25 qu'on souhaite amplifier. Il permet aussi de quantifier l'amplification de cette harmonique.

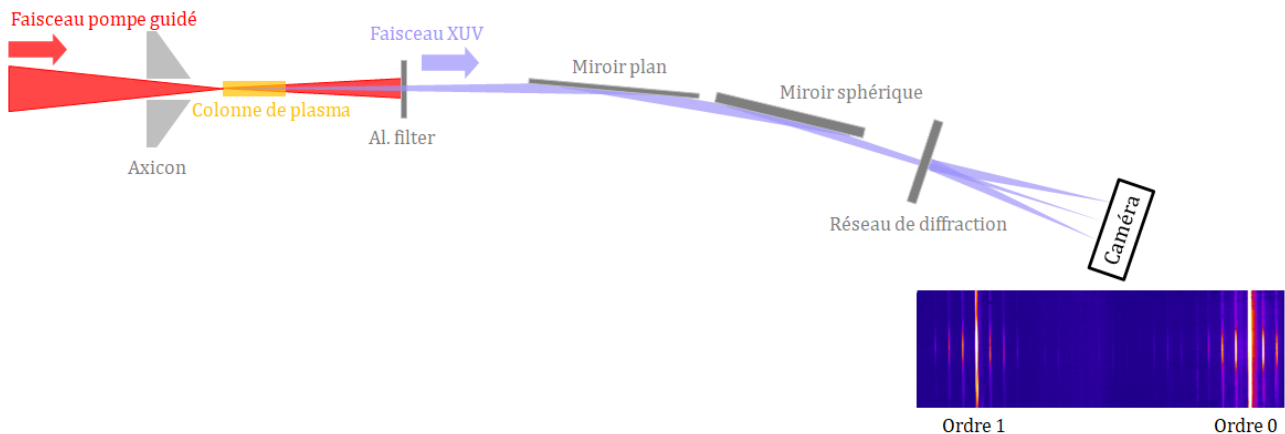


FIGURE 3.20 – Mesure du spectre du rayonnement XUV.

3.4.2.2 Distribution d'énergie en champ lointain

Différents diagnostics sont utilisés pour observer et caractériser la distribution spatiale en énergie du rayonnement XUV.

Observation directe de la distribution en énergie en champ lointain

Un premier diagnostic utilisé pour observer le profil spatial du faisceau est simplement constitué d'une caméra CCD XUV située à environ 4 m de la source et placée après un miroir de renvoi à 45° . Ce dernier est un miroir multicouches $\text{B}_4\text{C}/\text{Mo}/\text{Si}$ optimisé à 32,8 nm qui offre une réflectivité maximale de l'ordre de 20%. Ce diagnostic sert préférentiellement lorsqu'il s'agit d'observer le rayonnement en régime injecté. Néanmoins, il présente l'inconvénient de ne pas pouvoir être utilisé en parallèle d'un autre diagnostic ou d'une expérience.

Pour pouvoir contrôler tir-à-tir la distribution en énergie du faisceau simultanément à l'utilisation d'un autre diagnostic ou à la réalisation d'une expérience, nous avons utilisé un film d'aluminium de $0,15 \mu\text{m}$ d'épaisseur à $22,5^\circ$ d'incidence. La transmission et la réflectivité de ce film permettent son utilisation en temps que séparatrice. Une telle performance est rendue possible par une fine couche d'oxydation présente sur le film. On estime que l'épaisseur d'oxydation est inférieure à 15 nm [198].

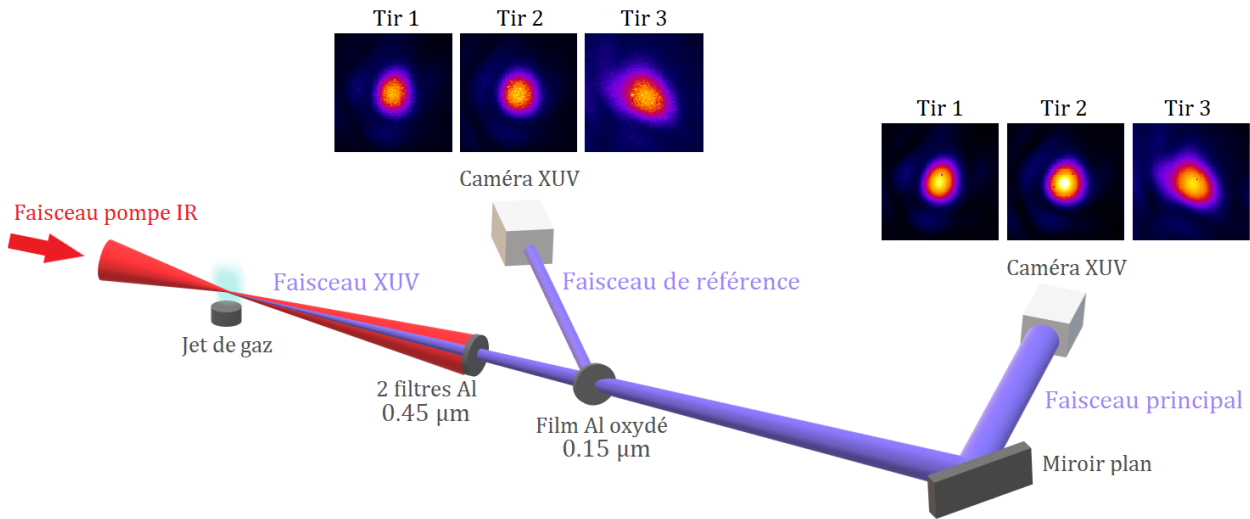


FIGURE 3.21 – Mesure de la distribution en énergie par simple renvoi sur un miroir plan à 45° (faisceau principal), ou par réflexion sur un film d'aluminium oxydé à $22,5^\circ$ d'incidence (faisceau de référence).

La caractérisation de diagnostic a été réalisée selon la figure 3.21. On appelle faisceau principal la partie du faisceau XUV transmise par le film oxydé, et faisceau de référence celle réfléchi par ce film. La figure 3.22 montre le profil spatial du faisceau XUV observé respectivement en (a) et en (b) sur la voie principale et la voie de référence. Leurs coupes respectives en vertical X et en horizontal Y sont tracées en (c) et (d). On peut constater une forte ressemblance entre les deux profils : bien que celui obtenu par réflexion sur le film oxydé soit plus granuleux que celui obtenu par transmission, l'allure générale du faisceau est préservée. Le coefficient de corrélation R^2 entre les coupes des deux profils vaut respectivement 0,97 en X et 0,98 en Y. La divergence du faisceau principal à $1/e^2$ est $1,25 \times 1,32$ mrad, celle du faisceau de référence $1,23 \times 1,27$ mrad. Le pointé du faisceau XUV est également conservé comme on le voit sur une statistique de 20 tirs sur la figure 3.23 (a). La stabilité de pointé vaut 20,2% de la divergence sur le trajet principal, et 20,8% de la divergence sur le trajet de référence.

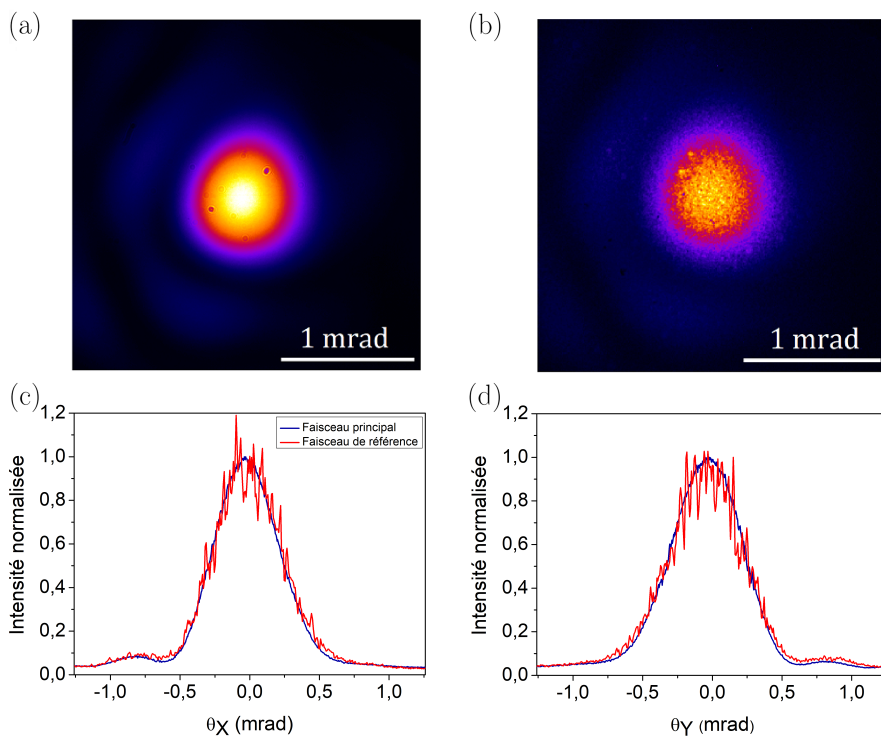


FIGURE 3.22 – Profil spatial (a) du faisceau principal, (b) du faisceau de référence et leurs coupes respectives (c) en vertical X et (d) en horizontal Y.

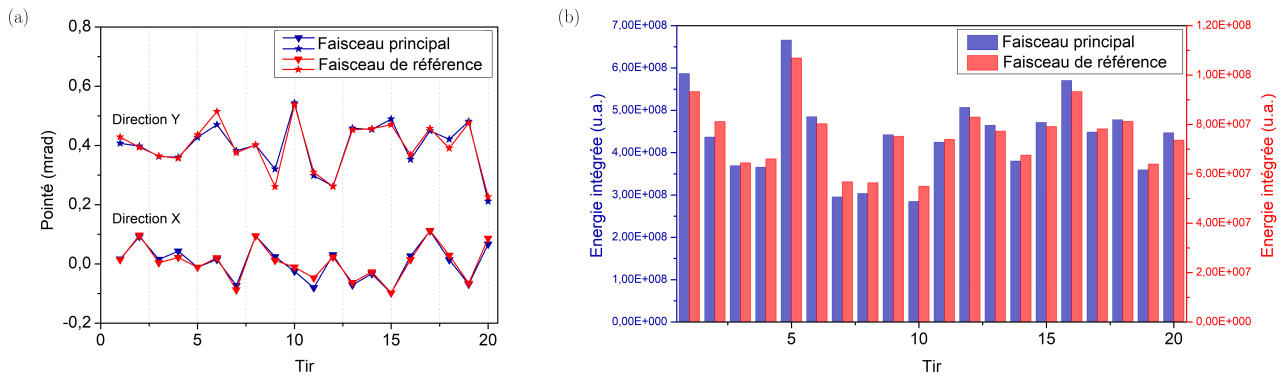


FIGURE 3.23 – (a) Pointé du faisceau dans les directions verticale X et horizontale Y. (b) Energie intégrée sur des surfaces équivalentes en bleu pour le faisceau principal et en rouge pour le faisceau de référence.

La figure 3.23 (b) illustre l'énergie intégrée en termes de nombre de coups mesurée respectivement en bleu et en rouge sur les faisceaux principal et de référence sur une surface proportionnelle à la distance entre la source et la caméra considérée. Le ratio normalisé de l'énergie intégrée sur le faisceau de référence divisée par celle intégrée sur le faisceau principal vaut 0,90 en moyenne sur 20 tirs. L'écart-type de ce ratio est 0,05. De cette mesure, on peut déduire la réflectivité du film aluminium oxydé, estimée ici à $1,8 \pm 0,6$ %. Sa transmission est, quant à elle, de l'ordre de 50%. Ces valeurs peuvent être comparées à des valeurs théoriques obtenues en généralisant l'expression des coefficients de Fresnel au cas de plusieurs interfaces par une formule de récurrence [199][200]. La figure 3.24 donne la transmission et la réflectivité théoriques d'un film d'aluminium d'épaisseur 0,15 μm en fonction de l'angle d'incidence du faisceau dans le cas où ce film est non oxydé (a), et dans le cas où il présente une fine couche d'oxydation (b). Sans oxydation, la transmission à 32,8 nm est de l'ordre de 70% à 22,5° d'incidence, et la réflectivité est inférieure à 0,1%, insuffisante pour l'utilisation du film d'aluminium en temps que séparatrice. En considérant une fine couche d'oxydation, la transmission passe à 50% et la réflectivité est améliorée jusqu'à 2,3% en accord avec nos mesures. La séparation 50/50 du faisceau à 32,8 nm est obtenue, dans le cas d'un film oxydé, pour un angle d'incidence de 52,5°. La réflectivité et la transmission valent alors 12%, contre seulement 5% à 61,5° sans oxydation. De manière générale, la couche d'oxydation améliore la réflectivité du film sur une large gamme spectrale. Il est à noter que ces valeurs sont données pour une polarisation S, qui correspond à l'état de polarisation de notre source en régime injecté.

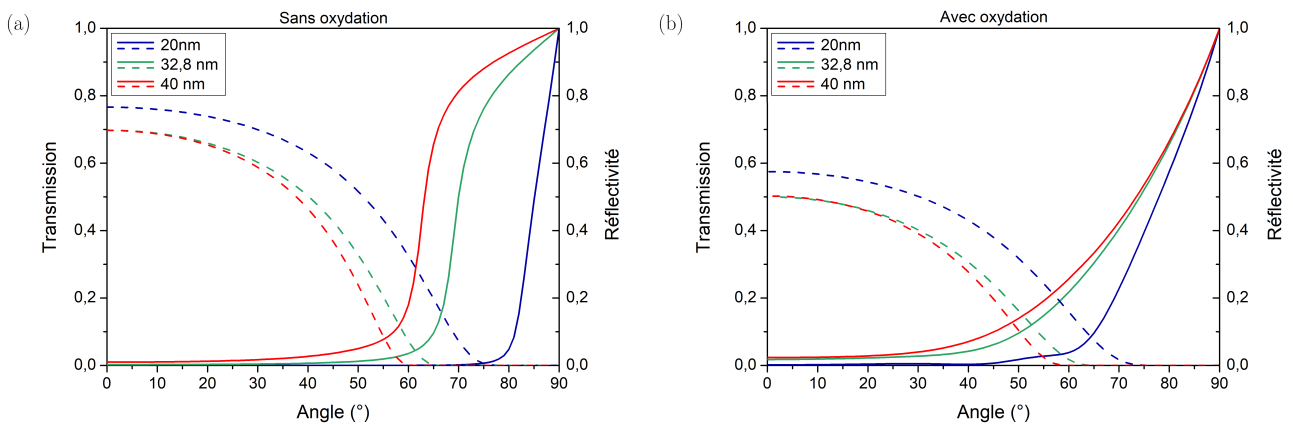


FIGURE 3.24 – Transmission en pointillés et réflectivité en traits pleins d'un film d'aluminium de 0,15 μm d'épaisseur (a) non oxydé, (b) oxydé en fonction de l'angle d'incidence défini par rapport à la normale. On considère une polarisation S.

Ces résultats ont fait l'objet d'une publication [201] : l'utilisation de ce film d'aluminium oxydé peut en effet s'avérer très utile pour un contrôle tir-à-tir de la distribution en énergie d'une source dans la gamme spectrale des XUV en parallèle d'un autre diagnostic ou d'une expérience. On peut également envisager son utilisation en temps que séparatrice dans une large gamme spectrale pour tout type d'expérience requérant une division et une recombinaison du faisceau, notamment en interférométrie [202][203].

Champ lointain de la source observé par une parabole hors axe

Un autre diagnostic utilisé pour observer le profil spatial du faisceau est représenté sur la figure 3.25 et est composé d'une parabole hors axe de focale $f' = 200$ mm à 25° d'incidence, d'un miroir plan à 80° d'incidence, et d'une caméra CCD XUV. La parabole est recouverte d'un revêtement multicouches interférentiel qui lui permet d'atteindre une réflectivité de l'ordre de 20% à 32,8 nm. La réflectivité du miroir plan en incidence rasante est de l'ordre de 10%. Ce système image un plan situé à 1,4 m de la source avec un grandissement de 0,6. Ce diagnostic est donc idéal pour observer l'émission ASE qui est très divergente.

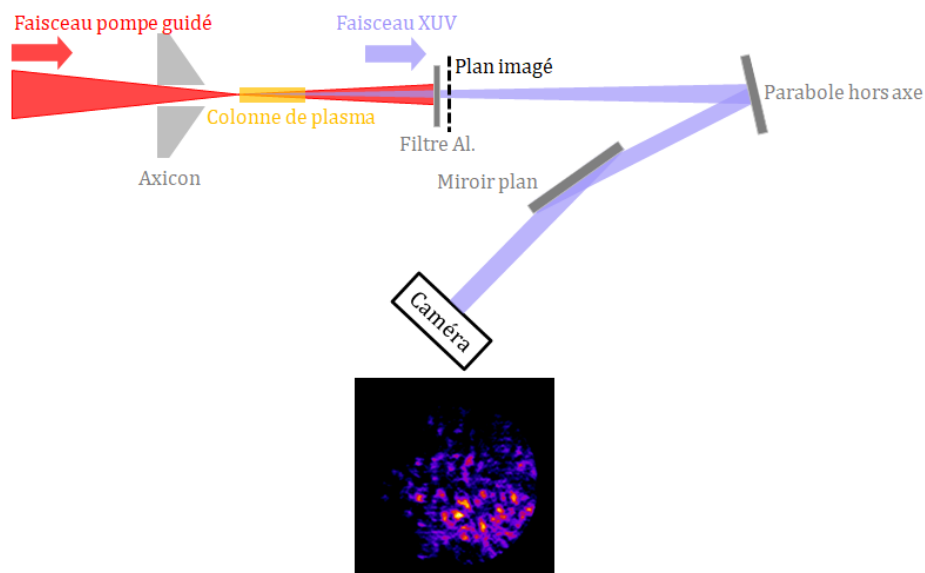


FIGURE 3.25 – Mesure de la distribution en énergie par imagerie de la source grâce à une parabole hors axe.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté la chaîne laser infrarouge et le dispositif expérimental utilisés pour la réalisation et la caractérisation d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques.

La focalisation du faisceau infrarouge permettant la création du canal plasma sur toute la longueur du jet de gaz est assurée par un axicon. Après quelques nanosecondes, un creux de densité électronique sur l'axe permet au faisceau pompe, focalisé par un miroir sphérique, de se propager. Le milieu amplificateur, constitué d'ions Kr^{8+} , est ainsi créé et induit un rayonnement à 32,8 nm en régime ASE par les processus décrits dans le chapitre 2. Un troisième faisceau infrarouge est ensuite focalisé dans une cellule d'argon et génère des harmoniques. L'une d'elle est calée spectralement sur la raie ASE, puis elle est injectée dans le plasma amplificateur pendant le temps de vie du gain permettant ainsi l'exploitation des qualités énergétiques de l'amplificateur et améliorant les propriétés spatiales du rayonnement.

Dans le chapitre suivant, nous caractériserons le guidage et le rayonnement à 32,8 nm, en régime ASE et injecté, grâce aux différents diagnostics présentés ici.

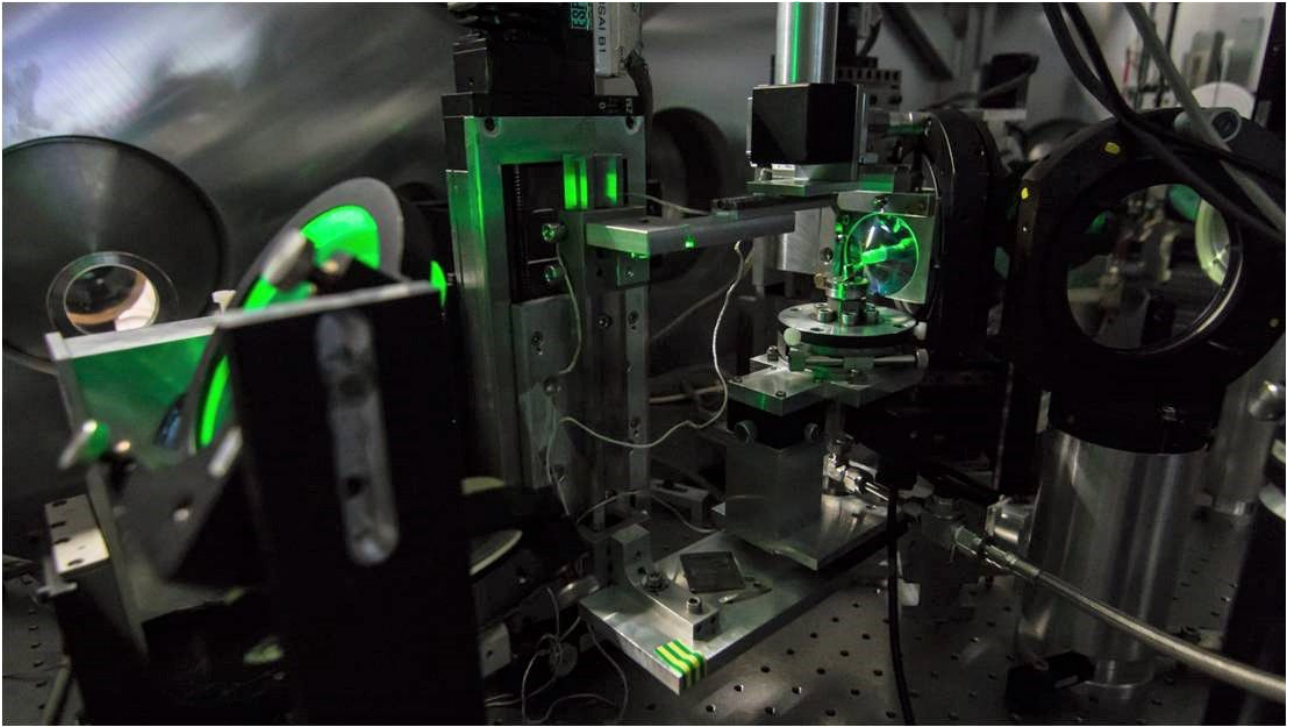


FIGURE 3.26 – Photo de l'enceinte principale de l'expérience où le plasma amplificateur est créé.

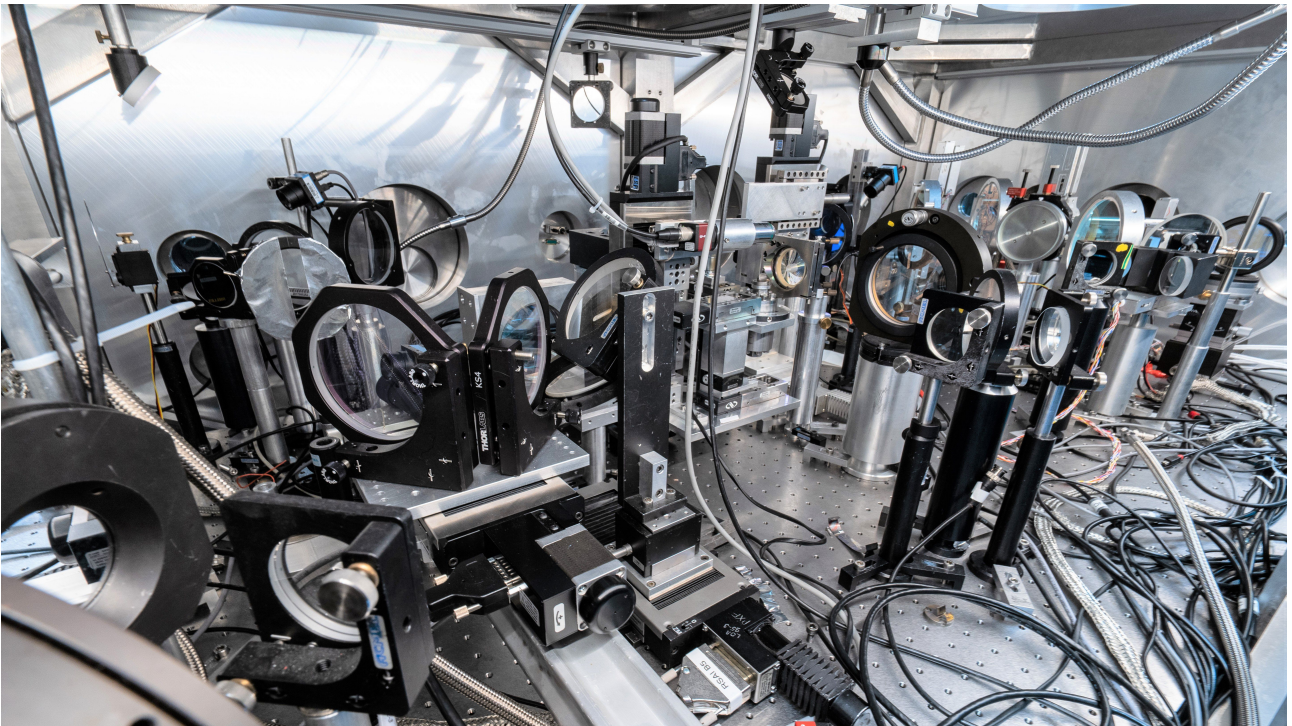


FIGURE 3.27 – Photo de l'enceinte principale de l'expérience où le plasma amplificateur est créé.

Chapitre 4

Caractérisation d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques

Dans ce chapitre, nous caractériserons notre source à l'aide des diagnostics introduits précédemment. En un premier temps, on s'intéressera à la caractérisation simple du rayonnement en étudiant le spectre, le profil spatial et l'énergie du rayonnement XUV ainsi que la stabilité de la source. Les performances d'un laser XUV collisionnel injecté dépendent, de façon complexe, de très nombreux paramètres. Nous étudierons dans un deuxième temps les paramètres principaux indispensables à l'optimisation de la source. Enfin, nous nous livrerons à une caractérisation détaillée du guidage et de son impact sur l'émission à 32,8 nm.

Sommaire

4.1	Caractérisation simple du rayonnement	92
4.1.1	Spectres et facteur d'amplification	92
4.1.2	Distribution en énergie	93
4.1.3	Stabilité de la source	94
4.2	Paramètres essentiels à l'optimisation de la source	95
4.2.1	Influence du faisceau pompe	95
4.2.2	Influence du délai d'injection de l'harmonique dans l'amplificateur	99
4.2.3	Influence de la longueur de jet	101
4.2.4	Influence de la densité électronique	103
4.3	Caractérisation du guidage	104
4.3.1	Guide créé par une impulsion longue unique	105
4.3.2	Guide créé par une double impulsion : "ignitor + heater"	107
4.4	Conclusion	116

4.1 Caractérisation simple du rayonnement

4.1.1 Spectres et facteur d'amplification

La figure 4.1 montre les spectres des rayonnements (a) en régime ASE, (b) harmoniques, (c) en régime injecté acquis grâce au diagnostic présenté en 3.4.2.1. Les spectres en régime ASE et en régime injecté ont été obtenus avec 2 filtres en aluminium, permettant de bloquer le rayonnement infrarouge, d'épaisseur 0,15 μm et de transmission environ 50% chacun à 32,8 nm. Le spectre des harmoniques a, quant à lui, été obtenu avec un unique filtre de 0,15 μm et une accumulation sur 5 tirs.

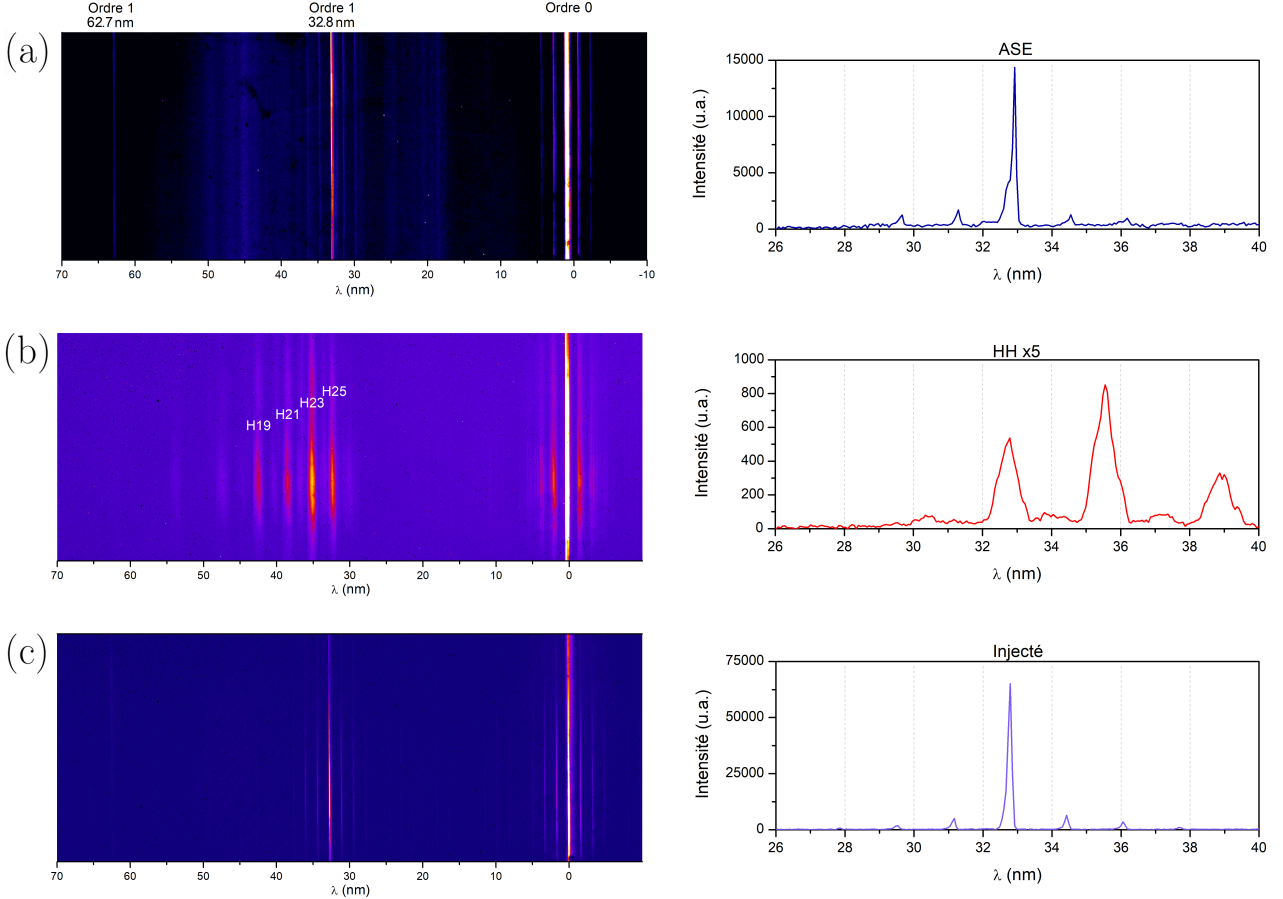


FIGURE 4.1 – Spectre (a) du rayonnement en régime ASE, (b) des harmoniques, (c) du rayonnement en régime injecté. La densité électronique est ici $n_e = 4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

On observe sur le spectre en régime ASE en (a) une raie à 32,8 nm et une raie faible à 62,7 nm : cela correspond à un effet laser en cascade entre les transitions 4d-4p et 4p-4s décrit en section 1.3.2.3 et détaillé dans [103]. On peut noter la présence d'une coupure nette à 17 nm, qui correspond au bord de la bande passante du filtre d'aluminium. En (b), on constate l'émission des harmoniques H19 à H25. L'harmonique 25 est calée spectralement sur la raie ASE à 32,8 nm. Sur le spectre (c), on remarque une très forte amplification de cette harmonique. On peut noter la présence de pics secondaires autour de l'ordre 0 et de l'ordre 1 qui sont dus à la diffraction sur la grille qui supporte le réseau du spectromètre.

L'énergie en régime injecté est très variable d'un jour à l'autre puisqu'elle dépend de l'énergie en régime ASE, de l'intensité de l'harmonique considérée, et des conditions de couplages spatial, spectral et temporel. On définit alors le facteur d'amplification A par :

$$A = \frac{E_{inj} - E_{ASE} - E_{HH}}{E_{HH}} \quad (4.1)$$

où E_{ASE} , E_{inj} et E_{HH} sont respectivement les énergies de la raie à 32,8 nm en régime ASE, en régime injecté, et l'énergie de l'harmonique 25. Ces énergies sont mesurées par intégration sur une extension spatiale (verticale) donnée par l'ouverture de l'harmonique amplifiée (de l'ordre du mrad) bien inférieure à celle de l'ASE (de l'ordre de la dizaine de mrad), et sur une largeur spectrale qui correspond à la largeur à $1/e^2$ de la raie laser. A cause

de la faible résolution de notre spectromètre, cette zone de quelques pixels correspond à environ 0,15 nm. Le facteur d'amplification est ici de l'ordre de 600, mais dépend de très nombreux paramètres et varie en général entre 100 et 1000.

4.1.2 Distribution en énergie

La figure 4.2 montre respectivement les distributions en énergie en régime ASE et en régime injecté observées grâce au diagnostic composé d'une parabole hors axe qui image un plan situé à 1,4 m de la source (voir 3.4.2.2).

En régime ASE, on observe une émission fortement divergente, de l'ordre de 10 mrad, ici tellement divergente qu'elle est coupée par l'ouverture des filtres en aluminium. Cette émission est également très inhomogène et marquée par la présence de surintensités semblables à des grains de speckle. Le phénomène traditionnel de speckle se produit lorsqu'un faisceau spatialement cohérent est diffusé par une surface rugueuse. Dans notre cas, les surintensités que nous observons ne sont pas à proprement parler du speckle puisque l'émission ASE a une cohérence spatiale faible [104]. Ces surintensités proviennent de la nature stochastique de l'émission spontanée : la source se comporte comme un ensemble de sources micrométriques mutuellement temporellement cohérentes mais faiblement spatialement cohérentes [204]. Il est à noter que ce phénomène se produit pour des durées d'impulsions typiquement inférieures à quelques picosecondes, et a tendance à disparaître par effet de moyennage lorsque la durée d'impulsion augmente. Ces effets ne sont de fait pas observés sur les lasers XUV quasi-stationnaires dont la durée est de l'ordre de 100 ps (voir 1.3.2.1).

En revanche, en régime injecté, l'énergie est majoritairement concentrée dans une tache principale de divergence de l'ordre de 1,5 mrad qui correspond à l'harmonique amplifiée, autour de laquelle il subsiste quelques "speckles" d'ASE. Ainsi, l'injection par harmoniques à la même longueur d'onde que l'émission ASE permet l'amélioration nette des propriétés spatiales de la source avec l'obtention d'un faisceau quasiment gaussien en limite de diffraction. Des études théoriques montrent que cette grande qualité de faisceau est due au filtrage spatial des harmoniques par l'amplificateur [7]. La source en régime injectée conserve également les qualités de cohérence et de divergence du faisceau harmonique. La cohérence spatiale de la source est ainsi nettement améliorée par rapport au régime ASE (voir 1.3.3.2). La divergence du faisceau passe de plus de 10 mrad à seulement environ 1,5 mrad.

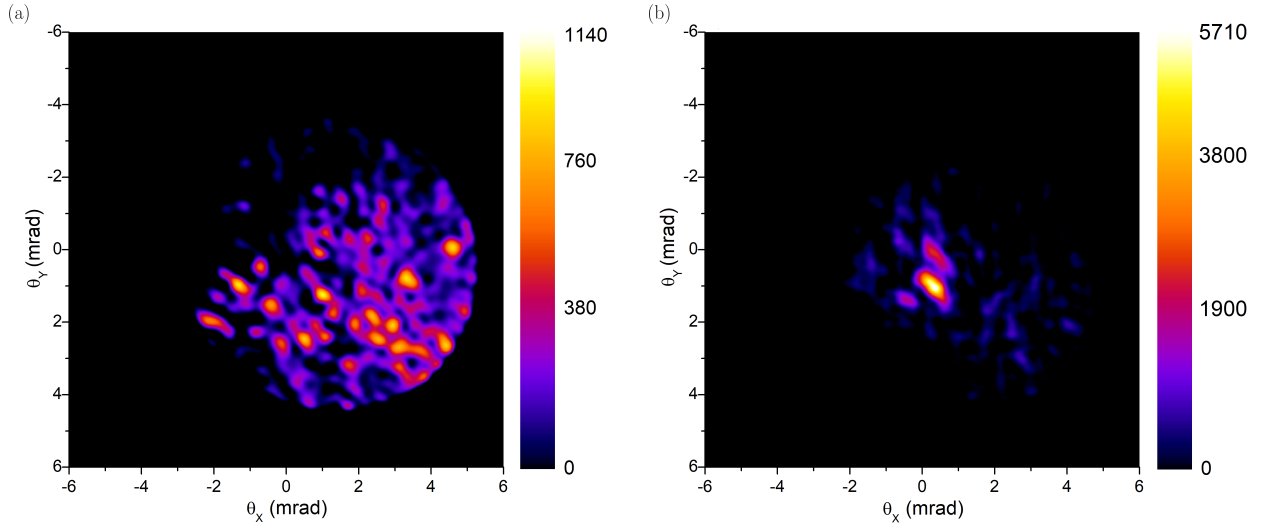


FIGURE 4.2 – Distributions d'énergie (a) en régime ASE, (b) en régime injecté observées en champ lointain avec la parabole hors axe. La densité électronique est ici $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

L'énergie du faisceau XUV peut être estimée à partir du nombre de coups N_c mesurés sur une distribution d'énergie par la formule :

$$E = N_{ph} E_{ph} = \frac{3,65gN_c}{\eta RT} \quad (4.2)$$

avec N_{ph} le nombre de photons à 32,8 nm, $E_{ph} = 37,8 \text{ eV}$ l'énergie d'un photon à cette longueur d'onde, g le gain de la caméra utilisée, η l'efficacité quantique de la caméra CCD XUV de l'ordre de 70%, R et T respectivement la réflectivité des optiques et la transmission des filtres en aluminium utilisés. Le facteur 3,65 représente l'énergie incidente en eV nécessaire à la création d'une paire électron-trou. Dans le cas de l'émission ASE observée sur

la figure 4.2 (a), on mesure 4×10^{13} photons soit une énergie de $7 \mu\text{J}$ environ. Dans l'harmonique amplifiée de la figure (b), on mesure 2×10^{11} photons soit une énergie de $1,2 \mu\text{J}$. En régime injecté, une grande quantité d'énergie est ainsi perdue en ASE résiduelle autour de l'harmonique amplifiée, comme on peut le voir sur la figure 4.2 (b). Nous reviendrons sur ce point dans la section 4.2.2.2.

La figure 4.3 montre les distributions d'énergie du faisceau harmonique et du rayonnement en régime injecté observées à 4 m de la source. Le profil spatial des harmoniques a été obtenu en accumulant 60 tirs. La divergence du faisceau harmonique est ici de l'ordre de $1,4 \text{ mrad}$ (diamètre à $1/e^2$). Celle de l'harmonique amplifiée est de l'ordre de $1,6 \text{ mrad}$. L'allure gaussienne du faisceau harmonique est également préservée lors de l'amplification.

Sur le profil du faisceau harmonique en (a), on mesure une énergie de 63 nJ accumulée sur 60 tirs. L'énergie comprise dans tous les ordres harmoniques en un tir unique est donc de l'ordre de 1 nJ , et l'énergie contenue dans l'harmonique 25 de l'ordre de 250 pJ . L'énergie de l'harmonique amplifiée sur la figure (b) est $1,2 \mu\text{J}$ soit environ 5000 fois plus qu'avant amplification. Soulignons que le facteur donné ici correspond au ratio entre l'énergie contenue dans l'harmonique amplifiée et celle contenue dans l'harmonique injectée. Ce facteur est donc différent du facteur d'amplification défini en (4.1), qui prend également en compte l'énergie ASE.

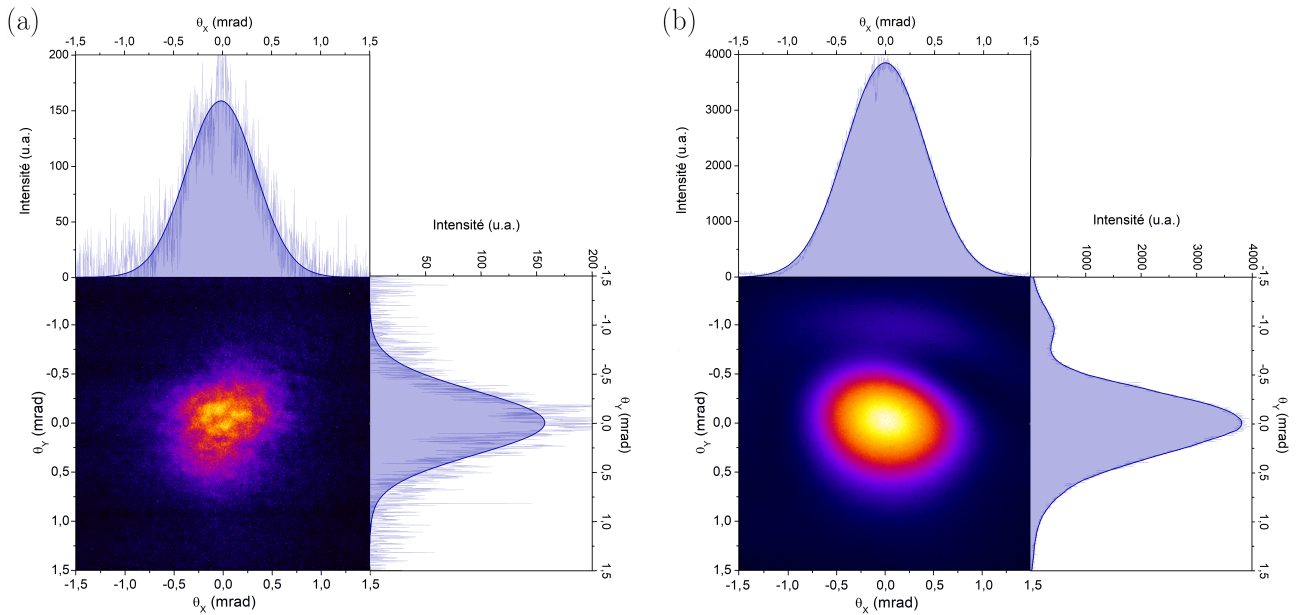


FIGURE 4.3 – Distributions d'énergie (a) du faisceau harmonique, (b) du rayonnement en régime injecté observées en direct en champ lointain.

4.1.3 Stabilité de la source

La figure 4.4 représente la distribution d'énergie du faisceau à $32,8 \text{ nm}$ observée sur 20 tirs consécutifs. La stabilité tir-à-tir du laser XUV dépend de nombreux paramètres dont notamment la stabilité tir-à-tir de la chaîne infrarouge. En effet, l'instabilité en énergie du laser infrarouge, estimée plus tôt à environ 2% de l'énergie moyenne, peut entraîner de larges variations sur l'intensité des harmoniques, ainsi que modifier les qualités amplificatrices du plasma. Un autre facteur d'instabilité est lié aux variations de pointé de la chaîne laser infrarouge qui peuvent influencer le couplage spatial entre les harmoniques et le plasma amplificateur.

La figure 4.5 illustre respectivement le pointé du laser à $32,8 \text{ nm}$ sur ces 20 tirs consécutifs, et les fluctuations en énergie. Le faisceau XUV a en moyenne une divergence de $1,2 \text{ mrad}$. L'écart-type sur le pointé et sur la divergence sur ces 20 tirs valent $0,07 \text{ mrad}$ et $0,15 \text{ mrad}$, soit respectivement 6% et 13% de la divergence. L'écart-type en énergie vaut ici 6% de l'énergie moyenne du faisceau XUV.

Soulignons que la stabilité de la source à $32,8 \text{ nm}$ est plutôt satisfaisante compte tenu de la complexité de l'expérience qui utilise de multiples faisceaux infrarouges. Ces derniers doivent être synchronisés avec une précision de l'ordre de la dizaine de femtosecondes, et superposés spatialement avec une précision de l'ordre de la dizaine de microns.

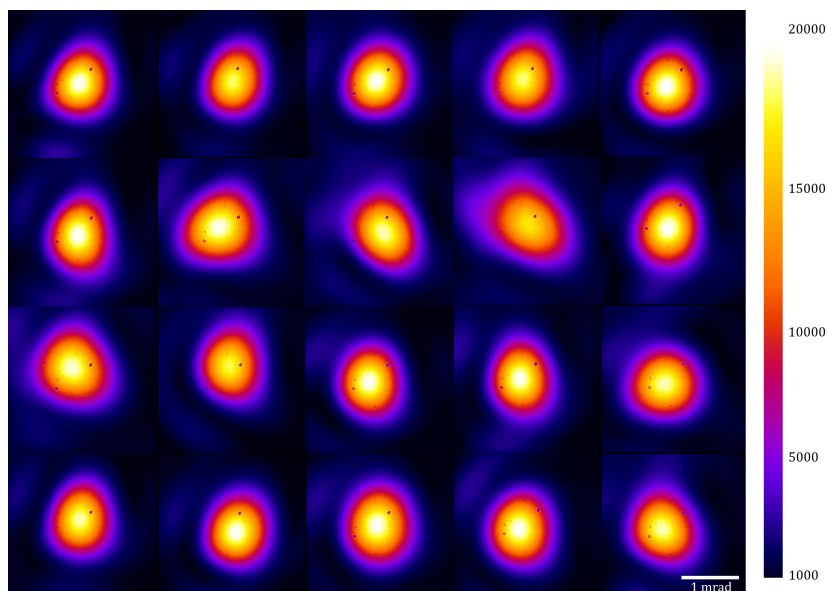


FIGURE 4.4 – Distribution d'énergie du faisceau XUV sur 20 tirs consécutifs.

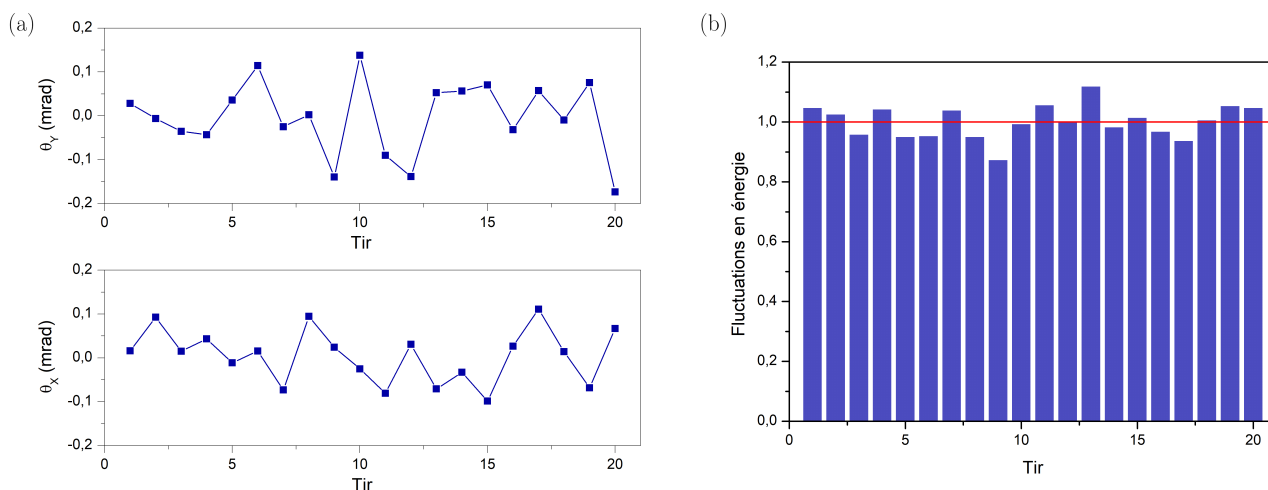


FIGURE 4.5 – (a) Stabilité de pointé, (b) stabilité en énergie du laser XUV en régime injecté.

4.2 Paramètres essentiels à l'optimisation de la source

Dans cette section, nous étudierons l'influence de différents paramètres sur les propriétés de la source. En particulier, nous nous attarderons sur l'effet de la longueur d'amplification, de la densité électronique du plasma amplificateur, du délai d'injection harmoniques et des caractéristiques du faisceau pompe. Cette liste est non exhaustive : de nombreux autres paramètres impactent les performances du laser XUV injecté mais ne seront pas étudiés ici. On peut par exemple citer l'énergie des harmoniques injectées, dont l'influence a été analysée dans [9], ou encore les conditions de couplage (spatiales et spectrales entre le faisceau pompe et les harmoniques, spatiales entre le faisceau pompe et le canal plasma) partiellement étudiées dans [104] et pour lesquelles une analyse détaillée serait nécessaire.

4.2.1 Influence du faisceau pompe

4.2.1.1 Énergie du faisceau pompe

La figure 4.6 représente l'évolution de l'énergie du laser XUV en fonction de l'énergie du faisceau pompe. L'énergie du faisceau pompe est ajustée en tournant la lame $\lambda/2$ du système d'atténuation, et mesurée en imageant le faisceau pompe à haut flux à l'aide du diagnostic présenté sur la figure 3.19 (a). L'intensité dans le vide du faisceau pompe correspondante est calculée en considérant une durée d'impulsion de 30 fs et une tache focale de rayon 18 μm (cf 3.3.1.1).

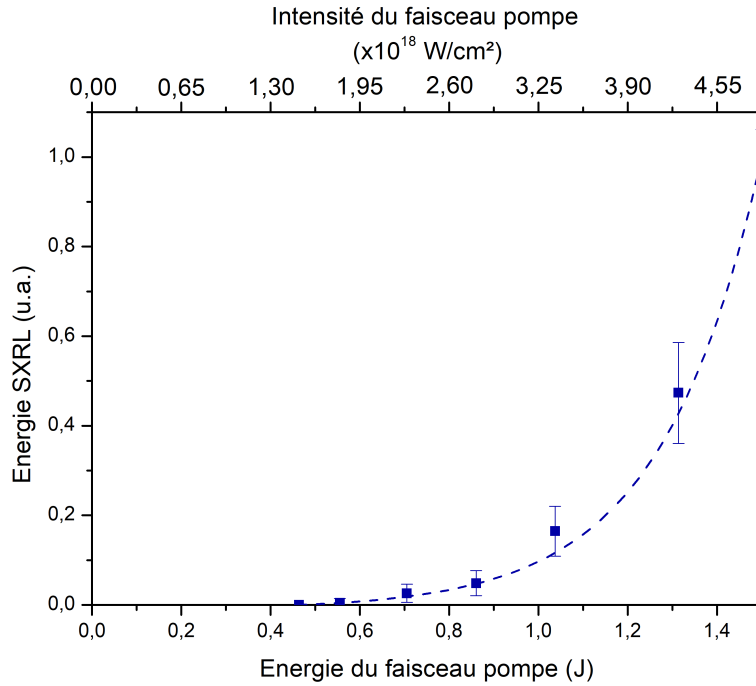


FIGURE 4.6 – Energie du laser XUV en fonction de l'énergie du faisceau pompe.

L'augmentation de l'énergie du faisceau pompe induit un élargissement de la zone de gain et un plus grand nombre d'ions lasants, ce qui se traduit par une augmentation non linéaire de l'énergie du faisceau XUV [4][104]. Un seuil de $1,3 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ est requis pour la génération d'un rayonnement à 32,8 nm. Rappelons que l'intensité seuil de suppression de la barrière de potentiel pour le Kr^{8+} est $3,1 \times 10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Une grande partie de l'énergie pompe est donc perdue. Différentes raisons peuvent expliquer cela, comme la réfraction, le couplage spatial entre le faisceau pompe et le guide d'onde ou encore le guidage multimode (voir 3.4.1.2) qui fait probablement chuter l'intensité réelle dans le guide d'onde.

4.2.1.2 Polarisation du faisceau pompe

Comme nous l'avons expliqué dans la section 2.2.2.1, le pompage efficace de la transition laser requiert des électrons suffisamment chauds ($> 145 \text{ eV}$ dans notre cas). Il a été démontré qu'à basse densité, le chauffage des électrons est principalement assuré par le champ laser lui-même [162]. L'énergie cinétique acquise par les électrons dépend alors de la polarisation du champ. Nous avons vu par des calculs théoriques et des simulations issues de OFIKinRad que la polarisation circulaire du faisceau pompe est indispensable pour atteindre l'énergie électronique requise pour des densités électroniques de l'ordre de quelques 10^{18} cm^{-3} . Nous proposons de vérifier ici ce résultat expérimentalement, et d'étudier ce qu'il se passe à plus haute densité.

Nous installons pour cela une lame $\lambda/4$ sur le trajet du faisceau pompe. La figure 4.7 (a) représente l'énergie XUV en fonction de l'angle de cette lame. L'angle 0° correspond à une polarisation linéaire du faisceau pompe, l'angle -45° à une polarisation circulaire. On s'intéresse pour le moment à la mesure représentée en rouge, effectuée pour une densité électronique $n_e = 3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. On constate très nettement l'effet décrit précédemment à savoir une extinction du signal XUV sous l'effet d'une polarisation linéaire puisque le chauffage des électrons n'est pas suffisant pour permettre le pompage de la transition laser. On définit le facteur d'extinction comme étant le ratio entre l'énergie XUV en polarisation circulaire divisée par l'énergie XUV en polarisation linéaire. On mesure ici un facteur d'extinction de 14.

On étudie l'évolution de ce facteur d'extinction en fonction de la densité électronique du plasma. Cette dernière est mesurée in-situ à l'aide de l'interféromètre de Mach-Zender présenté en section 3.4.1.1, et est ajustée en faisant varier deux paramètres : le délai entre l'impulsion pompe et la séquence "ignitor + heater", et la hauteur de la cible. On fait ainsi varier la densité électronique entre $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et $5,2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. L'énergie XUV en fonction de la polarisation du faisceau pompe à la plus haute densité étudiée est tracée en bleu sur la figure 4.7 (a). On remarque cette fois-ci que l'énergie XUV est quasiment indépendante de la polarisation du faisceau pompe, avec un facteur 2 seulement entre une polarisation linéaire et une polarisation circulaire.

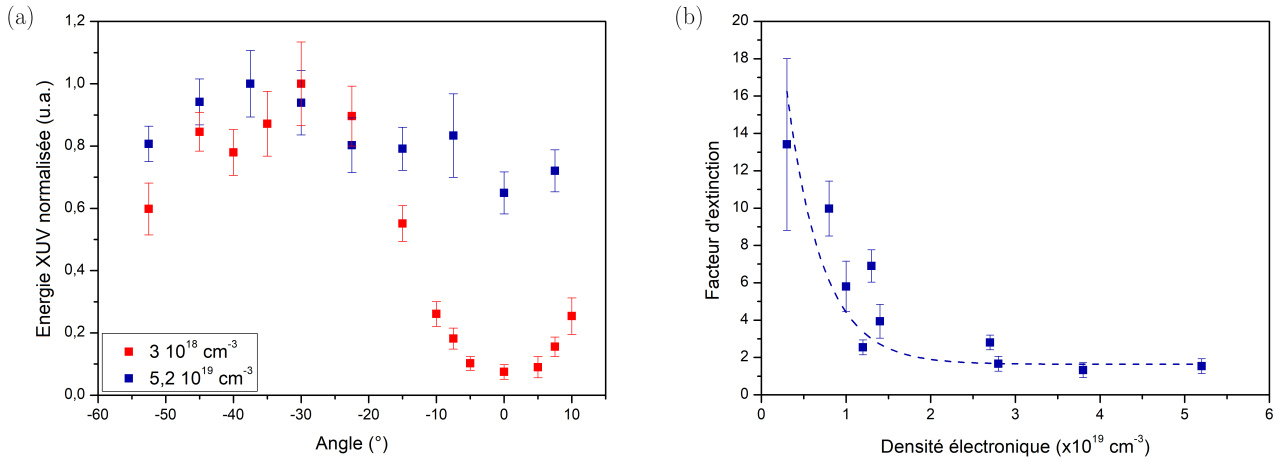


FIGURE 4.7 – (a) Energie XUV en fonction de l’angle de la $\lambda/4$ du faisceau pompe pour les deux densités extrêmes étudiées ici. La polarisation linéaire est obtenue à 0° , et la polarisation circulaire à -45° . (b) Facteur d’extinction en fonction de la densité électronique. Le trait en pointillés est un guide pour l’œil.

La figure 4.7 (b) représente la mesure du facteur d’extinction pour différentes densités électroniques entre $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et $5,2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Lorsque la densité électronique est inférieure à environ $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, le chauffage dépend de la polarisation et est donc en partie assuré par le champ laser. Plus la densité électronique augmente, plus le facteur d’extinction diminue. Lorsque la densité électronique est supérieure à $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, le chauffage est quasiment indépendant de la polarisation. Le processus dominant n’est alors plus le chauffage par OFI.

Nous comparons ces résultats à des simulations réalisées par le code FBPIC [205]. Ce code est de type Particle-In-Cell et modélise la cinétique du plasma en présence d’un champ électromagnétique intense. Le champ est calculé aux nœuds d’une grille spatiale. Le plasma est représenté comme un ensemble de macro-particules, qui interagissent chacune avec les quelques nœuds dans leur entourage. Les équations de Maxwell sont résolues dans le domaine spectral en considérant une géométrie quasi-cylindrique. On simule ici l’interaction entre une impulsion d’intensité $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ proche de l’intensité requise pour générer les ions lasants et une tranche de plasma de $80 \mu\text{m}$ de long initialement ionisée à $Z = 3$.

Ces simulations modélisent le chauffage du plasma en prenant en compte deux mécanismes distincts : le chauffage par OFI indépendant de la densité électronique mais dépendant de la polarisation comme nous l’avons vu en 2.2.2.1, et le chauffage par diffusion Raman stimulée, décrit dans la même section. Rappelons que le chauffage par Bremsstrahlung inverse et l’amortissement Landau ne peuvent pas intervenir ici en raison respectivement de la durée d’impulsion trop courte du champ laser et des électrons non relativistes.

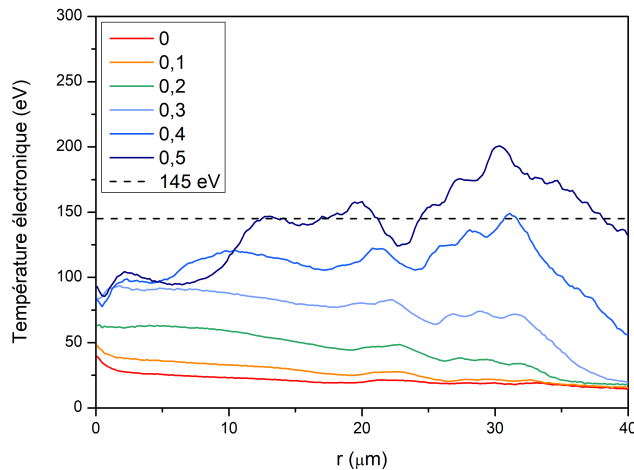


FIGURE 4.8 – Température électronique radiale calculée par FBPIC pour une densité électronique de $1,2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, et différentes ellipticités de la polarisation, 0 étant une linéaire et 0,5 une circulaire. La température requise de 145 eV est tracée en pointillés.

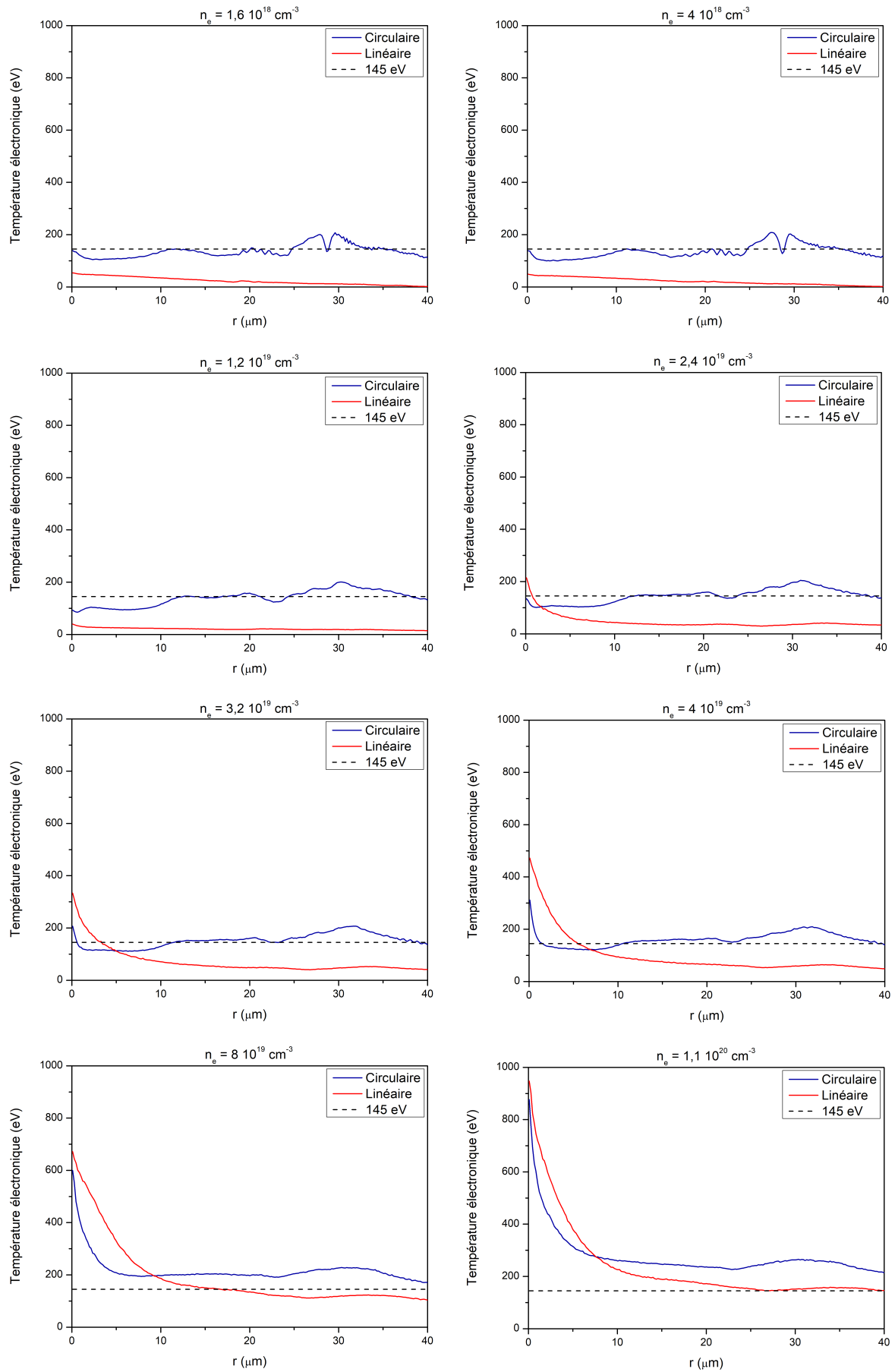


FIGURE 4.9 – Température électronique radiale calculée par FBPIC pour une polarisation linéaire du faisceau pompe en rouge ou circulaire en bleu, et pour différentes densités électroniques comprises entre $1,6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et $1,1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. La température de 145 eV requise pour le pompage du niveau supérieur de la transition 4d-4p est tracée en pointillés.

La figure 4.8 représente la température électronique radiale du plasma calculée par les simulations FBPIC pour une densité électronique relativement basse de $1,2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et différentes ellipticités de l'impulsion pompe. Plus la polarisation se rapproche d'une circulaire (ellipticité de 0,5), plus la température électronique augmente. On retrouve le résultat établi en 2.2.2.1 : le phénomène dominant est le chauffage par OFI, le pompage efficace de la transition laser requiert absolument une polarisation circulaire.

La figure 4.9 montre la température électronique radiale simulée pour une polarisation linéaire ou circulaire, et une densité électronique qui varie entre $1,6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et $1,1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Tant que que la densité électronique est inférieure à environ $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, la température électronique est invariante en fonction de la densité. Une polarisation circulaire est indispensable pour atteindre les 145 eV requis, le mécanisme de chauffage prédominant étant le chauffage par OFI. On peut remarquer que, pour ces basses densités, le chauffage ne dépend quasiment pas du rayon dans le cas d'une polarisation circulaire mais qu'il est légèrement plus important au centre du plasma dans le cas d'une polarisation linéaire. Cela peut être expliqué par la phase relative entre les oscillations du champ laser et celles de son potentiel vecteur. Dans le cas d'une polarisation linéaire, ces oscillations sont en phase et l'énergie des électrons ne dépend alors pas de l'intensité laser. En revanche, dans le cas d'une polarisation circulaire, ces oscillations ne sont pas en phase. L'énergie des électrons dépend alors (faiblement) de l'intensité laser et est donc maximum en $r = 0 \text{ }\mu\text{m}$. Au delà des $2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, le processus de chauffage par diffusion Raman stimulée prend de l'ampleur au fur et à mesure qu'on augmente la densité. Rappelons que l'efficacité de ce phénomène est en effet proportionnel à la densité du plasma (voir 2.2.2.1). La diffusion Raman stimulée ne dépendant pas de la polarisation du faisceau pompe, le pompage de la transition est alors permis dans le cas linéaire et dans le cas circulaire. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus expérimentalement. Notons que la diffusion Raman stimulée dépend de l'intensité du laser de pompe, ce qui explique le pic de température au centre du plasma.

4.2.2 Influence du délai d'injection de l'harmonique dans l'amplificateur

4.2.2.1 Dynamique temporelle de l'amplification

Une technique proposée en [117] suggère d'estimer la dynamique temporelle du gain faible signal en mesurant l'énergie de l'harmonique amplifiée en fonction du délai d'injection harmoniques. Soulignons que cette mesure ne constitue en aucun cas une mesure directe du gain. Néanmoins, il a été montré que la dynamique temporelle de l'amplification ainsi mesurée est très similaire à celle du gain : dans le cas des lasers XUV OFI et à basse densité, les mesures sont en bon accord avec les courbes de gain théoriques [105][104]. La figure 4.10 illustre en bleu cette mesure pour une densité électronique de $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et la compare au gain simulé par OFIKinRad pour la même densité électronique, en rouge.

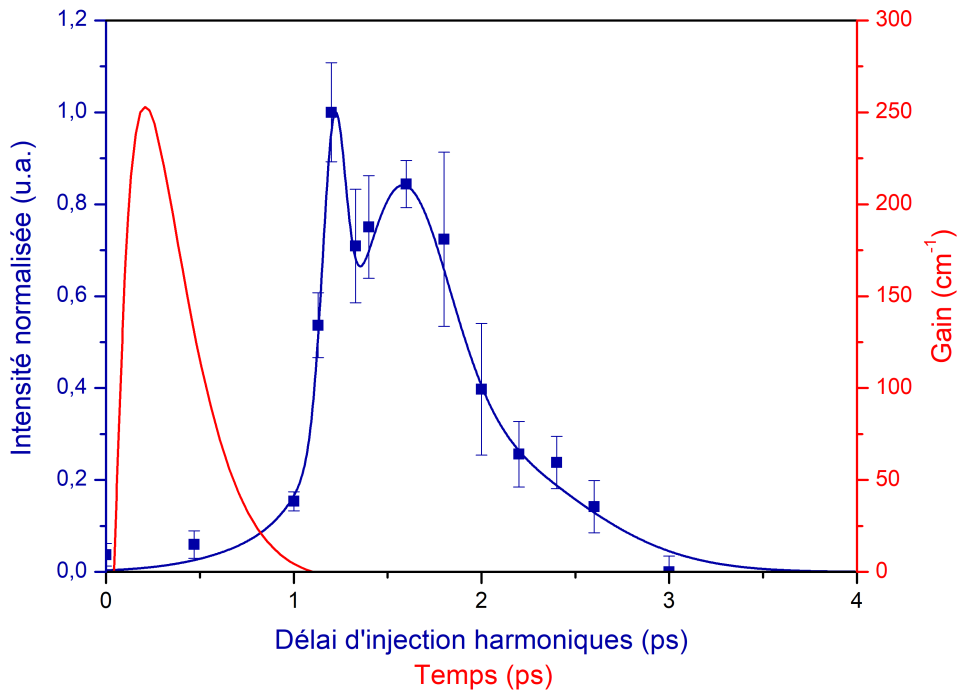


FIGURE 4.10 – Allure temporelle du gain simulée par OFIKinRad en rouge. Dynamique de l'amplification en bleu. La densité électronique est ici $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

On constate que, contrairement aux cas basses densités, la dynamique de l'amplification mesurée est assez différente de la dynamique temporelle du gain simulée : la durée du gain théorique est plus courte que la durée de la courbe expérimentale (320 fs contre 1 ps RMS). On remarque également que le maximum de l'amplification se produit environ 1 ps plus tard que l'optimum du gain. L'allure de la mesure est également un peu différente de l'allure du gain théorique avec la présence de deux pics. Nous supposons que l'écart entre l'expérience et la théorie provient du schéma de pompage longitudinal et du fait que la mesure résulte d'une intégration sur toute la propagation. A basse densité, l'harmonique voit toujours le même gain au cours de sa propagation (en négligeant la saturation du gain) puisqu'elle se propage à la même vitesse. A haute densité en revanche, la dispersion naturelle du plasma induit une désynchronisation entre le gain et l'harmonique qui voit donc un gain variable au cours de sa propagation. Nous reviendrons sur cette explication plus en détail dans la section 6.3.4. Cette mesure, que nous nommerons dynamique temporelle de l'amplification, ne constitue pas une mesure du gain mais donne une estimation globale de son allure et une majoration de sa durée.

4.2.2.2 Balance en énergie ASE/harmonique amplifiée

On étudie ici la répartition de l'énergie entre l'harmonique amplifiée et l'ASE environnante résiduelle en régime injecté en fonction du délai d'injection. Sur la figure 4.11, on mesure en vert l'énergie totale du faisceau XUV (dans une divergence d'environ 10 mrad d'ouverture) en fonction du délai d'injection. On mesure également l'énergie contenue dans l'harmonique amplifiée (dans une divergence d'environ 1,5 mrad d'ouverture) en pourcentages de l'énergie totale. Cette mesure (en rouge sur la figure) est effectuée dans les mêmes conditions que la dynamique d'amplification de la figure 4.10 et y est donc proportionnelle. L'énergie totale étant constante avec le délai d'injection, l'énergie contenue dans l'ASE résiduelle en pourcentages de l'énergie totale (en bleu) correspond au complémentaire de l'énergie contenue dans l'harmonique amplifiée.

Pour des délais d'injection extrêmes lorsque l'harmonique arrive trop tôt ou trop tard par rapport au temps de vie du gain, toute l'énergie est contenue dans l'ASE. L'harmonique ne peut alors en effet pas être amplifiée. Pour des délais d'injection convenables, l'harmonique s'amplifie au détriment de l'énergie ASE. On définit le paramètre d'extraction de l'énergie comme le pourcentage d'énergie contenue dans l'harmonique amplifiée en pourcentages de l'énergie totale, cette dernière étant équivalente à l'énergie contenue dans l'ASE en régime non injecté. L'extraction optimum de l'énergie vaut ici $12 \pm 1 \%$, en accord avec les $7 \mu\text{J}$ d'ASE et les $1,2 \mu\text{J}$ de l'harmonique amplifiée mesurés précédemment.

L'extraction de l'énergie est notamment influencée par l'énergie des harmoniques injectées et par les conditions de couplages spatial et spectral. Le pompage étant longitudinal, elle dépend aussi, comme nous le verrons en 6.3.2, de la synchronisation entre la zone de gain et l'harmonique injectée au cours de la propagation.

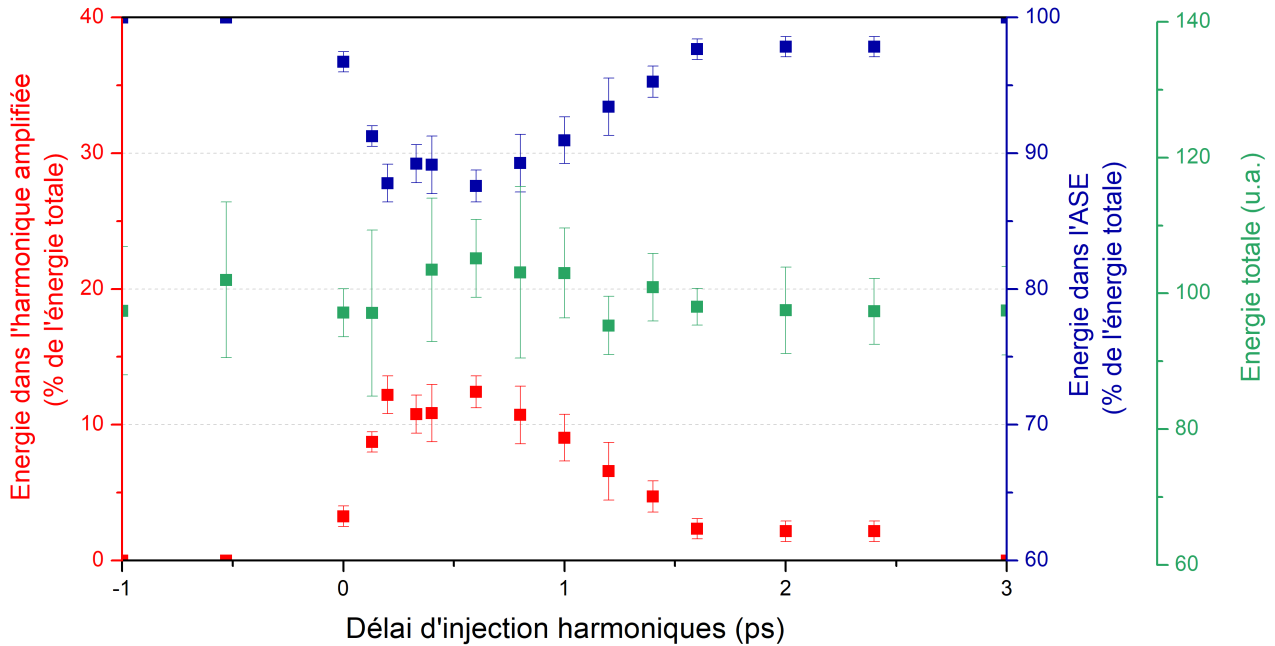


FIGURE 4.11 – Energie dans l'harmonique amplifiée (en rouge), dans l'ASE (en bleu) et énergie totale (Harmonique amplifiée + ASE résiduelle, en vert) en fonction du délai d'injection harmoniques. La densité électronique est ici $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

4.2.3 Influence de la longueur de jet

4.2.3.1 Energie du faisceau XUV

La figure 4.12 illustre l'évolution de l'énergie en fonction de la longueur de jet. Cette mesure a été réalisée pour une densité électronique $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. En régime ASE, l'énergie passe de $0,17 \pm 0,06 \text{ }\mu\text{J}$ à 6 mm, à $6,53 \pm 0,40 \text{ }\mu\text{J}$ à 10 mm. L'énergie en régime injecté suit une évolution similaire et augmente de $0,03 \pm 0,02 \text{ }\mu\text{J}$ à 5 mm, à $1,22 \pm 0,20 \text{ }\mu\text{J}$ à 10 mm. La croissance de l'énergie est linéaire à partir de 7 mm, signe qu'on a atteint la saturation. Cette dernière apparaît tardivement par rapport aux prédictions théoriques de la section 2.1.3.2 qui l'annonçaient après une distance entre les quelques centaines de microns et le millimètre en fonction du coefficient de gain. Il est cependant à noter qu'on observe aucune émission avant 5 mm de jet, ce qui est signe d'une inhomogénéité du plasma au début de l'amplificateur. Il a en effet été montré dans [192] que, pour reproduire par des simulations le front d'onde du laser XUV mesuré par ptychographie, il était nécessaire de tenir compte de zones surionisées à l'entrée du plasma issues de surintensités lasers causées par des effets focalisants.

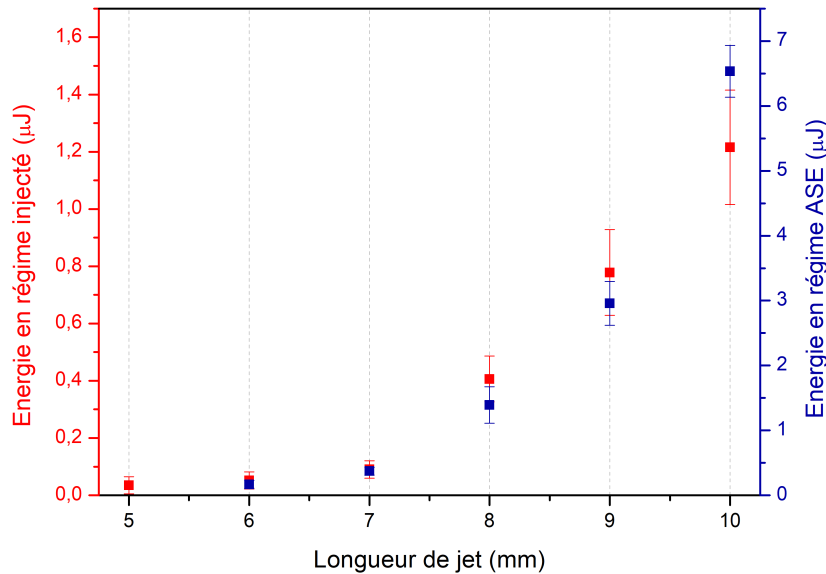


FIGURE 4.12 – Energie en régime ASE en bleu, et en régime injecté en rouge en fonction de la longueur de jet. La densité électronique est ici $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

Vers de plus grandes longueurs d'amplification

Augmenter la longueur d'amplification permet d'augmenter l'énergie de la source en sortie. Nous avons donc conçu une buse de 20 mm (cf section 3.3.1.2) de sorte à ce que le profil de densité longitudinal soit homogène sur cette longueur et à obtenir une densité équivalente à celle obtenue avec la buse de 10 mm. Cette buse de 20 mm est en plastique, réalisée par impression 3D, contrairement à la buse de 10 mm qui est métallique. La pression de krypton est ici de l'ordre de 100 bar en amont de la buse.

Nous caractérisons dans un premier temps la buse de 20 mm. La figure 4.13 (a) illustre la densité électronique dans le canal produit avec la buse de 20 mm pour différentes hauteurs de tir par rapport à la buse. Les buses de 10 et 20 mm sont comparées pour une même distance entre la buse et l'axe optique, soit environ 2 mm. La figure (b) montre les profils assez similaires de densité électronique obtenus à cette hauteur pour les deux buses. La densité moyenne dans le canal est de $(1,2 \pm 0,2) \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ pour la buse de 20 mm, et $(1,4 \pm 0,2) \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dans le cas de la buse de 10 mm. Cette densité dans le canal équivaut, dans les deux cas, à une densité d'environ $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ après le passage du faisceau pompe. Notons que le canal créé à partir de la buse de 10 mm est un peu plus large que celui généré avec la buse de 20 mm.

La figure 4.14 représente l'évolution de l'énergie en fonction de la longueur de jet. On utilise soit la buse de 10 mm, soit la buse de 20 mm. On fait varier la longueur du jet sous vide à l'aide de la platine motorisée illustrée sur la figure 3.10. L'énergie augmente avec la longueur de jet, comme nous l'avons vu précédemment, jusqu'à atteindre $0,35 \pm 0,04 \text{ }\mu\text{J}$ à 10 mm. En utilisant la buse de 20 mm, l'énergie à 10 mm est $0,23 \pm 0,02 \text{ }\mu\text{J}$. Cette différence s'explique par la densité un peu plus faible et le canal un peu moins large généré par la buse de 20 mm. L'énergie continue de croître jusqu'à atteindre $0,59 \pm 0,07 \text{ }\mu\text{J}$ avec une longueur d'amplification de 16 mm. Ensuite, l'énergie diminue avec la longueur de jet entre 16 et 20 mm. Cette zone est donc très probablement absorbante, en raison de l'absence de guidage ici. Cela s'explique par le fait que la ligne focale créée par l'axicon

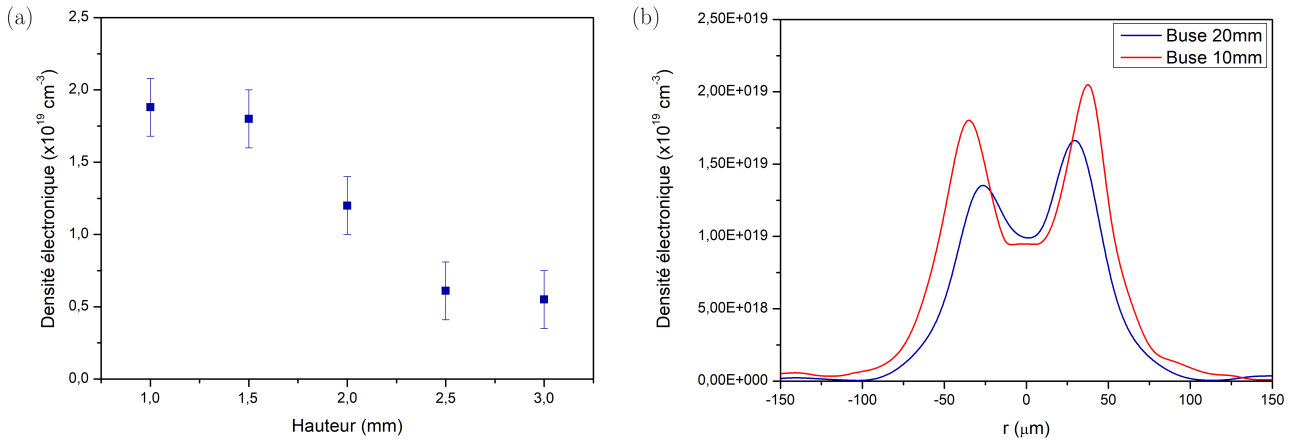


FIGURE 4.13 – (a) Densité électronique moyenne dans le canal en fonction de la hauteur de la buse de 20 mm. (b) Profils de densité du canal produits par la buse métallique de 10 mm et la buse plastique de 20 mm.

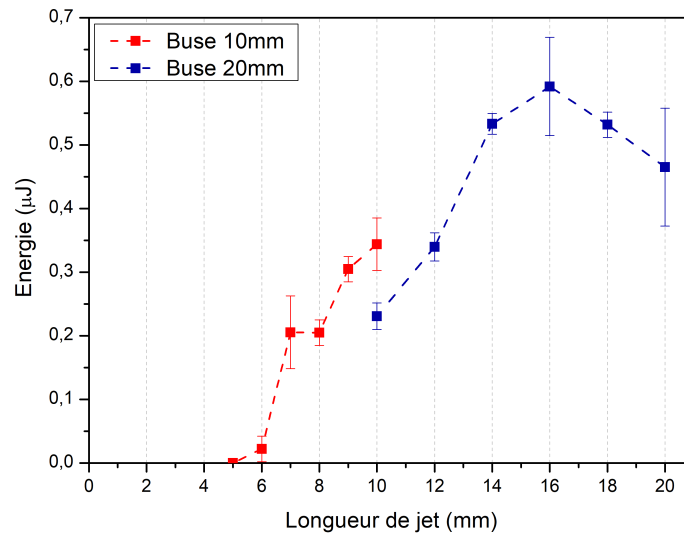


FIGURE 4.14 – Energie en régime injecté en fonction de la longueur de jet. La densité électronique est ici de l'ordre de $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

est trop courte pour recouvrir cette partie du jet. La longueur de la ligne focale produite par l'axicon dépend du diamètre du faisceau incident et également de l'angle apex de l'axicon (ici de 30°) [104]. En choisissant un angle apex plus petit, nous pourrions allonger la ligne focale et probablement parvenir à guider sur ces 20 mm. Notons que les énergies atteintes ici (0,35 μJ à 10 mm) sont relativement faibles par rapport celles obtenues précédemment (par exemple 1,2 μJ sur la figure 4.12). Ces différences peuvent s'expliquer d'une part par la plus faible densité électronique ($5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ici contre $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ plus haut), et d'autre part par le fait que ces mesures ont été effectuées sur des jours différents, avec très probablement de moins bonnes conditions d'injection (harmoniques moins énergétiques, conditions de couplage différentes).

4.2.3.2 Divergence du faisceau XUV

La figure 4.15 montre l'évolution de la divergence de l'émission en régime ASE et en régime injecté en fonction de la longueur de jet. L'émission XUV est confinée dans un cône défini par un point situé à l'entrée du plasma et un cercle aux dimensions transverses du plasma à sa sortie. L'allongement du plasma résulte en une réduction de l'angle solide d'émission et donc en une diminution linéaire de la divergence avec la longueur de jet. La divergence en régime ASE passe de $9,9 \pm 0,4 \text{ mrad}$ à 7 mm, à $9,0 \pm 0,4 \text{ mrad}$ à 10 mm. Elle n'a pas été mesurée pour 5 et 6 mm, étant trop importante pour permettre une mesure avec notre diagnostic. La divergence de l'émission en régime injecté (diamètre mesuré à $1/e^2$) suit la même évolution et passe de $1,6 \pm 0,6 \text{ mrad}$ à 5 mm à $1,4 \pm 0,8 \text{ mrad}$ à 10 mm. Comme nous l'avons déjà souligné précédemment, l'émission en régime ASE est très divergente en raison de la nature stochastique de l'émission spontanée. L'émission en régime injecté est bien moins divergente puisqu'elle conserve la divergence du faisceau harmonique.

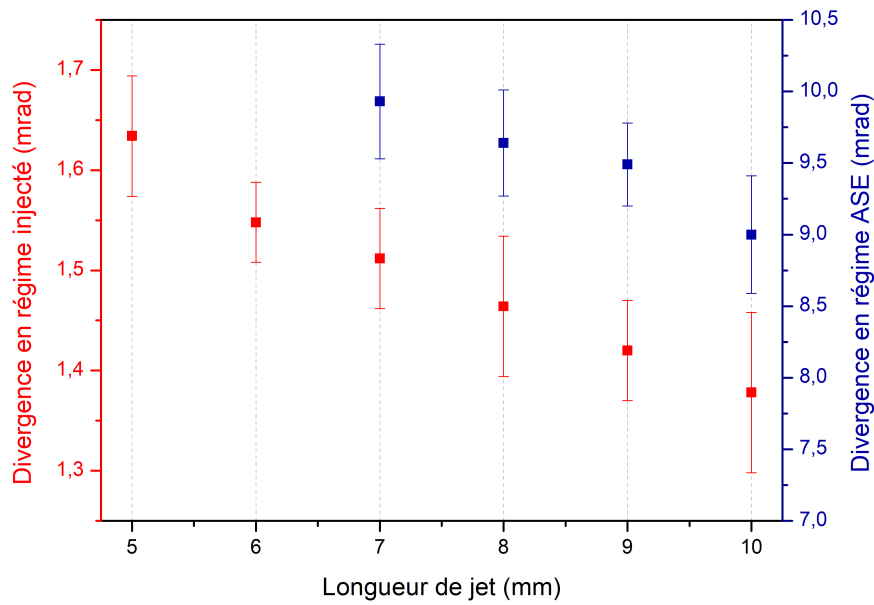


FIGURE 4.15 – Divergence de l’émission en régime ASE en bleu, et en régime injecté en rouge en fonction de la longueur de jet.

Nous verrons dans le chapitre 6 que la longueur de jet a également un impact sur la mesure de la dynamique temporelle d’amplification et sur la durée de l’impulsion du laser XUV.

4.2.4 Influence de la densité électronique

Comme nous l’avons vu dans la section 2.1.4, la densité électronique influe fortement sur l’amplification du signal XUV et sa dynamique. Les hautes densités favorisent en effet les collisions et donc le chauffage des électrons (voir 4.2.1.2) ainsi que l’excitation collisionnelle. L’inversion de population est alors accrue, et résulte en une augmentation du coefficient de gain. Le nombre d’émetteurs étant également plus conséquent, l’intensité de saturation est elle aussi plus forte. Notons également que le phénomène d’élargissement spectral à haute densité (voir 2.1.3.1) peut permettre d’amplifier davantage de photons harmoniques, la largeur spectrale des harmoniques étant de l’ordre de l’angström et celle de l’ASE de quelques mÅ.

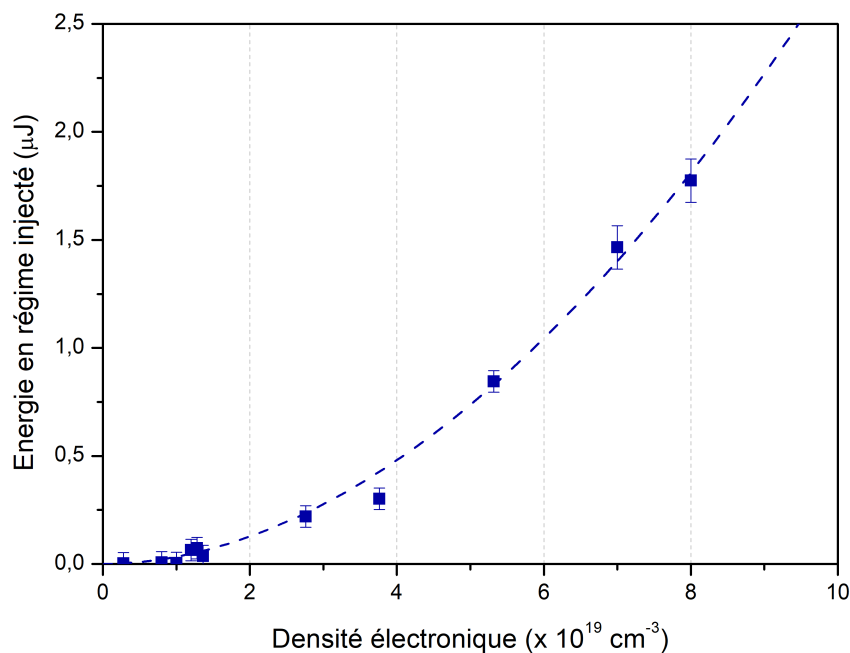


FIGURE 4.16 – Energie dans l’harmonique amplifiée en fonction de la densité électronique du plasma amplificateur pour un jet de 10 mm. La courbe en pointillés est un guide pour l’œil.

En accord avec ces résultats théoriques, nous observons la courbe représentée sur la figure 4.16 qui montre l'évolution de l'énergie (dans l'harmonique amplifiée) en fonction de la densité électronique. Cette dernière a été estimée grâce à l'interféromètre de Mach-Zender présenté en 3.4.1.1, et ajustée en faisant varier la hauteur de la cible par rapport à la position de tir et le délai entre l'impulsion pompe et le faisceau générant le canal plasma. L'énergie croît de façon monotone de $0,07 \pm 0,05 \mu\text{J}$ à $1,3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ à $1,8 \pm 0,1 \mu\text{J}$ à $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

Nous avons également expliqué dans le chapitre 2 que les hautes densités électroniques induisent une interruption anticipée du gain et donc en théorie une réduction de la durée d'impulsion. La section 5.2 sera consacrée à une étude détaillée de ce phénomène.

4.3 Caractérisation du guidage

L'efficacité du guidage est mesurée par le diagnostic présenté en 3.4.1.2. La figure 4.17 (a) montre la distribution d'énergie du faisceau pompe infrarouge à pleine énergie au foyer. La figure (b) illustre la distribution d'énergie du faisceau pompe en sortie d'un plasma de 10 mm sans guidage. L'infrarouge est fortement réfracté et défocalisé par les électrons libres du plasma. Une transmission inférieure à 1% est mesurée ici, aucun signal à 32,8 nm n'est détecté. L'implémentation d'un canal plasma est donc primordiale.

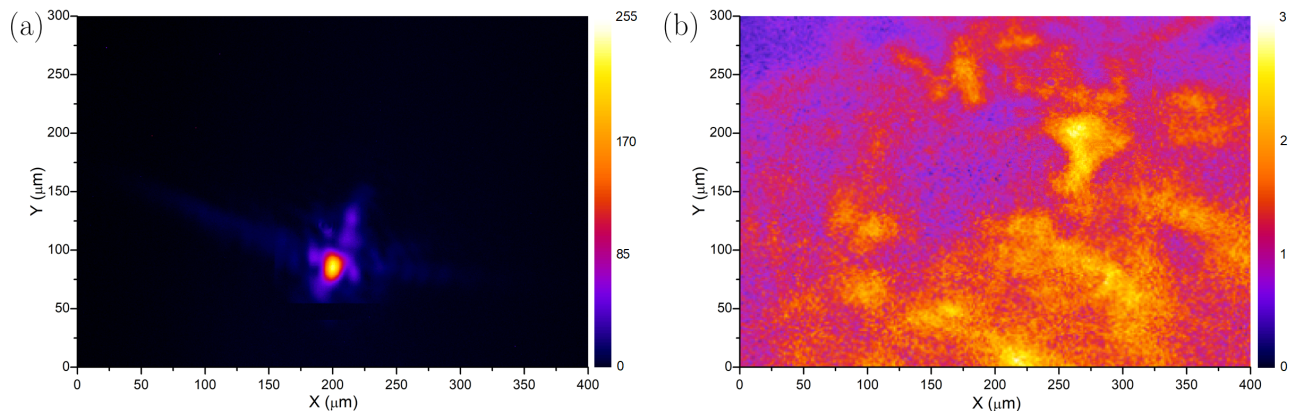


FIGURE 4.17 – Distribution de l'énergie du faisceau pompe infrarouge à pleine énergie sous vide (a) au foyer, (b) en sortie du plasma sans guidage.

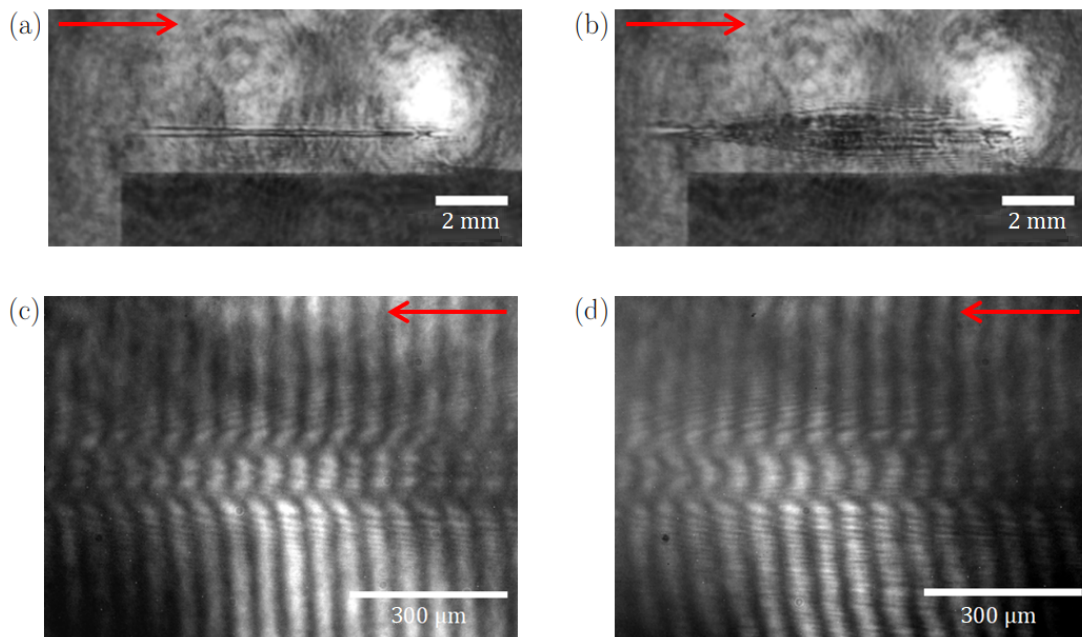


FIGURE 4.18 – Imageries du plasma (a) et (c) avant propagation du faisceau pompe, (b) et (d) après propagation du faisceau pompe obtenues avec différents grossissements. La flèche rouge indique le sens de propagation du laser.

Ce canal est produit par l'expansion hydrodynamique du plasma induite par la focalisation d'une ou plusieurs impulsions modérément intenses sur toute la longueur du jet de gaz à l'aide d'un axicon. Un creux de densité électronique sur l'axe optique favorise alors la propagation de l'impulsion pompe. La figure 4.18 montre un canal plasma typique de 10 mm imagé par le diagnostic présenté en 3.4.1.1 avec en (a) un grandissement de 1 qui permet d'observer le canal sur toute sa longueur, et en (c) un grandissement de 10 environ. Les figures (b) et (d) représentent le plasma après propagation du faisceau pompe dans le canal avec respectivement les mêmes grandissements. Nous caractérisons dans la suite le canal plasma ainsi que la qualité et l'efficacité du guidage dans différentes configurations, et en variant différents paramètres.

Dans les thèses antérieures à celle ci [104][9], le guide d'onde était généré par une double impulsion de type "ignitor + heater", telle que présentée dans les sections 2.4.2.3 et 3.3.2. Entre 2015 (qui marque la fin de la thèse précédente) et le début de cette thèse, ce schéma a été simplifié par souci de commodité en une impulsion unique, non recomprimée contenant toute l'énergie disponible, qu'on pensait alors aussi performante que le schéma double impulsionsnel. Dans la suite, nous comparons ces deux techniques de guidage.

4.3.1 Guide créé par une impulsion longue unique

Dans un premier temps, on étudie un canal plasma créé par une unique impulsion infrarouge non recomprimée (820 mJ, 600 ps). Il s'agit de la technique de guidage utilisée initialement au début de la thèse.

4.3.1.1 Caractérisation du canal

On montre sur la figure 4.19 l'évolution du canal plasma, observé 3 ns après le passage de l'impulsion qui le crée, en termes de diamètre et de densité en fonction de l'énergie contenue dans cette impulsion. Le diamètre et la densité du canal sont mesurés par traitement des interférogrammes obtenus à l'aide du logiciel *Neutrino*. L'énergie de l'impulsion est ajustée en tournant la lame $\lambda/2$ du système d'atténuation. L'énergie maximum disponible est 820 mJ.

Comme nous l'avons expliqué en 2.4.2.3, la température électronique du plasma croît à mesure qu'on augmente l'énergie contenue dans l'impulsion qui le génère. Cela conduit à un taux d'ionisation collisionnelle plus fort et donc à de plus hautes densités électroniques. En parallèle, cette hausse de la température mène à une expansion plus rapide du plasma : à plus forte énergie, le canal est donc plus large à un instant donné. Ainsi, plus on utilise d'énergie pour créer le canal, plus ce dernier est creux, dense, et présente de forts gradients de densité. A pleine énergie, le canal a ici un diamètre de 130 μm et une densité moyenne de $1,25 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Le diamètre du canal diminue progressivement jusqu'à atteindre 60 μm à 220 mJ. La densité moyenne dans le canal décroît jusqu'à $7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

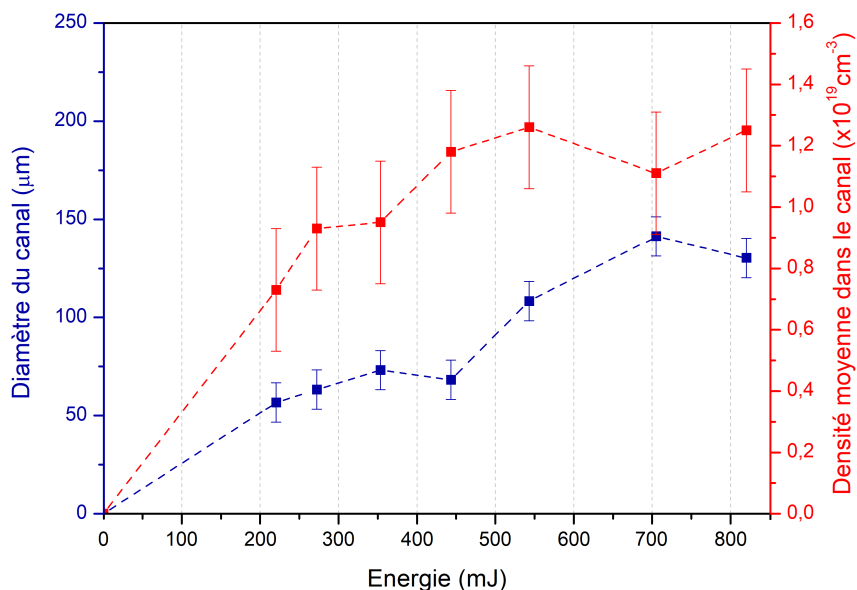


FIGURE 4.19 – Diamètre et densité moyenne du canal en fonction de l'énergie de l'impulsion créant le guide d'onde.

4.3.1.2 Caractérisation du guidage

La qualité du guidage par un tel canal est présentée sur la figure 4.20. Le faisceau pompe se propage ici 3 ns après l'arrivée de l'impulsion qui génère le canal. Au lieu d'être défocalisé, le faisceau pompe reste collimaté : la totalité du faisceau est incluse dans un cercle de diamètre 130 μm qui correspond à la taille du canal. Le profil irrégulier constitué petites taches distinctes reflète un guidage multimode. La transmission est de l'ordre de 40%, bien suffisante puisque l'intensité en entrée du plasma est de quelques $10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

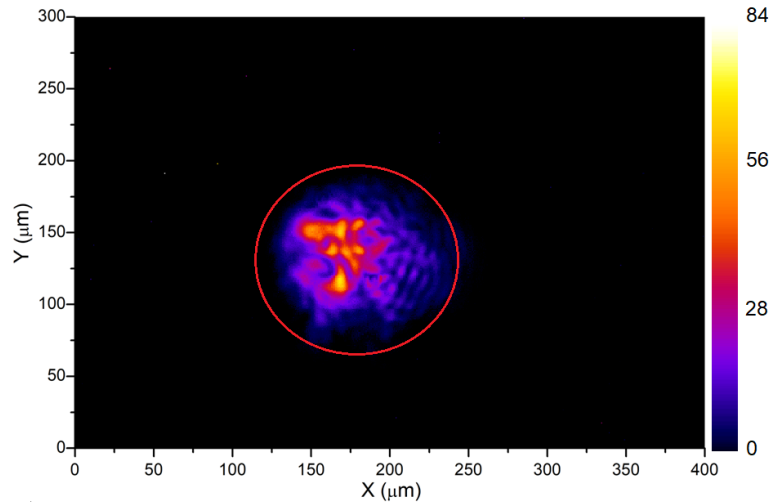


FIGURE 4.20 – Distribution de l'énergie du faisceau pompe infrarouge à pleine énergie sous vide en sortie du canal plasma créé par une impulsion longue (820 mJ, 600 ps). Le cercle rouge représente la dimension typique du canal plasma (diamètre de 130 μm).

La figure 4.21 illustre l'efficacité du guidage en terme de transmission, ainsi que l'énergie XUV obtenue en sortie de l'amplificateur en fonction de l'énergie contenue dans l'impulsion qui crée le canal. Une bonne transmission nécessite un gradient de densité fort et un diamètre de canal suffisant pour assurer un bon couplage initial. La transmission du guidage est relativement stable à 40% pour les énergies supérieures à 430 mJ. En deçà, les gradients de densité disponibles sont plus faibles et le diamètre du canal est réduit à environ 60 μm , ce qui entraîne une forte baisse de la transmission jusqu'à atteindre 10% seulement à 270 mJ. L'énergie du faisceau XUV diminue, quant à elle, fortement lorsque l'énergie de l'impulsion génératrice du canal décroît, conséquence de la diminution de la densité et de la température électroniques et de la baisse de transmission simultanée.

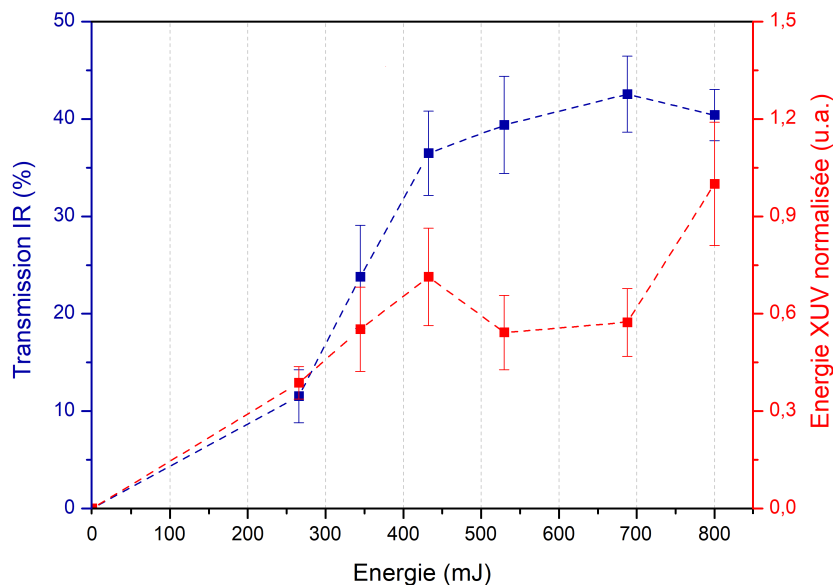


FIGURE 4.21 – Transmission du canal et énergie XUV en fonction de l'énergie de l'impulsion créant le guide d'onde.

Cette technique de guidage, bien que pratique étant donné qu'elle ne nécessite qu'une unique impulsion, et efficace puisqu'elle permet de créer des guides d'onde de 40% de transmission sur 10 mm, ne permet en revanche pas d'atteindre de fortes densités électroniques. Comme nous venons de le voir, même avec le maximum d'énergie disponible, la densité électronique moyenne dans le canal reste faible : la densité maximale que l'on peut obtenir dans cette configuration est de l'ordre de $1,3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, soit une densité équivalente à $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ après le passage de l'impulsion pompe. Nous avons donc décidé de réimplémenter le schéma "ignitor + heater".

4.3.2 Guide créé par une double impulsion : "ignitor + heater"

En vue de travailler à plus haute densité, on découple le chauffage de l'ionisation en considérant un guide d'onde généré par la séquence constituée d'un "ignitor" (100 mJ, 30 fs) que nous appellerons impulsion fs, suivie ici 1,4 ns plus tard par un "heater" (550 mJ, 600 ps) que nous nommerons impulsion ns par souci de commodité. Nous allons dans cette partie caractériser le canal et la qualité du guidage par la séquence fs + ns, et comparer ces résultats à ceux obtenus pour les impulsions ns et fs séparément.

4.3.2.1 Caractérisation du canal

La figure 4.22 montre les interférogrammes du canal plasma créé respectivement par la séquence fs + ns, par l'impulsion ns uniquement et par l'impulsion fs uniquement. Ils ont ici été sondés 1,5 ns après le passage de la première impulsion. Le canal créé par l'impulsion fs seule est à peine distinguable. Contrairement au cas où l'impulsion ns est présente, le chauffage par Bremsstrahlung inverse ne peut en effet pas avoir lieu (voir 2.2.2.1). Le plasma est alors peu chauffé, ce qui empêche une ionisation collisionnelle conséquente et résulte en une densité électronique faible. Il est à noter que les interférogrammes dans le cas du guidage par impulsion fs seule n'ont pas pu être traités pour mesurer les caractéristiques du canal, les franges étant trop droites pour que *Neutrino* puisse distinguer une variation locale de phase.

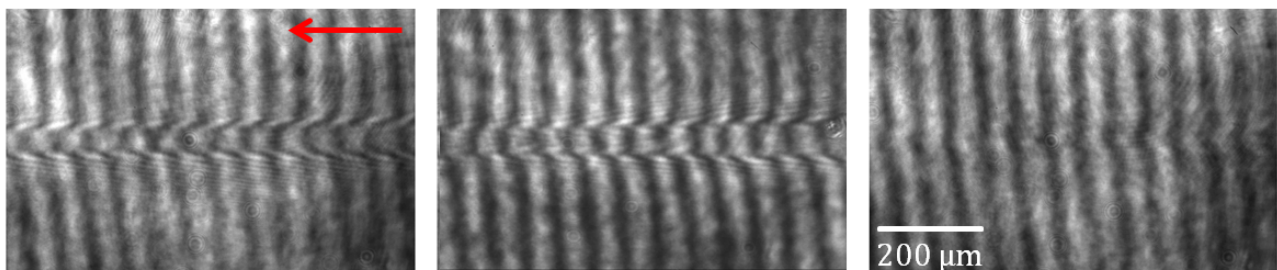


FIGURE 4.22 – Interférogrammes du canal plasma créé respectivement de gauche à droite par la séquence fs + ns, l'impulsion ns seule et l'impulsion fs seule. Le laser se propage de la droite vers la gauche.

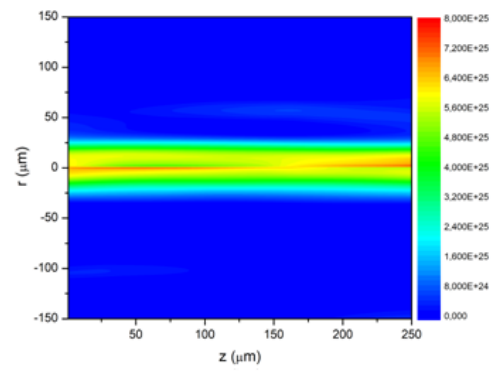
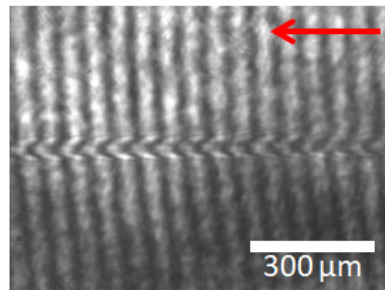
Evolution temporelle du canal plasma

L'interféromètre de Mach-Zender (cf 3.4.1.1) permet d'imager le canal et de mesurer son profil de densité électronique à un instant donné. Une ligne à retard, en amont de l'interféromètre, permet d'ajuster le délai auquel on effectue la mesure. On peut ainsi observer l'évolution temporelle du canal. Cette mesure a été effectuée pour une pression d'environ 150 bar et pour un faisceau se propageant à environ 1,5 mm de hauteur par rapport à la cible. Elle a été réalisée dans le cas d'un canal créé par la séquence "ignitor + heater", et par l'impulsion ns seule.

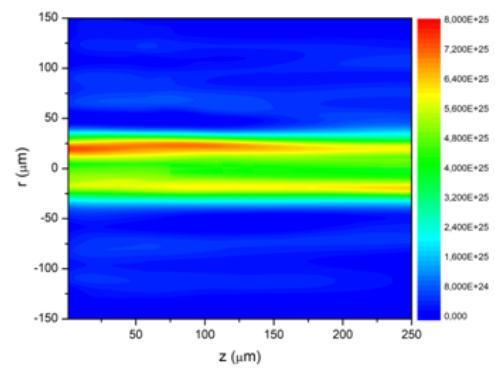
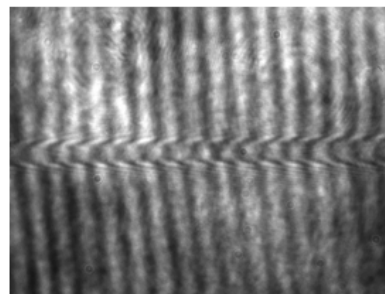
La figure 4.23 représente les interférogrammes obtenus et les cartes de densité 2D déduites de ces mesures dans le cas d'un guidage par la séquence "ignitor + heater" pour un délai variant de 1,2 ns à 6 ns après l'arrivée de l'impulsion fs. La figure 4.24 montre l'évolution temporelle du profil radial de densité électronique moyenné sur une distance longitudinale de 250 μm pour un guidage par la séquence fs + ns, et la figure 4.25 pour un guidage par l'impulsion ns uniquement.

Dans les deux configurations, on observe dans les premiers instants un pic de densité électronique sur l'axe résultant de l'ionisation induite par le laser. Environ 1,5 ns après l'arrivée de la première impulsion, les électrons sont éjectés hors de l'axe et le plasma commence son expansion. Il en résulte un creux de densité électronique favorable à la propagation de l'impulsion pompe. Le canal ainsi formé s'élargit et devient progressivement de moins en moins dense. On envoie typiquement l'impulsion pompe entre 1,5 ns et 3 ns après l'arrivée de la première impulsion qui crée le guide pour pouvoir bénéficier à la fois d'un profil guidant et d'une densité électronique conséquente.

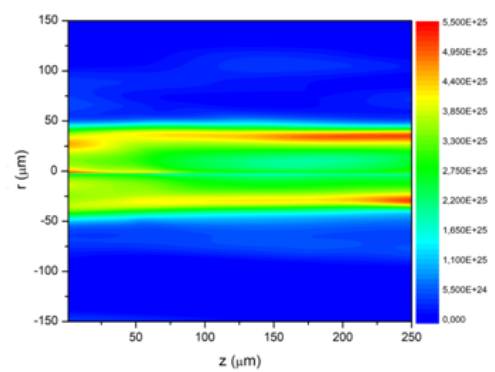
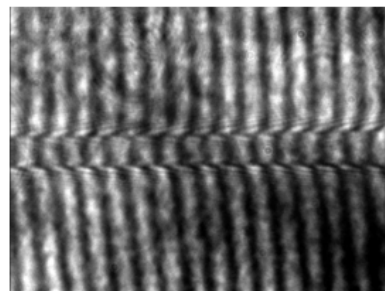
$\Delta t = 1.2 \text{ ns}$



$\Delta t = 1.5 \text{ ns}$



$\Delta t = 2.1 \text{ ns}$



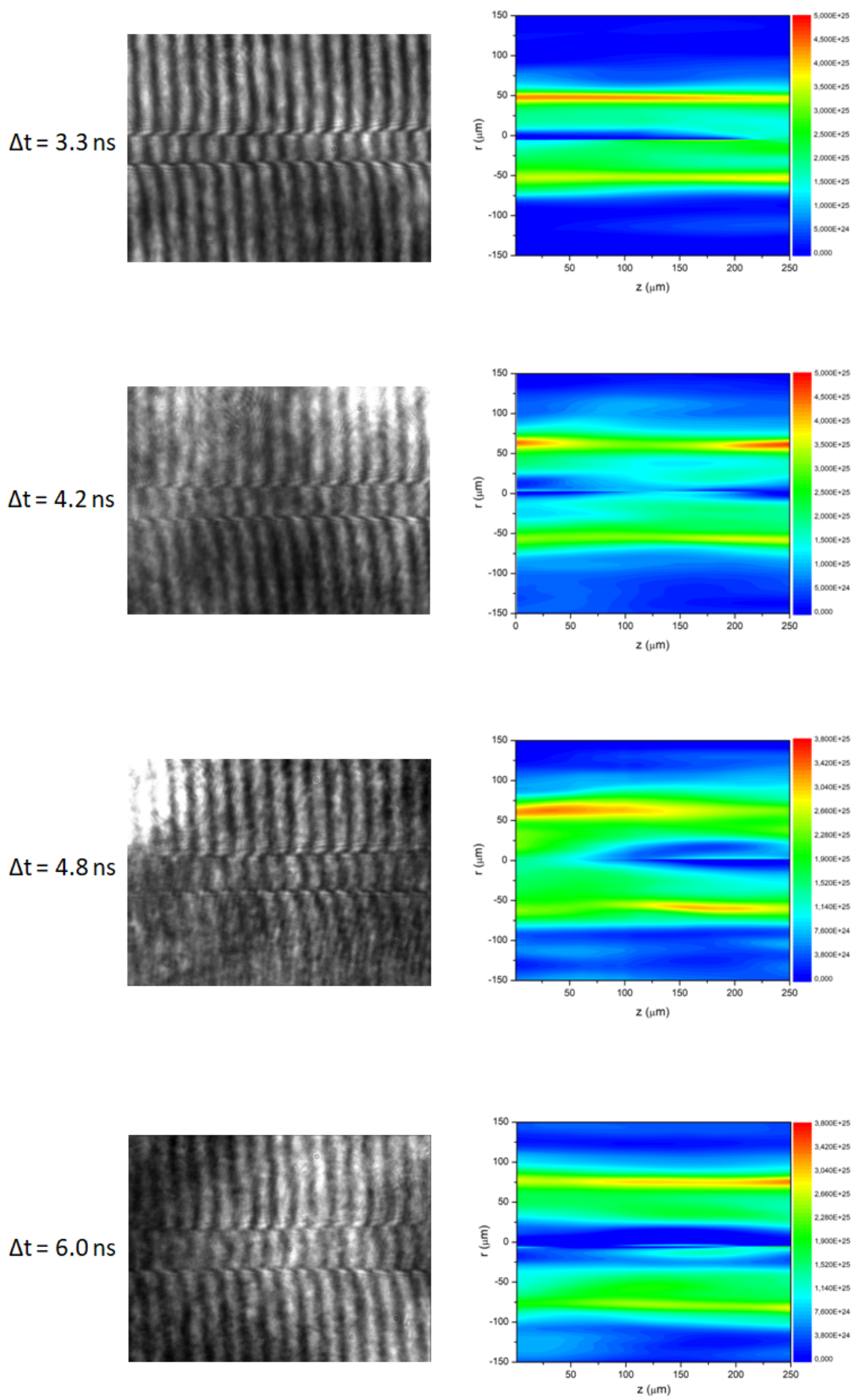


FIGURE 4.23 – Interférogrammes et cartes de densité (en m^{-3}) du canal plasma créé par la séquence "ignitor" (100 mJ, 30 fs) + "heater" (550 mJ, 600 ps) et sondé à différents instants. Le délai Δt correspond au moment où on sonde le plasma par rapport à l'arrivée de l'impulsion fs. Le laser se propage de la droite vers la gauche.

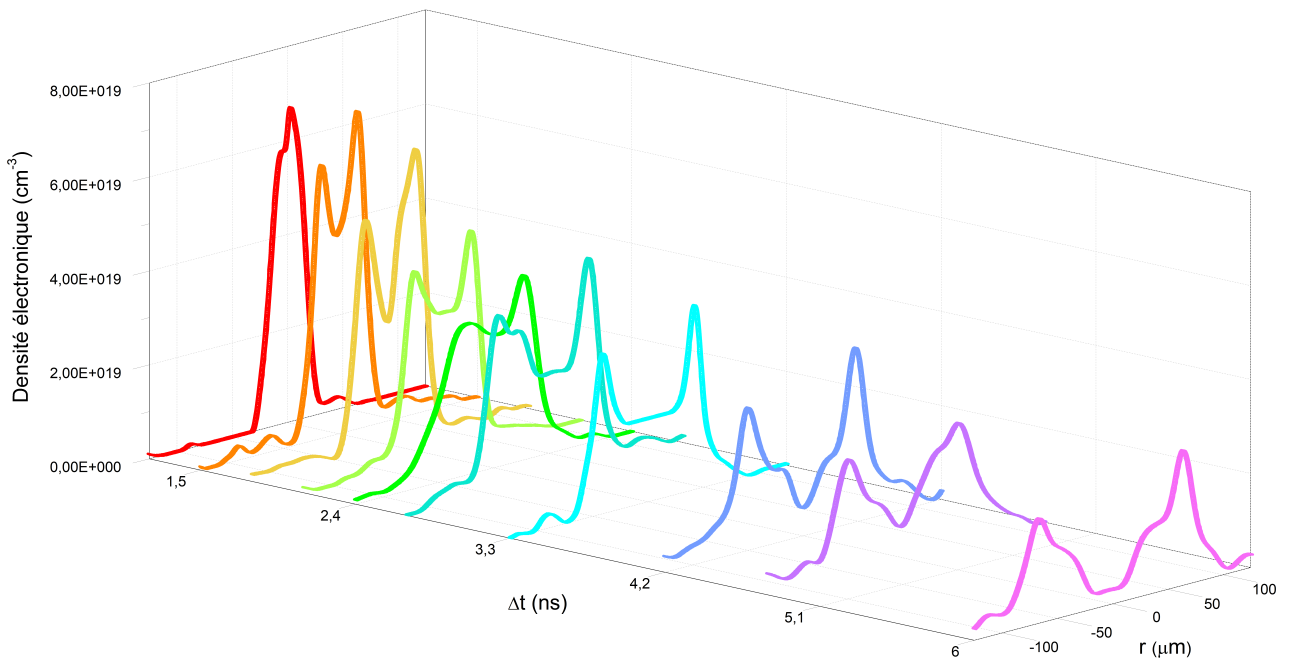


FIGURE 4.24 – Evolution temporelle du canal plasma créé par la séquence "ignitor" (100 mJ, 30 fs) + "heater" (550 mJ, 600 ps). Le délai Δt correspond au moment où on sonde le plasma par rapport à l'arrivée de l'impulsion fs.

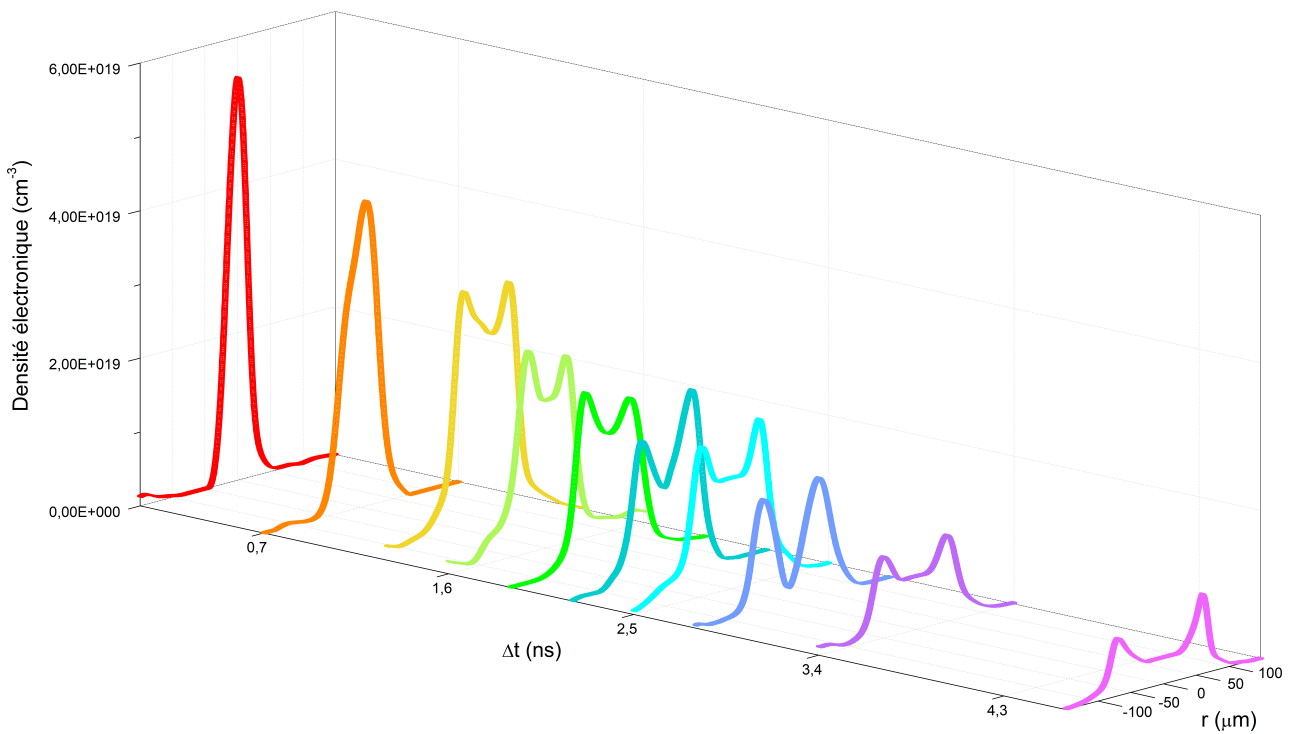


FIGURE 4.25 – Evolution temporelle du canal plasma créé par l'impulsion longue uniquement (550 mJ, 600 ps). Le délai Δt correspond au moment où on sonde le plasma par rapport à l'arrivée de l'impulsion ns.

La figure 4.26 illustre l'évolution temporelle du diamètre du canal (a), et l'évolution temporelle de la densité électronique moyenne dans le canal (b) pour chaque configuration de guidage. On observe que l'évolution du diamètre du canal est similaire dans les deux cas. On estime ainsi la vitesse d'expansion du plasma à $27 \mu\text{m}/\text{ns}$. L'équation (2.86) permet de remonter à la température électronique du plasma, qui est ici de l'ordre de 230 eV .

L'expansion hydrodynamique du plasma provoque une diminution de la densité électronique moyenne dans le canal. Cette décroissance a une allure similaire dans les deux configurations. Cependant, la densité moyenne du canal est globalement deux fois plus faible dans le cas du guidage par l'impulsion ns. Comme nous l'avons dit en section 2.4.2.3, les électrons primaires sont arrachés par le champ laser puis chauffés par Bremsstrahlung inverse. Il s'en suit une ionisation collisionnelle en cascade qui est d'autant plus efficace que la densité électronique initiale est importante. L'utilisation de la double impulsion "ignitor + heater" permet d'atteindre des densités électroniques plus élevées grâce à l'impulsion fs qui génère un pré-plasma de densité conséquente. Avec le découplage de l'ionisation et du chauffage, on obtient une densité électronique moyenne dans le canal de près de $5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ pour un délai optimal $\Delta t = 1,5 \text{ ns}$, soit une densité équivalente après le passage du faisceau pompe d'environ $2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

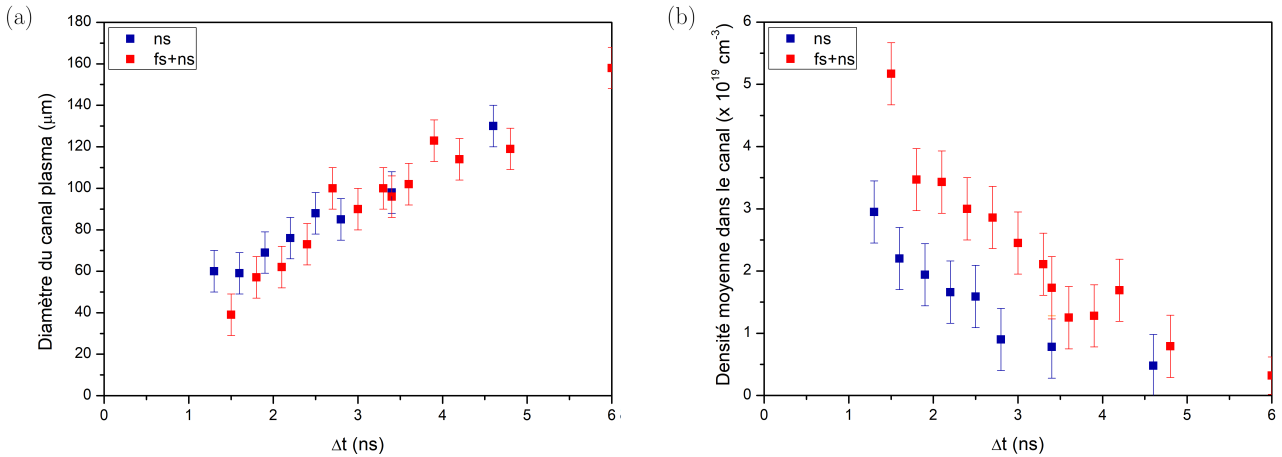


FIGURE 4.26 – Evolution temporelle (a) du diamètre du canal plasma, (b) de la densité moyenne dans le canal. Le délai Δt correspond au moment où on sonde le plasma par rapport à l'arrivée de la première impulsion.

4.3.2.2 Caractérisation du guidage

La qualité du guidage dans chaque configuration est illustrée sur la figure 4.27. Le faisceau pompe arrive ici $3,3 \text{ ns}$ après l'impulsion fs (i.e. $1,9 \text{ ns}$ après l'impulsion ns). Dans les trois cas, le guidage fonctionne puisque l'infrarouge reste globalement collimaté et qu'une partie de l'énergie est transmise. Le guidage le plus efficace est obtenu grâce à la séquence fs + ns qui permet d'atteindre une transmission d'environ 35%. La transmission obtenue avec le guidage par l'impulsion ns seule et l'impulsion fs seule sont bien plus faibles, respectivement de l'ordre de 15% et 3%. Cette différence d'efficacité du guidage s'explique encore une fois par l'allure du canal et ses principales caractéristiques à savoir principalement son gradient de densité sur les bords du canal et son diamètre. Dans le cas d'un guidage par la séquence fs + ns, le faisceau pompe se propage $3,3 \text{ ns}$ après l'impulsion fs (cf courbe cyan figure 4.24) : le gradient de densité est alors important et le canal a un diamètre de l'ordre de $80 \mu\text{m}$. Dans la configuration d'un guidage par l'impulsion ns seule, le faisceau pompe se propage $1,9 \text{ ns}$ après l'impulsion ns (cf courbe verte figure 4.25) : le gradient de densité plus faible et le canal plus fin (diamètre de $60 \mu\text{m}$ environ) induisent une transmission dégradée. Dans le cas d'un guide créé par une impulsion fs seule, l'interférogramme de droite sur la figure 4.22 suggère un canal encore plus étroit et moins creusé, responsable d'une transmission moindre. Il est à noter que le diamètre réduit du canal pour un guidage par une impulsion unique est observable directement sur la figure 4.27 : l'infrarouge transmis en (b) et en (c) a un diamètre plus faible qu'en (a).

On s'intéresse maintenant à la caractérisation des différentes configurations de guidage en fonction de l'énergie contenue dans chacune des impulsions. On considère d'abord un guidage par la séquence "ignitor + heater". Sur la figure 4.28 (a), on fait tourner la lame $\lambda/2$ du système d'atténuation en amont de la séparation des deux faisceaux : on fait donc varier à la fois l'énergie contenue dans l'ignitor (noté I sur la figure), et celle contenue dans le heater (noté H). En (b), on fait tourner la lame $\lambda/2$ présente uniquement sur la partie fs en aval de la recompression (voir figure 3.11).

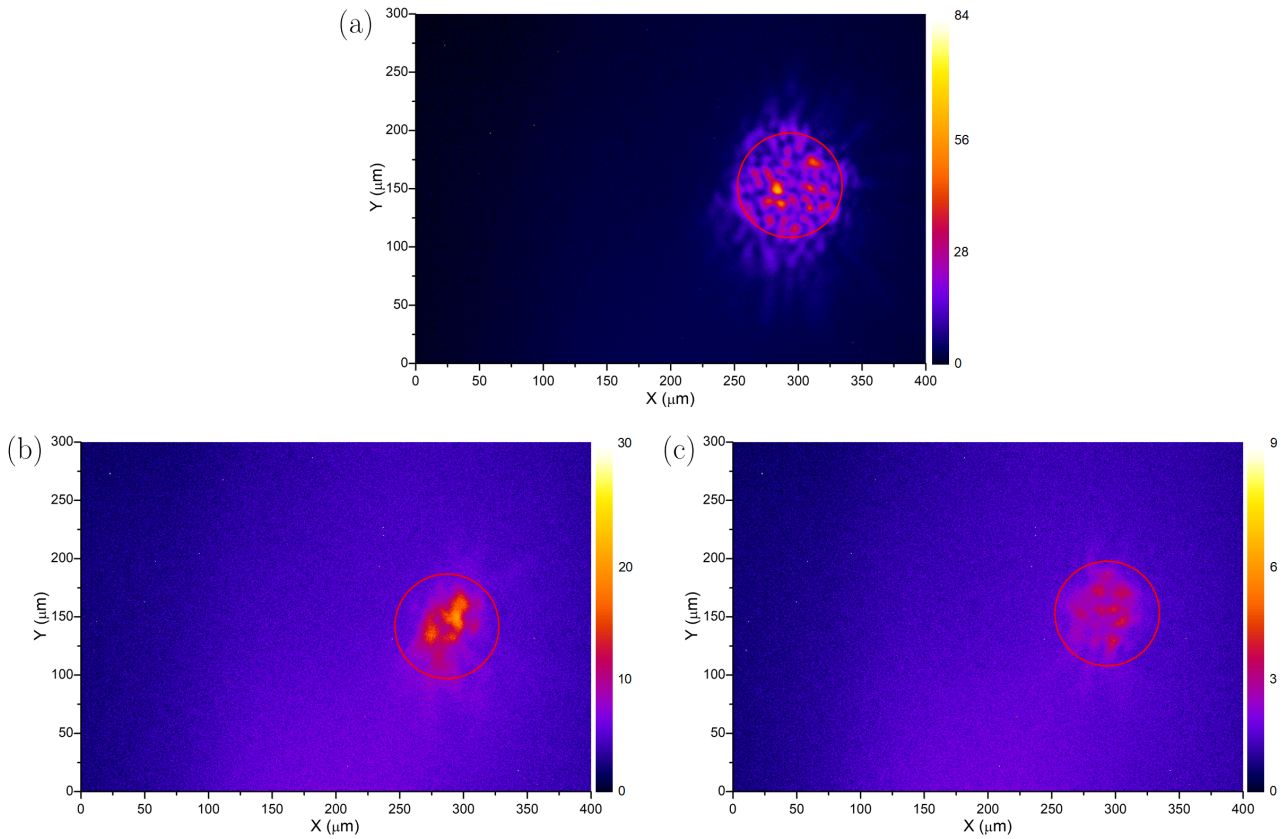


FIGURE 4.27 – Distribution de l'énergie du faisceau pompe infrarouge à pleine énergie sous vide en sortie du canal plasma créé respectivement par (a) la séquence "ignitor + heater", (b) l'impulsion ns seule, (c) l'impulsion fs seule. Le cercle rouge représente la dimension typique du canal plasma (diamètre de 80 μm).

Dans la figure 4.29, on étudie respectivement en (a) et en (b) le cas d'un guidage par l'impulsion ns seule, et celui d'un guidage par l'impulsion fs seule. Cette figure représente la transmission du canal et l'énergie XUV en fonction de l'énergie contenue dans l'impulsion considérée. L'énergie est ici ajustée en tournant la lame $\lambda/2$ du système d'atténuation en amont de la séparation des deux faisceaux.

Dans chacun des différents cas étudiés, on constate que l'optimum en terme de transmission (respectivement 35% pour le guidage par fs + ns, 15% pour le guidage par ns, et 3% pour le guidage par fs) et d'énergie XUV est obtenu systématiquement lorsque les impulsions contiennent le maximum d'énergie disponible, soit 100 mJ dans le fs et 550 mJ dans le ns. A partir de là, la transmission et l'énergie XUV ne font que décroître lorsqu'on diminue l'énergie du faisceau infrarouge, comme nous l'avons vu dans la partie précédente. On notera l'excellente corrélation entre l'évolution de l'énergie XUV et celle de la transmission du guide d'onde.

Sur la figure 4.30, on compare l'énergie XUV obtenue avec les différentes techniques de guidage en fonction de la longueur du jet. Dans tous les cas, elle est croissante avec la longueur d'amplification, ce qui témoigne de l'efficacité du guidage sur toute la longueur du jet. L'énergie la plus importante est obtenue avec le canal formé par la séquence "ignitor + heater" : cette dernière permet en effet d'atteindre de fortes densités électroniques (ici pour $\Delta t = 3,3$ ns, $n_e \approx 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) avec une transmission importante de l'infrarouge de l'ordre de 35%. Le guidage par l'impulsion fs seule et par l'impulsion ns seule permettent respectivement d'atteindre 40% et 20% du niveau de signal obtenu par le canal créé par la double impulsion fs + ns. On remarque que, bien que le guidage soit plus efficace dans le cas de l'impulsion ns seule, on obtient plus d'énergie XUV grâce à l'impulsion fs seule. Il faut souligner que l'énergie ne dépend pas seulement de la transmission du canal mais aussi, de façon complexe, de très nombreux autres paramètres tels que la géométrie du plasma, sa densité ou encore sa température qui sont autant d'inconnues dans le cas du guidage par l'impulsion fs. Notons également que les mesures effectuées (dans le cas du guidage par l'impulsion ns seule ou par la séquence fs + ns) ne rendent compte des caractéristiques du canal qu'à une position longitudinale donnée, et avant le passage du faisceau pompe. Ce dernier va induire des inhomogénéités dans le plasma dépendantes des conditions au moment de sa propagation. De plus, une étude plus systématique serait requise pour mieux comprendre comment l'énergie XUV est influencée par les conditions de couplage, notamment le couplage spatial entre le faisceau pompe et le canal, et par les conditions d'injection dont il dépend fortement.

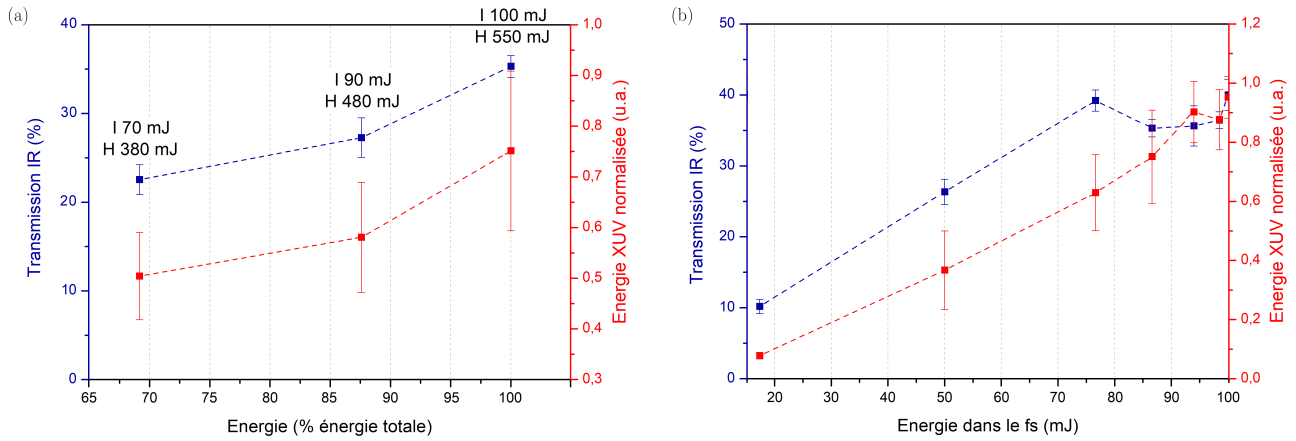


FIGURE 4.28 – Transmission du canal formé par la séquence "ignitor (I) + heater (H)" et énergie XUV en fonction (a) de l'énergie contenue dans les deux impulsions, (b) de l'énergie contenue dans l'impulsion fs.

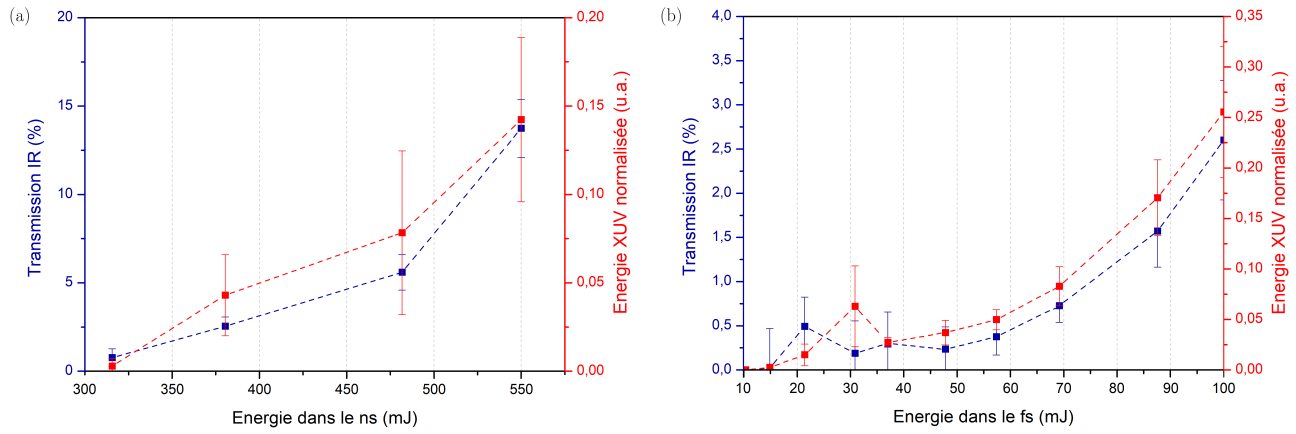


FIGURE 4.29 – Transmission du canal formé en (a) par l'impulsion ns seule et en (b) par l'impulsion fs seule, et énergie XUV en fonction de l'énergie contenue dans cette impulsion.

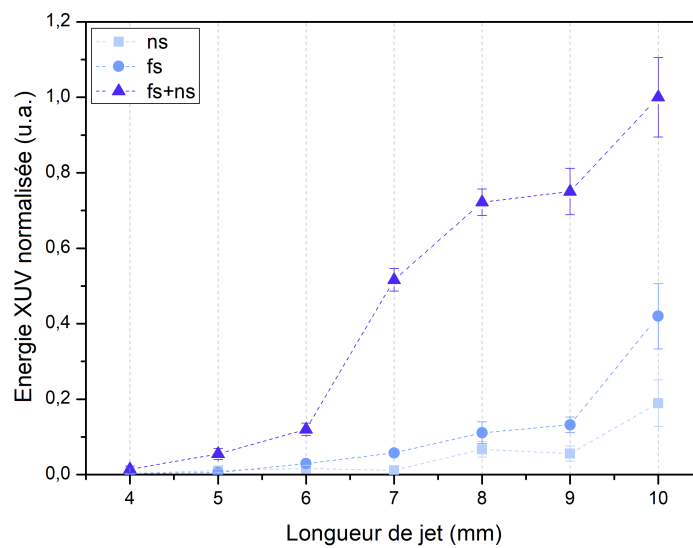


FIGURE 4.30 – Énergie XUV en fonction de la longueur de jet pour chacune des configurations de guidage.

Dans la suite de cette section, on s'intéresse à l'impact de différents paramètres sur l'efficacité du guidage par la séquence "ignitor + heater".

Influence de l'énergie du faisceau pompe

Sur la figure 4.31, on étudie l'évolution de la transmission du faisceau pompe en fonction de son énergie. On rappelle également l'évolution de l'énergie XUV en fonction de l'énergie du faisceau pompe, obtenue en 4.2.1.1. L'efficacité du guidage ne dépend pas de l'énergie pompe. La transmission est constante autour de 40% quelque soit l'énergie incidente. Notons que nous avons ici fait varier l'énergie, et donc l'intensité, d'un facteur 3. Cette variation en intensité n'est probablement pas suffisante pour modifier le profil du guide d'onde via l'ionisation, et donc la transmission du canal.

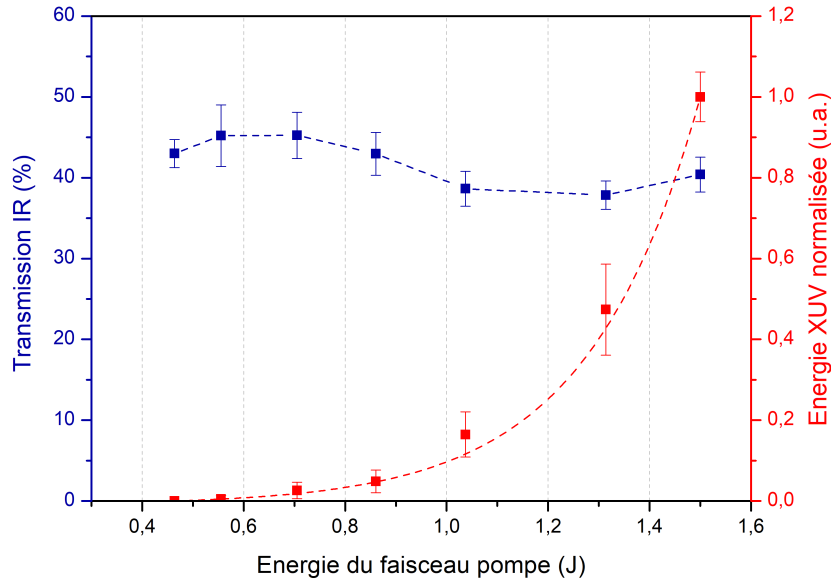


FIGURE 4.31 – Transmission du faisceau pompe en bleu et énergie XUV en rouge en fonction de l'énergie du faisceau pompe.

Influence de la longueur de jet

La figure 4.32 illustre l'évolution de la transmission du faisceau pompe en fonction de la longueur d'amplification. Toutes ces mesures ont été effectuées à une même densité électronique de $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ grâce à la platine motorisée permettant d'ajuster la longueur de jet sans changer de buse.

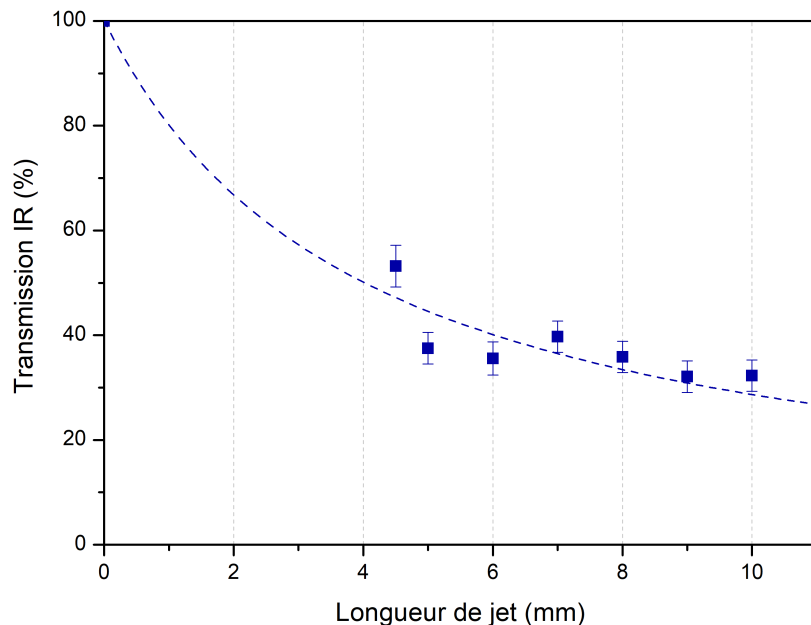


FIGURE 4.32 – Transmission du faisceau pompe en fonction de la longueur du jet.

La transmission décroît d'abord très rapidement en passant de 100% à 0 mm à 53 % à 4,5 mm : près de la moitié de l'énergie pompe est ainsi perdue au couplage. La transmission diminue ensuite plus lentement, au rythme d'environ 2% par mm, au fur et à mesure qu'on allonge le jet pour atteindre 32% à 10 mm.

Influence de la densité et de la taille du canal

La figure 4.33 montre l'évolution du canal et de la transmission du faisceau pompe et l'énergie XUV en fonction du couple diamètre du canal - densité de l'amplificateur. Ces paramètres ont été variés en ajustant le délai entre la séquence de guidage et le faisceau pompe, ainsi que la hauteur de tir par rapport à la cible. Comme nous l'avons vu précédemment, plus la densité électronique est importante, plus l'énergie du laser XUV augmente (cf 4.2.4).

Concernant la transmission, des simulations ont montré que les conditions optimales pour un guidage efficace sont un compromis entre une taille transverse du canal suffisante (au moins deux fois supérieure au waist du faisceau pompe) et un gradient de densité raide [9]. Nous retrouvons ce résultat expérimentalement ici. La transmission du canal est de l'ordre de 50% lorsque le canal est bien formé, relativement symétrique et présente des forts gradients de densité (configurations 3, 5 et 6). Pour la densité électronique moyenne de $5,2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, le canal est un peu moins creusé, ce qui résulte en une transmission un peu plus faible (environ 40%). Enfin, dans les cas 1 et 2, le canal est moins symétrique et plus étroit : une grande partie de l'infrarouge est alors perdue au couplage.

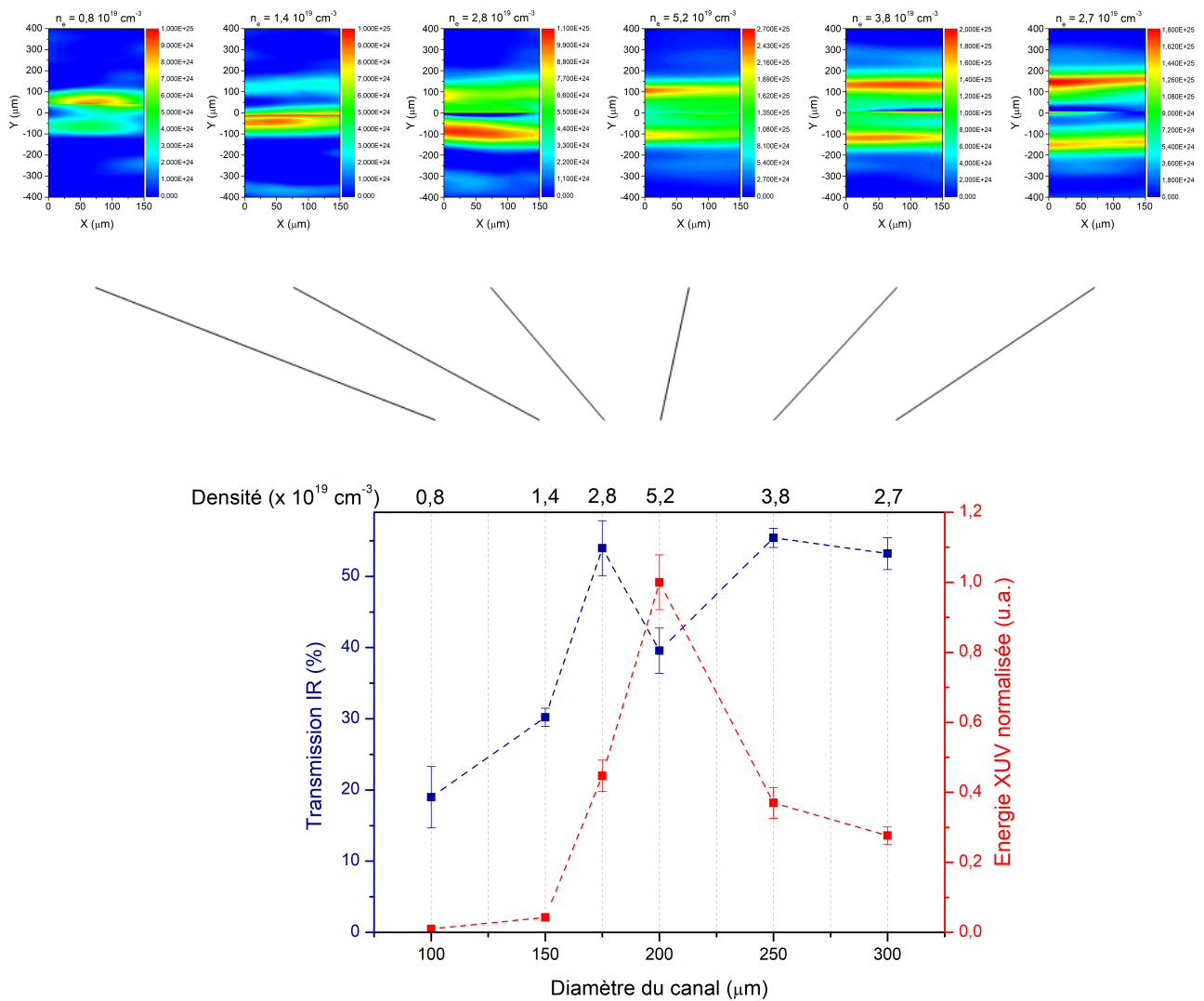


FIGURE 4.33 – Transmission du faisceau pompe en bleu et énergie XUV en rouge en fonction du diamètre et de la densité du canal. Les cartes de densité correspondantes du canal sont données en m^{-3} .

4.4 Conclusion

A travers ce chapitre, nous avons caractérisé les performances de notre source et défini les principaux paramètres pour son optimisation comme le délai d'injection harmoniques, la longueur du jet, ou encore l'énergie et la polarisation du faisceau pompe. Concernant ce dernier point, nous avons démontré théoriquement et expérimentalement la dépendance du mécanisme de chauffage du plasma à la densité électronique. Alors qu'à basse densité le chauffage est principalement assuré par OFI et favorisé par une polarisation circulaire, à haute densité le chauffage est majoritairement obtenu par diffusion Raman stimulée et est donc quasiment indépendant de la polarisation du faisceau pompe.

Nous avons également constaté l'importance primordiale de travailler à haute densité électronique en vue de favoriser l'inversion de population par excitation collisionnelle et donc d'améliorer l'énergie de notre source. Comme nous le verrons plus en détail dans le chapitre suivant et comme nous l'avons évoqué en 2.1.4.2, les fortes densités induisent également une surionisation des ions lasants responsable d'une interruption anticipée du gain et donc d'une potentielle réduction de la durée d'impulsion de la source.

En vue d'atteindre ces hautes densités, extrêmement bénéfiques, il est nécessaire de préformer un canal permettant la propagation du faisceau pompe, autrement réfracté par les électrons libres du plasma. Initialement au début de cette thèse, le canal était obtenu par la focalisation sur toute la longueur du jet d'une impulsion unique longue (quelques centaines de ps). Ce guidage bien qu'efficace en termes de transmission ne permettait cependant pas d'atteindre de très hautes densités électroniques. La ré-implémentation de la séquence de guidage constituée d'un ignitor et d'un heater a permis de découpler l'ionisation du chauffage du plasma et donc d'obtenir une densité plus importante, comme le montre la figure 4.34, qui a conduit à une augmentation de l'énergie de la source jusqu'à près de 2 μJ en régime injecté, pour une densité électronique de $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

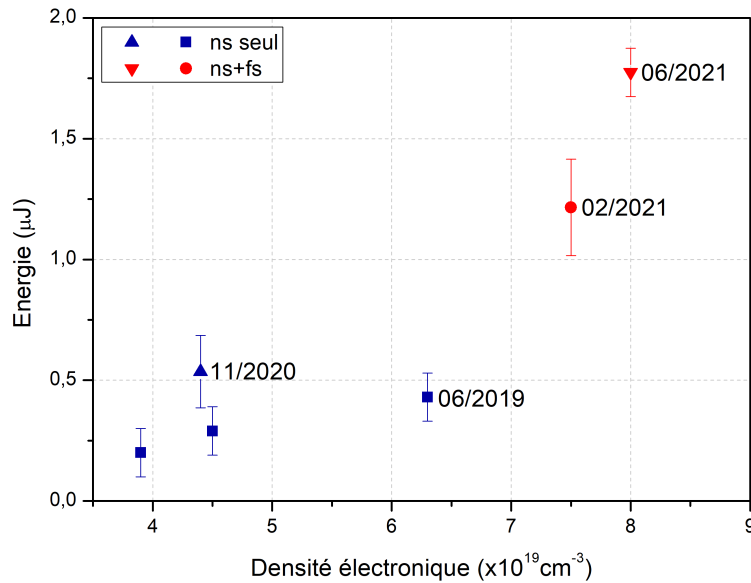


FIGURE 4.34 – Densités électroniques atteintes et énergies XUV en régime injecté correspondantes lors des principaux runs expérimentaux de la thèse. Les symboles en bleu représentent les runs pour lesquels le guidage était réalisé par l'impulsion ns seule, au contraire des runs représentés en rouge lors desquels on guidait par la séquence fs + ns.

Chapitre 5

Caractérisation temporelle d'un laser XUV collisionnel injecté par harmoniques

Après le chapitre précédent où nous avons caractérisé les performances du laser XUV injecté, nous nous penchons maintenant sur l'étude de son profil temporel. L'objectif de ce chapitre est de développer un diagnostic innovant permettant la mesure du profil temporel de l'impulsion XUV en un tir unique avec une résolution de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes. Après avoir effectué un rapide état de l'art des techniques de mesures de durée existantes, nous expliquerons le principe du diagnostic développé dans le cadre de cette thèse, basé sur l'irradiation simultanée d'un miroir multicouches par l'impulsion XUV dont on souhaite mesurer le profil temporel et une impulsion pompe infrarouge ultra-courte dont le front d'onde est incliné par rapport à la surface du miroir. Différentes méthodes de reconstruction du profil temporel seront exposées. Nous utiliserons ensuite ce diagnostic pour étudier l'évolution de la durée de l'impulsion XUV en fonction de la densité électronique du plasma amplificateur. Nous avons l'espoir que l'augmentation de la densité pourra permettre la réduction de la durée d'impulsion jusqu'à la gamme femtoseconde via l'interruption anticipée du gain évoquée dans le chapitre 2.

Sommaire

5.1	Diagnostic de mesure du profil temporel d'une impulsion laser XUV	118
5.1.1	Etat de l'art	118
5.1.2	Principe du diagnostic	121
5.1.3	Alignement du diagnostic	123
5.1.4	Mesure de la calibration	124
5.1.5	Méthodes de reconstruction du profil temporel	126
5.2	Influence de la densité électronique sur la durée	138
5.2.1	Interruption anticipée du gain	140
5.2.2	Réduction de la durée d'impulsion à haute densité	141
5.3	Conclusion	143

5.1 Diagnostic de mesure du profil temporel d'une impulsion laser XUV

5.1.1 Etat de l'art

Avant de présenter le diagnostic développé dans le cadre de cette thèse, nous explorons dans cette partie les différentes techniques existantes permettant la mesure de la durée ou du profil temporel d'une impulsion XUV.

Caméras streak

L'un des instruments les plus utilisés pour mesurer le profil temporel d'une impulsion XUV est une caméra streak, ou caméra à balayage. Le principe de cette caméra est illustré sur la figure 5.1 : le faisceau XUV est envoyé sur une photocathode, créant ainsi un train de photoélectrons dont l'intensité est proportionnelle à l'intensité optique incidente. Les électrons sont ensuite accélérés à travers une paire d'électrodes. La haute tension appliquée à ces électrodes varie rapidement dans le temps, de sorte à ce que les électrons soient défléchis par un angle qui dépend du temps. Les photoélectrons ainsi dispersés arrivent sur un écran phosphorescent qui les reconvertit en lumière. La distribution spatiale de l'intensité sur l'écran permet ainsi l'observation du profil temporel de l'impulsion XUV. Des résolutions temporelles optimales de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes sont promises avec cette technique [206][207].

Néanmoins, les performances de ces caméras sont limitées par la charge d'espace : une forte densité de photoélectrons résulte en une dégradation de la résolution due aux importantes répulsions coulombiennes entre les électrons, tandis qu'une faible densité de photoélectrons induit une plage dynamique réduite. En pratique, les caméras streak ont déjà été utilisées pour mesurer la durée d'impulsion d'un laser XUV injecté [118] avec une résolution effective de 1,5 ps, limitée par ces effets.

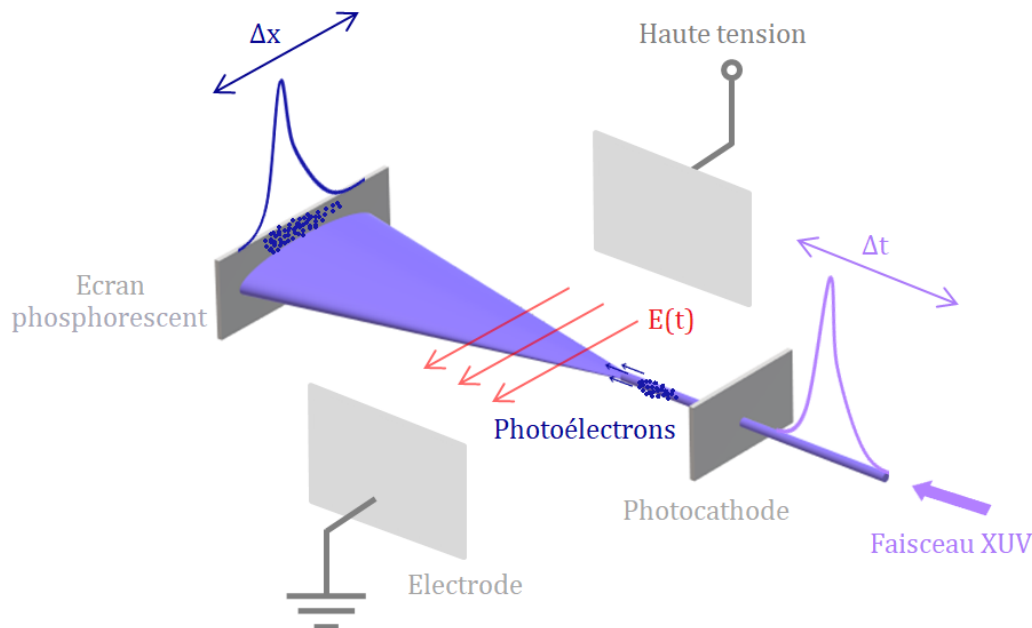


FIGURE 5.1 – Schéma de principe de la caméra streak.

Autocorrélation

Une seconde méthode repose sur l'autocorrélation, une technique largement employée dans l'infrarouge : on focalise l'impulsion qu'on souhaite caractériser et sa réplique dans un cristal non linéaire. On étudie le signal de la seconde harmonique ainsi générée en faisant varier le délai entre les deux impulsions.

Cette technique est applicable dans la gamme spectrale des XUV : on mesure alors le spectre des photoélectrons produits dans un gaz rare par un effet d'ionisation à deux photons [208][209]. La résolution de cette technique est limitée par la durée de l'impulsion XUV. Les inconvénients de cette technique sont qu'elle nécessite un grand nombre de tirs consécutifs, et qu'elle ne permet pas de rendre compte des asymétries de l'impulsion et de distinguer le front avant de l'impulsion.

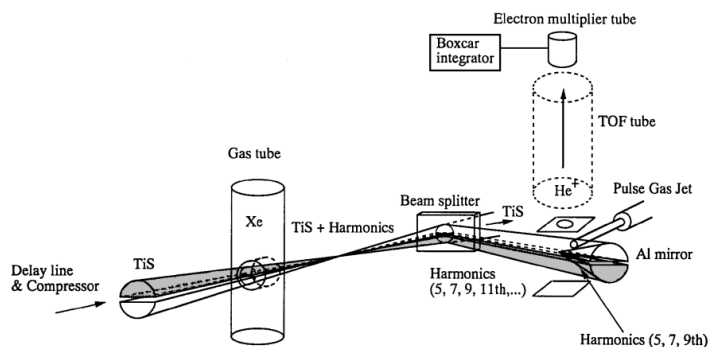


FIGURE 5.2 – Schéma du montage utilisé dans [208] pour la caractérisation temporelle de l’harmonique 9 d’un Ti :Sa par autocorrélation.

Photoionisation habillée par laser

La technique décrite ici repose sur la photoionisation induite par l’impulsion XUV en présence d’un champ infrarouge modérément intense. L’énergie cinétique des photoélectrons ainsi libérés dépend de la période T du champ infrarouge par rapport à la durée d’impulsion τ_{XUV} . Si $\tau_{XUV} \ll T$, on observe un décalage et un élargissement du spectre en énergie des photoélectrons en changeant le délai entre les impulsions [210] (cf fig. 5.3). La technique dite de THz streaking, basée sur ce phénomène, utilise un champ infrarouge THz et a notamment permis de mesurer des impulsions sur XFEL en un tir unique [211]. Si au contraire, $\tau_{XUV} \gg T$, on observe l’apparition de sidebands dont l’intensité varie en fonction du délai entre les deux impulsions [212][213][214][215][216] (cf fig. 5.4). L’observation de ces changements dans le spectre des photoélectrons permet la mesure du profil temporel avec une résolution limitée à la durée de l’impulsion infrarouge. Cette technique nécessite néanmoins de faire varier le délai entre les impulsions XUV et infrarouge et ne peut donc être effectuée en un seul tir.

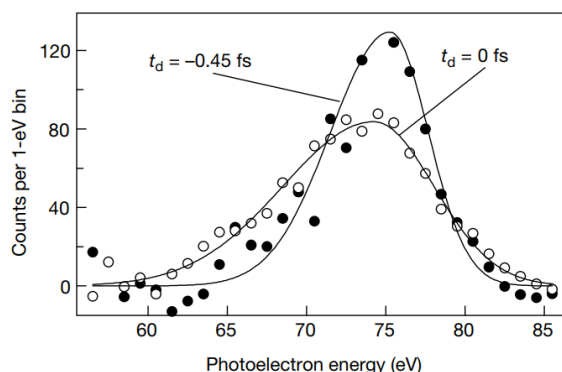


FIGURE 5.3 – Spectre en énergie des photoélectrons mesurés dans [210]. t_d correspond au délai entre les deux impulsions.

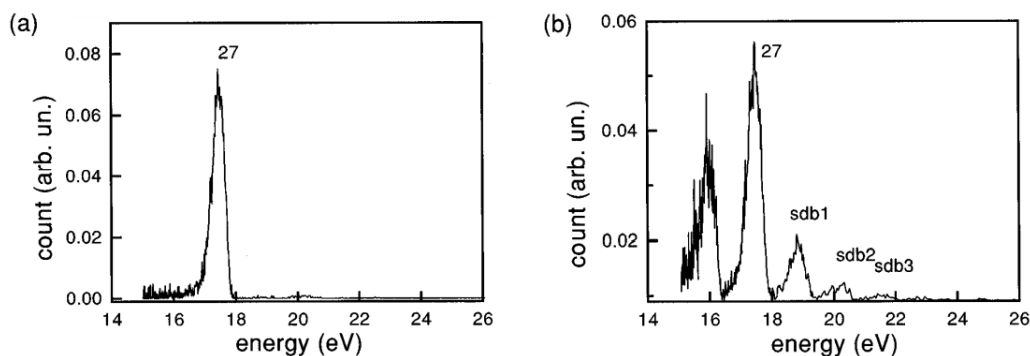


FIGURE 5.4 – Spectres en énergie des photoélectrons mesurés dans [213] dans le cadre de la mesure de durée de l’harmonique 27 d’un Ti :Sa. En (a), l’infrarouge et l’XUV sont désynchronisés. En (b), l’infrarouge et l’XUV sont synchronisés ce qui provoque l’apparition de sidebands.

Absorption résonnante des XUV par un gaz ionisé par OFI

Une autre méthode consiste à tirer profit du changement rapide de la transmission d'un gaz ionisé par OFI [217][218][219][220]. L'impulsion XUV à caractériser temporellement et une impulsion infrarouge sont focalisées dans un jet de krypton. L'impulsion infrarouge provoque l'augmentation de la population d'ions Kr^+ par OFI, ce qui induit une modification de l'absorption des XUV. Le changement de population du krypton neutre opaque au Kr^+ transparent est effectué rapidement, sur une durée inférieure à la durée d'impulsion infrarouge ce qui permet la mesure du profil temporel avec une excellente résolution. En revanche, cette technique nécessite, comme les précédentes, de scanner le délai de l'impulsion infrarouge, et s'effectue donc sur plusieurs tirs (typiquement plusieurs centaines ici).

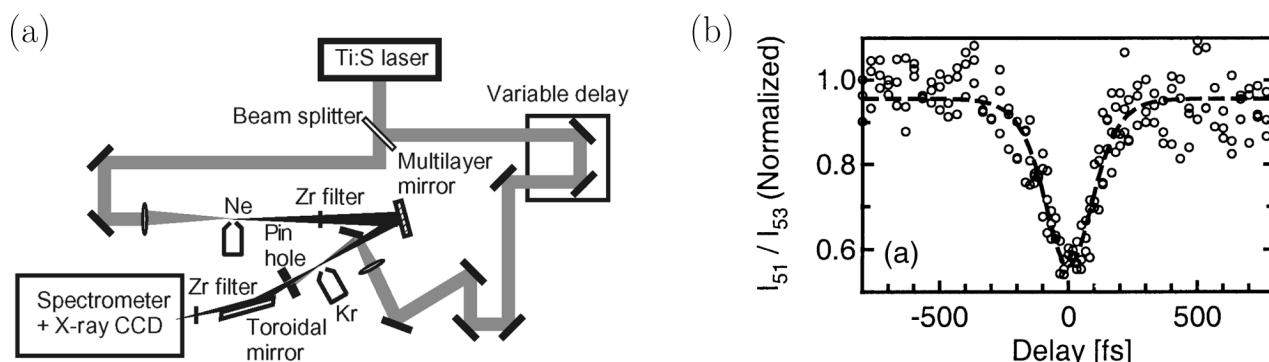


FIGURE 5.5 – (a) Schéma de l'expérience utilisée en [220]. (b) Absorption de l'harmonique 51 d'un Ti :Sa en fonction du délai entre les impulsions pompe et sonde.

Modification des propriétés optiques d'un matériau induit par l'absorption des XUV

Dans cette technique, un échantillon (typiquement GaAs) est éclairé simultanément par une impulsion pompe XUV et par une impulsion sonde visible ou infrarouge. L'absorption des XUV par l'échantillon induit un changement de sa réflectivité [221][222] ou de sa transmission [223]. Le profil temporel de l'impulsion XUV est donné par la mesure du signal du faisceau sonde en fonction du délai entre les deux impulsions. Une mesure en un tir unique est possible sous réserve d'une géométrie à front d'onde incliné par rapport à la surface de l'échantillon. Cette technique n'est pas utilisable dans notre cas mais convient bien aux LELs, puisqu'elle nécessite un grand nombre de photons XUV pour induire la modification des propriétés de l'échantillon.

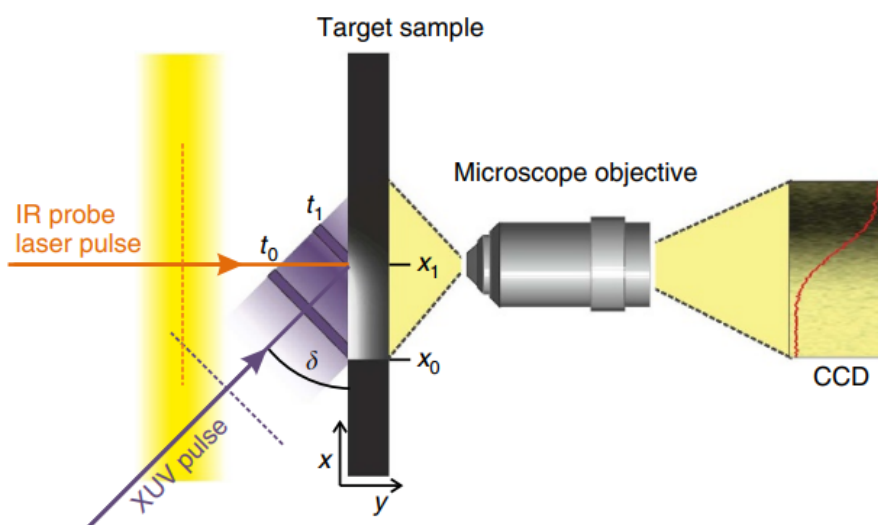


FIGURE 5.6 – Schéma de principe de cette technique issue de [223] : l'impulsion pompe XUV induit ici la modification de la transmission de l'échantillon. La géométrie utilisée dans ce cas permet une mesure du profil temporel en un tir unique.

5.1.2 Principe du diagnostic

Le diagnostic développé dans le cadre de cette thèse a l'avantage de permettre une mesure d'un profil temporel XUV même asymétrique en un tir unique, là où la plupart des techniques présentées précédemment requièrent plusieurs tirs ou au moins la connaissance préliminaire d'une référence, avec une résolution de l'ordre de 200 fs. Ce diagnostic est schématisé sur la figure 5.7. Il est basé sur une technique de type pompe-sonde, et repose sur la chute soudaine de la réflectivité d'un miroir multicouches XUV (noté M1) endommagé par une impulsion pompe infrarouge ultra-intense. Ce miroir est constitué d'un substrat en silicium recouvert de 18 couches de B_4C/Si de 18,6 nm d'épaisseur chacune. Le faisceau XUV dont on souhaite mesurer le profil temporel est ainsi réfléchi en incidence quasi-normale par M1 avec une réflectivité de 25%. La surface de M1 est imagée par un miroir sphérique XUV de focale $f' = 500$ mm (noté M2) sur une caméra CCC XUV d'efficacité quantique environ 60% avec un grandissement compris, en fonction des différentes séances expérimentales, entre 2 et 4. Simultanément le faisceau pompe infrarouge (20 mJ, 30 fs), prélevé sur le faisceau pompe de l'amplificateur pour permettre une mesure sans jitter, est focalisé en une ligne de 8 mm de long par un miroir sphérique (noté M3) de focale $f' = 300$ mm à un angle d'incidence θ . Cet angle est compris entre 30° et 38° en fonction de la campagne de mesures. L'excitation rapide du silicium à 800 nm provoque l'ablation du miroir M1 en un temps inférieur à la durée de l'impulsion, soit 30 fs [224]. Il en résulte une chute soudaine et rapide de la réflectivité du multicouches dont l'extinction totale est assurée par une fluence supérieure à $0,2 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$ [225], ce qui équivaut à une intensité supérieure à quelques $10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'intensité du faisceau infrarouge est en pratique de l'ordre de quelques $10^{13} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

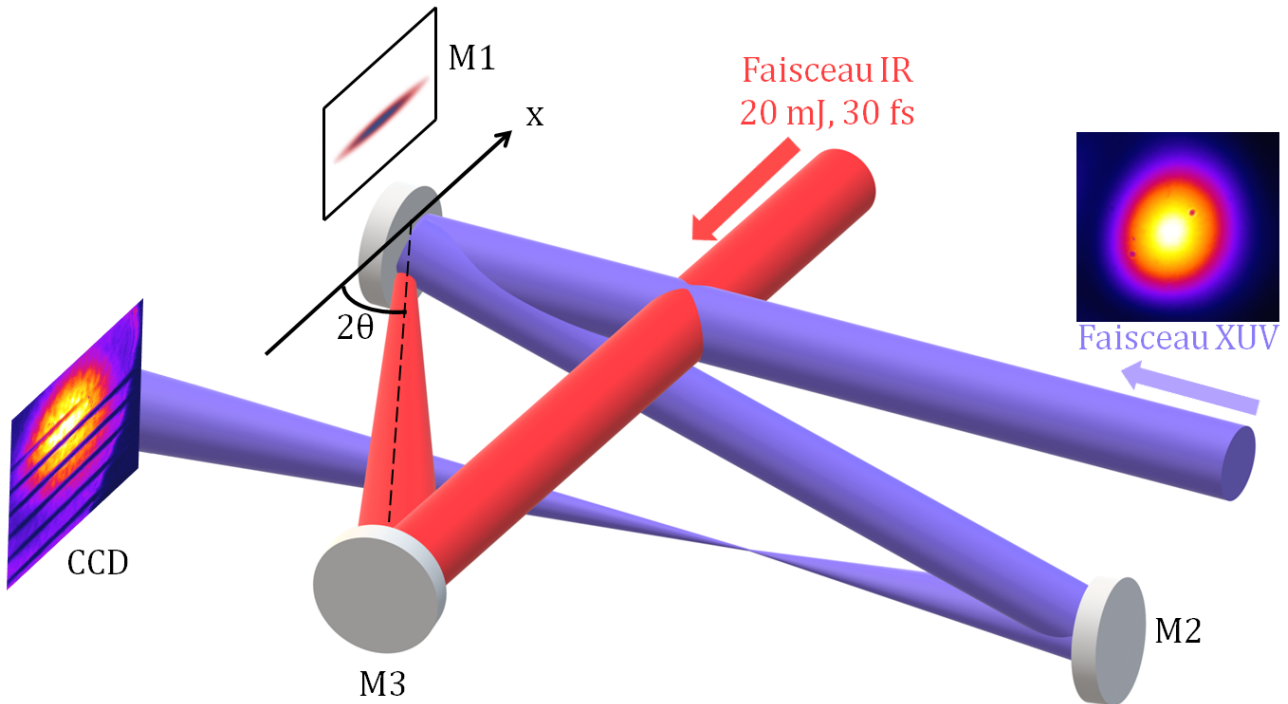


FIGURE 5.7 – Schéma du diagnostic de mesure du profil temporel. Le faisceau XUV arrive en incidence quasi-normale sur un miroir multicouches XUV (M1). Ce dernier est imagé sur une caméra CCD XUV par un miroir sphérique XUV (M2). Simultanément, un faisceau infrarouge (20 mJ, 30 fs) est focalisé par un miroir sphérique (M3) en une ligne focale sur la surface de M1. Un exemple de tir de mesure du profil temporel est illustré à l'emplacement de la CCD.

Le front d'onde du faisceau pompe étant incliné par rapport à la surface du multicouches, l'énergie infrarouge est déposée progressivement dans le temps le long de la ligne focale [91][226]. On peut ainsi relier la coordonnée spatiale x dans le plan du multicouches au temps τ , moment d'arrivée de l'infrarouge, par la relation :

$$\tau = \frac{x \cdot \cos(2\theta)}{c} \quad (5.1)$$

La fenêtre temporelle qui peut être sondée par cette technique est ainsi déterminée par l'extension spatiale du faisceau XUV dans la direction x , ce qui correspond ici à une fenêtre d'environ 4 ps suffisante par rapport aux durées attendues.

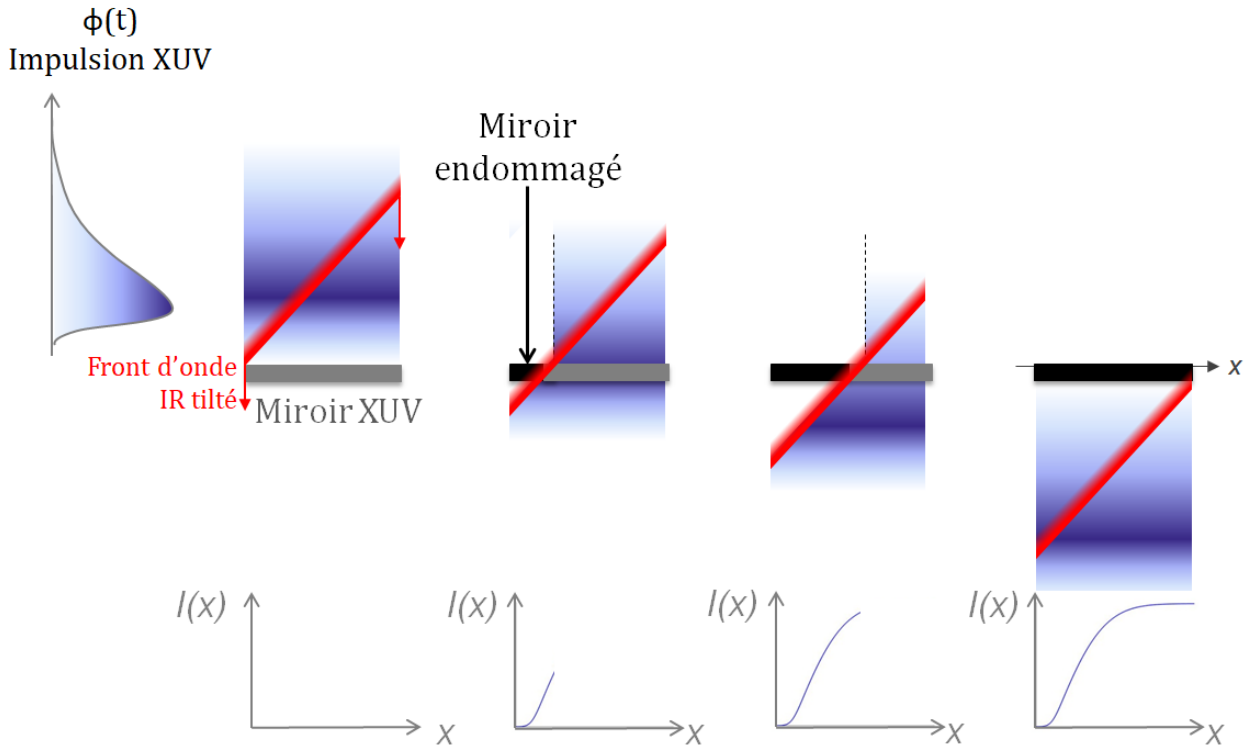


FIGURE 5.8 – Principe du diagnostic de mesure du profil temporel : irradiation simultanée du miroir multicouches par l'impulsion XUV dont on souhaite mesurer le profil temporel, et une impulsion infrarouge de front d'onde incliné ablatant le miroir. Différents instants successifs sont représentés. $I(x)$ est le profil spatial du faisceau XUV réfléchi par le miroir multicouches endommagé par la ligne infrarouge. $I_0(x)$, le profil spatial de référence du faisceau XUV, est supposé constant dans cette figure pour faciliter la représentation.

Le principe de la mesure est représenté sur la figure 5.8 qui montre, à différents instants, l'irradiation simultanée du miroir multicouches par une impulsion XUV et une impulsion infrarouge dont le front d'onde est incliné par rapport à la normale du miroir. Le multicouches est réfléchissant avant que la pompe infrarouge ne soit déposée, mais absorbant dès lors qu'il est endommagé. On peut alors définir la fonction R , représentant la réflectivité du miroir XUV, comme une distribution d'Heaviside :

$$R(t) = \begin{cases} 1 & \text{si } t < \tau \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (5.2)$$

On considère ici que le miroir devient instantanément absorbant à l'arrivée de l'impulsion. Cette hypothèse est valide puisque la chute de la réflectivité, induite par l'ablation du multicouches, se produit sur une durée de l'ordre de 30 fs, bien inférieure à la durée de l'impulsion XUV. Le principe de cette technique est similaire à celui utilisé pour les mesures de type "knife-edge" [227] : au lieu d'insérer progressivement une lame de rasoir dans le faisceau et d'en bloquer la transmission, on dégrade progressivement la réflectivité du multicouches.

Le profil spatial I du faisceau XUV réfléchi par le miroir endommagé peut donc être exprimé comme le produit de I_0 le profil spatial de référence du faisceau XUV (i.e. réfléchi par le miroir non endommagé), par le profil temporel ϕ de l'impulsion XUV qu'on souhaite mesurer, intégré jusqu'au temps τ moment d'arrivée de l'impulsion infrarouge :

$$I(x) = I_0(x) \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) R(t - \tau) dt = I_0(x) \int_{-\infty}^{\tau} \phi(t) dt \quad (5.3)$$

On peut ainsi déduire ϕ en dérivant l'équation (5.3) par rapport à τ . On notera que ce calcul est plus simple en partant de la première expression (utilisant R) puisque τ se situe alors dans l'intégrande et pas dans l'une des bornes :

$$\frac{d}{d\tau} \left[\frac{I}{I_0}(x) \right] = \frac{d}{d\tau} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) R(t - \tau) dt \right] \quad (5.4)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) \frac{d}{d\tau} [R(t - \tau)] dt \quad (5.5)$$

$$\propto \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t) \delta(t - \tau) dt \quad (5.6)$$

avec δ une distribution de Dirac issue de la dérivée de la distribution d'Heaviside. Il vient donc :

$$\phi(\tau) \propto \frac{d}{d\tau} \left[\frac{I}{I_0} \left(x = \frac{c \cdot \tau}{\cos(2\theta)} \right) \right] \quad (5.7)$$

On soulignera que lorsque l'impulsion infrarouge arrive le plus tôt, i.e. pour les temps τ courts, on observe l'évènement le plus ancien et donc le début de l'impulsion XUV.

Le diagnostic ainsi développé permet de mesurer un profil temporel quelconque d'impulsion XUV en un tir unique, ce qui permet de s'affranchir de l'instabilité tir à tir de la source, puisque la référence I_0 peut être extraite du même tir que le profil I . Cette technique peut être utilisée pour la plupart des sources rapides et ultra-rapides dans la gamme spectrale des XUV en adaptant le choix du multicouches à la longueur d'onde considérée. Néanmoins, il faut que la source étudiée soit suffisamment énergétique puisqu'un grand nombre de photons est perdu par réflexion sur les différentes optiques et par transmission par les indispensables films en aluminium. Dans notre cas, les mesures ont pu être réalisées avec un minimum de 10^{10} photons. Rappelons également que la fenêtre temporelle sondée dépend de l'extension spatiale du faisceau XUV, mais peut-être ajustée par la vitesse de dépôt de la ligne grâce à l'angle θ .

5.1.3 Alignement du diagnostic

La figure 5.9 est une photo du diagnostic de mesure du profil temporel. La propagation des faisceaux s'effectue en pratique dans deux plans différents : le faisceau infrarouge se propage dans un plan horizontal à une hauteur de 30 cm environ par rapport au fond de l'enceinte. Ce plan est aussi celui dans lequel le faisceau XUV arrive en incidence quasi-normale sur le miroir multicouches. Ce dernier est incliné légèrement vers le bas, en direction de M2 qui envoie le faisceau vers la caméra XUV dans un plan horizontal à environ 5 cm de hauteur par rapport au fond de l'enceinte.

Le miroir M1 est monté sur une platine de translation verticale. Celle-ci est inclinée suivant le même angle que M1, ce qui permettra d'effectuer plusieurs mesures de profil temporel consécutives sans avoir à retravailler l'imagerie et la focalisation de la ligne infrarouge entre deux tirs. M1 et cette platine sont installés sur un système de platines tridirectionnelles dont :

- la direction latérale permet de viser une autre zone du multicouches.
- la direction verticale permet d'éclipser le multicouches pour laisser le faisceau XUV se propager en direction d'autres diagnostics.
- la direction longitudinale peut être utilisée pour ajuster l'imagerie du multicouches sur la CCD et/ou la focalisation de la ligne infrarouge.

Pour l'alignement préalable du diagnostic, on utilise un He :Ne superposé au faisceau infrarouge des harmoniques pour simuler le faisceau XUV. L'imagerie du multicouches sur la caméra XUV est réalisée en éclairant un morceau de scotch collé sur M1 par l'He :Ne. On optimise alors la résolution du bord vertical du scotch en translatant longitudinalement M1, M2 ou la caméra elle-même.

Le faisceau infrarouge est, quant à lui, focalisé avec une incidence θ de l'ordre de 30° sur M1. La ligne focale infrarouge est observée en direct par une CCD qui image la surface du multicouches. La focalisation de la ligne est optimisée en ajustant le tilt latéral de M3. La ligne infrarouge est superposée spatialement à l'He :Ne sur la surface du multicouches dans la direction verticale en ajustant le tilt vertical de M3, et dans la direction latérale en ajustant la translation de M3 suivant la direction horizontale sur la figure 5.9.

Un alignement plus fin est ensuite réalisé sous vide grâce à la motorisation de tous les tilts et de toutes les platines. La focalisation de la ligne infrarouge est réalisée directement en optimisant la finesse du cratère formé par l'ablation. La position de la ligne est ajustée de sorte à ce qu'elle soit centrée sur l'XUV. La synchronisation

des deux faisceaux est finalement assurée en scannant la ligne à retard motorisée du faisceau pompe infrarouge. Des films en aluminium, positionnés juste après le jet de gaz et juste devant la CCD, permettent de couper l'infrarouge provenant des faisceaux utilisés respectivement pour pomper l'amplificateur et le multicouches.

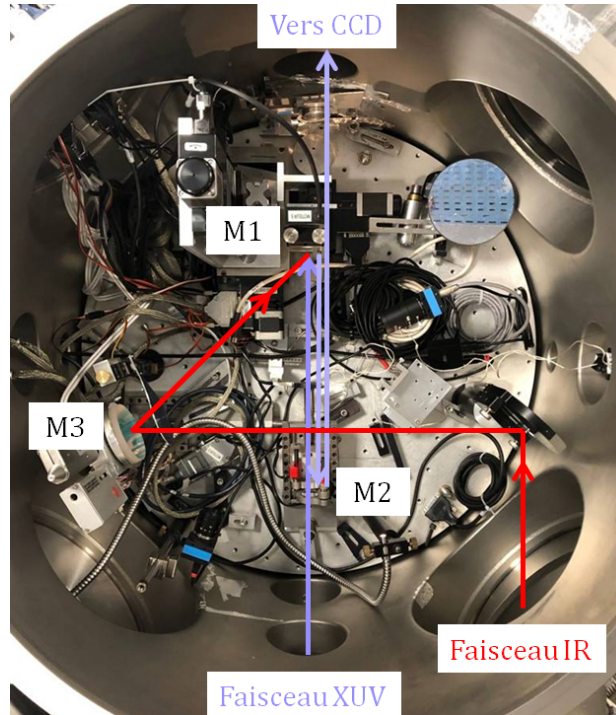


FIGURE 5.9 – Photo du diagnostic de mesure du profil temporel.

5.1.4 Mesure de la calibration

La calibration entre les coordonnées spatiale x et temporelle τ dépend d'une part de la vitesse de dépôt de la ligne infrarouge induite par l'angle θ , et d'autre part du grandissement γ avec lequel on image le miroir. La vitesse de dépôt de la ligne dans le plan de la surface de M1 est donnée par $c/\cos(2\theta)$. La figure 5.10 (a) trace la vitesse de dépôt de la ligne sur le multicouches. θ est dans notre cas compris entre 30° et 38° en fonction de la campagne expérimentale, ce qui résulte en une vitesse de dépôt sur le multicouches comprise entre $2c$ et $4c$. Notons qu'il s'agit d'une vitesse "virtuelle" induite par la géométrie du montage dans une direction non colinéaire aux rayons lumineux. La figure (b) illustre la vitesse équivalente perçue à la CCD, en fonction de θ et de γ , compris dans notre cas entre 2 et 4. Cela conduit à une vitesse de dépôt perçue à la caméra, équivalente à la valeur de calibration, comprise entre 3 fs/pix et 12 fs/pix en fonction du run expérimental considéré.

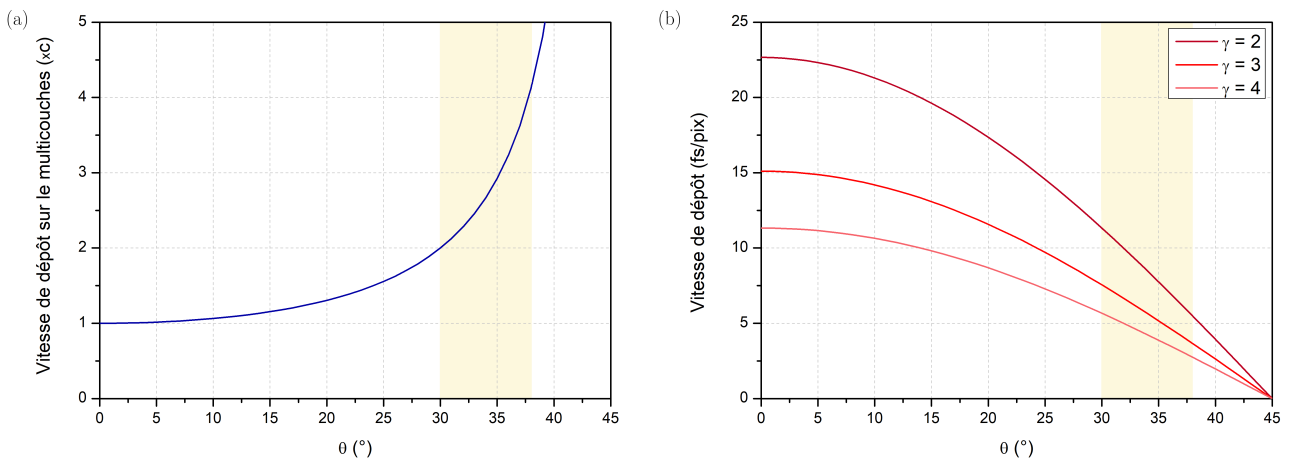


FIGURE 5.10 – (a) Vitesse de dépôt de la ligne sur le multicouches en fonction de l'angle θ . (b) Vitesse de dépôt de la ligne perçue sur la caméra en fonction de l'angle θ et du grandissement γ . La zone en jaune représente la gamme explorée lors des différentes campagnes expérimentales.

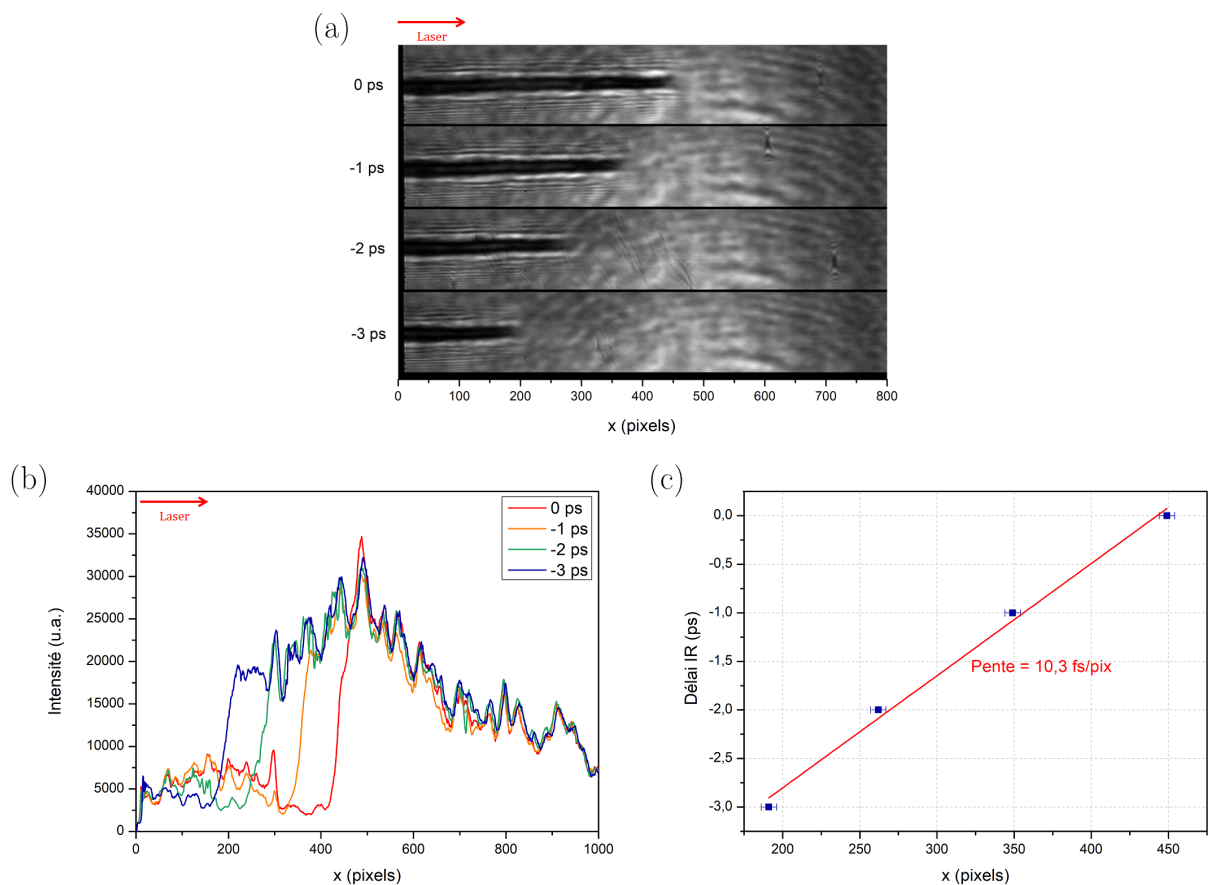


FIGURE 5.11 – Mesure de la calibration en infrarouge/infrarouge : (a) Tirs consécutifs obtenus respectivement en allongeant le délai de la ligne à retard du faisceau pompe de $300 \mu\text{m} = 1 \text{ ps}$ à chaque fois. (b) Coupes suivant x de ces différents tirs. (c) Régression linéaire entre la position de la chute en pixels et le délai de la ligne à retard en ps.

La mesure de la calibration entre les coordonnées spatiale et temporelle est effectuée en scannant la ligne à retard motorisée du faisceau infrarouge utilisé pour pomper le miroir. Elle peut être réalisée en infrarouge/infrarouge ou en infrarouge/XUV.

Un exemple de calibration infrarouge/infrarouge est représenté sur la figure 5.11. On a remplacé le multicouches par un miroir argent et on envoie en temps que sonde le faisceau infrarouge utilisé pour pomper le plasma amplificateur. En (a), on observe quatre tirs obtenus respectivement en rallongeant à chaque fois la ligne à retard du faisceau qui pompe le miroir de $300 \mu\text{m}$ (aller-retour compris), soit 1 ps . La ligne infrarouge se propage de la gauche vers la droite. Plus on allonge le trajet du faisceau pompe, moins la ligne a eu le temps de se propager, et donc plus elle s'interrompt tôt i.e. pour les x petits. La figure (b) représente la coupe suivant x de ces différents tirs. Pour la calibration, on calcule la pente de la régression linéaire entre le délai de la ligne à retard et la position en pixels de la mi-hauteur de la transition en intensité. On soulignera ici la rapidité de cette transition, induite par la durée ultra-courte (30 fs) de l'impulsion sondée. Dans ce cas, on mesure une calibration d'environ 10 fs/pix .

Sur la figure 5.12, on réalise la calibration directement en infrarouge/XUV qui présente l'avantage de pouvoir être réalisée directement sur le multicouches en même temps qu'une mesure du profil temporel. La figure (a) illustre trois tirs consécutifs obtenus respectivement en allongeant le délai de $100 \mu\text{m}$, soit 333 fs . Comme précédemment, la figure (b) montre les coupes suivant x des différents tirs et la figure (c) la régression linéaire qui permet de déduire la valeur de la calibration. On mesure ici une calibration de $5,5 \text{ fs/pix}$. On remarquera que cette mesure est moins précise que la précédente : la durée d'impulsion XUV est bien plus longue que 30 fs , la transition en intensité est donc moins raide qu'auparavant. En considérant une erreur de ± 5 pixels sur la position de la chute (à mi-hauteur) pour un délai donné, on estime que l'erreur sur la mesure de la pente est de $0,5 \text{ fs/pix}$. La valeur de calibration obtenue ici est différente de la précédente puisqu'elle a été obtenue lors d'un autre run expérimental pour lequel l'angle θ était plus grand, et le grandissement γ plus faible. Les valeurs des calibrations obtenues par l'une ou l'autre de ces méthodes lors des différentes campagnes expérimentales ont en effet été vérifiées par l'estimation de la vitesse de dépôt par calcul direct via la mesure géométrie de θ et γ .

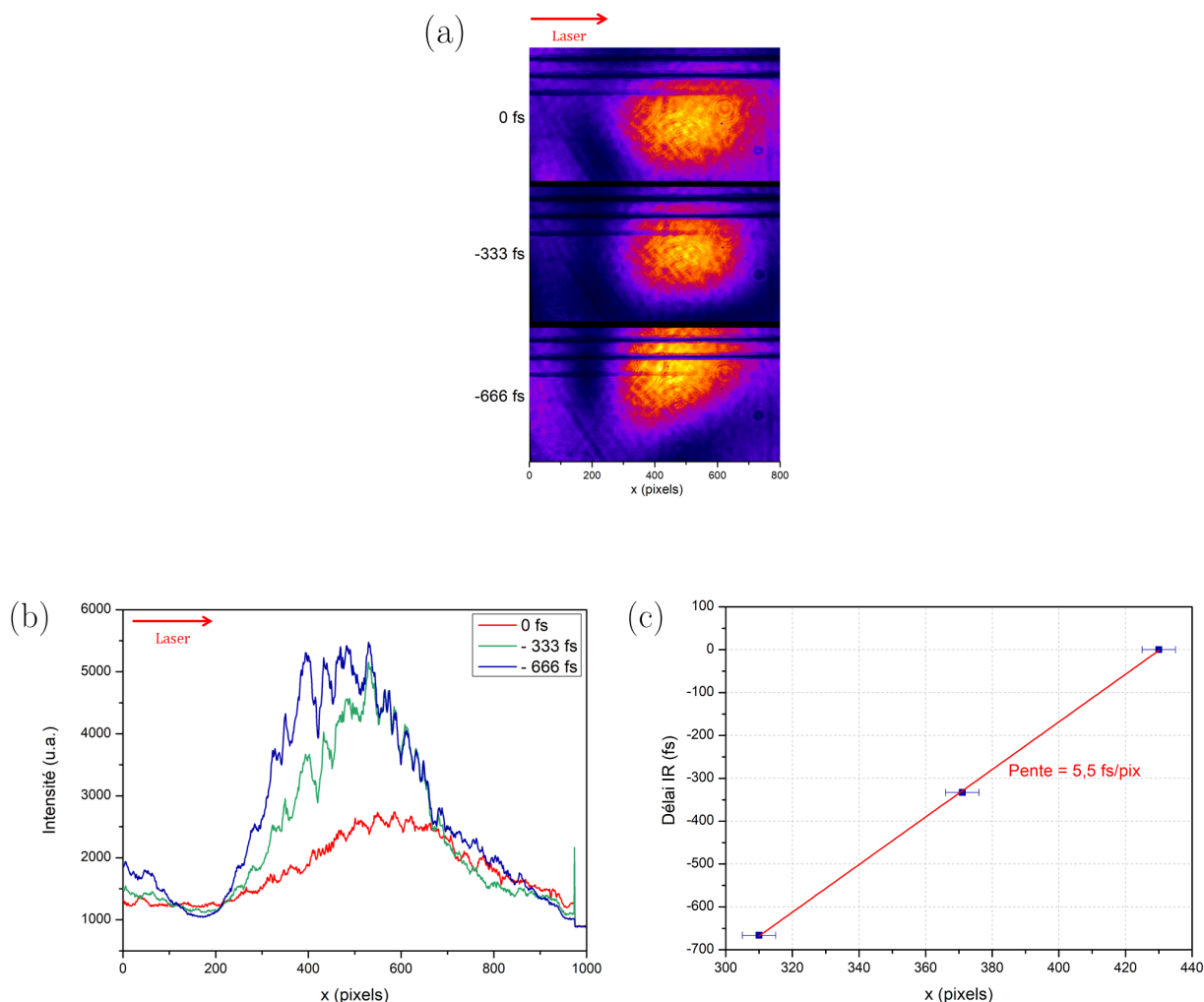


FIGURE 5.12 – Mesure de la calibration en infrarouge/XUV : (a) Tirs consécutifs obtenus respectivement en allongeant le délai de la ligne à retard du faisceau pompe de $100\ \mu\text{m} = 333\ \text{fs}$ à chaque fois. (b) Coupes suivant x de ces différents tirs. (c) Régression linéaire entre la position de la chute en pixels et le délai de la ligne à retard en fs.

5.1.5 Méthodes de reconstruction du profil temporel

Nous avons vu par l'équation (5.7) que le profil temporel de l'impulsion XUV pouvait être déduit de la dérivée du ratio I/I_0 . Dans cette section, nous allons expliquer comment la reconstruction de ce profil est effectuée numériquement.

La figure 5.13 montre un exemple de tir de mesure du profil temporel, effectué pour un jet de $10\ \text{mm}$, et une densité électronique de $7,6 \times 10^{19}\ \text{cm}^{-3}$. On y observe le profil spatial du faisceau XUV, qui présente quelques granularités induites par la réflexion sur les différentes optiques XUV. Le diagnostic étant placé à environ $3\ \text{m}$ de la source et la divergence du faisceau étant de l'ordre de $1\ \text{mrad}$, son extension spatiale sur le multicouches est de l'ordre de $3\ \text{mm}$. La ligne du haut représente la mesure en cours : la ligne infrarouge est en train de se propager. Les lignes du bas représentent des cratères issus des tirs précédents pour lesquels la ligne infrarouge s'est déjà propagée. Sur un unique tir, on peut donc mesurer I_0 , le profil spatial de référence du faisceau XUV, réfléchi par le miroir non endommagé, et I le profil spatial du faisceau XUV réfléchi par le multicouches en cours d'ablation par la ligne infrarouge. Ces profils sont moyennés sur une quinzaine de lignes de pixels pour permettre leur lissage en évitant toute dégradation de la résolution. On notera qu'on effectue la mesure au centre du faisceau XUV et que les profils sont mesurés le plus proche possible l'un de l'autre pour que I_0 puisse être considéré comme une réelle référence.

La difficulté majeure de la reconstruction du profil temporel est qu'il est primordial de s'affranchir des irrégularités spatiales contenues dans I et I_0 qui ne sont pas induites par le profil temporel et qui seraient amplifiées par le processus numérique de reconstruction, en particulier par la dérivation. Notons qu'il est nécessaire que le ratio I/I_0 soit monotone pour que le profil temporel, qui est la dérivée de ce ratio, soit positif et ait un sens

physique. Une autre façon de voir les choses est de reprendre l'équation (5.3) : le ratio $I/I_0(\tau)$ est défini comme l'intégrale du profil temporel, i.e. l'intensité XUV au cours du temps qui est positive, jusqu'au temps τ moment d'arrivée de l'impulsion infrarouge. τ étant croissant, le ratio I/I_0 est théoriquement croissant.

Nous avons donc développé deux méthodes de reconstruction. La première permet de retrouver l'enveloppe du profil temporel en travaillant à partir de l'ajustement des données brutes. On parlera de fit dans la suite. La seconde permet de retrouver le profil temporel lui-même, dans la limite de la résolution de notre mesure, à partir d'un lissage approprié des données.

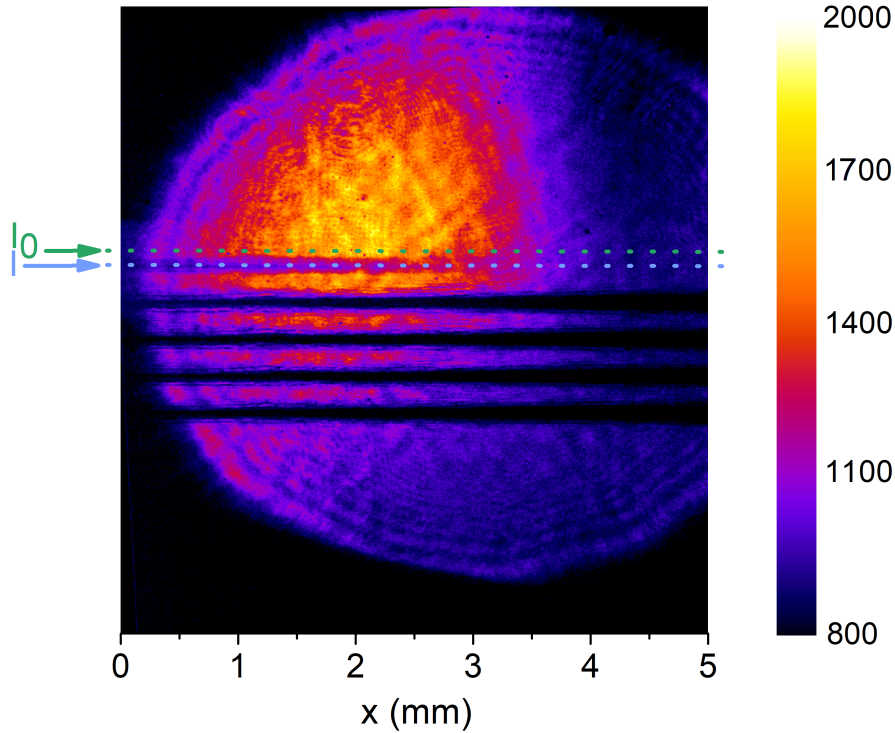


FIGURE 5.13 – Exemple de tir de mesure du profil temporel : profil spatial du faisceau XUV réfléchi par le multicouche en cours d'ablation par la ligne infrarouge (ligne du haut). Les lignes du bas représentent des cratères issus des tirs précédents pour lesquels la ligne infrarouge s'est déjà propagée. L'ouverture circulaire est une pinhole placée sur le trajet du faisceau XUV qui permet de se débarrasser de l'émission ASE environnante. Cette pinhole est située juste après les filtres en aluminium utilisés pour bloquer l'infrarouge.

5.1.5.1 Reconstruction de l'enveloppe du profil temporel

La figure 5.14 représente les profils spatiaux I et I_0 obtenus par la mesure réalisée en 5.13. L'angle θ vaut ici 38° , ce qui induit une vitesse de dépôt de la ligne infrarouge de $4c$. La calibration entre les coordonnées spatiale x et temporelle τ est indiquée directement sur la figure.

Pour cette première méthode, on choisit d'ajuster les données brutes I et I_0 . On définit le coefficient de détermination R^2 qui représente la qualité d'un fit par :

$$R^2 = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (y(i) - y_{\text{fit}}(i))^2}{\sum_{i=1}^N (y(i) - \bar{y})^2} \quad (5.8)$$

avec y le vecteur à ajuster, \bar{y} sa valeur moyenne et y_{fit} son fit.

Le profil spatial I_0 est proche d'une gaussienne. Pour le profil spatial I , on choisit une fonction gaussienne modifiée exponentiellement, le profil gaussien de référence étant altéré par l'ablation du multicouche par la ligne infrarouge. Le fit du profil I est défini par :

$$I_{\text{fit}}(x) = y_0 + \frac{A}{2t_0} \exp \left[\left(\frac{w}{\sqrt{2}t_0} \right)^2 - \left(\frac{x - x_c}{t_0} \right) \right] \text{erf}[Z] \quad (5.9)$$

avec y_0 , A , t_0 , w et x_c les paramètres du fit qu'on optimise pour maximiser R^2 , $Z = \frac{z}{\sqrt{2}} + 1$, $z = \frac{x-x_c}{w} - \frac{w}{t_0}$ et erf la fonction erreur donnée par $\text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt$.

On notera que le choix de la fonction de fit, dont dépend la forme de l'impulsion reconstruite, est arbitraire. L'idée est ici de mesurer la durée de l'impulsion XUV, et de retrouver l'allure générale de l'impulsion. On considère que la fonction choisie convient tant que le fit est suffisamment proche des données i.e. que le coefficient R^2 est proche de 1. En pratique, après optimisation des paramètres de fit, R^2 n'est jamais inférieur à 0,9. Pour une reconstruction plus précise de la forme de l'impulsion, nous utiliserons une seconde méthode en 5.1.5.2.

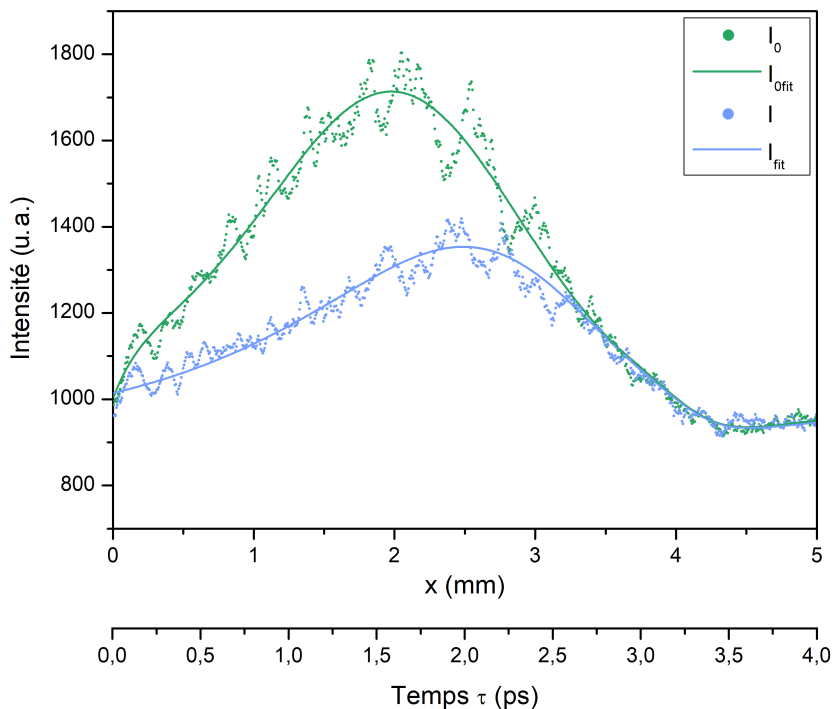


FIGURE 5.14 – Profils spatiaux I et I_0 en pointillés et leurs fits respectifs en traits pleins en fonction de la coordonnée spatiale x , ou temporelle τ .

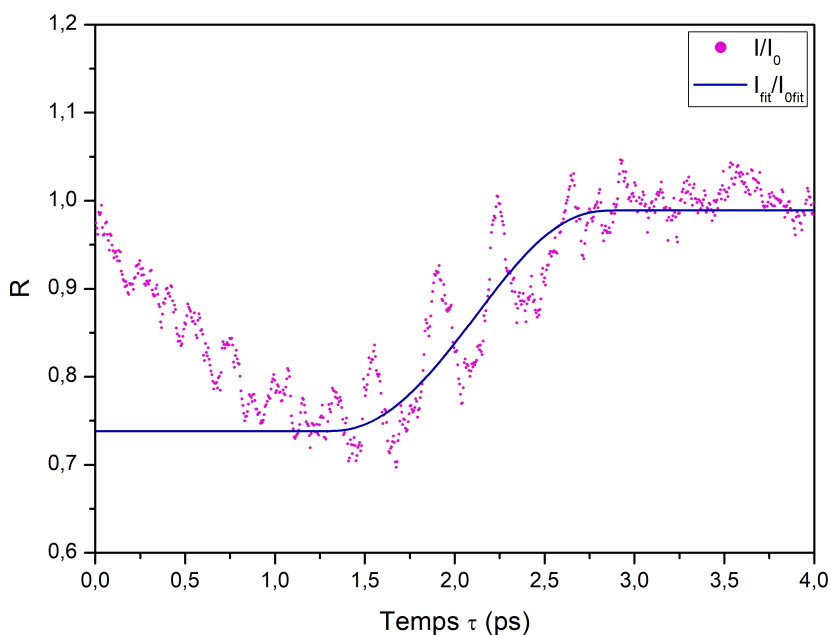


FIGURE 5.15 – En pointillés, ratio brut I/I_0 . En trait plein, ratio $I_{\text{fit}}/I_{0\text{fit}}$.

Le profil temporel est la dérivée du ratio du profil spatial du faisceau XUV modifié par la propagation de la ligne infrarouge, divisé par le profil spatial de référence. Sur la figure 5.15, on trace en pointillés le ratio I/I_0

obtenu à partir des données brutes. Ce ratio est très clairement non monotone. Sa dérivée aboutirait inévitablement à un non sens physique : un profil temporel très bruité tantôt positif (pour un ratio croissant), tantôt négatif (pour un ratio décroissant). On observe globalement trois tendances sur le ratio :

- Pour $\tau \in [0,0, 1,5]$ ps, le ratio est globalement décroissant. Cette partie correspond aux temps τ courts pour lesquels l'infrarouge ablate le miroir avant l'arrivée de l'XUV.
- Pour $\tau \in [1,5, 2,5]$ ps, le ratio est globalement croissant. Cette section correspond à la transition de signal entre le moment où l'XUV est le moins réfléchi, et le moment où il est le plus réfléchi, et constitue la partie réellement intéressante de la mesure qui correspond aux instants τ pour lesquels la ligne infrarouge arrive pendant l'XUV. On constate néanmoins que cette partie est affectée par de fortes variations induites par la granularité du faisceau XUV et dont on souhaite s'affranchir par le fit.
- Pour $\tau \in [2,5, 4,0]$ ps, le ratio est globalement constant, i.e. on a $I \approx I_0$. Cette partie correspond aux temps τ pour lesquels la ligne infrarouge arrive après l'XUV. Tout l'XUV est alors réfléchi.

On calcule donc le ratio $I_{\text{fit}}/I_{0\text{fit}}$, qu'on modifie numériquement pour obtenir un ratio croissant en tenant compte des remarques précédentes : on fixe le ratio égal à son minimum pour les temps τ trop courts i.e. tant que le ratio est décroissant, et égal à son maximum pour les temps τ trop longs pour lesquels $I \approx I_0$. Le ratio ainsi obtenu est tracé en trait plein sur la figure 5.15. Finalement, on obtient sur la figure 5.16 l'enveloppe du profil temporel de l'impulsion XUV en dérivant ce ratio. La durée RMS de l'impulsion est ici de 520 ± 200 fs. La détermination de l'incertitude est expliquée dans les paragraphes suivants.

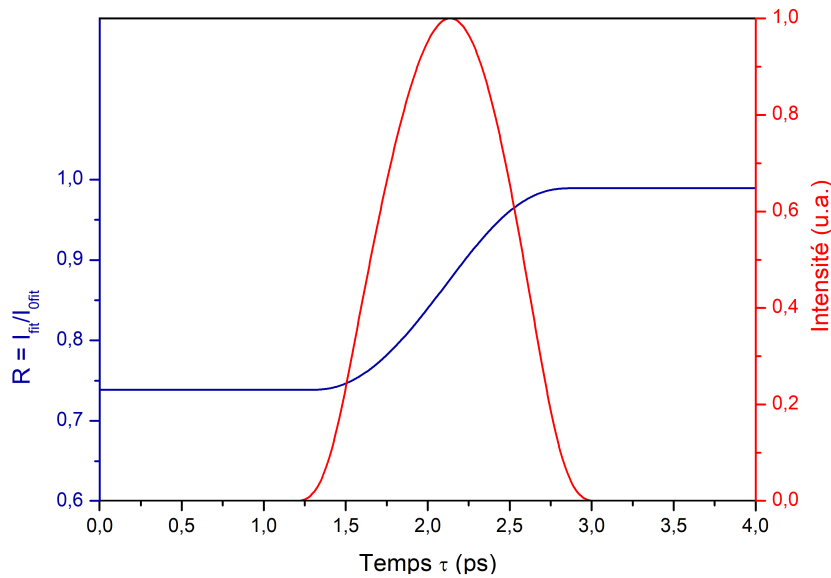


FIGURE 5.16 – En bleu, ratio $I/I_{0\text{fit}}$. En rouge, enveloppe du profil temporel.

Détermination de l'incertitude de mesure

L'idéal pour déterminer la résolution d'un tel diagnostic est de mesurer la durée d'une impulsion supposée plus courte que la résolution attendue. Notons que lors de la calibration infrarouge/infrarouge effectuée plus tôt, on a sondé une impulsion infrarouge de 30 fs mais cette mesure ne peut pas être utilisée en temps que mesure de résolution puisque le miroir pompé, ici en argent, est différent de celui utilisé pour les mesures de profil temporel dans l'XUV et possède a priori une réponse différente. Pour mesurer la résolution, nous avons donc tenté de mesurer le profil temporel de la source harmonique externe utilisée pour l'injection dont la durée n'excède pas quelques dizaines de femtosecondes. Malheureusement, comme nous l'évoquons plus tôt, le diagnostic développé ici ne permet pas de mesurer la durée de sources trop pauvres en photons à cause des pertes induites par la réflectivité des différentes optiques et par la transmission par les filtres en aluminium utilisés pour bloquer l'infrarouge. Le flux de photons de la source harmonique n'a pas pu être optimisé suffisamment pour permettre cette mesure.

Nous avons donc estimé la résolution de notre diagnostic en prenant en compte les différentes incertitudes intervenant lors de la mesure :

- En imageant le bord vertical d'un morceau de scotch collé sur le multicouches, on mesure une résolution spatiale de 4 pixels, soit entre 15 et 40 fs en fonction de la calibration (i.e. de θ et du grandissement γ).

- On prend en compte l'erreur de calibration, estimée dans la section 5.1.4 à 0,5 fs/pix pour la calibration infrarouge/XUV. Cette erreur de calibration est traduite en termes d'erreur sur la durée de l'impulsion. Il est à noter que plus l'impulsion est courte, plus cette erreur est faible.
- L'ablation du multicouches est induite en un temps inférieur à la durée d'impulsion du faisceau pompe infrarouge, qui peut être considérée comme uniforme spatialement dans le faisceau, soit 30 fs.
- Enfin, on estime l'erreur sur la durée d'impulsion liée à la reconstruction numérique en particulier induite par le fit qui constitue la plus grande source d'erreur. Pour cela, on considère un tir de mesure du profil temporel donné. On effectue 10 reconstructions successives en faisant varier aléatoirement chacun des paramètres de fit dans une barre d'erreur de 5% par rapport au fit optimum (pour lequel le coefficient R^2 défini en (5.8) est le plus proche de 1). On s'assure que $R^2 \in [0.85, 1]$, de sorte à ce que le fit soit suffisamment proche des données pour être considéré comme valable et ayant un sens. Ces 10 reconstructions sont illustrées sur la figure 5.17. L'incertitude élargie sur la durée d'impulsion RMS, obtenue par répétabilité sur ces 10 tirs, est ici de 50 fs.

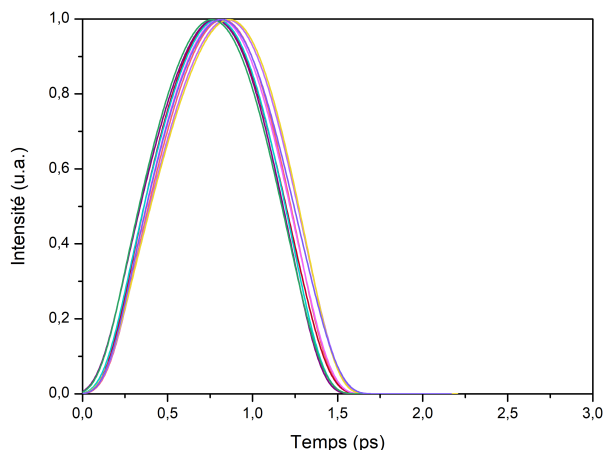


FIGURE 5.17 – Reconstruction de 10 profils temporels successifs obtenus avec des paramètres de fits choisis aléatoirement dans une barre d'erreur de 5% par rapport au meilleur fit.

On notera qu'on néglige les éventuelles inhomogénéités de la ligne infrarouge. La ligne focale mesure 8 mm, et la mesure est effectuée au centre de cette ligne sur une extension spatiale maximale donnée par la taille du faisceau XUV soit 3 mm. On peut légitimement considérer que l'intensité varie insuffisamment dans cette zone pour altérer l'ablation du miroir qui se produit dès lors que l'intensité est supérieure à quelques $10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$.

Notons également que l'influence du plasma, produit par l'interaction entre l'impulsion infrarouge et le multicouches, est elle aussi négligeable. En effet, le dépôt du faisceau pompe infrarouge n'est pas perturbé par ce plasma puisqu'il n'est créé qu'après le passage de l'infrarouge, et que l'angle d'incidence du faisceau pompe, proche de 30° , permet que quelque soit x l'infrarouge ne traverse pas le plasma produit pour les x inférieurs. D'autre part, le faisceau XUV n'arrive simultanément avec l'infrarouge en x donné que pendant une durée de 30 fs, négligeable devant la durée de l'impulsion XUV. Si l'XUV arrive avant l'infrarouge, le plasma n'est pas créé et n'impacte pas l'XUV. Si l'XUV arrive après l'infrarouge, il est potentiellement influencé par le plasma mais n'est pas réfléchi.

On obtient finalement une estimation de la résolution de la mesure via le calcul de l'incertitude de type B qui résulte de la racine de la somme du carré de toutes les incertitudes considérées. Cette incertitude est liée à la mesure en elle-même, et dépend de la configuration dans laquelle la mesure est effectuée (via notamment la calibration). Elle n'excède jamais les 200 fs.

A l'incertitude induite par la mesure elle-même u_B évaluée précédemment s'ajoute une incertitude de type A. Pour chaque mesure de durée, dans chaque configuration qu'on souhaitera étudier, une étude par répétabilité sur N tirs est systématiquement menée, N étant compris entre 3 et 10. L'incertitude par répétabilité est donnée par $u_A = \sigma/\sqrt{N}$ avec σ l'écart-type des durées mesurées. La figure 5.18 illustre 4 tirs effectués dans les mêmes conditions et les profils temporels correspondants reconstruits par la méthode du fit. Dans ce cas, l'incertitude de répétabilité est 50 fs.

Dans la suite, lorsqu'on considérera un tir unique, on donnera l'incertitude liée à la mesure, qui est majorée par 200 fs. Lorsqu'on considérera une statistique sur plusieurs tirs, on donnera l'incertitude élargie totale donnée par $U = 2 \times \sqrt{u_A^2 + u_B^2}$.

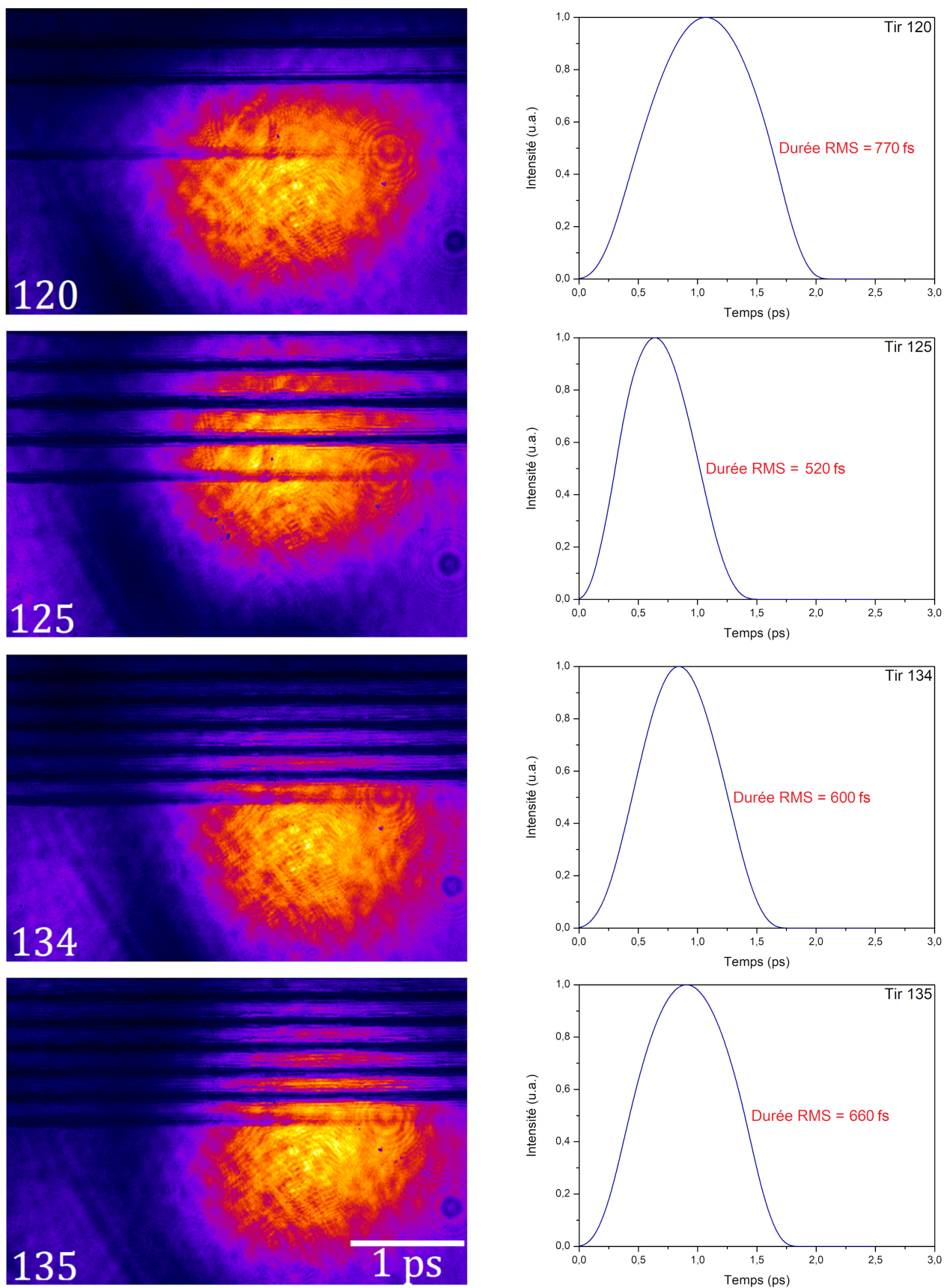


FIGURE 5.18 – Mesures du profil temporel pour 4 tirs effectués dans les mêmes conditions. A gauche, les tirs. A droite, le profil temporel correspondant.

5.1.5.2 Reconstruction du profil temporel par lissage

La méthode de reconstruction que nous venons d'employer est très simple et permet de mesurer la durée d'impulsion, mais brutale puisque l'utilisation de fits ne permet de rendre compte que de l'enveloppe du profil temporel. Or, les profils simulés en section 2.5.2.2 présentent des structures, les oscillations de Rabi induites par l'oscillation de l'inversion de population en régime saturé. Pour essayer d'observer ces structures expérimentalement, il est donc nécessaire de développer une technique de reconstruction plus fine qui conserve les irrégularités induites dans le profil spatial par le profil temporel.

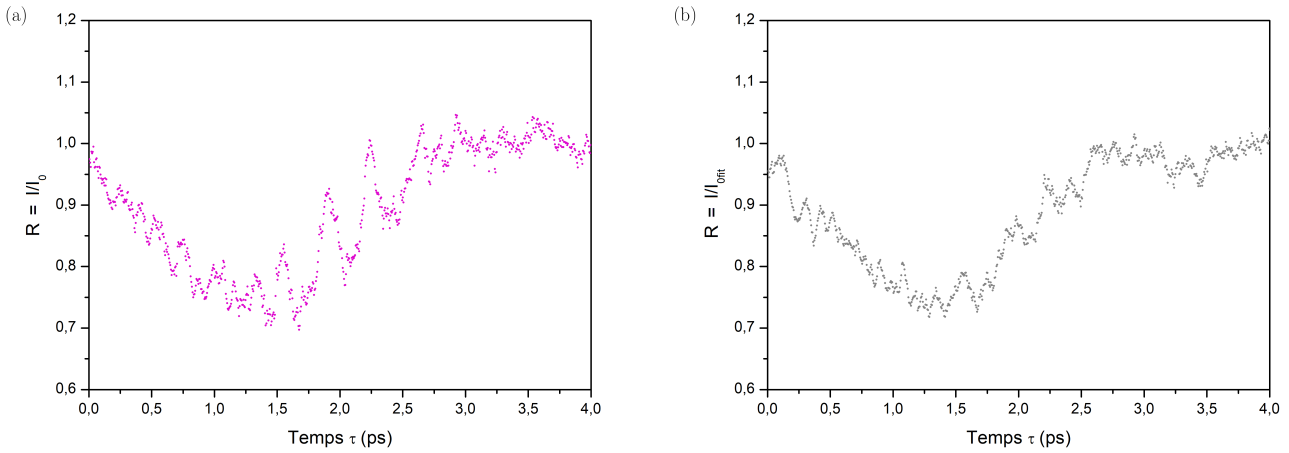


FIGURE 5.19 – (a) Ratio I/I_0 . (b) Ratio I/I_{fit} .

Les informations concernant le profil temporel sont incluses uniquement dans le profil spatial I dégradé par l'ablation du multicouches par l'impulsion infrarouge. On peut donc, sans perte d'informations, s'affranchir des irrégularités présentes dans le profil spatial de référence I_0 . Au lieu de travailler à partir du ratio I/I_0 (fig. 5.19 (a)), on calcule I/I_{fit} (fig. (b)). Comme pour la technique précédente, on fixe le ratio égal à une constante pour les temps τ trop courts ou trop longs. La partie centrale du ratio est la partie intéressante de la mesure pour laquelle l'impulsion infrarouge arrive en même temps que l'XUV. La figure 5.20 illustre l'importance du lissage en montrant le profil temporel obtenu lorsqu'on conserve cette partie brute : le bruit contenu dans le ratio est très nettement amplifié par la dérivation. On effectue donc un lissage du ratio, illustré sur la figure 5.21, en calculant une moyenne glissante sur un certain nombre de pixels. Le choix de ce coefficient de lissage sera expliqué quelques paragraphes plus loin.

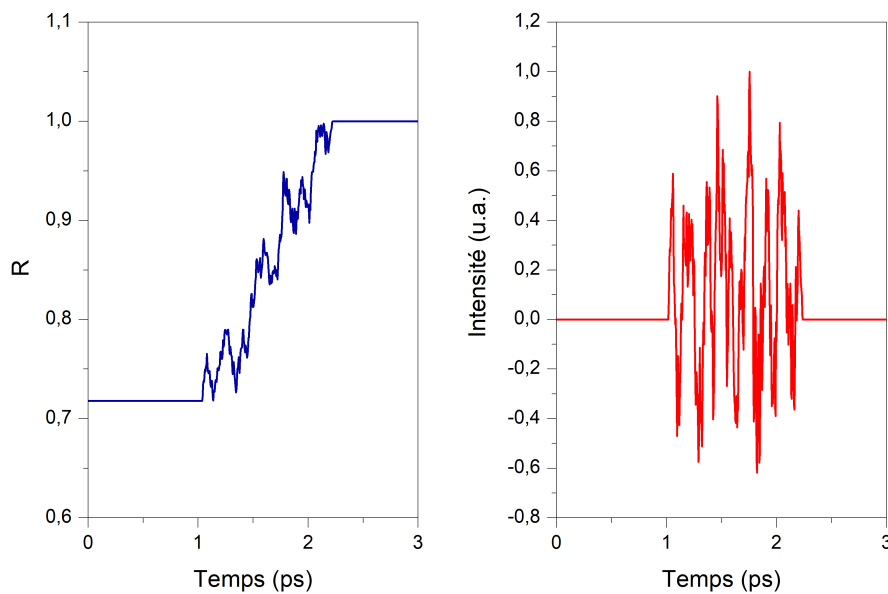


FIGURE 5.20 – A gauche, ratio I/I_{fit} non lissé. A droite, profil temporel correspondant.

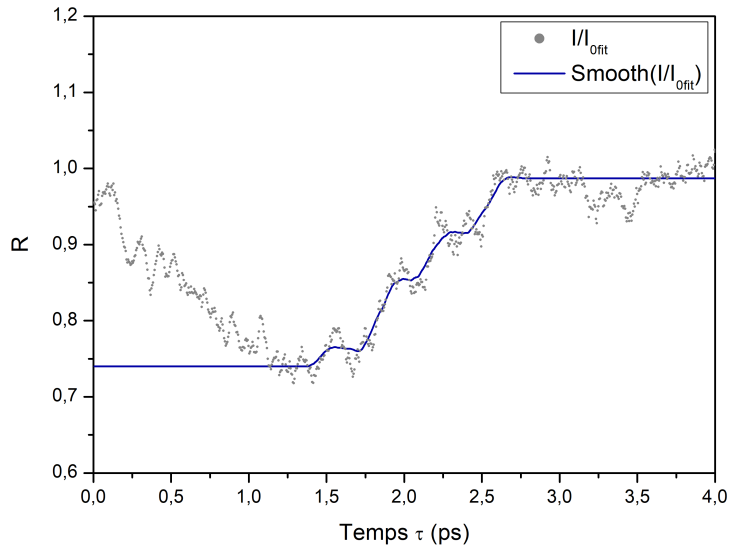


FIGURE 5.21 – Ratio $I/I_{0\text{fit}}$ brut en pointillés et lissé en trait plein.

On calcule enfin la dérivée du ratio $I/I_{0\text{fit}}$ lissé. Cette dérivée est elle aussi lissée avec un second coefficient, et on obtient finalement le profil temporel illustré sur la figure 5.22 (a). Contrairement à la méthode de reconstruction précédente où le ratio comportait un unique point d’inflexion qui résultait en un pic unique dans le profil temporel, les nombreux points d’inflexion ici présents dans le ratio obtenu par lissage induisent des structures dans le profil temporel. La figure 5.22 (b) compare les profils obtenus par chacune des techniques de reconstruction : en bleu par reconstruction à partir du ratio $I_{\text{fit}}/I_{0\text{fit}}$, et en rouge par reconstruction à partir du ratio $I/I_{0\text{fit}}$ lissé.

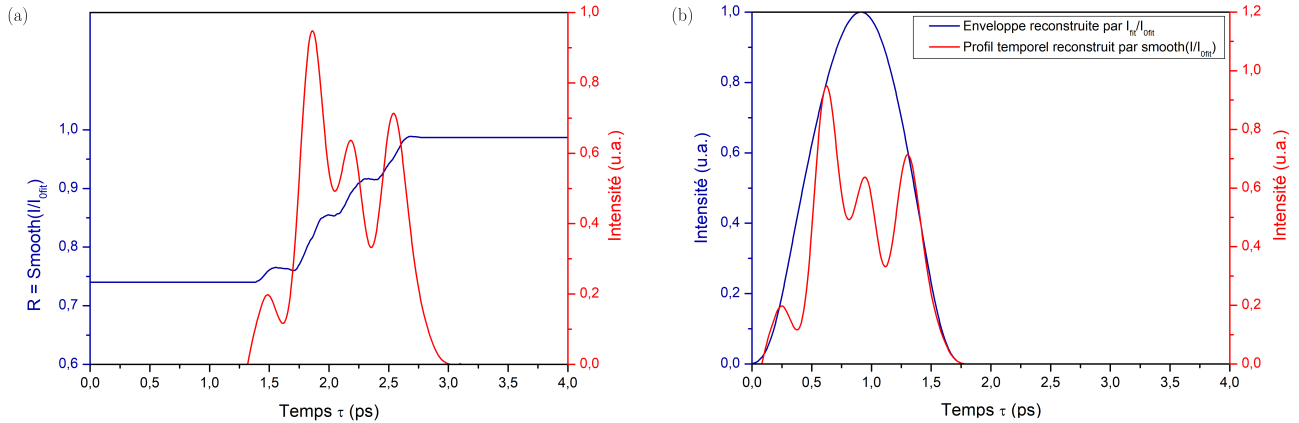


FIGURE 5.22 – (a) En bleu, ratio lissé $I/I_{0\text{fit}}$. En rouge, profil temporel reconstruit. (b) En bleu, enveloppe du profil temporel obtenue par dérivation du ratio $I_{\text{fit}}/I_{0\text{fit}}$. En rouge, profil temporel obtenu par dérivation du ratio lissé $I/I_{0\text{fit}}$.

Choix des coefficients de lissage

Pour obtenir le profil temporel de la figure 5.22 (a), on effectue un premier lissage sur le ratio et un second lissage sur la dérivée du ratio. On justifie dans ce paragraphe le choix des coefficients de lissage qui correspondent au nombre de pixels sur lequel on effectue la moyenne glissante. Sur la figure 5.23, on fait varier le coefficient de lissage du ratio. Le coefficient de lissage de la dérivée est ici fixé à 50 pixels. Tant que le ratio n’est pas suffisamment lissé, il n’est pas strictement croissant. Le profil temporel contient alors de nombreuses et intenses variations, et devient même négatif pour les plus petits coefficients. Pour les grands coefficients, on tend à faire disparaître les structures. On choisit donc le coefficient le plus faible possible, de sorte à conserver les points d’inflexion et donc les structures, et qui permette d’obtenir un ratio croissant, dans ce cas 40 pixels soit 160 fs, la calibration étant ici 4 fs/pix. Sur la figure 5.24, on fixe le coefficient de lissage de la dérivée à 40 pixels et on fait varier le coefficient de lissage de la dérivée. On choisit pour ce dernier le plus petit coefficient qui permette d’obtenir un profil temporel strictement positif, soit 50 pixels i.e. 200 fs ici.

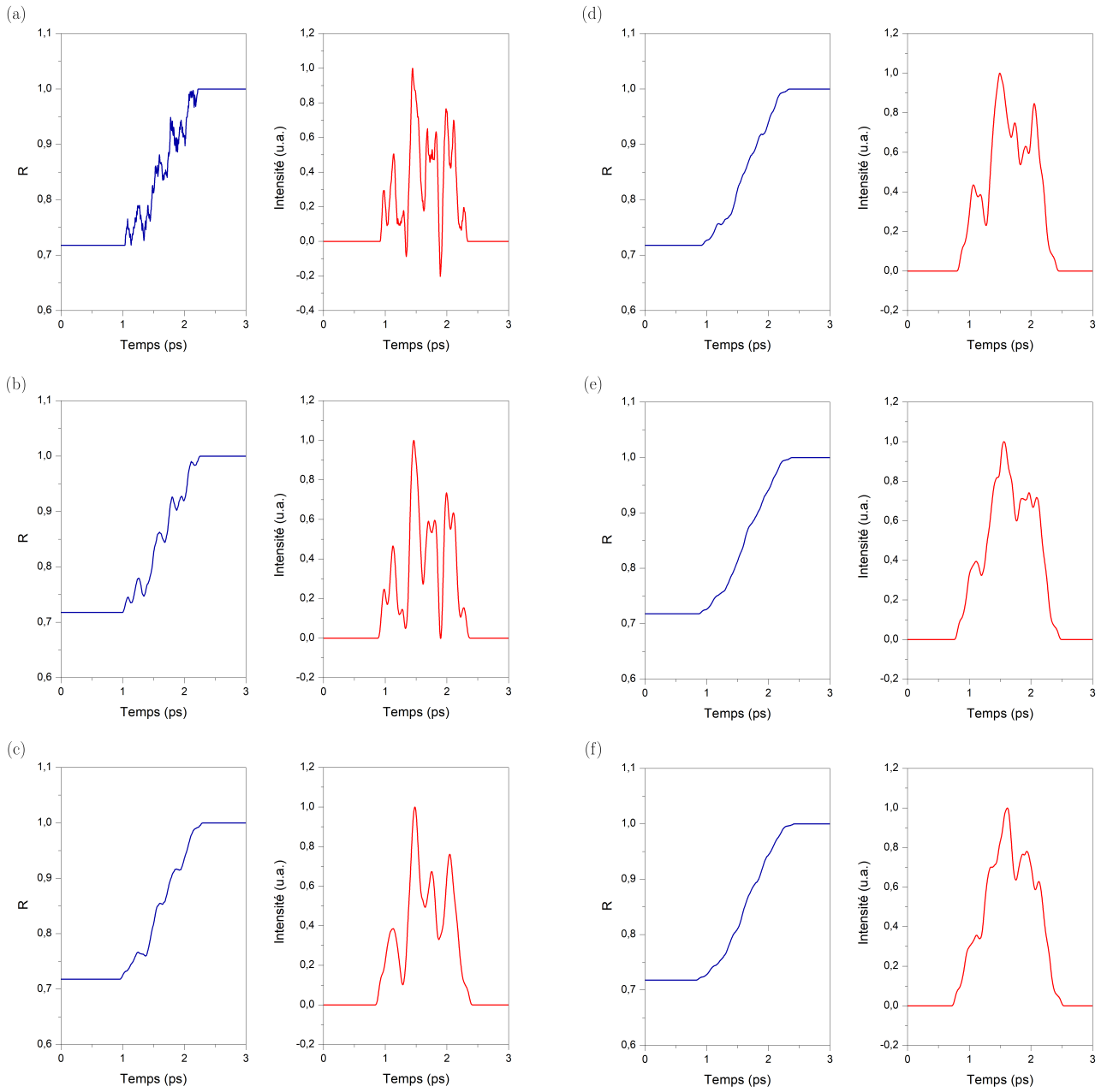


FIGURE 5.23 – En bleu, ratio I/I_{fit} lissé sur respectivement 0, 20, 40, 60, 80 et 100 pixels de (a) à (f). En rouge, profil temporel correspondant. La dérivée est lissée sur 50 pixels.

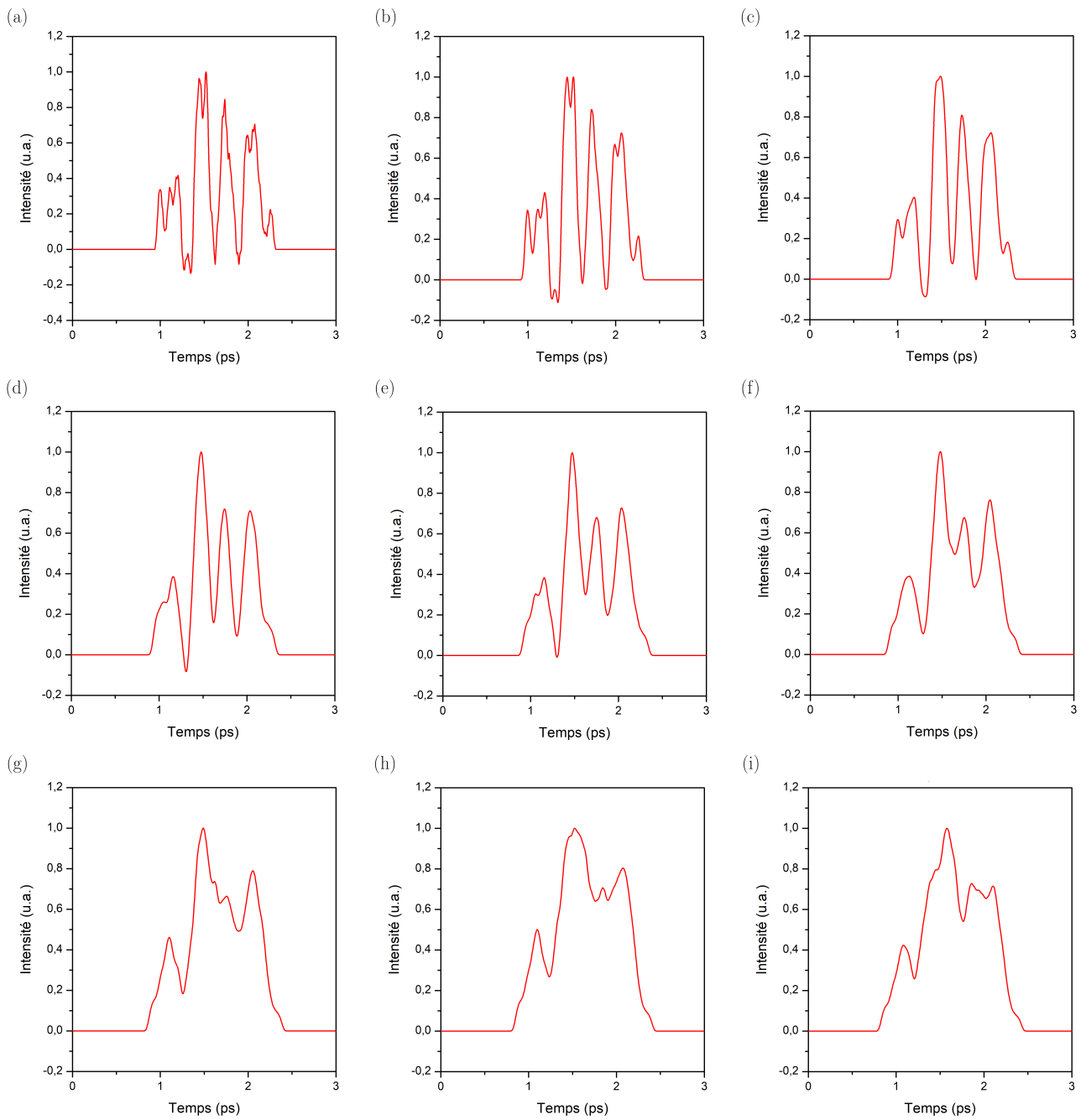


FIGURE 5.24 – Profils temporels obtenus en lissant la dérivée du ratio sur respectivement 0, 10, ..., 80 pixels de (a) à (i). Le ratio est lissé sur 40 pixels.

Répétabilité de la reconstruction des structures

On reconstruit le profil temporel de cette manière sur 4 tirs consécutifs. On utilise les mêmes coefficients de lissage pour les 4 reconstructions. Ces tirs et les reconstructions correspondantes sont illustrés sur la figure 5.25. Les structures que nous observons sont globalement conservées tir à tir dans les mêmes conditions de mesure, en partant de données brutes différentes.

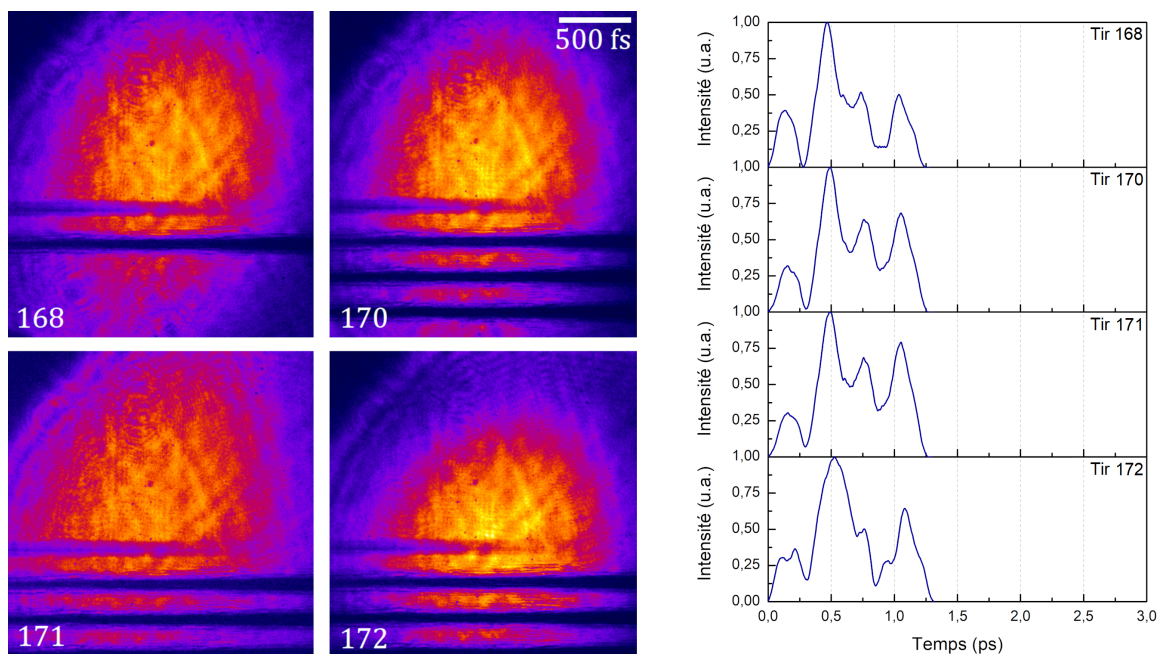


FIGURE 5.25 – Mesures du profil temporel pour 4 tirs effectués dans les mêmes conditions. Les profils temporels sont reconstruits par la seconde méthode. Les coefficients de lissage utilisés sont les mêmes pour tous les tirs.

Etude de Fourier

On peut légitimement se demander si ces structures sont réelles ou un artefact de la reconstruction, et si elles proviennent effectivement du profil temporel. Pour répondre à ces questions, nous procédons à une étude dans le domaine de Fourier à partir du tir présenté sur la figure 5.26. La période moyenne des oscillations mesurées sur le profil temporel reconstruit vaut ici 320 fs.

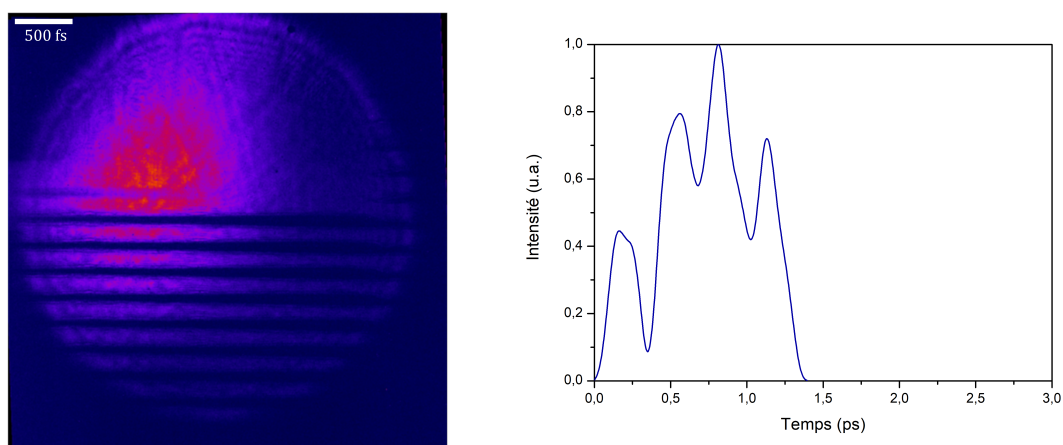


FIGURE 5.26 – A gauche tir N° 179 à partir desquels on mène l'étude spectrale. A droite, profil temporel correspondant.

Sur la figure 5.27, on calcule à droite la transformée de Fourier des vecteurs I et I_0 tels que mesurés à gauche sur le tir. Notons qu'il s'agit des mêmes vecteurs que ceux utilisés pour la reconstruction de la figure précédente. On observe nettement une fréquence, marquée par la flèche rouge, présente uniquement dans I . Cette fréquence

vaut $3,2 \times 10^{12}$ Hz, soit 310 fs. Cette valeur correspond à la période mesurée des oscillations. Ces oscillations ne sont donc pas un artefact de la reconstruction, puisque leur fréquence est présente directement dans le tir avant traitement numérique.

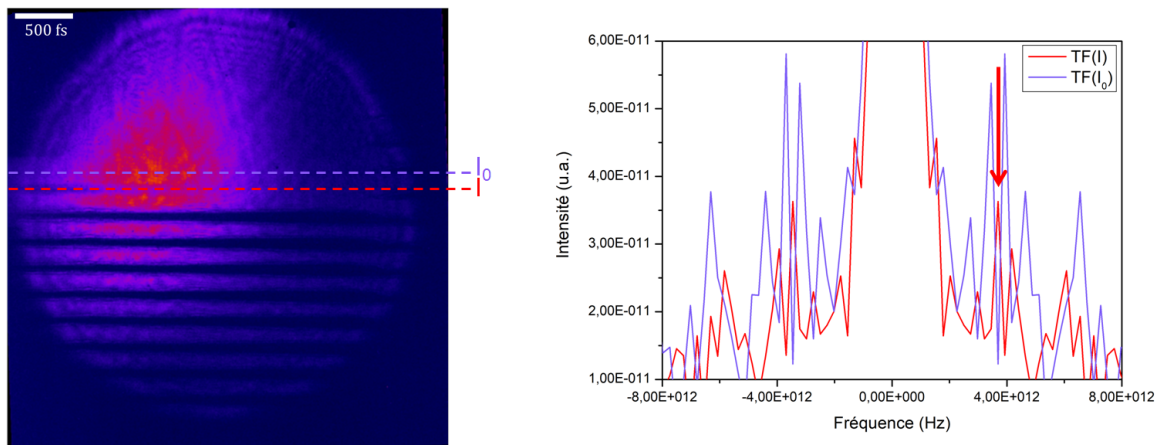


FIGURE 5.27 – A gauche, tir de mesure du profil temporel N°179 sur lequel on mesure I en rouge et I_0 en bleu. A droite, transformées de Fourier de I en rouge et I_0 en bleu. La flèche rouge indique la fréquence présente uniquement dans I qui correspond à la période mesurée des oscillations.

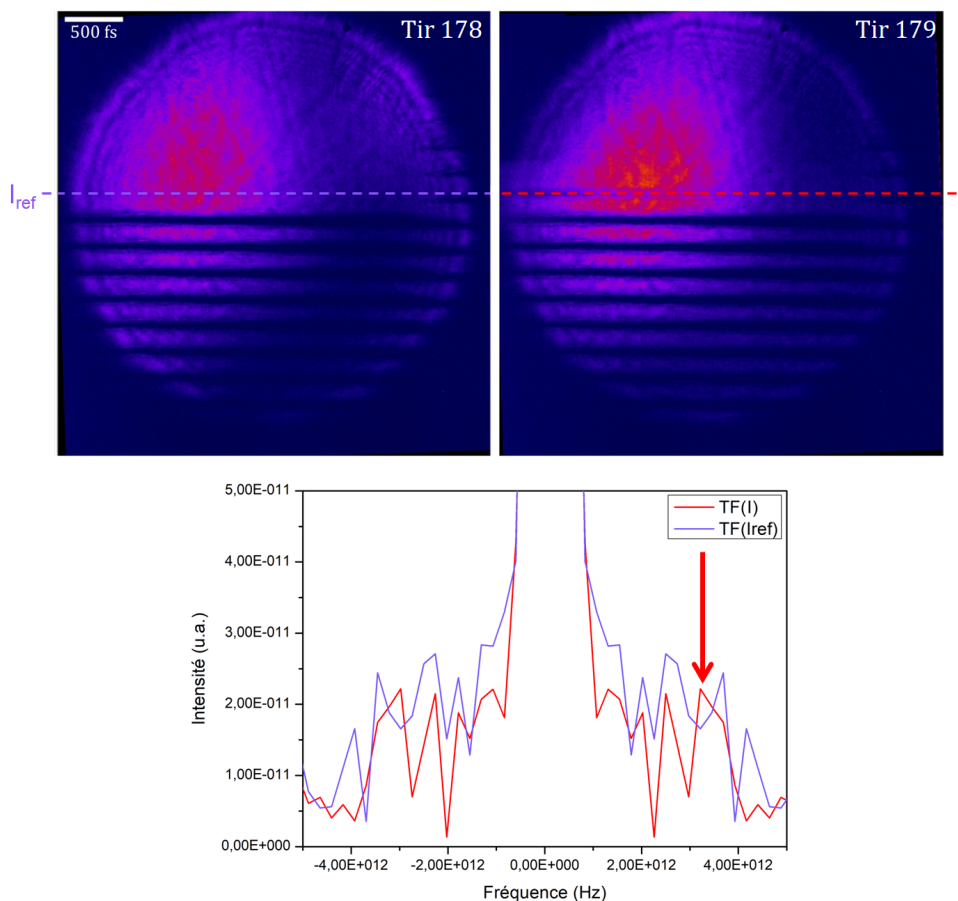


FIGURE 5.28 – En haut à gauche, tir N°178 de référence sur lequel on mesure le profil spatial I_{ref} . En haut à droite, tir N°179 de mesure du profil temporel sur lequel on mesure le profil spatial I . En bas, transformées de Fourier de I en rouge et I_{ref} en bleu. La flèche rouge indique la fréquence présente uniquement dans I qui correspond à la période mesurée des oscillations.

Sur la figure 5.28, on compare la transformée de Fourier de I mesuré précédemment sur le tir N° 179, et celle de I_{ref} mesuré sur le tir N° 178 qui est un tir de référence (i.e. l'impulsion infrarouge n'est pas envoyée). I_{ref}

est mesuré à la même position que I . On observe sur les spectres que la fréquence qui correspond à la période mesurée des oscillations n'est présente que dans I : elle n'est pas présente initialement dans le tir de référence, et apparaît donc lors de la mesure. Cette étude de Fourier a également été menée sur d'autres tirs, présentant des périodes d'oscillations différentes dans leurs profils temporels. La fréquence correspondante est systématiquement contenue dans le spectre de I , mais pas celui de I_0 et n'est pas présente sur les tirs de référence. Cette fréquence est donc a priori réellement contenue dans le profil temporel.

Cette étude permet finalement de confirmer la présence effective de structures dans le profil temporel. L'incertitude sur leur allure est assez importante de part le choix relativement arbitraire des coefficients de lissage, et difficilement quantifiable. Une méthode probablement moins incertaine de reconstruction du profil pourrait se baser sur le filtrage, complexe étant donné l'allure des spectres, des fréquences induites par les irrégularités spatiales pour ne conserver que les informations provenant du profil temporel. Cela nécessiterait néanmoins d'effectuer plusieurs tirs, avec systématiquement au moins un tir de référence sans propagation de la ligne infrarouge pour obtenir le spectre à l'endroit exact de la mesure avant qu'elle soit effectuée. Bien qu'imparfaite, la méthode de reconstruction développée ici présente l'avantage d'être relativement simple et de donner une première idée qualitative de la présence ou non de structures et de leur allure.

La question est maintenant de déterminer l'origine de ces structures. Dans la section 2.5.2.2, nous avons vu qu'en régime saturé, l'oscillation de l'inversion de population induisait des oscillations dites de Rabi dans le profil temporel. Il est assez peu probable qu'il s'agisse ici de ce type d'oscillations pour plusieurs raisons : d'une part comme nous le verrons dans la section suivante parce que leur période est en théorie bien inférieure (environ 50 fs pour la densité étudiée ici) à la période d'oscillations effectivement mesurée, de l'ordre de 300 fs, et à la résolution de notre diagnostic ; d'autre part parce que les oscillations de Rabi ne sont observables que lorsque la vitesse de groupe du faisceau pompe est égale à c , comme nous le démontrerons dans le chapitre 6, ce qui n'est pas le cas dans la mesure présentée ici. Dans ce chapitre, nous étudierons en effet l'influence de la vitesse de groupe du faisceau pompe sur le laser à 32,8 nm, notamment sur son profil temporel, et nous verrons une explication probable de la provenance des structures observées ici.

5.2 Influence de la densité électronique sur la durée

La durée des lasers XUV collisionnels est naturellement longue : les durées mesurées jusqu'à maintenant dépassent la picoseconde avec 1,1 ps dans [118], 2 ps dans [89] et s'étendent même jusqu'à 100 ps dans [81], limitant ainsi le champ des applications possibles.

Comme nous l'avons dit dans le chapitre 1, d'autres types de lasers XUV, reposant sur différents schémas de pompage de l'inversion de population, permettent d'atteindre des durées beaucoup plus courtes. Le schéma de pompage par recombinaison [228] est un candidat attractif mais requiert des conditions drastiques difficiles à obtenir, le taux de recombinaison variant en n_e^3/T_e . Quant au schéma de pompage par photoionisation en couche interne [67], il a démontré des durées d'impulsions ultra-courtes inférieures à la centaine de femtosecondes dans les keV, mais il nécessite une source ionisante intense de type LEL.

Ainsi, amener les lasers XUV collisionnels sous le seuil de la picoseconde représente un intérêt considérable pour l'étude des phénomènes ultra-rapides dans la matière à l'échelle nanométrique [138][142][143] puisque ces sources sont par ailleurs extrêmement intéressantes, en termes notamment d'énergie, de longueurs d'onde et de propriétés spatiales. Une première tentative pour réduire leur durée d'impulsion consiste à transposer le principe de la CPA aux lasers XUV [229]. Cette technique a permis d'établir théoriquement des durées de l'ordre de 200 fs mais n'a, jusqu'à maintenant, jamais pu être démontrée expérimentalement.

Dans cette partie, nous proposons un autre moyen de réduire la durée d'impulsion grâce à l'interruption anticipée du gain à haute densité, évoquée en 1.3.3.2 et en 2.1.4, et démontrée dans [8]. La figure 5.29 illustre le profil temporel simulé par DAGON en fonction de la densité électronique pour une vitesse de groupe de l'infrarouge $v_g = c$. Les différents profils présentent des oscillations de Rabi dont la période diminue avec l'augmentation de la densité, passant de 150 fs à $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à 40 fs à 10^{20} cm^{-3} . La fréquence de ces oscillations est en effet proportionnelle à la racine de l'intensité, qui augmente avec la densité. Il est à noter que la période d'oscillations de Rabi diminue de fait également lorsque la longueur de jet augmente (comme nous l'avons vu sur la figure 2.31). Nous avons ici choisi de simuler un plasma de 5 mm, DAGON ne permettant pas de résoudre en un temps raisonnable les oscillations très rapides à 10 mm et haute densité. Nous constatons bien ici que ces périodes sont trop courtes pour être mesurées expérimentalement dans les conditions haute densité avec lesquelles on travaille et avec la résolution dont on dispose. L'idéal pour essayer d'observer ces oscillations de Rabi aurait été de travailler à très basse densité (typiquement en cellule de gaz, pour quelques 10^{18} cm^{-3}) et

avec un plasma court, où l'on peut alors attendre une période de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes [8]. Cependant, le nombre de photons émis est moindre dans ces conditions et aurait pu s'avérer insuffisant pour la mesure du profil temporel. Rappelons également que, comme nous le verrons dans le chapitre 6, l'observation des oscillations de Rabi nécessite de travailler à $v_g = c$, ce qui n'est pas naturellement le cas à haute densité à cause de la dispersion du plasma. Les simulations de la figure 5.29 mettent aussi en évidence que l'augmentation de la densité électronique de l'amplificateur permet la réduction de la durée d'impulsion de façon conséquente. La durée d'impulsion RMS passe ici de 1,1 ps à $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à seulement 260 fs à 10^{20} cm^{-3} .

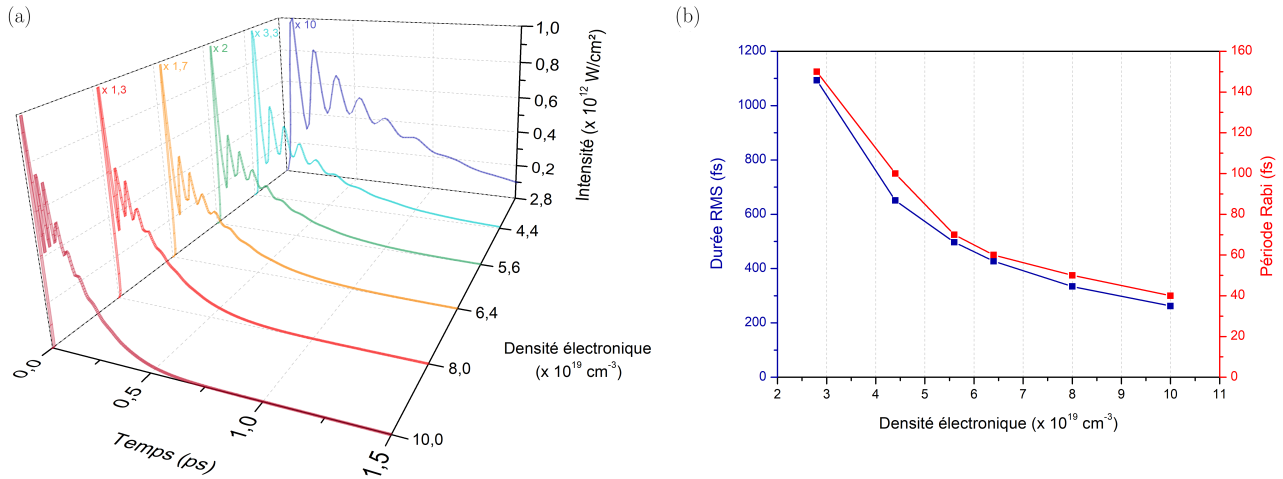


FIGURE 5.29 – (a) Profils temporels simulés par DAGON pour un plasma de 5 mm en fonction de la densité électronique. (b) Durée RMS et période moyenne des oscillations de Rabi correspondantes. La vitesse de groupe de l'infrarouge vaut ici $v_g = c$.

L'objectif de cette section est de démontrer expérimentalement ce résultat : la réduction de la durée d'impulsion induite par l'interruption anticipée du gain à haute densité. Le schéma complet de l'expérience est illustré sur la figure 5.30. La densité électronique est ajustée en changeant le délai Δt entre l'impulsion pompe et la séquence de guidage. Elle est estimée grâce à l'interféromètre de Mach-Zender présenté dans le chapitre 3 avec une incertitude de $\pm 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Les mesures sont effectuées ici pour un jet de 10 mm et une vitesse de groupe proche de $1,05c$. Pour chaque densité électronique, on mesure la dynamique de l'amplification (cf 4.2.2.1) et le profil temporel de l'impulsion. On utilise ici la technique de reconstruction par fit, et on se concentre ici principalement sur la durée de l'impulsion, et non ses structures qui seront au cœur du chapitre suivant.

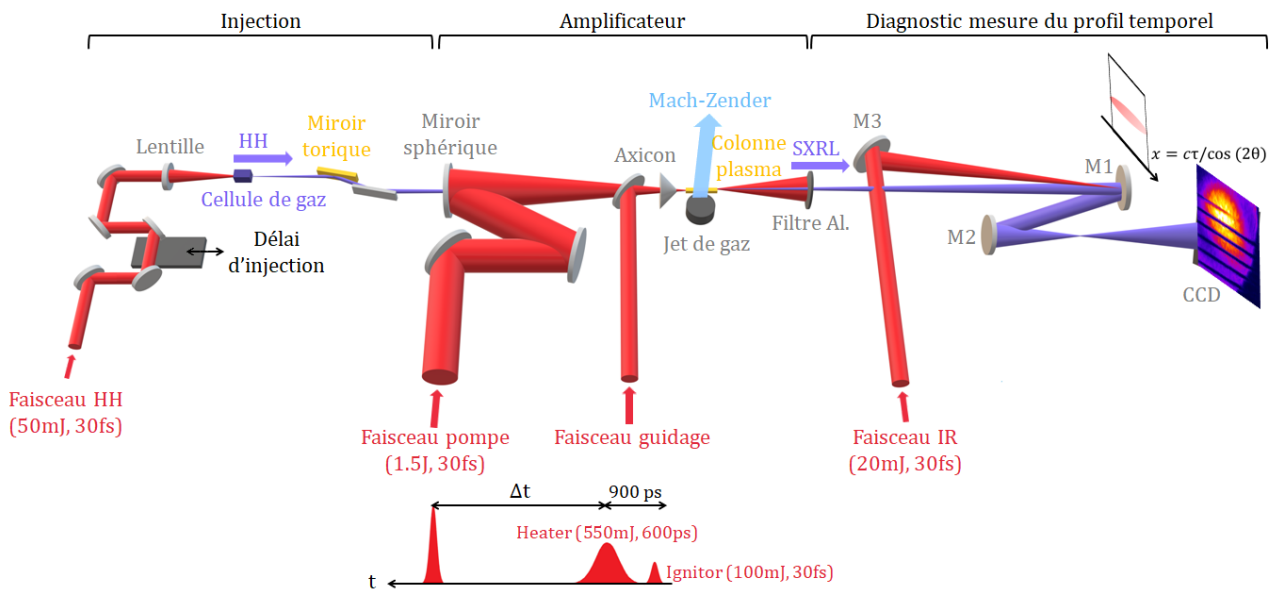


FIGURE 5.30 – Schéma complet de l'expérience : génération du laser XUV injecté et mesure de son profil temporel avec le diagnostic décrit précédemment. La densité du plasma amplificateur est ajustée en variant le délai Δt entre la séquence de guidage et la pompe, et mesurée par interférométrie (voir 3.4.1.1).

5.2.1 Interruption anticipée du gain

On étudie, dans un premier temps, sur la figure 5.31 l'évolution de la dynamique de l'amplification en fonction de la densité électronique, en mesurant l'énergie XUV en régime injecté en fonction du délai d'injection des harmoniques.

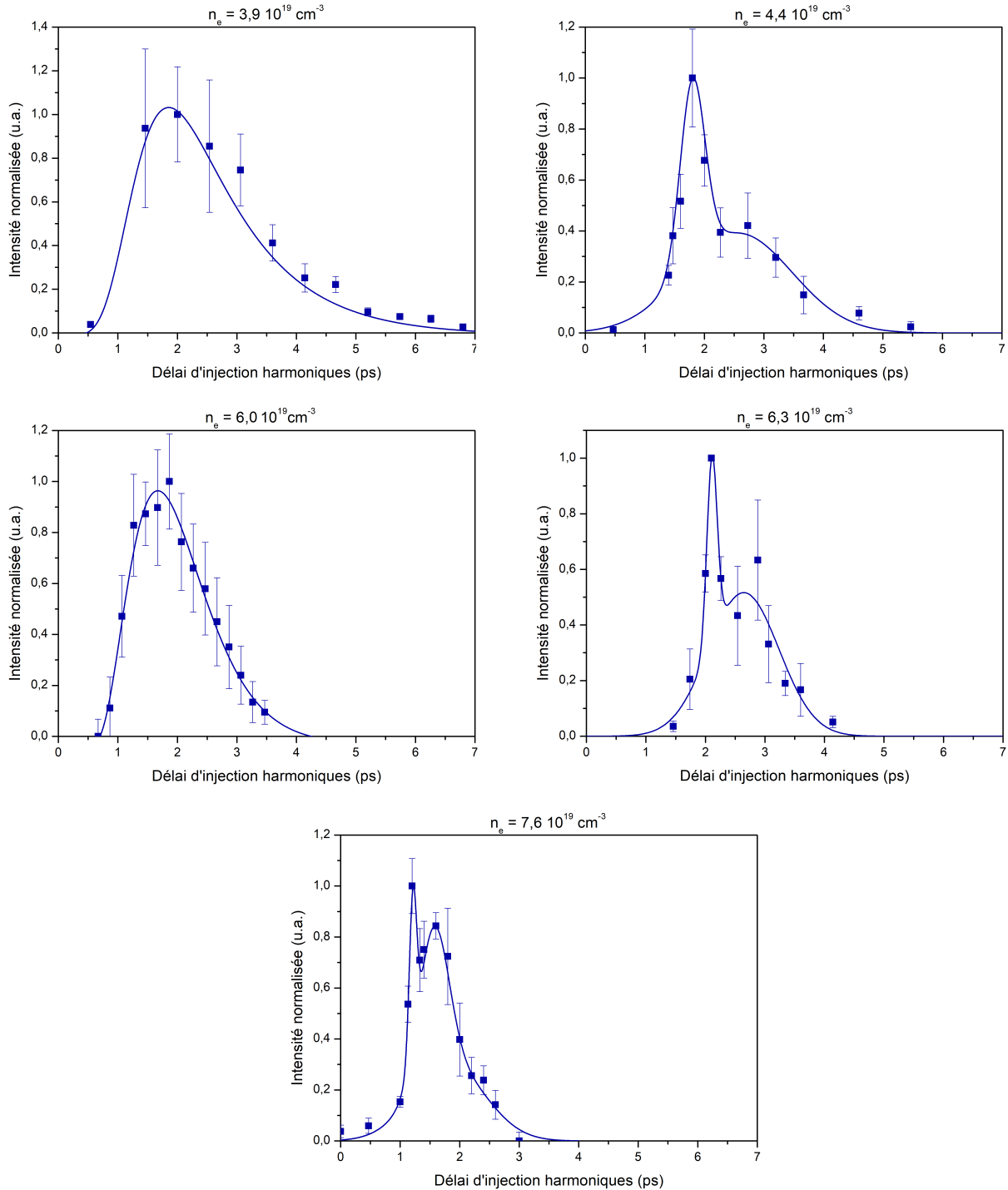


FIGURE 5.31 – Dynamiques de l'amplification obtenues pour différentes densités électroniques. Le jet a une longueur de 10 mm, la vitesse de groupe est ici $v_g = 1,05c$. Les points de mesure sont obtenus par répétibilité sur 5 tirs. Les courbes en trait plein représentent un guide pour l'œil.

On observe des courbes aux allures très différentes, certaines présentant un pic, d'autres deux. Nous ne sommes pour le moment pas en mesure d'expliquer précisément ces différences. Néanmoins, il faut se rappeler que la mesure de la dynamique temporelle de l'amplification ne constitue pas à proprement parler une mesure de la dynamique du gain pour les raisons brièvement évoquées en 4.2.2.1. Cette mesure est complexe et son

résultat difficilement prédictible. Elle est en effet effectuée par intégration sur toute la propagation dans le milieu amplificateur au cours de laquelle l'harmonique voit différents coefficients de gain au cours du temps, et dépend donc d'un très grand nombre de paramètres.

En théorie, comme nous l'avons vu en 2.1.4, on peut s'attendre à ce que le gain maximum soit de plus en plus important et se produise de plus en plus tôt lorsqu'on augmente la densité électronique. En pratique, on n'observe pas de décalage de l'optimum de l'énergie XUV vers les délais d'injection courts, ce qui peut une nouvelle fois résulter de l'intégration du signal sur toute la propagation, comme nous le verrons dans le chapitre 6. En ce qui concerne l'augmentation de l'optimum du gain à haute densité, la mesure que nous avons réalisée ne peut donner aucune information, à elle seule, puisque l'énergie XUV en régime injecté n'est pas affectée que par le gain, mais aussi notamment par l'intensité du signal harmonique et les conditions de couplages.

En revanche comme attendu, on remarque que plus la densité augmente, plus le front de montée de la dynamique d'amplification est raide. On constate également -et il s'agit du point crucial de cette section- la diminution nette de la durée de l'amplification, qui est reportée en rouge sur la figure 5.32. La durée RMS de l'amplification passe de $1,7 \pm 0,2$ ps RMS à $3,9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à $1,0 \pm 0,2$ ps à $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Cette réduction de la durée d'amplification est induite, comme nous l'avons expliqué au chapitre 2, par l'interruption anticipée du gain : les hautes densités électroniques entraînent un grand nombre de collisions qui contribuent à bâtir l'inversion de population, mais qui mènent dans le même temps à une surionisation et donc à une déplétion de l'ion lasant. On peut noter que notre mesure suit la même tendance que la durée du gain simulé par OFIKinRad (en bleu sur la figure 5.32). En revanche, la durée de l'amplification mesurée est environ 1 ps plus grande que la durée du gain simulé puisque notre mesure donne seulement une majoration de la durée du gain (voir 4.2.2.1).

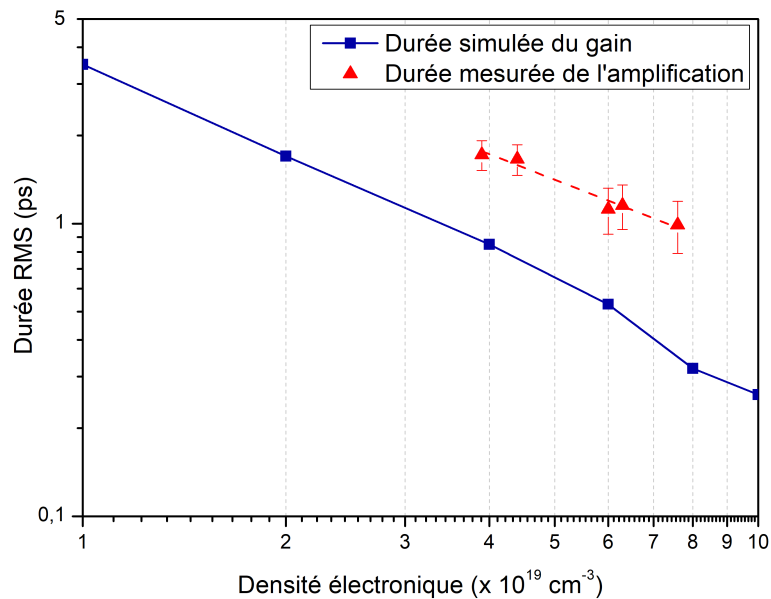


FIGURE 5.32 – En bleu, durée RMS du gain simulé par OFIKinRad en fonction de la densité électronique. En rouge, durée RMS mesurée de l'amplification en fonction de la densité électronique.

5.2.2 Réduction de la durée d'impulsion à haute densité

Conjointement aux mesures de dynamique d'amplification, nous avons réalisé à l'aide du diagnostic présenté au début de ce chapitre des mesures de durée pour différentes densités électroniques entre $3,9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Ces mesures sont représentées sur la figure 5.33 par des triangles bleus, les triangles creux étant utilisés pour les mesures tir à tir et les triangles pleins pour la moyenne sur ces différents tirs. La durée de l'impulsion est inférieure et corrélée à la durée de l'amplification et décroît nettement en conséquence, passant en moyenne de $1,4 \pm 0,4$ ps RMS à $3,9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à 640 ± 250 fs à $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Les incertitudes données ici prennent en compte les incertitudes liées à la mesure elle-même et les incertitudes par répétabilité. L'impulsion laser XUV la plus courte est obtenue à $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$: on mesure alors 520 ± 200 fs RMS. L'augmentation conséquente de la densité électronique permet ainsi la première démonstration expérimentale d'un laser XUV collisionnel femtoseconde.

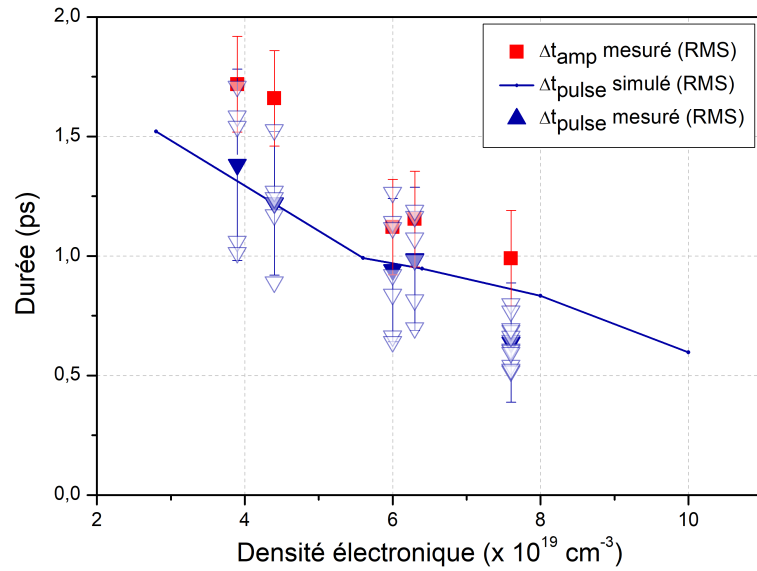


FIGURE 5.33 – En rouge, durée RMS mesurée de l’amplification (Δt_{amp}) en fonction de la densité électronique. En bleu, durée RMS de l’impulsion XUV (Δt_{pulse}) mesurée (triangles) et simulée par DAGON (trait plein) en fonction de la densité électronique. Les symboles creux représentent les mesures tir à tir. Les symboles pleins sont utilisés pour représenter la moyenne sur ces tirs. Le jet a une longueur de 10 mm, la vitesse de groupe est ici $v_g = 1,05c$.

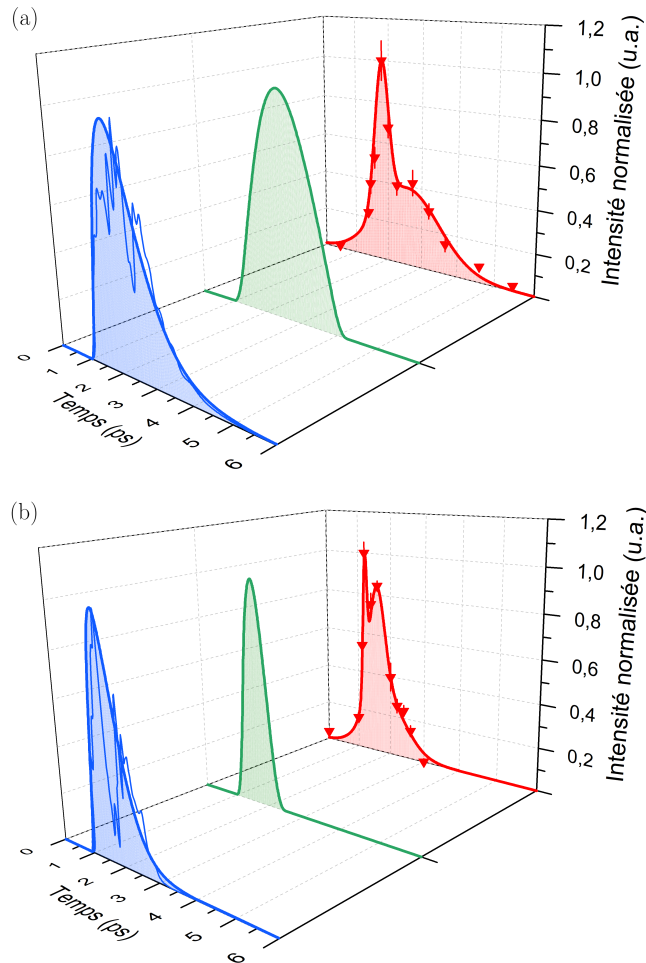


FIGURE 5.34 – Dynamique de l’amplification mesurée en rouge, profils temporels mesuré en vert, et simulé en bleu pour (a) $n_e = 4,4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et (b) $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Le jet a une longueur de 10 mm, la vitesse de groupe est ici $v_g = 1,05c$.

Nos mesures sont également en excellent accord avec les valeurs de durée calculées par le code DAGON, dont l'évolution en fonction de la densité est tracée en trait plein bleu sur la figure 5.33. Il est à noter que ces simulations ont été effectuées en prenant en compte une longueur de plasma de 10 mm et une vitesse de groupe de l'infrarouge $v_g = 1,05c$ pour permettre une comparaison valable avec nos mesures, réalisées dans ces conditions. Nous verrons dans le chapitre 6 que ces paramètres influencent la durée, mais étant ici fixés, ils ne modifient pas le résultat que nous venons d'établir.

La figure 5.34 résume bien tous les résultats que nous venons d'obtenir. Elle illustre, respectivement en (a) pour $4,4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et en (b) pour $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, la dynamique de l'amplification mesurée en rouge, le profil temporel mesuré en vert et simulé en bleu. Le profil simulé présente des structures assez particulières, qui ne sont pas sans lien avec la vitesse de groupe, et que nous évoquerons dans le chapitre 6. Pour permettre une comparaison plus aisée avec le profil mesuré, l'enveloppe du profil simulé est également tracée. On observe très clairement sur cette figure la réduction de la durée de l'impulsion induite par l'interruption anticipée du gain à haute densité. On peut noter également que l'allure générale de l'impulsion mesurée semble cohérente avec celle de l'impulsion simulée. Toutes deux présentent, comme la dynamique de l'amplification, un front avant plus raide que le front arrière, et d'autant plus raide à haute densité.

5.3 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous avons pu démontrer expérimentalement le caractère femtoseconde d'un laser XUV collisionnel à haute densité, ce qui a fait l'objet d'une publication [230]. Nos mesures montrent une nette réduction de la durée jusqu'à 640 fs RMS en moyenne et 520 fs RMS sur un tir unique pour une densité électronique de $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, ce qui constitue la première mesure subpicoseconde pour ce type de source. Cet effet a été observé en parallèle d'une diminution de la durée de l'amplification, et résulte de l'interruption anticipée du gain provoquée par la surionisation de l'ion lasant. Nos mesures sont également en excellent accord avec les simulations issues du code DAGON, ce qui permet la validation des codes plasmas cinétiques. Nos simulations prédisent que la durée d'impulsion continue à décroître lorsque la densité augmente jusque 10^{20} cm^{-3} , ce qui ouvre de nombreuses perspectives en termes d'applications.

Nos mesures ont été rendues possibles par le développement d'un diagnostic innovant, décrit dans ce chapitre, qui se base sur l'irradiation simultanée d'un miroir multicouches par l'impulsion XUV dont on souhaite mesurer le profil temporel et une impulsion pompe infrarouge ultra-courte dont le front d'onde est incliné par rapport à la surface du miroir. Ce diagnostic permet d'effectuer des mesures de profil temporel avec une résolution de 200 fs sur un tir unique en s'affranchissant de l'instabilité tir à tir de la source.

Nous réutiliserons ce diagnostic dans le chapitre suivant, où nous nous pencherons plus en détail sur la nature possible des structures temporelles mises en évidence dans ce chapitre. Nous verrons également que la densité électronique n'est pas le seul paramètre à influencer la durée de l'impulsion : en particulier, nous nous intéresserons à la vitesse de groupe de l'infrarouge, un paramètre clef cité de nombreuses fois ici et qui est au cœur de l'étude à venir dans le chapitre 6.

Chapitre 6

Contrôle de la vitesse de groupe du faisceau pompe et influence sur les performances du laser à 32,8 nm

Comme démontré dans les chapitres précédents, les hautes densités électroniques sont très favorables pour les lasers XUV OFI collisionnels injectés. Elles favorisent cependant la dispersion naturelle du plasma, extrêmement néfaste pour ces sources en schéma de pompage longitudinal. L'harmonique injectée se propage en effet naturellement plus rapidement que le faisceau pompe infrarouge, ce qui résulte en une désynchronisation entre l'impulsion XUV et la fenêtre de gain et donc en une limitation conséquente de la longueur d'amplification effective.

Dans ce chapitre, nous examinerons les différentes limitations induites par la dispersion naturelle du plasma. Nous tenterons de les surpasser en contrôlant de manière artificielle la vitesse de groupe du faisceau pompe grâce aux couplages spatio-temporels. Cette technique nous permettra d'ajuster à volonté la désynchronisation entre les XUV et l'infrarouge, et d'étudier l'impact de cette désynchronisation sur les performances de notre source, en particulier son énergie et sa durée d'impulsion.

Sommaire

6.1 Limitations induites par la dispersion naturelle du plasma	146
6.2 Ajustement de la vitesse de groupe de l'impulsion pompe	148
6.2.1 Etat de l'art	148
6.2.2 Ajustement de la vitesse de groupe par les couplages spatio-temporels	149
6.3 Application dans le cas du laser XUV	155
6.3.1 Principe	155
6.3.2 Impact de la vitesse de groupe sur l'extraction de l'énergie	156
6.3.3 Impact de la vitesse de groupe sur le profil temporel	159
6.3.4 Impact de la vitesse de groupe sur la dynamique de l'amplification	172
6.4 Conclusion	178

6.1 Limitations induites par la dispersion naturelle du plasma

La vitesse de groupe naturelle v_{nat} d'une onde dans un plasma est donnée par le produit de c la vitesse de l'onde dans le vide et η l'indice de réfraction du plasma défini dans l'équation (2.69). Elle s'exprime :

$$v_{nat} = c \times \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}} \quad (6.1)$$

avec n_c la densité critique du plasma, définie en (2.70), qui dépend de λ . Le plasma est donc un milieu à dispersion négative : plus sa longueur d'onde est grande, plus une onde va s'y propager lentement. Cet effet est d'autant plus important que la densité électronique du plasma augmente.

Les lasers XUV injectés en schéma de pompage longitudinal, auxquels nous nous intéressons dans cette thèse, souffrent intrinsèquement de cette dispersion naturelle du plasma qui est responsable d'une désynchronisation entre le faisceau XUV harmonique utilisé pour l'injection et la fenêtre de gain induite par le faisceau pompe infrarouge. La figure 6.1 (a) illustre la vitesse de groupe des XUV et de l'infrarouge en fonction de la densité électronique du plasma. La vitesse de groupe de l'infrarouge diminue progressivement lorsque la densité augmente, creusant ainsi l'écart par rapport à l'XUV qui se propage toujours à c quelque soit la densité du plasma. Il est à noter, qu'au sein même du faisceau pompe dont le spectre est globalement compris entre 740 nm et 860 nm, il y a un phénomène de dispersion. Dans toute la suite, on négligera raisonnablement cet effet par rapport au mismatch entre les XUV et l'infrarouge en considérant que toutes les composantes spectrales infrarouges se propagent à $v_{nat} = v_{nat}(\omega_0)$ avec ω_0 la fréquence centrale de l'impulsion pompe. Pour une densité électronique de 10^{20} cm^{-3} , la vitesse de groupe de l'infrarouge est typiquement $v_{nat} = 0,97c$. La figure 6.1 (b) montre le retard de l'infrarouge par rapport à l'XUV au bout de respectivement 5, 10 et 20 mm de propagation dans le plasma en fonction de la densité. Typiquement à 10^{20} cm^{-3} , l'infrarouge a un retard d'une picoseconde sur l'XUV au bout de 10 mm.

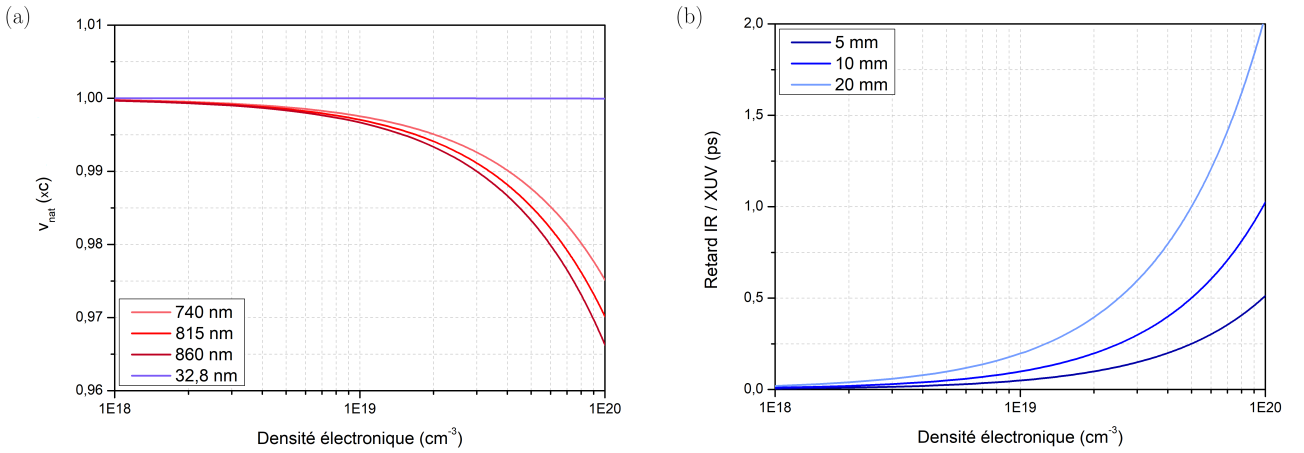


FIGURE 6.1 – (a) Vitesse de groupe de différentes longueurs d'onde en fonction de la densité électronique du plasma. (b) Retard de l'infrarouge par rapport à l'XUV en fonction de la densité électronique d'un plasma de longueur 5, 10 ou 15 mm.

Longueur de déphasage

On définit la longueur de déphasage L_d comme étant la longueur maximum pendant laquelle il y a synchronisation de l'harmonique avec une partie du gain. On peut montrer que, quelque soit la vitesse de groupe du faisceau pompe $v_g \in]-\infty, +\infty[\setminus \{c\}$:

$$L_d = \left| \frac{c \cdot \Delta G}{1 - \frac{v_g}{c}} \right| \quad (6.2)$$

avec ΔG la durée du gain qu'on peut définir à $1/e^2$ ou RMS. On calcule alors la longueur maximum respectivement sur laquelle il y a amplification même faible, ou sur laquelle il y a amplification conséquente (synchronisation avec l'optimum du gain).

Les figures 6.2 (a) et (b) représentent respectivement la durée du gain calculée par OFIKinRad et la longueur de déphasage naturelle en fonction de la densité électronique. Plus la densité électronique augmente, plus la dispersion naturelle du plasma est importante i.e. plus la vitesse de groupe de l'infrarouge s'éloigne naturellement

de c . Cela provoque un raccourcissement progressif de la longueur de déphasage, la désynchronisation entre le gain et les harmoniques injectées étant induite par la différence de vitesse de groupe entre l'infrarouge et l'XUV qui se creuse à haute densité. Cette désynchronisation est d'autant plus rapide que le gain est de plus en plus court lorsque la densité augmente. Typiquement, pour une densité électronique de 10^{20} cm^{-3} , la longueur de déphasage naturelle ne dépasse pas les 6 mm à $1/e^2$. Il n'y a alors synchronisation entre l'harmonique et l'optimum du gain que sur 3 mm (L_d définie en RMS). Pour une densité électronique de $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, la longueur de déphasage ne dépasse pas les 200 μm à $1/e^2$, et est inférieure à 80 μm en RMS. Pourtant hautement bénéfiques pour les raisons évoquées dans les chapitres précédents, les hautes densités et les grandes longueurs d'interaction ne sont donc pas naturellement compatibles en raison de la dispersion du plasma. Parvenir à compenser ce phénomène naturel, en ajustant la vitesse de groupe du faisceau pompe indépendamment de la densité électronique de l'amplificateur, est primordial en vue d'optimiser les performances, notamment énergétiques et temporelles, de la source. La figure 6.3 montre l'évolution de la longueur de déphasage en fonction de la vitesse de groupe du faisceau pompe pour différentes durées du gain. Plus le gain est court, plus la longueur de déphasage est faible. Néanmoins, quelque soit la durée du gain, la longueur de déphasage tend évidemment vers $+\infty$ lorsque $v_g = c$: les XUV et l'infrarouge sont alors parfaitement synchronisés.

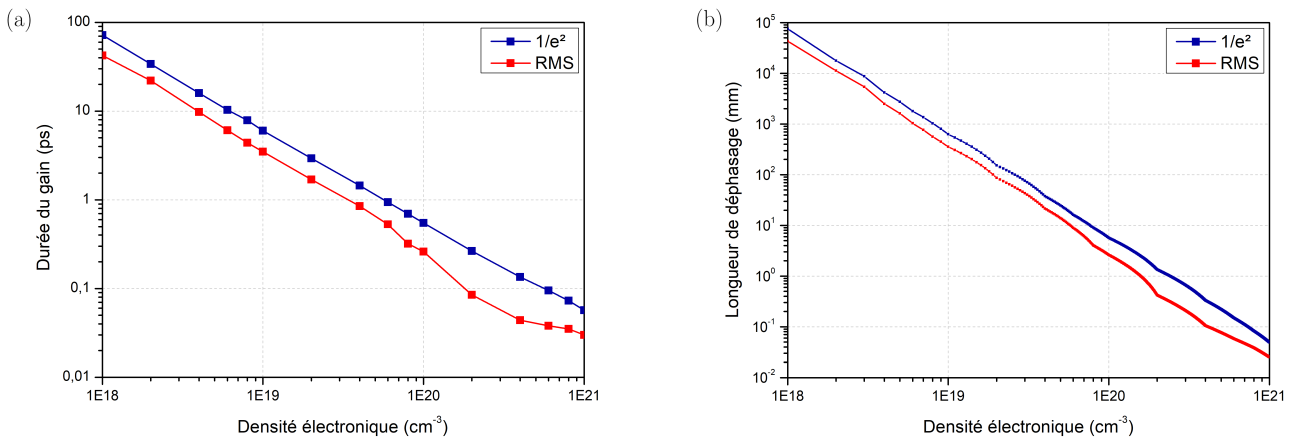


FIGURE 6.2 – (a) Durée du gain (définie à $1/e^2$ en bleu, ou RMS en rouge) calculée par OFIKinRad en fonction de la densité électronique. (b) Evolution de la longueur de déphasage en fonction de la densité électronique.

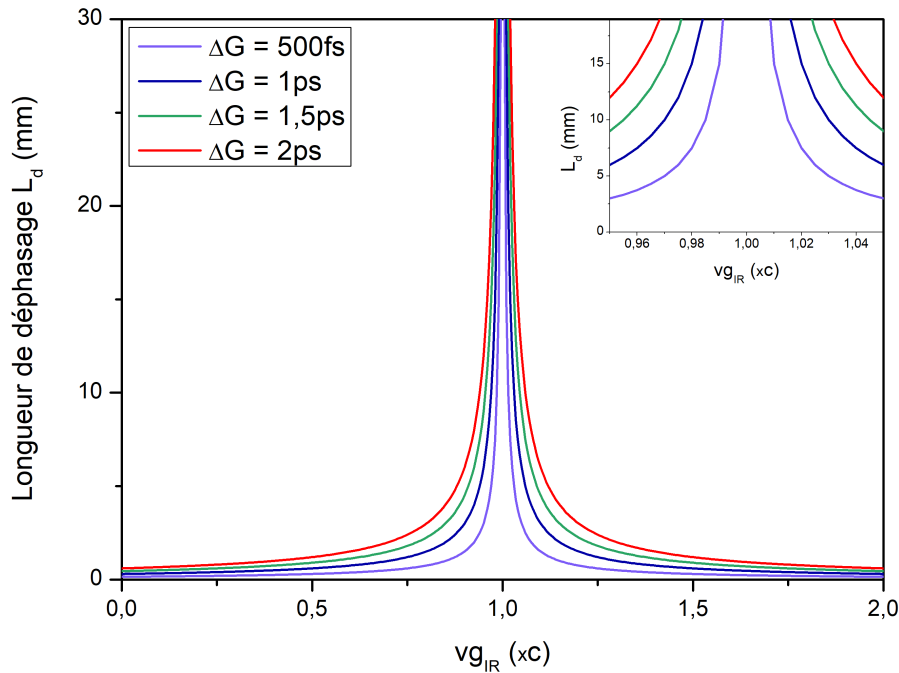


FIGURE 6.3 – Longueur de déphasage en fonction de la vitesse de groupe du faisceau pompe pour différentes durées de gain ΔG .

Dans la suite de ce chapitre, nous nous intéresserons donc à l'impact de la désynchronisation entre la fenêtre de gain et les harmoniques sur notre source. Nous étudierons notamment comment sont affectées l'extraction de l'énergie et la durée de l'impulsion XUV par cette désynchronisation. Pour cela, nous allons apprendre dans la section suivante à contrôler la vitesse de groupe de l'infrarouge dans la zone de Rayleigh.

6.2 Ajustement de la vitesse de groupe de l'impulsion pompe

6.2.1 Etat de l'art

Avant d'exposer la méthode utilisée dans cette thèse pour l'ajustement de la vitesse de groupe de l'impulsion pompe, nous allons présenter un rapide état de l'art de quelques autres techniques possibles. Toutes utilisent des outils différents, mais reposent sur le même principe : déposer l'intensité de l'impulsion pompe en une ligne suivant la direction de propagation et faire varier le délai auquel arrive l'impulsion en une position longitudinale donnée. Cela permettra ainsi de synchroniser la propagation de l'impulsion pompe infrarouge, et donc la création du gain, avec la propagation de l'harmonique injectée.

Une première possibilité est d'utiliser un schéma de pompage en onde progressive [90]. Ce schéma a initialement été proposé pour les lasers XUV transitoires en régime non injecté pour permettre d'allonger significativement la longueur d'amplification effective en synchronisant le chauffage du plasma par l'impulsion courte avec la propagation des photons XUV dans la colonne de plasma (voir 1.3.2.2). Néanmoins, cette technique n'a jamais été utilisée, à notre connaissance, à des fins de compensation de la dispersion du plasma et n'est pas adéquate pour un schéma de pompage longitudinal.

Une deuxième option a été proposée dans le cadre de l'accélération d'électrons dans [231][232], et est illustrée sur la figure 6.4. Elle consiste en la focalisation de deux impulsions en deux lignes focales superposées et alignées suivant la direction de propagation des électrons. L'ajustement de la vitesse de groupe est permis par la présence de Pulse Front Tilt dans les impulsions. Rappelons que le Pulse Front Tilt est un couplage spatio-temporel du premier ordre défini comme une différence d'inclinaison entre le front d'onde (i.e. l'ensemble des points en phase) et le front d'impulsion (ou front d'intensité).

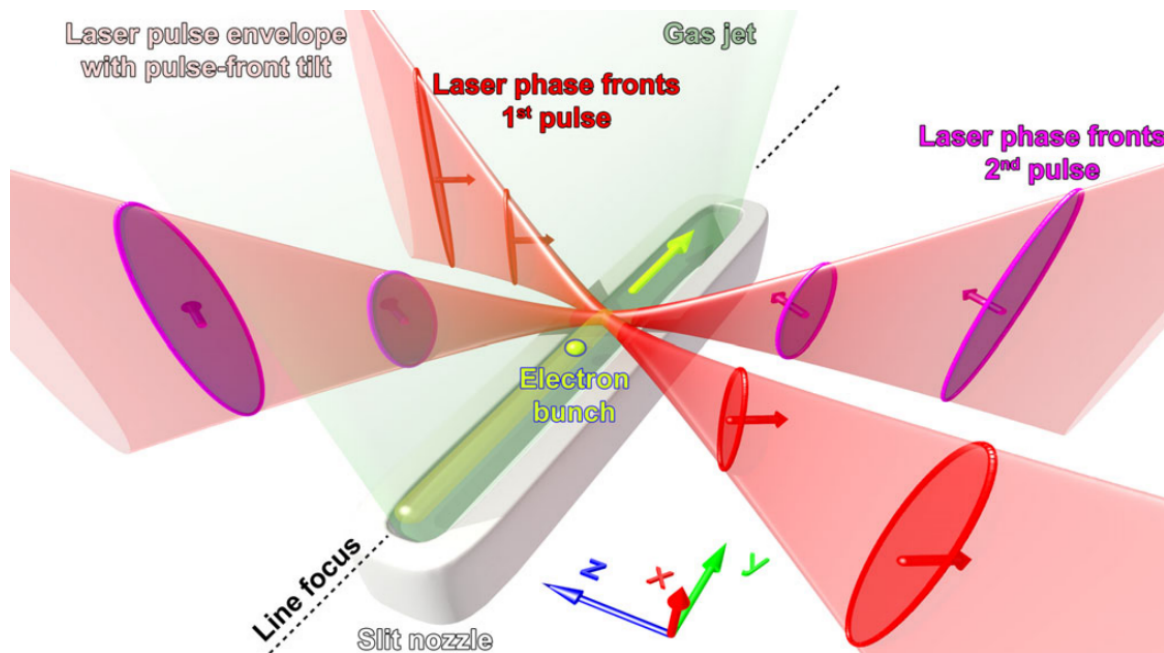


FIGURE 6.4 – Ajustement de la vitesse de groupe proposé dans [232].

Une troisième proposition repose sur l'utilisation d'une axiparabole [233][234], une optique réfléchive (miroir parabolique) analogue à un axicon : elle permet de focaliser un faisceau en une ligne focale. La position longitudinale de focalisation d'un rayon dépend de sa coordonnée radiale sur le miroir. Le faisceau focalisé est de type Bessel et les caractéristiques de l'axiparabole peuvent être choisies de sorte à ce que l'intensité soit quasiment constante le long de la ligne. La vitesse de groupe est ajustée en introduisant un retard radial soit par le biais d'une optique échelon [235], soit par le biais de couplages spatio-temporels [236]. Plus de détails sur cette technique sont données dans l'annexe B.

6.2.2 Ajustement de la vitesse de groupe par les couplages spatio-temporels

Dans cette thèse, nous contrôlerons la vitesse de groupe de l'impulsion pompe purement grâce à l'ajustement de deux couplages spatio-temporels [237][238][239] : le Pulse Front Curvature et le chirp temporel que nous commençons par définir.

6.2.2.1 Définition des couplages spatio-temporels utilisés

Pulse Front Curvature / chromatisme longitudinal

Le premier couplage spatio-temporel nécessaire à l'ajustement de la vitesse de groupe est le Pulse Front Curvature (PFC), qui correspond à une dépendance de la courbure spatiale du front d'onde en fonction de la longueur d'onde. Cela se traduit dans le domaine temporel par un retard radial τ du front d'impulsion par rapport au front d'onde qui varie quadratiquement :

$$\tau(r) = \alpha r^2 \quad (6.3)$$

avec α un coefficient en $\text{fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ qui caractérise la quantité de PFC. Le PFC se traduit en champ lointain (i.e. au foyer d'une optique de focale f) par du chromatisme longitudinal. La position longitudinale z du plan focal dépend alors, de façon linéaire, de la longueur d'onde suivant :

$$z(\omega) = 2f^2 c \alpha \frac{\Delta\omega}{\omega_0} \quad (6.4)$$

avec ω_0 la fréquence centrale de l'impulsion considérée et $\Delta\omega = \omega - \omega_0$.

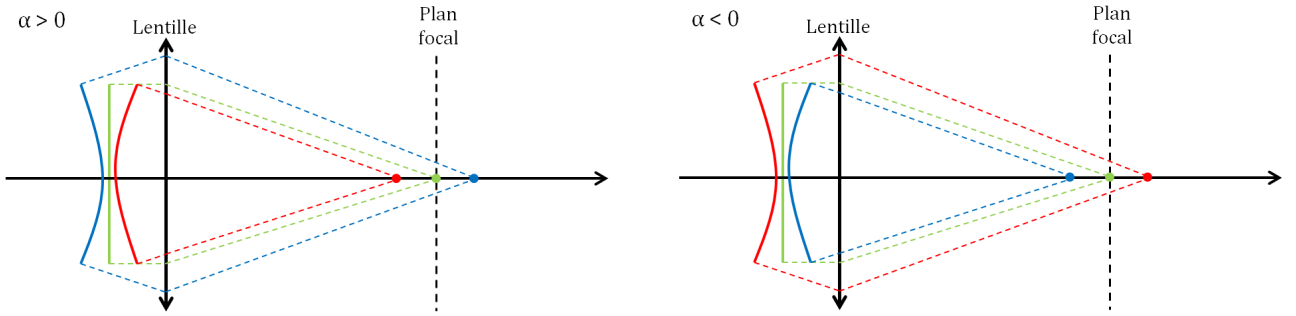


FIGURE 6.5 – Focalisation d'une impulsion contenant du Pulse Front Curvature, caractérisé par α respectivement positif à gauche et négatif à droite. Le PFC se traduit en champ lointain (i.e. au foyer) par du chromatisme longitudinal.

La focalisation d'une impulsion contenant du PFC est illustrée sur la figure 6.5. On observe clairement le chromatisme longitudinal en champ lointain : les longueurs d'onde les plus courtes sont respectivement focalisées plus loin de l'optique pour $\alpha > 0$, et plus près de l'optique pour $\alpha < 0$.

Chirp temporel

On considère un champ E de fréquence centrale ω_0 défini par $E(\omega) = A(\omega) e^{i\phi(\omega)}$ avec A son amplitude. Sa phase spectrale ϕ peut être décomposée au voisinage de ω_0 suivant un développement de Taylor :

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + \Delta\omega \left(\frac{d\phi}{d\omega} \right)_{\omega_0} + \frac{\Delta\omega^2}{2} \left(\frac{d^2\phi}{d^2\omega} \right)_{\omega_0} + o(\Delta\omega^2) \quad (6.5)$$

On néglige ici les ordres supérieurs à 2. Les termes d'ordre 0 et d'ordre 1 induisent respectivement un déphasage global de l'impulsion et un retard de l'enveloppe. On s'intéresse ici en particulier au terme d'ordre 2 qu'on appelle chirp temporel. Certaines composantes spectrales sont alors en avance par rapport à d'autres, ce qui produit un étirement de l'impulsion donné par :

$$\Delta t = \Delta t_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln 2 \phi''}{\Delta t_0^2} \right)^2} \quad (6.6)$$

Lorsque $\phi'' > 0$, ce sont les composantes "rouges" (i.e. grandes longueurs d'onde) qui sont en avance. Lorsque $\phi'' < 0$, ce sont les composantes "bleues" (i.e. petites longueurs d'onde) qui sont en avance. Dans la suite, on utilisera le coefficient $\beta = -\phi''$ en fs^2 .

6.2.2.2 Ajustement et mesure de ces couplages spatio-temporels

Dans cette section, nous détaillons les méthodes utilisées dans cette thèse pour contrôler et mesurer la quantité de couplages spatio-temporels introduits dans le faisceau. Néanmoins, d'autres solutions existent, et sont par exemple présentées dans [239][240][241].

Pulse Front Curvature / chromatisme longitudinal

La quantité de PFC est ici ajustée grâce à l'ajout d'un ou de plusieurs doublets chromatiques de focales infinies dans le trajet du faisceau infrarouge pompe.

Usuellement, les doublets sont utilisés pour limiter les aberrations chromatiques. Ils consistent en deux lentilles, une convergente et une divergente, de deux verres différents : un verre dit *crown* à faible dispersion chromatique type BK7, et un verre dit *flint* très réfringent type SF5. Les caractéristiques de chacune de ces lentilles peuvent être choisies de sorte à ce que le doublet soit achromatique i.e. n'introduise aucune aberration chromatique. Cette configuration est représentée sur la figure 6.6 (a). On observe ici que toutes les longueurs d'onde sont focalisées à la même position longitudinale.

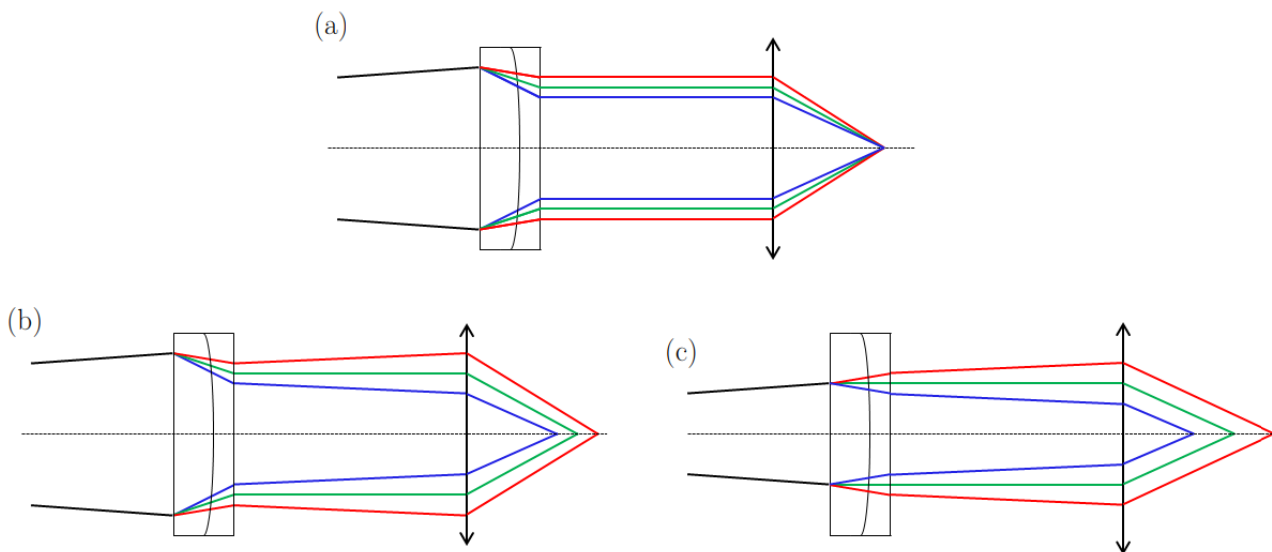


FIGURE 6.6 – Principe de l'ajustement de la quantité de PFC. On insère dans le faisceau de divergence donnée en (a) un doublet achromatique, en (b) et en (c) un doublet chromatique. La position longitudinale du doublet dans le faisceau divergent permet d'ajuster dynamiquement la quantité de PFC (passage de (b) à (c)). Dans les trois cas, le faisceau est focalisé par une lentille paraxiale pour mettre en valeur la présence ou non de chromatisme longitudinal.

Les caractéristiques du doublet peuvent aussi être choisies de sorte à introduire une quantité précise de chromatisme (figure (b)) : soit pour compenser le chromatisme déjà présent de la chaîne laser, soit par nécessité de travailler avec une quantité de chromatisme donné. Le doublet doit impérativement être inséré dans le faisceau avant compression pour maintenir l'intégrale B sous les 5 rad afin d'éviter de graves dommages non linéaires et des effets de distorsion dus à l'automodulation de phase ou à l'autofocalisation. Dans notre cas, l'intégrale B ne dépasse pas 3 mrad avant compression (4,2 J, 600 ps, 90 mm de diamètre) alors qu'elle est de l'ordre de 30 rad après compression (2,1 J, 30 fs, 90 mm de diamètre).

Plusieurs doublets peuvent être utilisés simultanément pour faire varier ponctuellement la quantité de PFC, mais la quantité de PFC peut également être ajustée dynamiquement avec un doublet unique : il est alors nécessaire que le doublet soit inséré dans un faisceau divergent. On ajuste alors la quantité de PFC en faisant varier la position longitudinale du doublet dans le faisceau comme le montre le passage de la figure (b) à la figure (c). Ce résultat a été démontré expérimentalement par la mesure directe de la quantité de PFC contenue dans le faisceau et a fait l'objet d'une publication [242]. Le doublet est alors inséré avant la dernière lentille du dernier système afocal de la chaîne avant compression. Dans la suite, on notera D la distance séparant le doublet de cette dernière lentille.

Le principe de la mesure de la quantité de chromatisme longitudinal présente dans le faisceau est illustré sur la figure 6.7. Elle est réalisée à faible puissance pour éviter d'endommager les amplificateurs grâce à un filtre dispersif programmable acousto-optique de type Dazzler [193] situé en début de chaîne laser. En pratique, le faisceau incident, complet spectralement, se propage à travers un cristal biréfringent, monté sur un transducteur piézoélectrique qui crée une onde acoustique se propageant longitudinalement. En modulant l'amplitude de cette onde, on ajuste l'efficacité de diffraction pour chaque composante spectrale. En modulant la fréquence de cette onde, on fait varier la position longitudinale où la diffraction se produit pour chaque composante spectrale. Le contrôle de l'amplitude et de la phase de cette onde permet donc d'atténuer certaines composantes du spectre. On sélectionne ainsi une fenêtre spectrale étroite de largeur typiquement $\Delta\lambda = 10$ nm autour d'une longueur d'onde ajustable. Le faisceau est ensuite focalisé, idéalement par une optique réflective ou par une optique achromatique, sur une caméra CCD qui scanne la zone de Rayleigh. On repère ainsi la position du plan focal d'une composante spectrale donnée et on réitère cette mesure pour au moins une autre composante spectrale. On déduit finalement de la formule (6.4) le coefficient α .

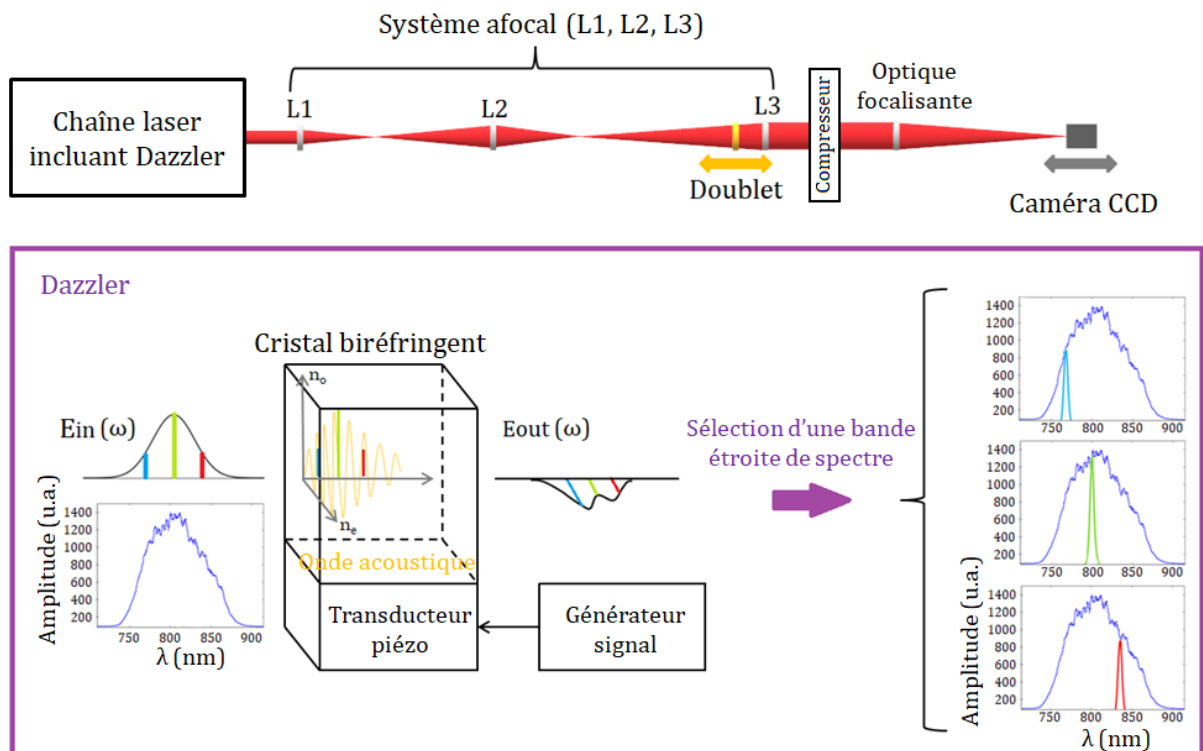


FIGURE 6.7 – Principe de la mesure de la quantité du chromatisme longitudinal. Une fenêtre spectrale de largeur $\Delta\lambda = 10$ nm est sélectionnée par un Dazzler. Le faisceau est focalisé et on repère la position longitudinale du plan focal de la composante spectrale sélectionnée à l'aide d'une CCD. La répétition de cette mesure pour différentes composantes spectrales permet de déduire le coefficient α .

En pratique, on mesure sur la figure 6.8 l'intensité pic du faisceau dans la zone de Rayleigh pour trois fenêtres spectrales centrées autour de 775 nm, 800 nm et 825 nm et pour trois positions longitudinales du doublet, respectivement en (a) pour $D = 12$ cm, en (b) pour $D = 30$ cm et en (c) pour $D = 50$ cm. On observe très nettement une variation du PFC entre ces trois configurations. Les mesures donnent respectivement $\alpha = 1,3 \pm 0,1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ en (a), $2,6 \pm 0,1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ en (b) et $3,6 \pm 0,1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ en (c).

Notons qu'il a également été montré expérimentalement que le centrage d'un doublet chromatique inséré en faisceau divergent peut être ajusté pour modifier la quantité de dispersion angulaire / chirp spatial présent dans le faisceau. Ces résultats ont aussi été présentés dans [242] et sont détaillés dans l'annexe C.

Dans la suite, nous ferons principalement varier le PFC en changeant le nombre de doublets, et non leur position longitudinale, ce qui permettra une étude sur une gamme plus large du paramètre α : typiquement, on aura $\alpha_0 \text{ doublet} = -9 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\alpha_1 \text{ doublet} = -2 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, et $\alpha_2 \text{ doublets} = 4 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$.

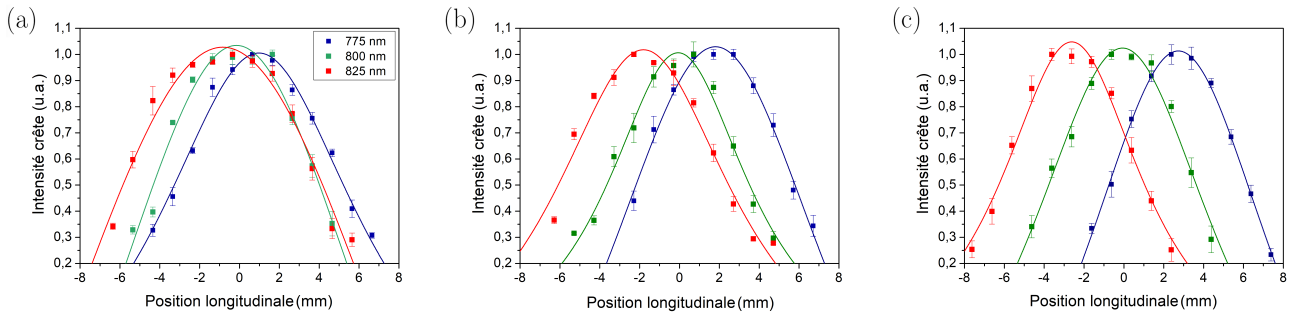


FIGURE 6.8 – Intensité pic du faisceau en fonction de la position longitudinale de la CCD pour différentes fenêtres spectrales respectivement centrées autour de 775 nm, 800 nm et 825 nm. On fait varier la distance entre le doublet et la dernière lentille du système afocal : (a) $D = 12$ cm, (b) $D = 30$ cm, (c) $D = 50$ cm. Les mesures sont fittées par des Lorentziennes.

Chirp temporel

La quantité de chirp temporel est ajustée grâce au système de compression du faisceau pompe. Celui-ci est représenté sur la figure 6.9, et est constitué de deux réseaux de pas d . Ici, une impulsion étirée temporellement arrive avec un angle d'incidence θ sur le premier réseau qui sépare angulairement les différentes composantes spectrales. Le second réseau, parallèle au premier et de mêmes caractéristiques, permet une transformation spectre-position. Le système est symétrisé à l'aide d'un miroir pour recombiner spatialement les différentes composantes spectrales. La distance entre les réseaux L_{comp} est ici telle que les composantes "rouges" parcourent plus de distance que les "bleues" de sorte à ce que le délai en entrée soit parfaitement compensé en sortie et que l'impulsion soit recomprimée. Par convention, la compression optimale correspond à $L_{comp} = 0$. En faisant varier L_{comp} , on peut ajuster la différence de trajet parcouru entre les différentes longueurs d'onde et donc la quantité de chirp temporel. Le coefficient β est ainsi relié à L_{comp} par :

$$\beta = \frac{\lambda^3 L_{comp}}{\pi c^2 d^2 \cos^3(\theta)} \quad (6.7)$$

Lorsqu'on écarte les réseaux (par rapport à l'optimum i.e. $L_{comp} > 0$), les composantes "bleues" sont en avance. Inversement, lorsqu'on rapproche les réseaux ($L_{comp} < 0$), les composantes "rouges" sont en avance.

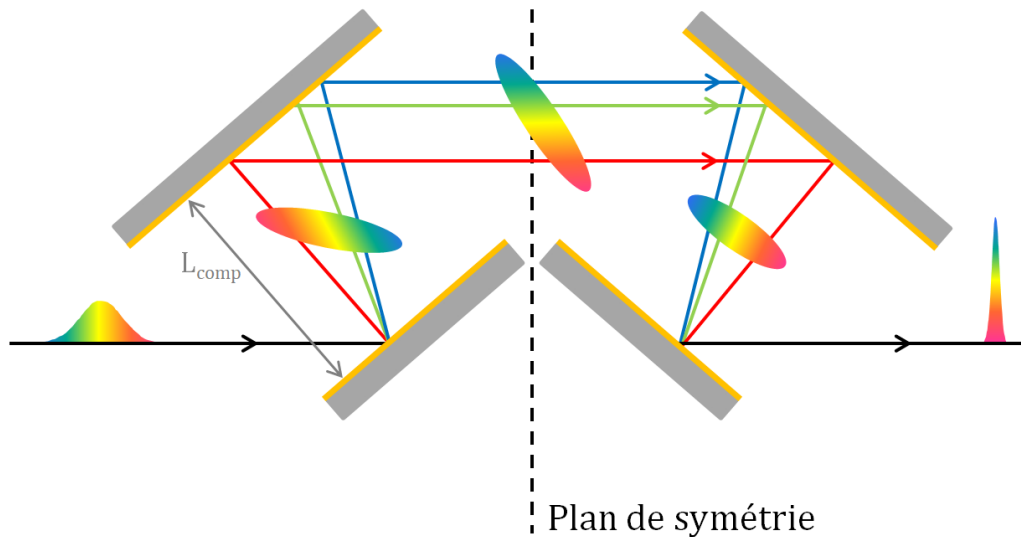


FIGURE 6.9 – Schéma de principe d'un système de compression pour $L_{comp} = 0$ (compression optimale).

Dans la suite, le coefficient β est calculé directement par la formule (6.7) à partir de la distance L_{comp} entre les réseaux du compresseur. Le tirage du compresseur étant motorisé, cette distance est connue par la position indiquée par les moteurs par rapport à la position de la compression optimale. Cette dernière a été déterminée, avec une incertitude estimée à $100 \mu\text{m}$ soit 500 fs^2 , en réalisant une mesure de la durée d'impulsion au SPIDER [243].

6.2.2.3 Ajustement de la vitesse de groupe par les couplages spatio-temporels

La figure 6.10 illustre le principe de l'ajustement de la vitesse de groupe grâce au PFC et au chirp temporel. Cette technique est appelée dans la littérature "flying focus effect". On considère pour commencer une propagation dans un plasma sans couplages spatio-temporels (cas (a)) : toutes les composantes spectrales infrarouges sont focalisées dans le même plan focal z ($\alpha = 0$) et se propagent en même temps (i.e. sans retard les unes par rapport aux autres, $\beta = 0$). Comme expliqué précédemment, on prend ici en compte le fait que l'infrarouge est naturellement ralenti dans le plasma et ne se propage pas à c mais on néglige l'effet de dispersion au sein de l'infrarouge en considérant que toutes ses composantes spectrales se propagent à $v_{nat} = v_{nat}(\omega_0)$. Dans le cas (b), le coefficient α est non nul : les différentes composantes spectrales sont focalisées dans des plans différents. Néanmoins, toutes les composantes spectrales partent en même temps ($\beta = 0$) et se propagent à v_{nat} . On dépose donc ici d'abord le "bleu" dont le plan focal est plus proche de l'optique, puis le "rouge" dont le plan focal est plus éloigné. Dans le cas (c), on considère $\alpha = 0$ mais on introduit du chirp temporel. Les différentes longueurs d'onde se propagent à v_{nat} et sont alors focalisées au même endroit mais le "bleu" est ici en avance par rapport au "rouge". Dans le cas (d), on introduit à la fois du PFC et du chirp temporel. Chaque composante spectrale est déposée à un endroit différent et à un moment différent. La vitesse effective de dépôt de l'intensité pic, qu'on appellera aussi vitesse de groupe, est alors déterminée par la pente grise. Nous avons ici considéré une certaine quantité $\alpha < 0$ et une certaine quantité $\beta > 0$. Cela mène dans ce cas à une vitesse de groupe v_g donnée comprise entre 0 et c . En fonction de la quantité de chirp temporel et de PFC, il est possible d'ajuster la pente grise et donc la vitesse de groupe, et même de choisir une vitesse superluminale (cas (e)) ou une vitesse négative (cas (f)). Notons bien que chaque composante spectrale de l'impulsion pompe se propage à une vitesse donnée réelle proche de $v_{nat}(\omega_0)$. La vitesse de groupe dont nous parlons correspond à la vitesse de l'intensité pic. C'est une vitesse "artificielle", définie dans la zone de Rayleigh et colinéaire à la direction longitudinale et non aux rayons lumineux, induite par les couplages spatio-temporels. Par exemple, dans le cas d'une vitesse de groupe négative, les fréquences focalisées le plus loin de l'optique ont une avance temporelle qui leur permet d'être déposées en premier et les fréquences focalisées le plus près de l'optique ont un retard et sont donc déposées en dernier. L'intensité pic se "répropage" alors de l'aval vers l'amont. Notons également que même si nous nous limiterons dans la suite à l'ordre 2, il est également possible d'induire une vitesse de groupe non linéaire (i.e. une accélération ou une décélération du dépôt de l'intensité pic) grâce à une phase spectrale d'ordre supérieur [237].

D'un point de vue calculatoire, on peut calculer la vitesse de groupe artificielle de l'impulsion pompe de la manière suivante. La fréquence ω arrive en z à l'instant t donné par :

$$t(\omega) = \frac{z(\omega)}{v_{nat}} - \beta \Delta\omega \quad (6.8)$$

avec z défini par l'équation (6.4). Après quelques manipulations mathématiques, on obtient :

$$\frac{v_g}{v_{nat}} = \frac{1}{1 - \frac{\omega_0 \beta}{2f^2 \alpha} \frac{v_{nat}}{c}} \quad (6.9)$$

On soulignera qu'on observe également par le calcul que v_g peut être positive ou négative, et que $|v_g|$ peut être supérieure ou inférieure à c . On peut également noter que la vitesse de groupe tend vers l'infini (i.e. le maximum d'intensité se produit en même temps quelque soit z) lorsque :

$$\beta = \beta_0 = \frac{2f^2 \alpha}{\omega_0} \frac{c}{v_{nat}} \quad (6.10)$$

Grâce à l'ajustement de ces couplages spatio-temporels, des vitesses de groupe de $-0,09c$ à $39c$ ont pu être démontrées expérimentalement [238]. Cette méthode, emplie d'espoir pour l'amélioration des performances dans de nombreux champs de l'interaction laser-plasma, n'a cependant jamais été utilisée en pratique pour contrôler la vitesse de groupe d'une impulsion haute intensité dans un plasma. Nous l'appliquons dans cette thèse au cas d'un laser XUV collisionnel injecté en schéma de pompage longitudinal.

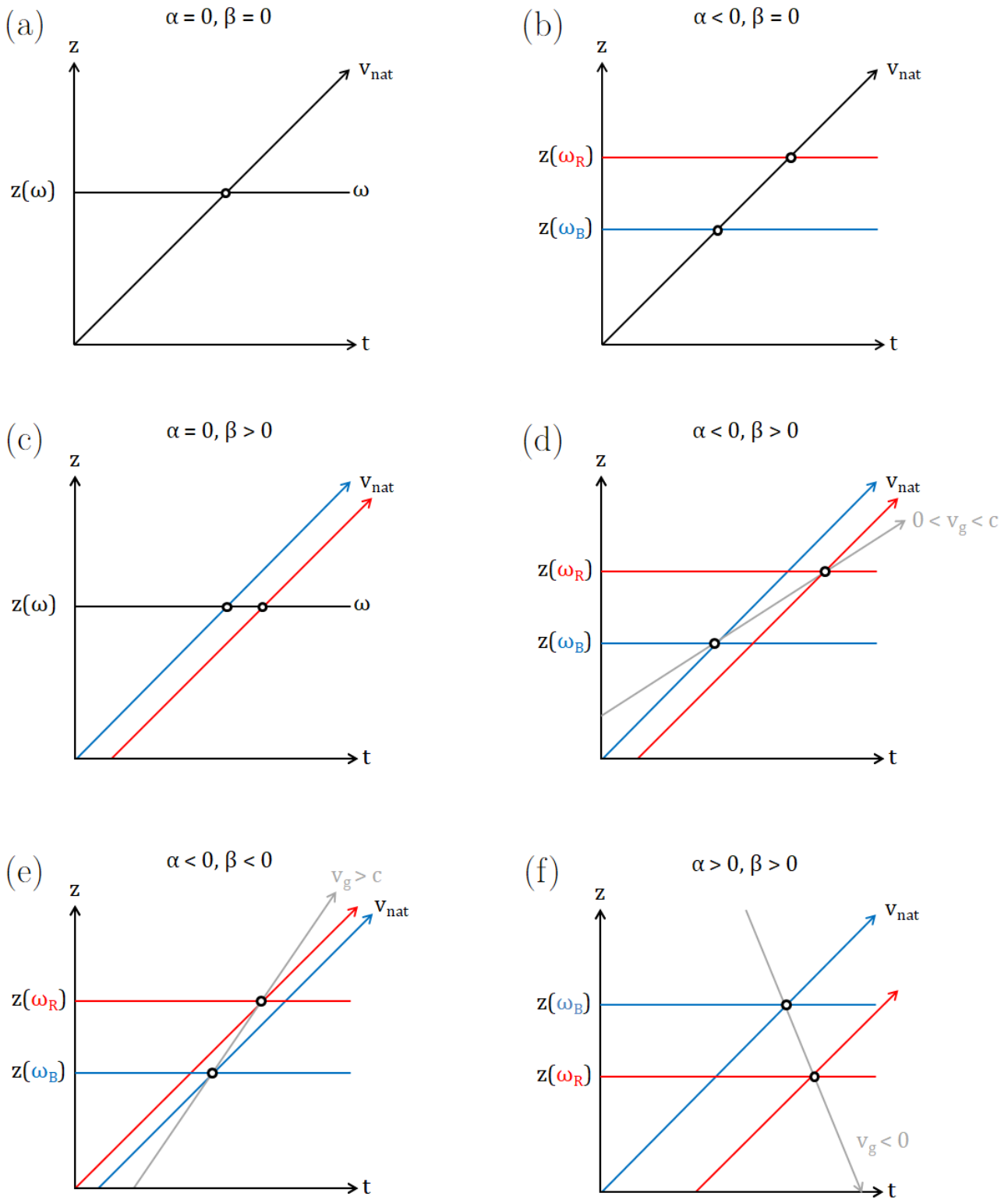


FIGURE 6.10 – Illustration du principe d’ajustement de la vitesse de groupe à l’aide de couplages spatio-temporels : Pulse Front Curvature (caractérisé par α) et chirp temporel (caractérisé par β). $z(\omega)$ représente la position du plan focal de la fréquence ω , t représente le temps. Une pente sur ce graphe correspond ainsi à une vitesse.

6.3 Application dans le cas du laser XUV

6.3.1 Principe

Dans cette section, nous allons étudier l'impact de la vitesse de groupe du faisceau pompe et donc de la désynchronisation entre les harmoniques XUV et la fenêtre du gain sur les performances de la source. Ces dernières seront étudiées en accentuant ou en compensant la dispersion naturelle du plasma grâce à l'ajustement de la vitesse de groupe par les couplages spatio-temporels comme nous venons de le voir en théorie. Le schéma complet de l'expérience est représenté sur la figure 6.11.

Le coefficient α caractérisant le PFC est ajusté grâce au nombre de doublets chromatiques insérés juste avant compression : nous disposons de deux doublets de caractéristiques similaires (présentées dans l'annexe D), éclipables sous vide. Il est à noter que ces doublets ont été conçus pour minimiser les aberrations autres que le PFC / chromatisme longitudinal et ont un effet négligeable sur la phase spectrale du deuxième ordre (voir annexe D). Le coefficient β caractérisant le chirp temporel est quant à lui contrôlé en faisant varier la distance entre les réseaux du compresseur. En pratique, l'ajustement de la vitesse de groupe est effectué dans l'enceinte contenant le compresseur du faisceau pompe comme le montre la photo sur la figure 6.11.

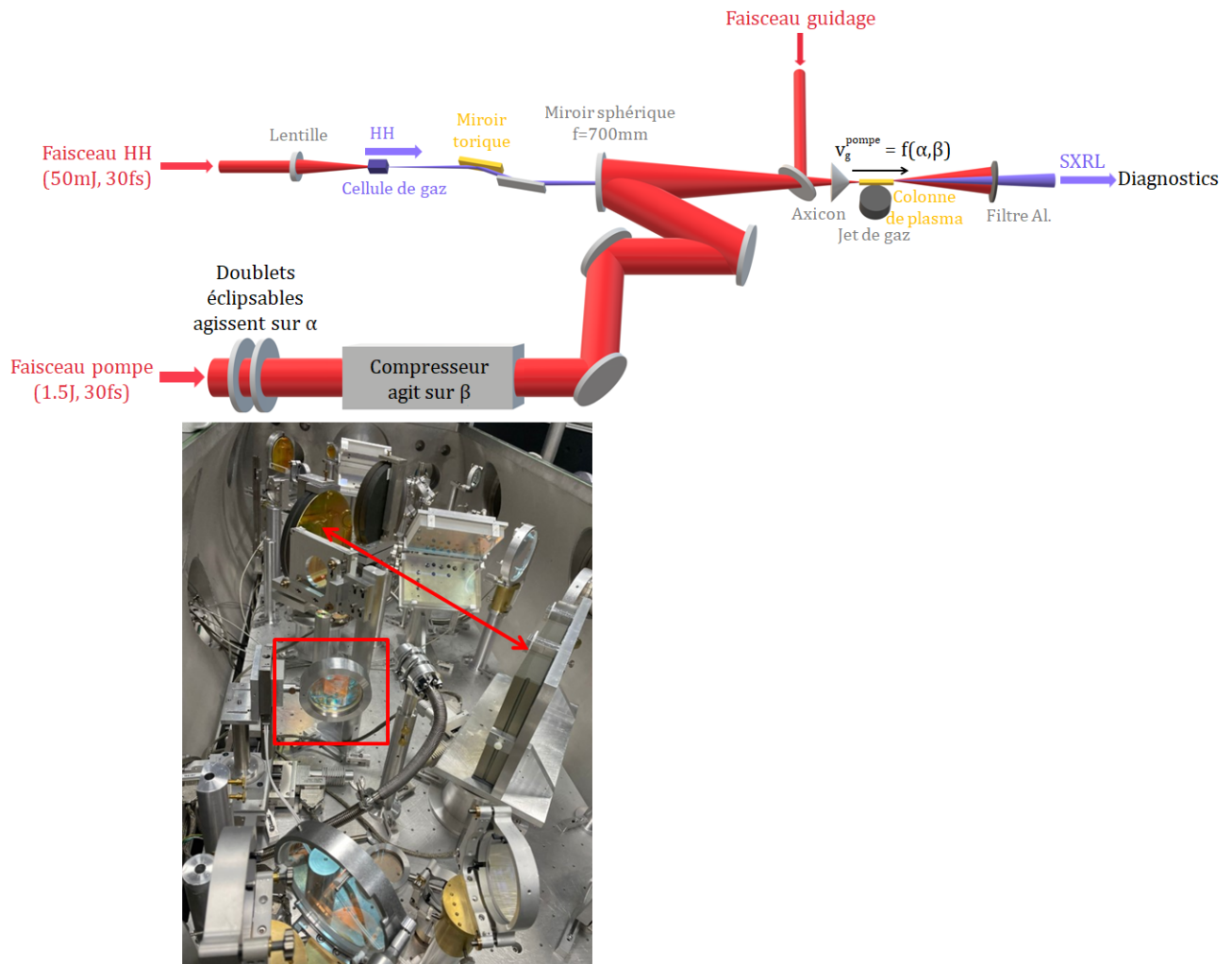


FIGURE 6.11 – Schéma complet de l'expérience : génération du laser XUV injecté en schéma de pompage longitudinal. La vitesse de groupe du faisceau pompe est ajustée grâce au contrôle des couplages spatio-temporels, qui est effectué en pratique dans l'enceinte du compresseur du faisceau pompe présentée sur la photo. Le PFC, caractérisé par α est ajusté grâce au nombre de doublets chromatiques (ici un doublet encadré sur la photo) insérés dans le faisceau pompe avant compression. Le chirp temporel, caractérisé par β , est ajusté en faisant varier la distance entre les réseaux du compresseur du faisceau pompe, symbolisée sur la photo par la double flèche.

6.3.2 Impact de la vitesse de groupe sur l'extraction de l'énergie

Nous allons ici étudier l'évolution de l'extraction de l'énergie, telle que définie en 4.2.2.2, en fonction de la désynchronisation entre les harmoniques XUV et la fenêtre de gain. Pour cela, on va travailler à α fixé (soit $\alpha_0 \text{ doublet} = -9 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, soit $\alpha_1 \text{ doublet} = -2 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, soit $\alpha_2 \text{ doublets} = 4 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$) et faire varier la vitesse de groupe avec la distance L_{comp} entre -8 mm et +8 mm, ce qui correspond à $\beta \in [-50000, 50000] \text{ fs}^2$. On trace sur la figure 6.12 (a) l'évolution de la durée de l'impulsion pompe en fonction de β , donnée par la formule (6.6). La durée est minimum à l'optimum de compression et vaut 30 fs. La durée de l'impulsion augmente ensuite, de façon symétrique par rapport à l'optimum, avec le chirp temporel jusqu'à atteindre environ 4,5 ps à $\pm 50000 \text{ fs}^2$. La figure (b) représente l'intensité correspondante de l'impulsion en fonction de β . Elle est maximale en 0 où elle vaut alors $4,5 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$, et décroissante de façon symétrique par rapport à l'optimum lorsque le chirp augmente. On rappelle que l'intensité seuil de suppression de la barrière de potentiel pour le Kr^{8+} est $3,1 \times 10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. En théorie, l'intensité est donc suffisante pour générer les ions lasants tant que $|\beta| < 40000 \text{ fs}^2$. Soulignons que le coefficient α impacte également l'intensité du faisceau pompe même si cela est difficilement quantifiable théoriquement, et que nous ne disposons malheureusement pas de mesures de l'intensité de la tache focale en fonction du nombre de doublets dans les conditions expérimentales précises dans lesquelles nous travaillons par la suite. Dans des conditions un peu différentes (optique de focalisation du faisceau pompe et un système afocal de la chaîne laser différents), nous avons pu mesurer une baisse de l'intensité d'un facteur 2,5 environ entre le cas "1 doublet" et le cas "0 doublet" pour lequel la quantité de PFC est plus importante. Quelque soit le α choisi, on estime donc raisonnablement (compte tenu de la réserve en énergie disponible par rapport à l'intensité seuil de suppression de la barrière) que l'intensité est suffisante pour générer les ions lasants sur une large variation en β .

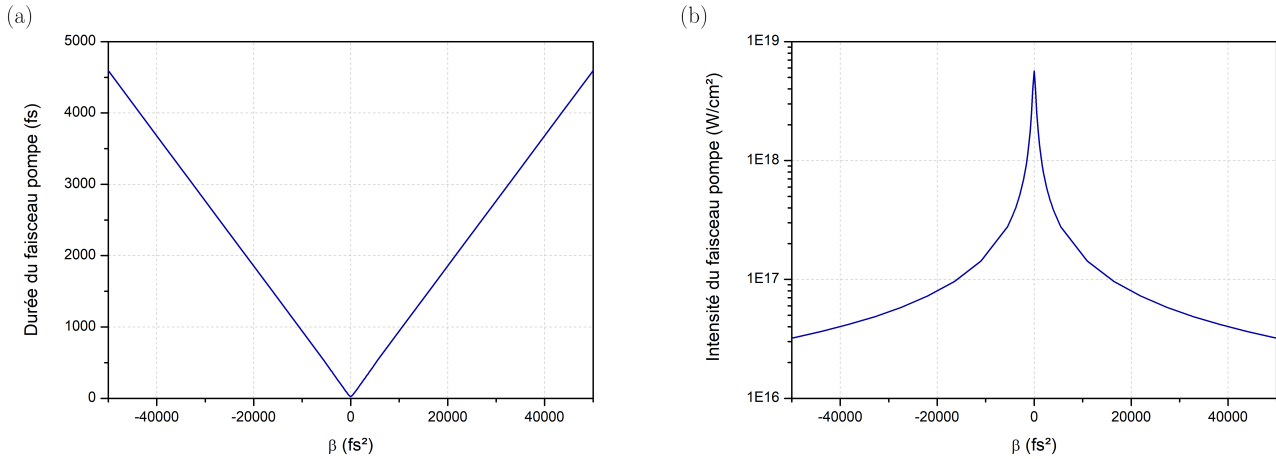


FIGURE 6.12 – Evolution (a) de la durée (b) de l'intensité de l'impulsion pompe en fonction de β .

On étudie dans un premier temps l'évolution de l'énergie XUV en régime ASE en fonction du coefficient β sur les figures 6.13 (a), (c) et (e) pour respectivement 0, 1 et 2 doublets. L'énergie ASE est mesurée en intégrant le signal sur une divergence d'environ 10 mrad contenant tout l'ASE, comme expliqué dans la section 4.1.2, grâce au diagnostic composé d'une parabole hors axe présenté en 3.4.2.2. Les incertitudes pour chaque β sont obtenues par répétabilité sur plusieurs tirs consécutifs. Notons que nous montrons ici l'énergie ASE normalisée. Il n'apparaît en effet pas très pertinent de comparer le niveau de signal entre ces trois courbes puisque les mesures ont été effectuées sur des jours différents et que les fluctuations de la source peuvent être assez conséquentes d'un jour à l'autre. De plus, l'énergie ASE peut également être influencée par la qualité de la tache focale et l'intensité pompe qui dépend du nombre de doublets utilisés. On s'intéresse donc uniquement ici à l'allure des différentes courbes.

A α non nul, le coefficient β fait varier la vitesse de groupe de l'impulsion pompe et donc la vitesse de création du gain. Néanmoins, ici en régime ASE, il n'est pas question d'ajuster la désynchronisation entre les harmoniques XUV et la fenêtre de gain puisqu'il n'y a pas d'injection. La variation de vitesse de groupe en soi (en régime non injecté) n'a a priori pas d'impact sur l'énergie mesurée, cette dernière étant intégrée temporellement par la CCD XUV. Le coefficient β influence donc ici seulement la durée de l'impulsion et en conséquence son intensité comme nous venons de le montrer à l'aide de la figure 6.12. En théorie, on pourrait donc s'attendre, à α fixé, à ce que le maximum d'énergie soit obtenu à la compression optimale et à ce que l'énergie soit décroissante de façon symétrique à mesure qu'on augmente le chirp et donc qu'on restreint l'intensité du faisceau pompe. L'optimum de signal se trouve en réalité, quelque soit α , autour de -4000 fs^2 , la durée de l'impulsion vaut alors 400 fs et l'intensité $3,7 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'énergie XUV décroît ensuite de part et d'autre de cet optimum. Nous

ne connaissons pas à l'heure actuelle la raison de ce décalage de l'optimum par rapport à nos attentes, sachant que l'optimum de compression est déterminé à $100 \mu\text{m}$ soit 500 fs^2 près. Une explication possible pourrait être qu'un certain $\beta < 0$ permettrait de compenser la dispersion du plasma au sein de l'infrarouge i.e. le fait que les grandes longueurs d'onde infrarouges se propagent naturellement moins vite dans le plasma (que les plus courtes longueurs d'onde infrarouges) en leur donnant une avance temporelle. On observe également que le comportement de l'énergie ASE en fonction de β est relativement similaire dans les trois cas i.e. quelque soit la quantité de PFC, et est donc bien indépendant de la vitesse de groupe.

Dans un deuxième temps, on mesure l'évolution de l'énergie en régime injecté, intégrée sur une divergence d'environ $1,5 \text{ mrad}$ qui correspond à l'harmonique amplifiée, en fonction de β . Ces courbes sont tracées en bleu sur les figures 6.13 (b), (d) et (f) pour respectivement $\alpha_0 \text{ doublet} = -9 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, $\alpha_1 \text{ doublet} = -2 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ et $\alpha_2 \text{ doublets} = 4 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'énergie en régime injecté est ici normalisée par rapport à l'énergie mesurée en régime ASE dans la configuration correspondante (i.e. pour le même nombre de doublets). Il n'est pas pertinent ici de comparer l'énergie en régime injecté entre les trois configurations puisque les mesures ont été réalisées sur trois jours différents et donc avec des énergies ASE et harmoniques différentes et des conditions de couplages différentes. Contrairement à l'énergie ASE qui est similaire dans les trois cas, l'énergie en régime injecté a une allure très différente en fonction de la quantité de PFC. On observe en effet que la position de l'optimum de signal varie et on constate un comportement très clairement asymétrique, en particulier dans les cas "0 doublet" et "2 doublets". Dans la configuration "sans doublet" (figure (b)), l'énergie est optimale entre -8000 fs^2 et -4000 fs^2 . Pour les chirps plus faibles, l'énergie de l'harmonique amplifiée subit une forte chute avec une pente très raide. En revanche, pour les valeurs de β plus élevées, elle décroît plus lentement. Dans la configuration "2 doublets" (figure (f)), on observe également un comportement asymétrique mais inverse au cas précédent avec une chute raide pour les chirps positifs et une diminution plutôt lente du signal pour les chirps négatifs.

Sur le même graphe, nous avons tracé en rouge la vitesse de groupe en fonction de β . La bande rouge pâle correspond à l'incertitude sur la vitesse de groupe déterminée à partir de l'incertitude sur α de l'ordre de $1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ et de l'incertitude sur β de l'ordre de 500 fs^2 . On observe très nettement l'asymptote constatée dans l'équation (6.9) et dont la position qu'on note β_0 est donnée par la formule (6.10). On peut noter que β_0 est du signe de α . Lorsque α est négatif, l'asymptote se trouve dans les chirps négatifs. La vitesse de groupe est alors négative pour les chirps inférieurs à β_0 , et positive pour les chirps supérieurs. Le comportement est inverse lorsque α est positif. Ainsi, l'évolution de la vitesse de groupe avec β explique bien le comportement asymétrique que nous venons de décrire. L'asymptote, située autour de -36000 fs^2 en (b) et autour de 16000 fs^2 en (f), est une région critique où le mismatch entre l'infrarouge et l'XUV est extrêmement conséquent, et donc où la désynchronisation entre les harmoniques et la fenêtre de gain est très importante, ce qui entraîne une chute raide de l'énergie XUV. En revanche, elle est optimale lorsque la vitesse de groupe est proche de c et diminue lentement à mesure que la vitesse de groupe s'éloigne doucement de c du côté opposé à l'asymptote. Lorsque la vitesse de groupe de l'infrarouge est égale à c , l'harmonique XUV est synchronisée avec l'optimum du gain durant toute la propagation, et est donc amplifiée au maximum. Pour les petits écarts de vitesse entre l'infrarouge et l'XUV, l'harmonique n'est pas synchronisée avec l'optimum du gain durant toute la propagation dans le plasma, mais est néanmoins synchronisée avec d'autres régions, plus faibles, du gain. L'harmonique est donc amplifiée de façon moindre. Plus le mismatch augmente, plus le temps pendant lequel l'harmonique voit des gains forts est court et plus l'harmonique rencontre des zones de gains faibles (et même des zones de gain nul pour les désynchronisations les plus importantes : on sort alors de la longueur de déphasage). L'harmonique est de moins en moins amplifiée à mesure que la désynchronisation s'aggrave. N'oublions pas qu'à ce phénomène s'ajoute également la baisse du signal que nous avons observée sur l'ASE, induite par la diminution de l'intensité pompe lorsque $|\beta|$ augmente. Notons également que nous avons assez peu commenté les résultats obtenus avec un unique doublet en (d). La faible quantité de PFC, $\alpha = -2 \pm 1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, induit la présence d'une asymptote située à $-8000 \pm 4000 \text{ fs}^2$ soit ici précisément au niveau de l'optimum de signal en ASE. Si l'asymétrie est moins marquée que précédemment, on constate néanmoins une forte baisse de l'énergie à l'endroit de l'asymptote, là où aurait dû se trouver l'optimum de signal.

Dans un troisième temps, nous étudions l'évolution de l'extraction de l'énergie, telle qu'elle a été définie en 4.2.2.2, en fonction de la vitesse de groupe. Rappelons que l'extraction de l'énergie, exprimée en pourcentages, correspond à la proportion d'énergie contenue dans l'harmonique amplifiée par rapport à l'énergie contenue dans l'ASE (i.e. le maximum d'énergie qu'on peut extraire). Elle est calculée pour α et β fixés, et est tracée en vert sur la figure 6.13. L'extraction de l'énergie en fonction du chirp temporel n'est plus particulièrement asymétrique, comme pouvait l'être l'énergie de l'harmonique amplifiée, puisqu'elle tient compte de l'énergie ASE. Par contre, on remarque que l'optimum de l'extraction est systématiquement atteint pour le chirp étudié le plus proche de celui qui permet d'atteindre $v_g = c$, et que plus le mismatch augmente plus l'extraction de l'énergie est faible. L'extraction de l'énergie reflète donc la qualité de la synchronisation entre l'harmonique et le gain. Par exemple sur la courbe (f), l'extraction passe de $19 \pm 6 \%$ pour $v_g = 0,55c$ obtenue à -30000 fs^2 à $59 \pm 4 \%$ pour $v_g =$

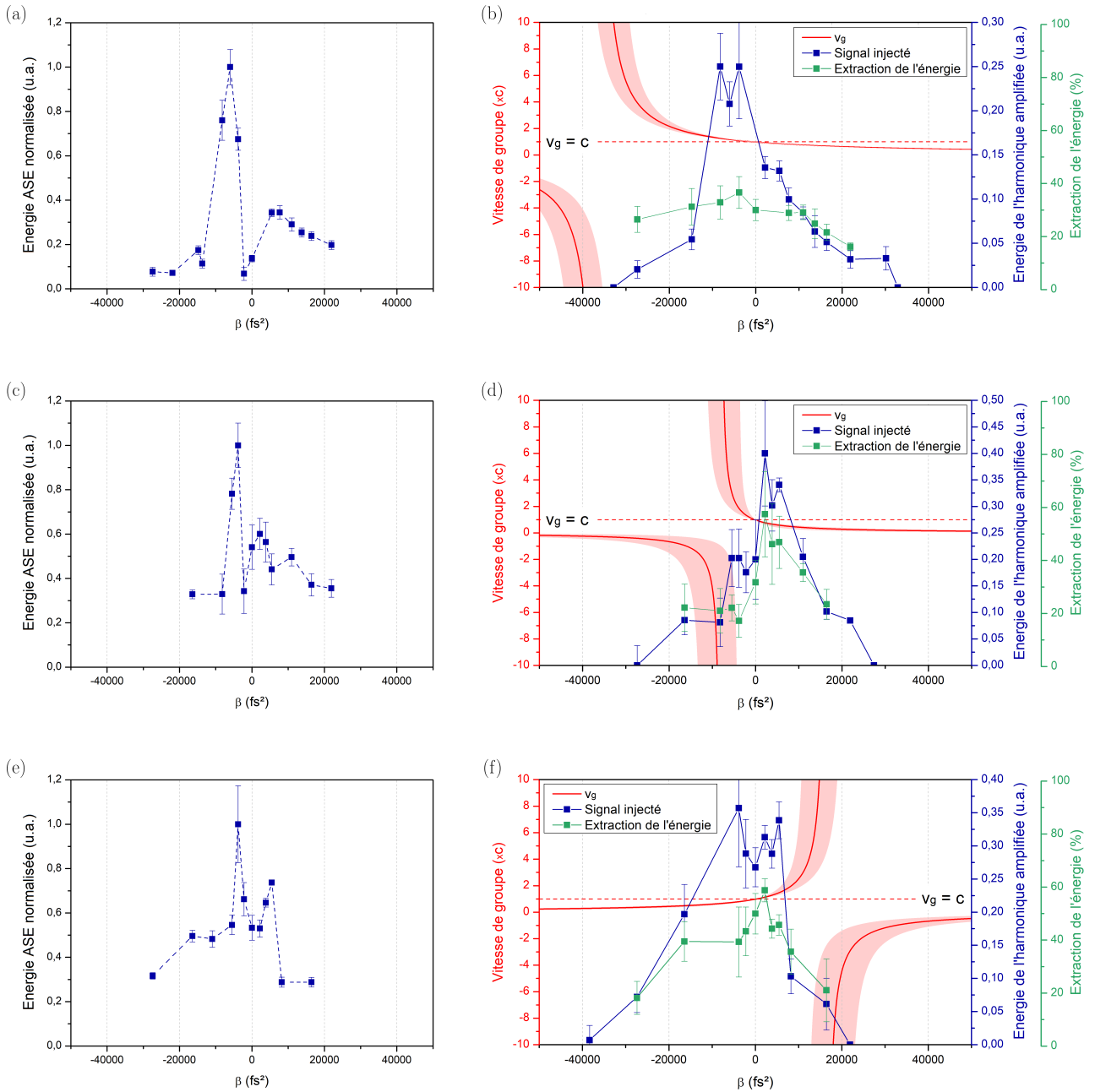


FIGURE 6.13 – A gauche : énergie ASE en fonction de β . A droite : énergie de l’harmonique amplifiée en bleu, extraction de l’énergie en vert, vitesse de groupe en rouge en fonction de β . La quantité de PFC vaut respectivement α_0 doublet = $-9 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ en (a) et (b), α_1 doublet = $-2 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ en (c) et (d), et α_2 doublets = $4 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ en (e) et (f). L’incertitude sur le PFC est de $\pm 1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$, l’incertitude sur le chirp est 500 fs^2 . Ces incertitudes se traduisent sur la vitesse de groupe par les bandes rouges. La ligne en pointillés rouges représente une vitesse de groupe de c . Ces mesures ont été réalisées pour $n_e = 7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

$1,05c$ pour un chirp adapté de 2000 fs^2 . Notons que la compensation de la dispersion ne nécessite pas nécessairement un grand sacrifice en termes d'intensité : ici un chirp de 300 fs^2 est requis pour atteindre $v_g = c$, ce qui correspond à une durée d'impulsion de 37 fs (au lieu de 30 fs à l'optimum), soit une intensité de $3 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ (au lieu $4 \times 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$) suffisante pour générer les ions lasants. Respectivement en (b) et (d), on mesure une extraction optimale de $37 \pm 6 \%$ pour $v_g = 0,98c$ et $58 \pm 16 \%$ pour $v_g = 0,77c$. Soulignons que, comme l'énergie XUV (en régime ASE ou injecté), l'extraction de l'énergie n'est pas comparable d'une configuration à une autre puisqu'elle ne dépend pas que de la vitesse de groupe mais également notamment des conditions de couplages et de la qualité des harmoniques. Cela peut aussi expliquer que la meilleure extraction mesurée soit seulement de l'ordre de 60% . Une étude détaillée, en se plaçant le plus précisément possible à c , en fonction de ces différents paramètres pourrait permettre de voir si l'on peut se rapprocher davantage des 100% espérés.

6.3.3 Impact de la vitesse de groupe sur le profil temporel

La vitesse de groupe du faisceau pompe n'influence pas seulement l'extraction de l'énergie, comme nous venons de le voir, mais également le profil temporel de l'impulsion, comme le montrent les résultats présentés dans cette section. On s'intéressera à l'impact de la vitesse de groupe du faisceau pompe purement sur la durée de l'impulsion dans un premier temps, et sur l'allure du profil temporel dans un second temps.

6.3.3.1 Etude de la durée d'impulsion

L'impact de la vitesse de groupe sur la durée d'impulsion a d'abord été observé expérimentalement. A l'aide du diagnostic introduit dans le chapitre 5, nous avons mesuré l'évolution de la durée du laser XUV injecté en fonction de la longueur du jet de gaz pour différentes vitesses de groupe. Toutes nos mesures ont été effectuées pour des densités électroniques proches de $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La longueur de jet a été contrôlée sous vide, entre $4,5 \text{ mm}$ et 10 mm , grâce à la platine motorisée présentée dans la section 3.3.1.2. La vitesse de groupe du faisceau pompe a été ajustée grâce à la quantité de PFC (respectivement 0, 1 ou 2 doublets insérés dans la chaîne) et de chirp temporel. Elle a été calculée à partir de l'équation (6.9) connaissant les coefficients α et β utilisés dans chaque configuration. L'incertitude sur la vitesse de groupe prend en compte l'incertitude de $\pm 1 \text{ fs} \cdot \text{cm}^{-2}$ sur la mesure de α et l'incertitude de 500 fs^2 sur le chirp optimum.

Les mesures sont illustrées en bleu sur la figure 6.14 et ont été réalisées pour respectivement : (a) $v_g = (1,09 \pm 0,04)c$, (b) $v_g = (0,98 \pm 0,02)c$ et (c) $v_g = (1,00 \pm 0,03)c$. On observe très clairement que l'évolution de la durée d'impulsion en fonction de la longueur de jet varie en fonction de la vitesse de groupe du faisceau pompe. Les droites tracées en rouge représentent des régressions linéaires de la durée d'impulsion RMS en fonction de la longueur de jet. En (a), pour la désynchronisation la plus importante étudiée ici avec une vitesse de groupe de $(1,09 \pm 0,04)c$, la durée d'impulsion est presque doublée entre $4,5 \text{ mm}$ et 10 mm en passant de 420 fs à 900 fs RMS. On mesure alors une pente de $89 \pm 20 \text{ fs/mm}$. En (b), pour une désynchronisation plus faible, avec $v_g = (0,98 \pm 0,02)c$, on mesure une pente moins importante. Notons que pour cette vitesse de groupe, les mesures ont été effectuées pour deux densités différentes, 6 et $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, pour lesquelles on mesure des pentes plus faibles que dans le cas (a) mais non nulles, respectivement $56 \pm 10 \text{ fs/mm}$ et $14 \pm 5 \text{ fs/mm}$. On souligne que cette différence de pente peut s'expliquer par l'incertitude sur la vitesse de groupe : pour les deux densités étudiées, la vitesse de groupe est estimée entre $0,96c$ et c mais n'est pas nécessairement identique. Dans le cas (c), pour une vitesse de groupe de $(1,00 \pm 0,03)c$, la durée est quasiment constante à 600 fs RMS, et la pente quasiment nulle. Ainsi, on constate donc expérimentalement que, lorsque la fenêtre de gain et l'harmonique injectée sont synchronisées, l'impulsion conserve sa durée au cours de l'amplification. En revanche, une désynchronisation entre le faisceau pompe infrarouge et l'harmonique XUV induit un étirement temporel de l'impulsion au cours de sa propagation. Plus la désynchronisation est forte, plus cet étirement est conséquent.

Ce phénomène a également été observé par des simulations réalisées par le code 3D DAGON (voir 2.5.2.1) pour différentes vitesses de groupe. Notons que DAGON ne simule aucun faisceau infrarouge. DAGON simule l'amplification d'un champ harmonique résonant se propageant dans un plasma en prenant en compte la dynamique temporelle de ce milieu amplificateur. La vitesse de groupe du faisceau pompe, qui correspond en fait à la vitesse de création du gain, est ajustée artificiellement dans le code en réglant la vitesse de propagation du pic de température et de densité électroniques dans le plasma. La figure 6.15 illustre des simulations réalisées par DAGON pour une densité électronique de $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Les fausses couleurs représentent l'intensité de l'impulsion amplifiée, et l'échelle en niveaux de gris représente l'inversion de population. Les simulations sont montrées, respectivement de haut en bas, pour une distance de propagation $z = 1 \text{ mm}$, $z = 5 \text{ mm}$ et $z = 10 \text{ mm}$. On compare le cas où la vitesse de groupe est égale à c (colonne de gauche), et le cas où la vitesse de groupe est égale à $0,95c$ (colonne de droite). Lorsque $v_g = c$, l'inversion de population et l'impulsion XUV sont synchronisées : c'est donc toujours la même partie de l'harmonique qui est amplifiée, ce qui mène à une durée

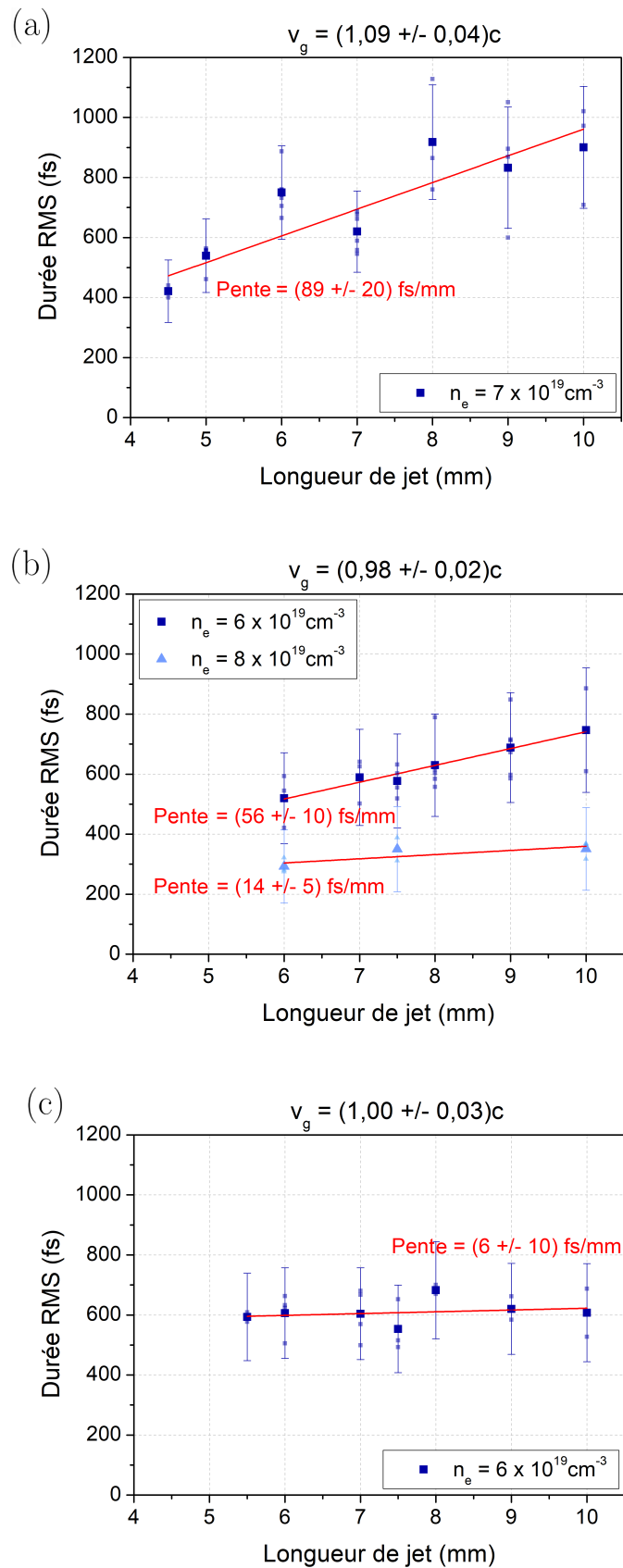


FIGURE 6.14 – En bleu, durée RMS de l’impulsion XUV mesurée en fonction de la longueur du jet de gaz, pour différentes vitesses de groupe du faisceau pompe. Les petits carrés représentent les durées mesurées en tir-à-tir. Les grands carrés représentent les durées moyennes mesurées par répétabilité sur ces tirs. Les incertitudes sur la durée sont calculées en prenant en compte l’incertitude par répétabilité et l’incertitude de la mesure en elle-même (voir 5.1.5.1). En rouge, régression linéaire de la durée en fonction de la longueur de jet.

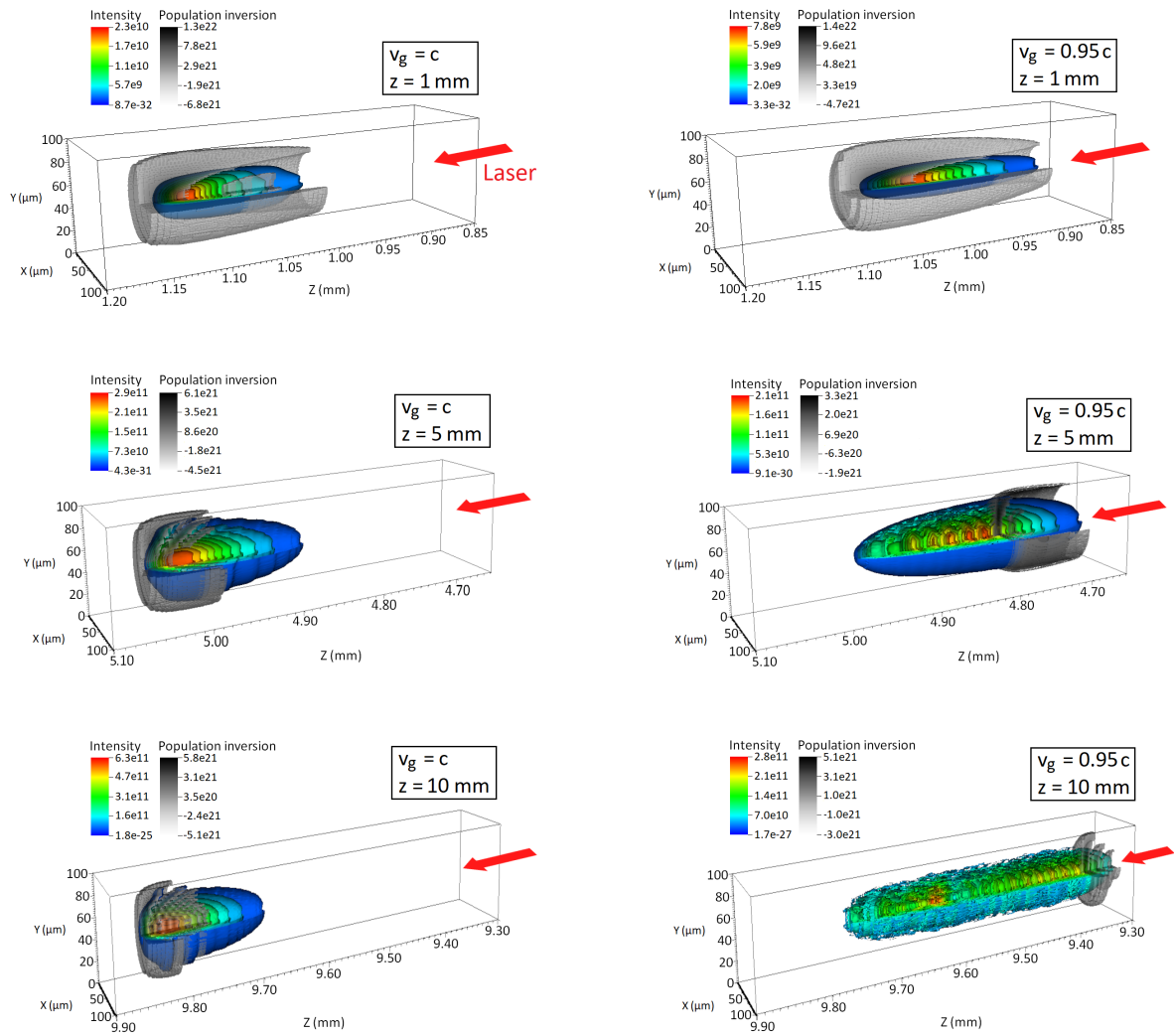


FIGURE 6.15 – Intensité de l’impulsion XUV amplifiée (fausse couleur), et inversion de population (niveaux de gris) après respectivement 1 mm, 5 mm et 10 mm de propagation de haut en bas, et pour une vitesse de groupe du faisceau pompe de c à gauche, et de $0,95c$ à droite. Simulations réalisées par DAGON pour $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

constante avec la distance de propagation z . En revanche, dans le cas où $v_g = 0,95c$, il y a désynchronisation entre l’XUV et l’inversion de population. On amplifie donc progressivement la queue de l’impulsion XUV, ce qui mène à un étirement temporel et à des durées d’impulsion de plus en plus longues au fur et à mesure de la propagation.

Un scan de simulations plus complet est illustré sur la figure 6.16, qui représente la durée d’impulsion RMS simulée en fonction de la longueur d’amplification pour différentes vitesses de groupe comprises entre $0,95c$ et $1,1c$. Ces simulations ont été réalisées respectivement pour une densité électronique de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (a), $5,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (b), $8,0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (c), et $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ en (d). On constate que la pente durée vs longueur d’amplification varie fortement en fonction de la densité et de la vitesse de groupe considérées. En revanche, quelque soit la densité du plasma amplificateur, on observe une durée constante en fonction de la propagation pour une vitesse de création du gain égale à c , et une durée croissante avec la longueur de propagation dès lors qu’il y a désynchronisation. Comme nous l’avons vu avec nos mesures, l’étirement temporel de l’impulsion amplifiée XUV est de plus en plus conséquent à mesure que la vitesse de groupe s’éloigne de c . De manière générale, on peut souligner que nos mesures sont en bon accord avec les durées simulées par DAGON, compte tenu des incertitudes expérimentales sur la vitesse de groupe et sur la densité électronique ($\pm 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). Notons également que l’étirement temporel de l’impulsion XUV est dû à un glissement progressif du gain qui amplifie petit à petit la queue de cette impulsion. Cela signifie que, contrairement au cas $v_g = c$ où la durée d’impulsion est théoriquement inférieure ou égale à la durée du gain, la durée d’impulsion peut être bien supérieure à celle du gain lorsqu’il y a désynchronisation. Par exemple, sur la figure 6.16 (c), la durée d’impulsion est constante à 350 fs RMS pour $v_g = c$ pour une densité électronique de $8,0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Cela correspond à la durée du gain prédite pour cette densité par le code OFIKinRad sur la figure 2.12(b) dans le chapitre 2. En revanche, la moindre désynchronisation allonge l’impulsion jusqu’à des valeurs bien supérieures.

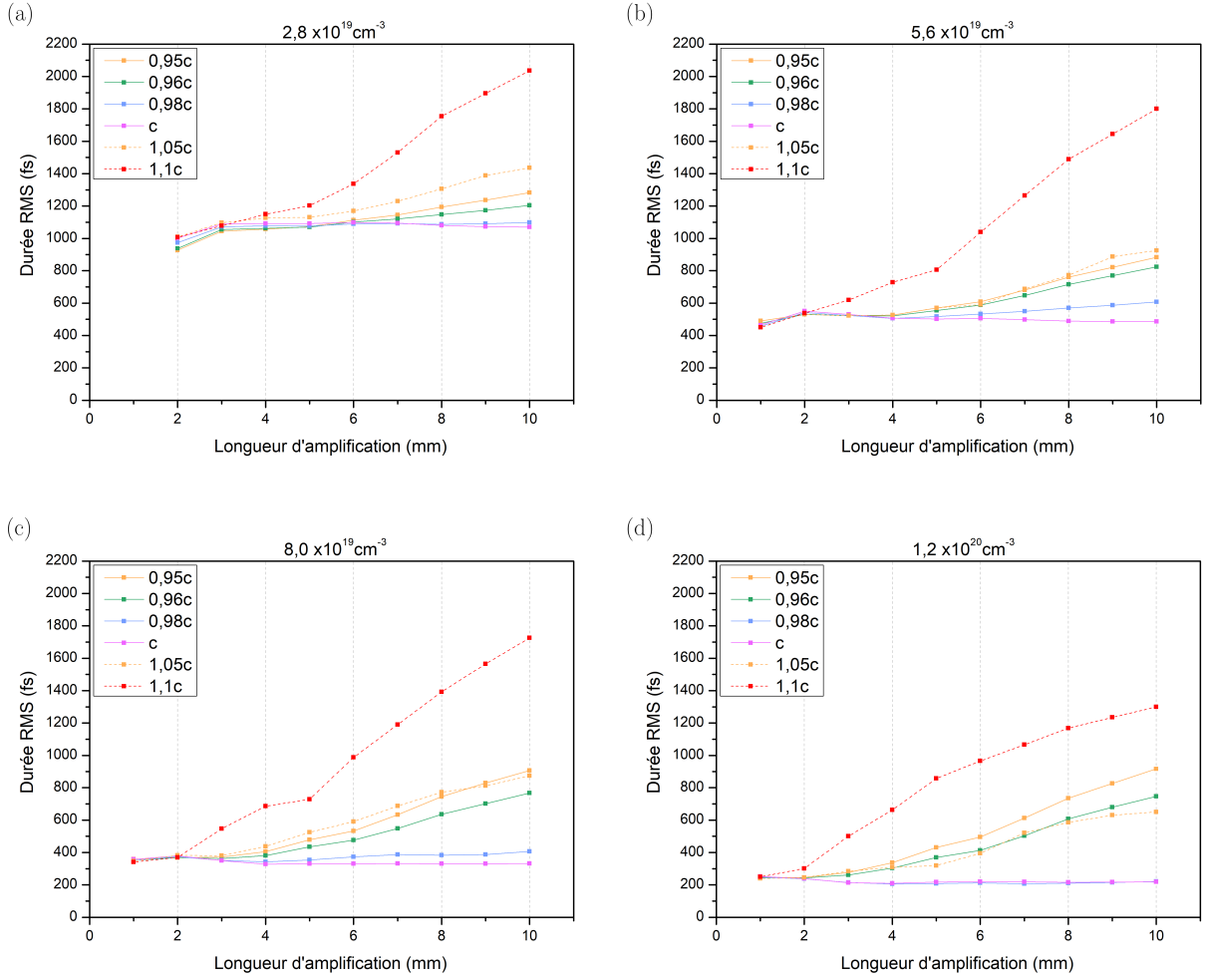


FIGURE 6.16 – Durée RMS de l’impulsion XUV simulée en fonction de la longueur d’amplification pour différentes vitesses de groupe du faisceau pompe pour une densité électronique de (a) $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, (b) $5,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, (c) $8,0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, et (d) $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

La dispersion naturelle du plasma est de plus en plus importante lorsque la densité électronique augmente. Plus la vitesse de groupe naturelle s’éloigne alors de c , et plus l’étirement temporel de l’impulsion est conséquent. La réduction de la durée induite par l’interruption anticipée du gain à haute densité, démontrée en 5.2, est donc contrebalancée (et ce d’autant plus que la longueur de jet et la densité sont importantes) par l’effet de la désynchronisation entre l’infrarouge et les XUV. En revanche, la compensation de la dispersion du plasma par l’ajustement de la vitesse de groupe permet de maintenir la durée d’impulsion constante tout au long de la propagation. Combinée à des hautes densités, cette compensation permet de tirer profit au maximum de la réduction de la durée causée par la surionisation des ions lasants et ainsi d’atteindre des durées sans précédent pour les lasers XUV collisionnels : pour $v_g = c$, les simulations de la figure 6.16 montrent que la durée passe d’une picoseconde à $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à 190 fs RMS à $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. En termes de mesure, la durée d’impulsion la plus courte mesurée pour une longueur de jet de 10 mm est illustrée sur la figure 6.14 (b) et vaut 350 ± 200 fs RMS, obtenue pour la plus haute densité électronique atteinte expérimentalement dans cette thèse ($8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) et pour une vitesse de groupe de $(0,98 \pm 0,02)c$ permettant de maintenir la durée quasiment constante sur toute la longueur de jet. Soulignons également que garder une durée d’impulsion constante avec la longueur d’amplification est très intéressant en vue de l’optimisation de la puissance de sortie de la source puisque l’augmentation de l’énergie par la longueur d’amplification ne se fait alors plus au détriment de la durée d’impulsion, comme c’est le cas sans compensation de la dispersion. Rappelons enfin que, tout en permettant de profiter pleinement des bénéfices respectifs des hautes densités et des grandes longueurs d’amplification, l’ajustement de la vitesse de groupe du faisceau pompe à c rend ces deux conditions compatibles grâce à une longueur de déphasage infinie.

Nous avons étudié, dans la section 5.2 et dans la section que nous clôturons ici, l’évolution de la durée d’impulsion avec la densité électronique du plasma amplificateur ainsi qu’avec la longueur de jet et la vitesse de groupe du faisceau pompe. Nous avons également étudié pendant cette thèse l’impact du délai d’injection

harmoniques sur la durée d'impulsion. Ce travail a révélé des fluctuations assez peu significatives (écart-type de l'ordre de 100 fs) qui sont présentées en annexe E.

6.3.3.2 Allure du profil temporel en fonction de la vitesse de groupe

Nous nous intéressons maintenant à l'allure du profil temporel, qui dépend très fortement de tous les paramètres que nous venons de citer et en particulier de la vitesse de groupe. On commencera ici par montrer les profils temporels simulés par DAGON en distinguant trois cas : v_g égale, supérieure ou inférieure à c .

Vitesse de groupe égale à c

Comme nous avons pu le voir dans les chapitres précédents où nous ne nous préoccupions pas encore de la vitesse de groupe du faisceau pompe et de la synchronisation de ce dernier avec l'harmonique injectée, le profil temporel simulé lorsque $v_g = c$ est constitué en régime saturé d'oscillations dites de Rabi induites par l'oscillation de l'inversion de population. La figure 6.17 représente un profil typique obtenu dans ces conditions, pour une longueur d'amplification de 10 mm et une densité électronique de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

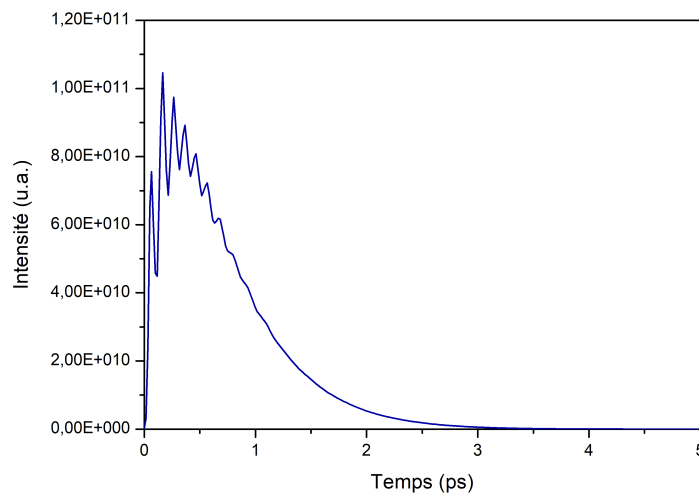


FIGURE 6.17 – Profil temporel simulé par DAGON pour une vitesse de groupe égale à c . Obtenu avec une densité électronique de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et une longueur d'amplification de 10 mm.

Comme indiqué dans la section précédente et déjà observé en 2.5.2.2 (voir figures 2.30 et 2.31) et en 5.2 (voir figure 5.29), la durée d'impulsion diminue lorsque la densité électronique augmente, et est constante avec la longueur de jet pour $v_g = c$. Tant qu'il y a synchronisation entre le gain et l'harmonique, la structure temporelle de l'impulsion reste similaire quelque soit les conditions de densité et de longueur d'amplification (à partir du moment où la saturation est franchie) et comporte des oscillations de Rabi. Seule la période de ces oscillations varie, puisqu'elle est inversement proportionnelle à l'intensité. Elle est donc décroissante lorsque la longueur d'amplification et/ou la densité électronique augmentent. Notons que la résolution de notre diagnostic (de l'ordre de 200 fs) est insuffisante pour permettre l'observation expérimentale de ces oscillations très rapides dont la période est typiquement inférieure à 100 fs pour les densités supérieures à 10^{19} cm^{-3} .

A basses densités (typiquement quelques 10^{18} cm^{-3} à 10^{19} cm^{-3} obtenues en cellule de gaz) la dispersion du plasma est faible, et la condition $v_g \approx c$ est naturellement respectée. En revanche, dans les conditions hautes densités dans lesquelles nous avons travaillé (typiquement quelques 10^{19} cm^{-3} à 10^{20} cm^{-3} obtenues en jet de gaz), se placer à $v_g = c$ nécessite de compenser artificiellement la dispersion du plasma via, comme nous le proposons, l'ajustement de la vitesse de groupe du faisceau pompe par les couplages spatio-temporels. Or l'incertitude expérimentale sur la vitesse de groupe ne permet de se placer qu'approximativement dans ces conditions (par exemple sur la figure 6.14 (c), on a $v_g = (1,00 \pm 0,03)c$). Or, nous allons constater par la suite que l'allure temporelle du profil varie très brusquement et de façon conséquente avec la vitesse de groupe et que les oscillations de Rabi disparaissent déjà pour $v_g = 0,99c$. L'idéal pour observer ces structures serait donc de travailler à basse densité pour bénéficier d'une absence naturelle totale de dispersion et donc des conditions $v_g = c$ requises. Dans le même temps, les basses densités combinées à de courtes longueurs de cellule participeraient à faciliter l'observation des oscillations de Rabi pour lesquelles on attend alors des périodes plus importantes qui pourraient être résolues par notre diagnostic.

Vitesse de groupe supérieure à c

La figure 6.18 représente le profil temporel simulé par DAGON pour différentes vitesses de groupe supérieures à c , respectivement $1,025c$, $1,05c$, $1,075c$, et $1,1c$. L'ASE est activée dans le calcul des profils temporels en bleu, contrairement aux profils temporels en rouge pour lesquels l'ASE est désactivée. Dans le code, l'ASE correspond au terme source stochastique Γ de l'équation 2.100. Lorsque l'ASE est désactivée, ce terme source est égal à 0 mais l'harmonique est tout de même amplifiée. Cela permet d'illustrer que dans le cas où $v_g > c$, la partie avant de l'impulsion amplifiée est purement constituée d'ASE, et la partie arrière de l'impulsion correspond à l'harmonique amplifiée. En effet, lorsque la vitesse de groupe du faisceau pompe est supérieure à c , la zone de gain se déplace plus rapidement que l'harmonique injectée et la précède donc, générant ainsi l'ASE qu'on observe en amont. Plus la désynchronisation est importante, plus la partie purement ASE est conséquente. D'autre part, plus la désynchronisation est forte, plus l'harmonique voit des gains faibles pendant des temps courts, moins elle est donc amplifiée.

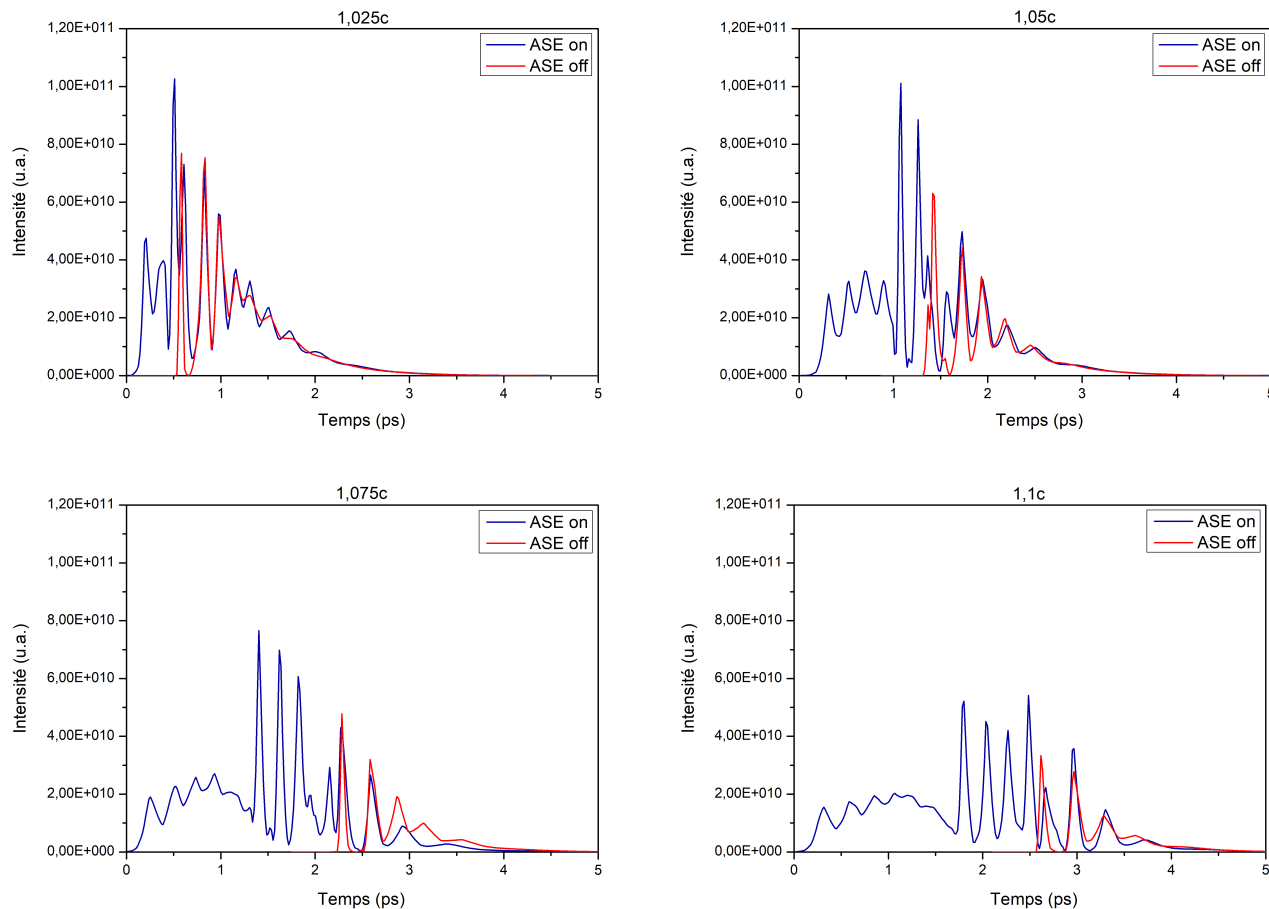


FIGURE 6.18 – Profils temporels simulés par DAGON pour différentes vitesses de groupe supérieures à c . Obtenus avec une densité électronique de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et une longueur d'amplification de 10 mm. Les courbes représentent les simulations réalisées avec l'ASE activée en bleu, et avec l'ASE désactivée en rouge.

Notons que les profils mesurés expérimentalement doivent en théorie être comparés avec les profils simulés avec l'ASE activée. Néanmoins, dans le cas où l'ASE domine, cette comparaison n'est pas juste. En effet, le diagnostic étant situé à 4 mètres de la source et l'ASE ayant une divergence différente de l'harmonique amplifiée, on mesure à proprement parler uniquement (même s'il dépend de l'ASE) le profil temporel de l'harmonique amplifiée. En revanche, le profil temporel simulé est constitué, dans le cas où l'ASE est activée, d'un mélange indissociable d'ASE et d'harmonique amplifiée puisqu'il est calculé en sortie d'amplificateur en résolvant un seul et même système (donné en 2.100) dans lequel le champ E et la polarisation P prennent en compte à la fois l'ASE et l'harmonique injectée. Dans l'état actuel, il n'est ainsi pas possible de dissocier proprement l'harmonique amplifiée de l'ASE, même en tentant de propager le champ en champ lointain. Pour pouvoir isoler l'harmonique amplifiée, il faudrait résoudre des équations couplées, mais différentes, pour l'ASE et l'harmonique, ce qui nécessitera une refonte complète du code et donnera lieu à de futures études.

Vitesse de groupe inférieure à c

Dans le cas où la vitesse de groupe est inférieure à c , on observe une modification conséquente de l'allure du profil temporel, que nous ne savons pas expliquer pour le moment, et qui dépend fortement de différents paramètres :

Vitesse de groupe - La figure 6.19 représente des profils temporels simulés pour une longueur d'amplification de 10 mm, une densité électronique de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, et pour différentes vitesses de groupe. A cette densité, la vitesse de groupe naturelle de l'infrarouge est $0,999c$: la désynchronisation est quasiment inexistante et on observe les oscillations de Rabi. Cependant, dès $v_g = 0,99c$ et pour toutes les désynchronisations plus fortes, on observe la disparition des oscillations de Rabi. Plus la désynchronisation entre le gain et l'harmonique XUV est importante, plus la durée d'impulsion est longue comme nous avons pu le voir plus tôt dans ce chapitre. On observe également une modification nette de l'allure de l'impulsion avec un front montant de moins en moins raide au fur et à mesure que la vitesse de groupe diminue.

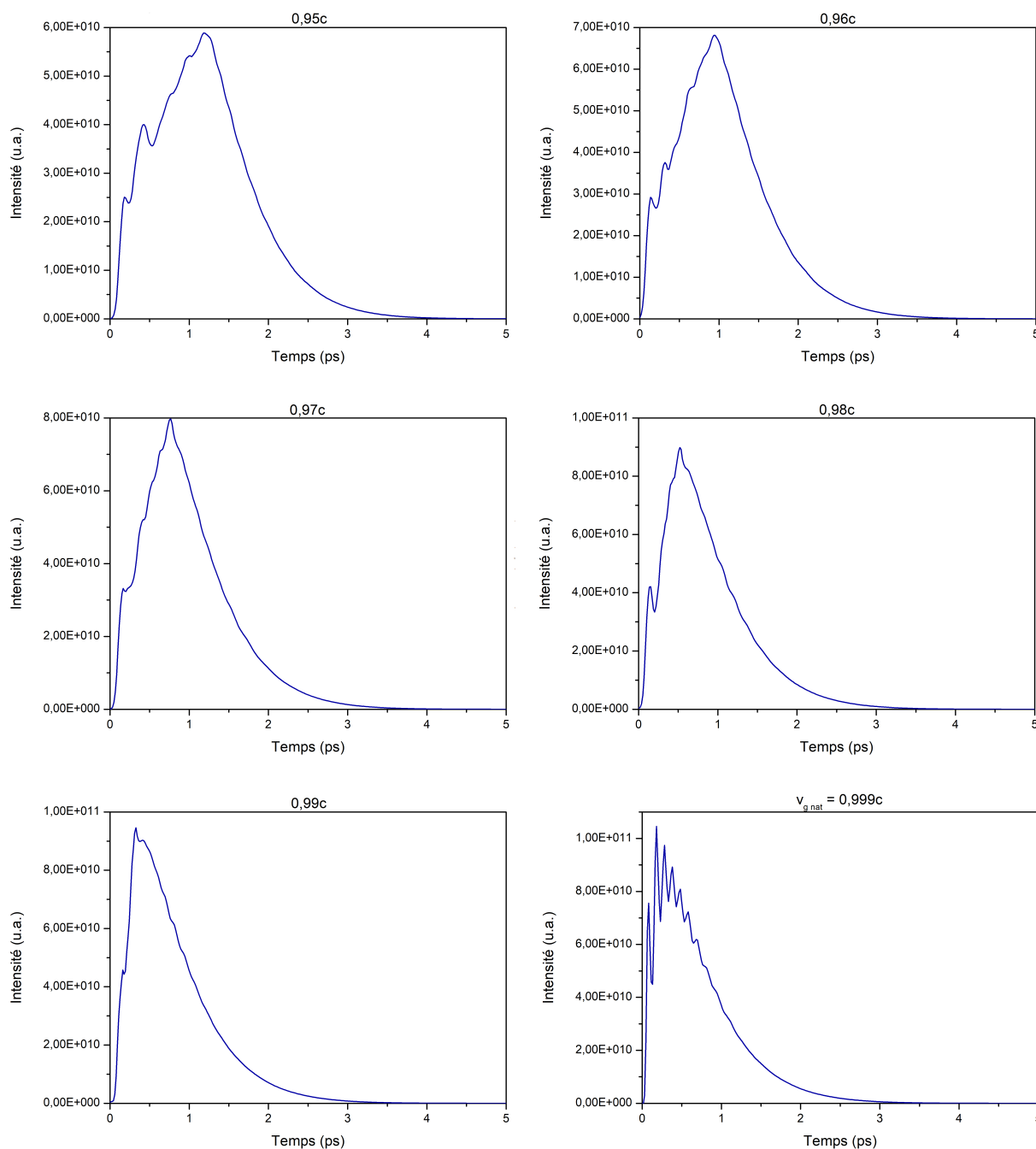


FIGURE 6.19 – Profils temporels simulés par DAGON pour différentes vitesses de groupe inférieures à c . Obtenus pour une densité électronique de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et une longueur d'amplification de 10 mm.

Densité électronique - A une vitesse de groupe donnée, l'allure du profil temporel varie assez fortement en fonction de la densité comme le suggère la figure 6.20 qui représente des profils temporels obtenus à $v_g = 0,96c$ pour une longueur d'amplification de 10 mm et une densité électronique variant de $2,8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Plus la densité électronique augmente, plus la durée d'impulsion diminue mais plus l'allure diffère du profil classique obtenu à $v_g = c$ avec l'apparition de structures pour les plus hautes densités. La figure 6.21 montre le profil temporel simulé pour une amplification sur 10 mm, une densité électronique de $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe variant de $0,95c$ à $0,99c$. Contrairement au cas relativement basse densité représenté sur la figure 6.19 où l'allure du profil s'éloignait assez progressivement du profil classique, cette figure illustre une très grande diversité de structures qui semblent d'autant plus complexes que la désynchronisation est importante.

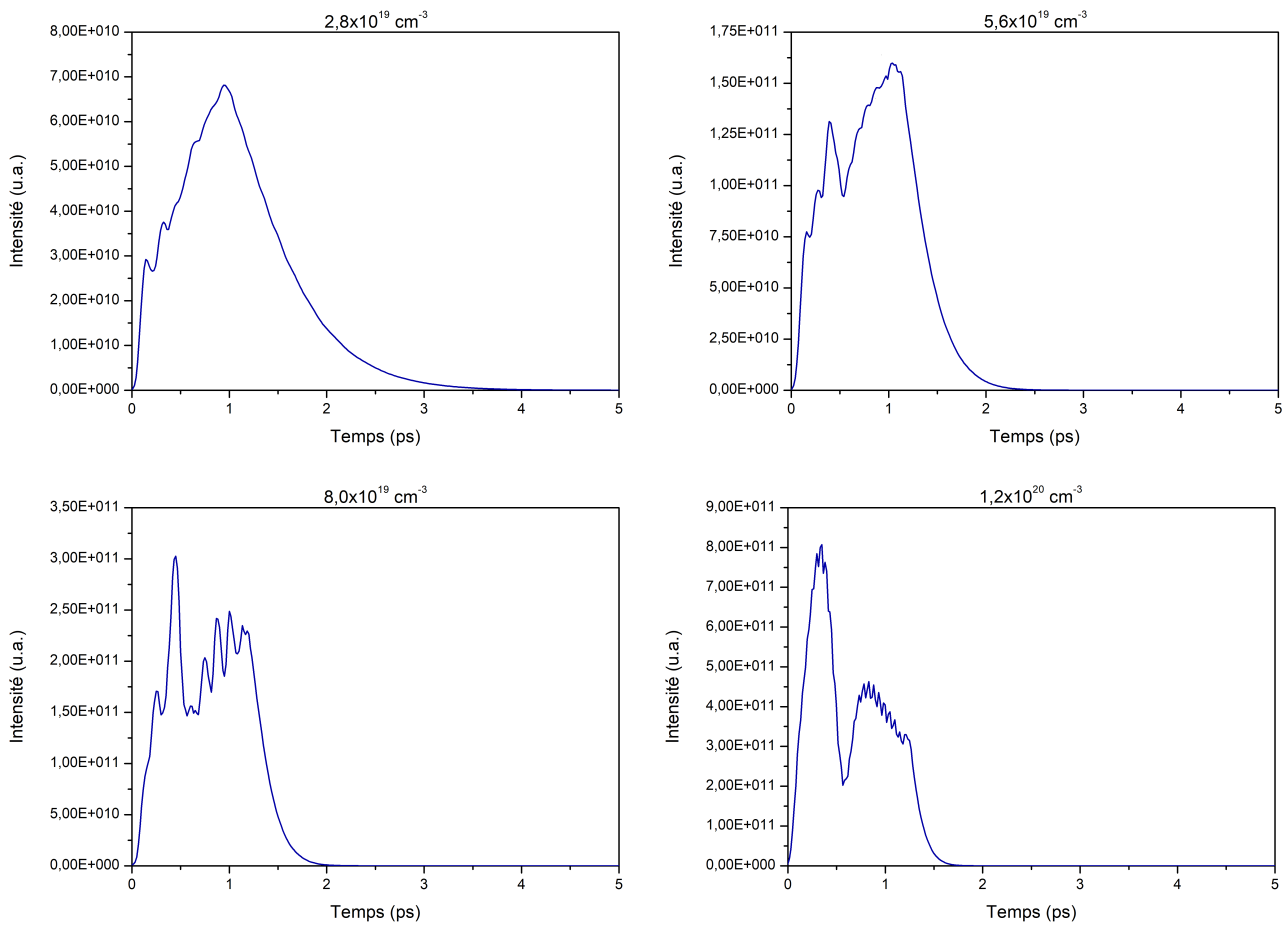


FIGURE 6.20 – Profils temporels simulés par DAGON pour différentes densités électroniques. Obtenus pour une vitesse de groupe de $0,96c$ et une longueur d'amplification de 10 mm.

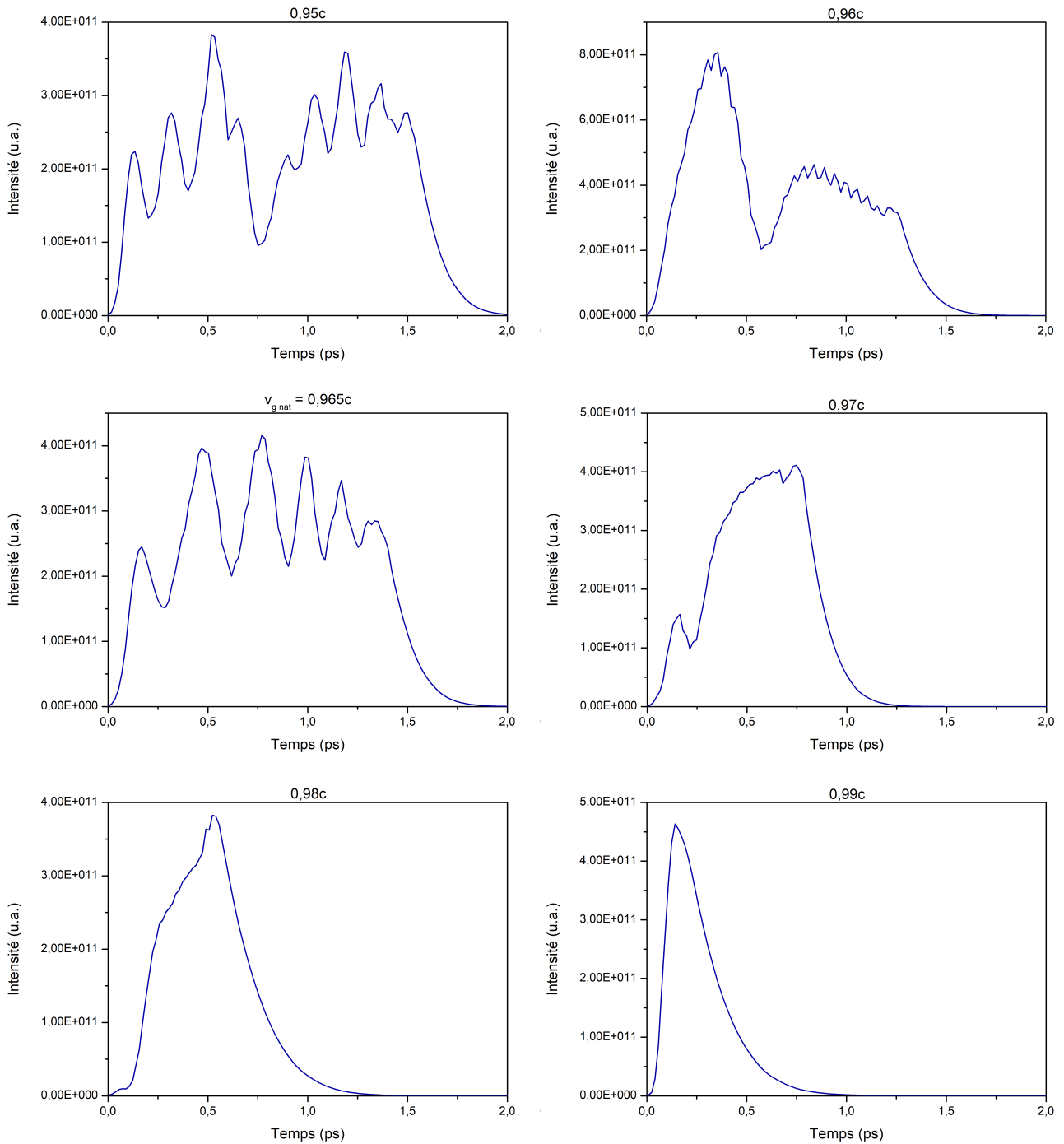


FIGURE 6.21 – Profils temporels simulés par DAGON pour différentes vitesses de groupe inférieures à c . Obtenus pour une densité électronique de $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une longueur d'amplification de 10 mm.

Longueur d'amplification - Ces structures, observables à haute densité, dépendent de la longueur d'amplification comme on le voit sur la figure 6.22 qui montre l'évolution du profil temporel en fonction de la longueur de jet pour une densité électronique de $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe naturelle de $0,965c$. Cette figure met bien en valeur l'étirement temporel de l'impulsion au fur et à mesure que la queue de l'harmonique est amplifiée par la zone de gain qui progresse moins rapidement que l'XUV. Au cours de la propagation, l'impulsion s'allonge ainsi temporellement et développe des pics d'intensité dont l'espacement, de l'ordre de 300 fs environ, est relativement régulier. Comme nous y reviendrons dans quelques instants, ces structures ne sont pas sans rappeler celles observées expérimentalement en 5.1.5.2.

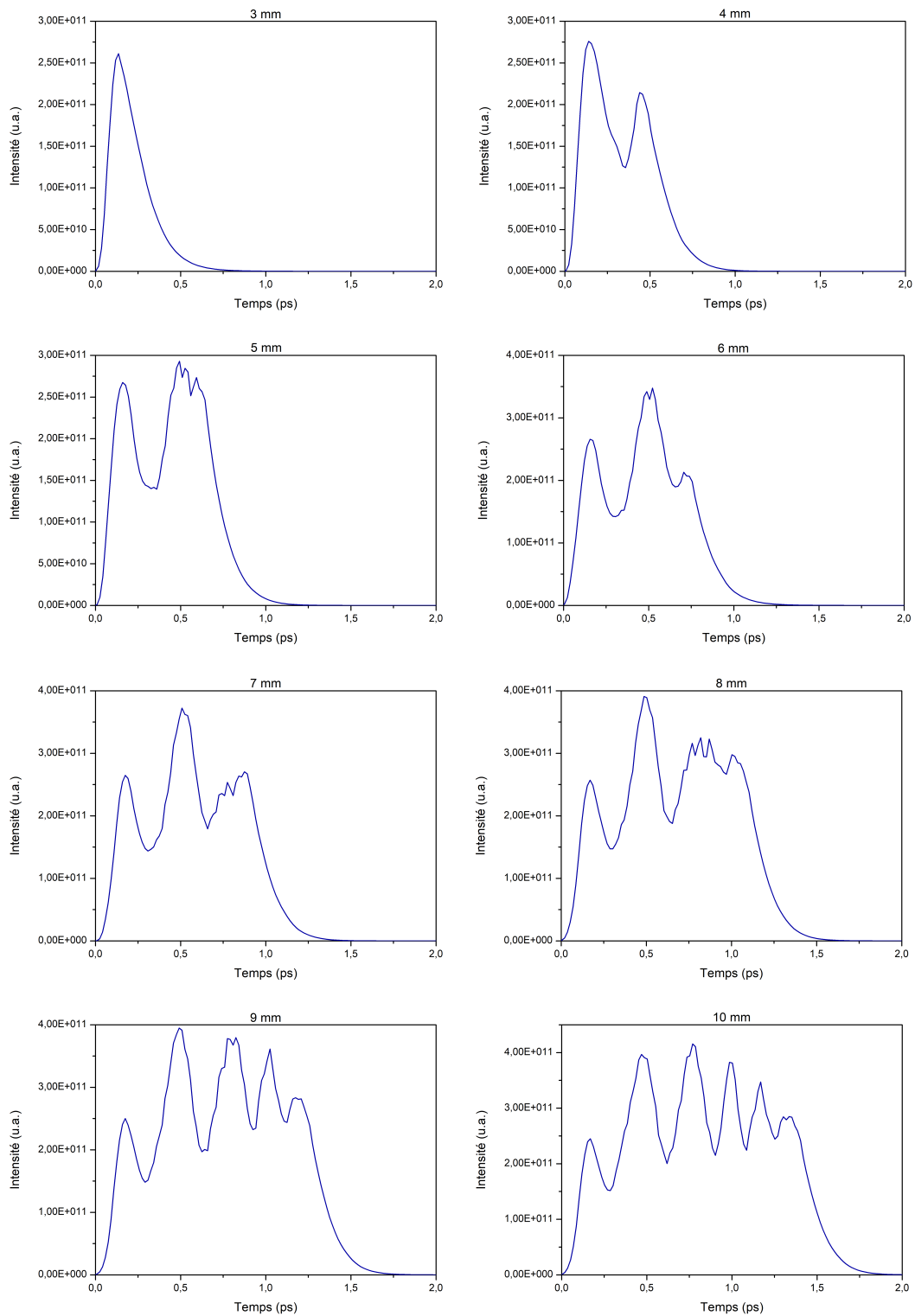


FIGURE 6.22 – Profils temporels simulés par DAGON pour différentes longueurs de jet. Obtenus pour une densité électronique de $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe naturelle égale à $0,965c$.

Inhomogénéités du plasma - L'allure de ces structures varie également en fonction du plasma lui-même comme le montre la figure 6.23 qui illustre le profil simulé pour une longueur d'amplification de 10 mm, une densité électronique de $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe naturelle égale à $0,965c$. Dans le cas (a), le plasma simulé est inhomogène et comporte des zones surionisées induites par une augmentation de l'intensité pompe dus à des effets focalisants dans certaines régions du plasma. Ces inhomogénéités permettent de reproduire par des simulations le champ de l'harmonique amplifiée (intensité et phase) mesuré par reconstruction ptychographique dans [192]. Dans le cas (b), le plasma simulé est parfaitement homogène. Notons que la présence ou l'absence d'inhomogénéités n'impacte pas la durée d'impulsion mais seulement l'allure des structures. Cette influence est d'autant plus conséquente à haute densité et forte désynchronisation.

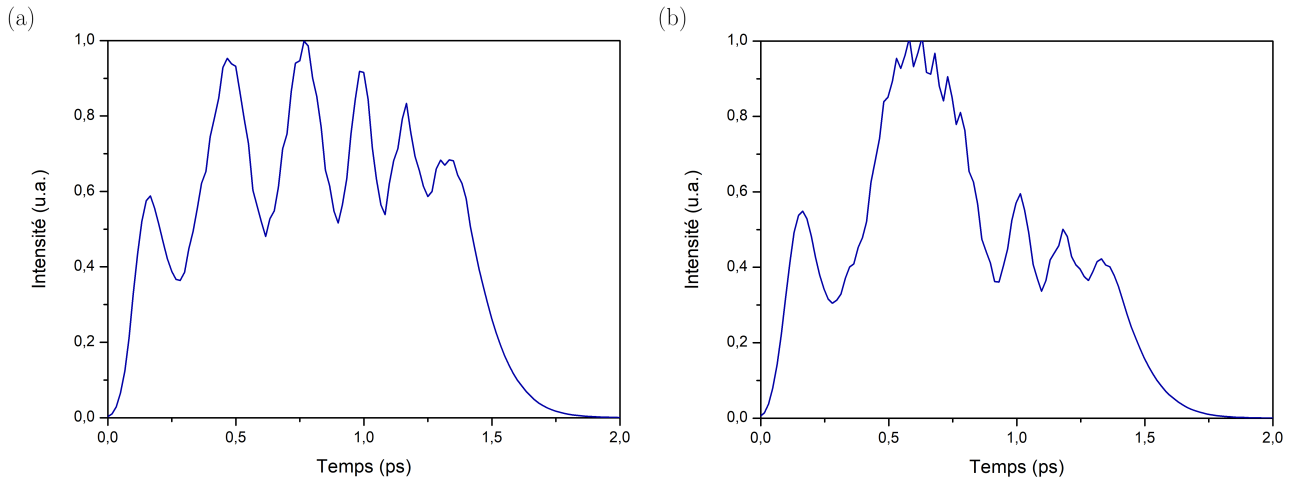


FIGURE 6.23 – Profils temporels simulés par DAGON pour un jet de 10 mm, une densité électronique de $1,2 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe naturelle égale à $0,965c$. En (a), le plasma est inhomogène. En (b), le plasma est homogène.

Décalage d'injection harmoniques - On peut supposer que l'allure du profil temporel de l'harmonique amplifiée évolue aussi en fonction du délai d'injection harmoniques puisque la synchronisation entre l'harmonique et l'optimum du gain en dépend. Cependant, nous ne pouvons pas confirmer cette hypothèse par des simulations puisque l'ASE domine largement dans les profils calculés par DAGON pour un délai d'injection non optimal.

Pour le moment, nous ne sommes pas en mesure d'expliquer finement quel mécanisme physique modifie ainsi l'allure du profil temporel. Néanmoins, les simulations montrent nettement l'impact de la désynchronisation entre le gain et l'harmonique. Lorsque la synchronisation est parfaite, le profil temporel présente une structure classique constituée d'oscillations de Rabi que nous n'avons pas pu observer expérimentalement pour les raisons évoquées plus tôt (trop hautes densités qui rendent la période d'oscillations trop courte pour la résolution de notre diagnostic, et qui nécessitent un ajustement artificiel de la vitesse de groupe du faisceau pompe c). Dès que l'infrarouge et l'XUV se désynchronisent le profil temporel est modifié et étiré temporellement avec la présence d'ASE en amont de l'impulsion dans le cas $v_g > c$, et amplification de la queue de l'impulsion XUV dans le cas $v_g < c$. Plus la désynchronisation augmente, plus l'impulsion XUV est étirée et plus son profil temporel est modifié. Pour les hautes densités, on voit apparaître lorsque $v_g < c$ des structures qui se développent lors de la propagation et qui dépendent de nombreux paramètres (vitesse de groupe, densité et état du plasma, délai d'injection).

Résultats expérimentaux

Notre diagnostic de mesure du profil temporel et la seconde méthode de reconstruction proposée en 5.1.5.2 ont permis d'observer des structures comparables à celles simulées. L'étude de Fourier présentée a révélé que les structures observées expérimentalement n'étaient pas un artefact de la reconstruction mais étaient bien contenues dans le profil temporel, et reproductibles d'un tir à l'autre dans les mêmes conditions. Néanmoins, les profils spatiaux mesurés I et I_0 sont très bruités et nécessitent un lissage dont le choix est relativement arbitraire. Cette méthode de reconstruction ne permet de déterminer que la présence ou non de structures et de donner une idée globale de leur allure.

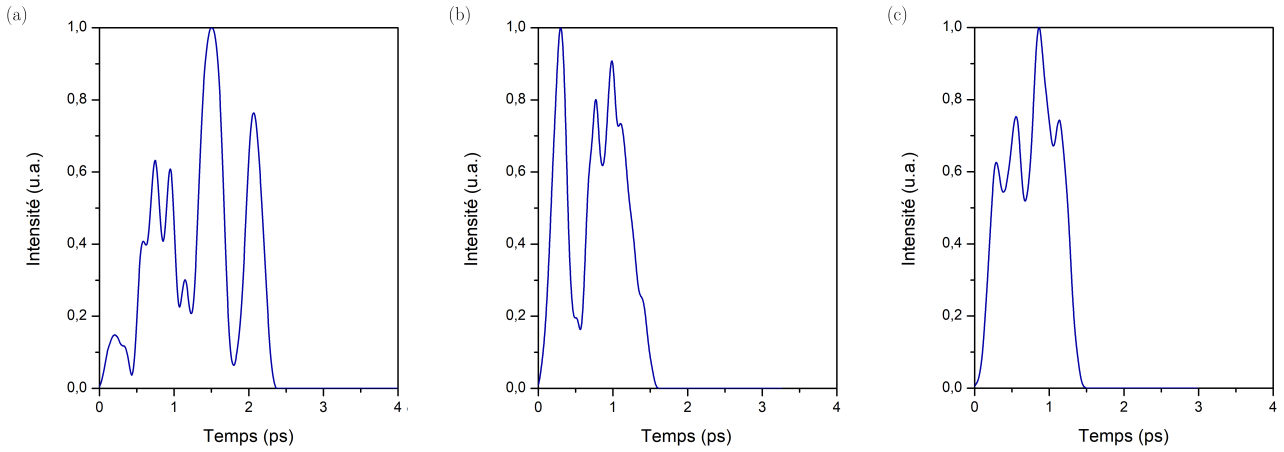


FIGURE 6.24 – Profils temporels mesurés par la seconde technique de reconstruction présentée en 5.1.5.2 pour un jet de 10 mm. La densité électronique est proche de $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ dans les trois cas. La vitesse de groupe est de : $(1,09 \pm 0,04)c$ en (a), $(1,00 \pm 0,03)c$ en (b), et $(0,98 \pm 0,02)c$ en (c).

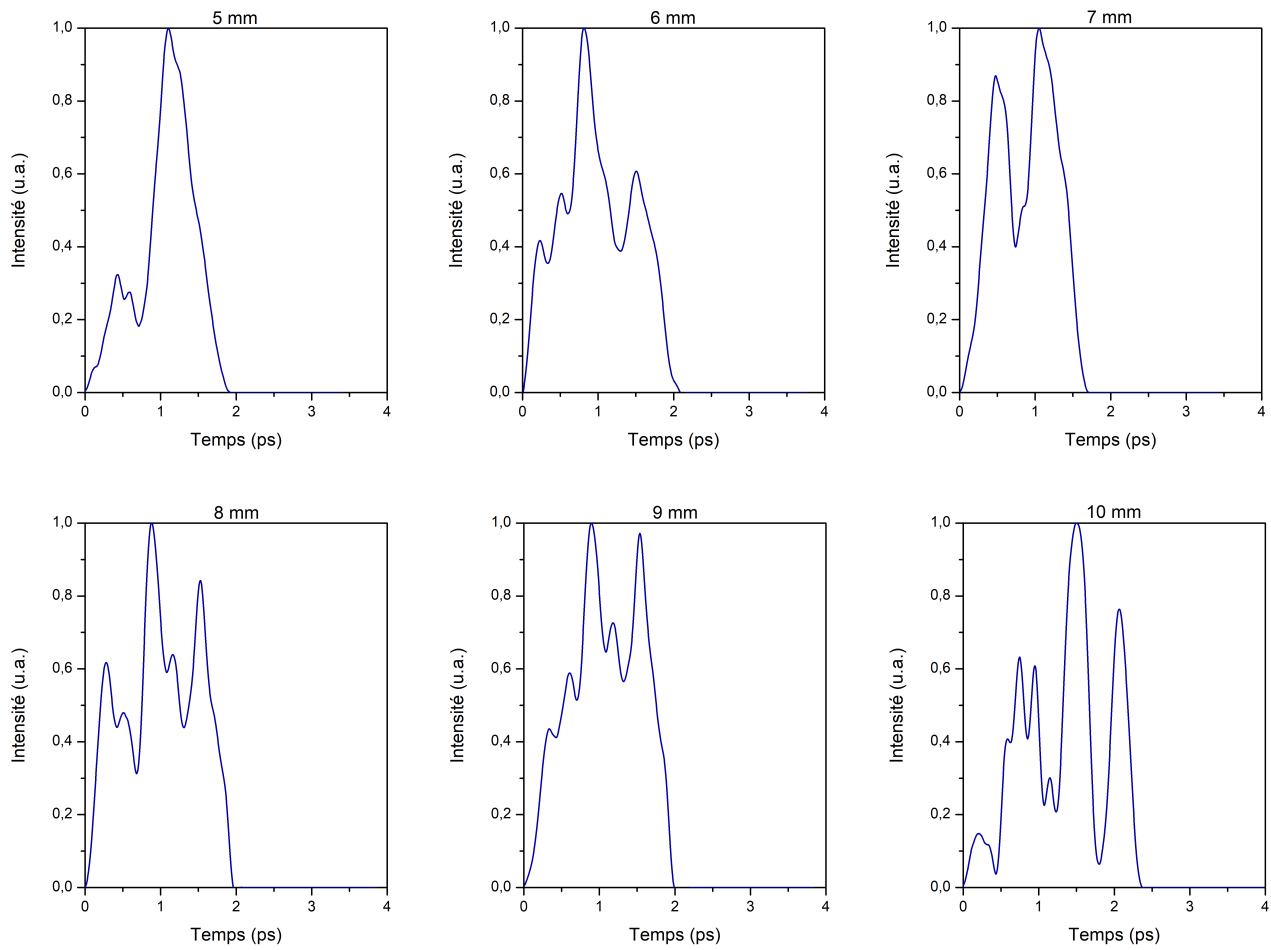


FIGURE 6.25 – Profils temporels mesurés par la seconde technique de reconstruction présentée en 5.1.5.2 pour différentes longueurs de jet, pour une densité électronique de $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe de $(1,09 \pm 0,04)c$.

De plus, comme nous venons de le voir dans les simulations, les structures changent très rapidement, brusquement et de manière non prédictible pour le moment en fonction de divers paramètres. La vitesse de groupe est calculée à partir des coefficients α de PFC et β de chirp temporel avec une incertitude d'environ 3%. La densité électronique est mesurée avec une erreur de $\pm 1 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Bien que la longueur de jet soit connue et contrôlée, la longueur d'amplification effective nécessiterait de connaître les zones de surionisations dans le plasma, ces dernières étant également à même de modifier l'allure du profil temporel. Enfin les mesures présentées ici ont été effectuées au délai d'injection optimum, avec une incertitude de l'ordre de 0,2 ps sur sa position. Toutes ces incertitudes rendent impossible une comparaison stricte et sensée entre l'allure des profils obtenus par simulations et par mesures.

Nous présentons ici néanmoins des exemples de profils reconstruits dans différentes conditions et pouvons constater qualitativement quelques similitudes avec les profils calculés par DAGON. La figure 6.24 illustre des profils temporels mesurés pour un jet de 10 mm, une densité électronique proche de $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et différentes vitesses de groupe. Comme dans la figure 6.21, on observe une grande variété de profils différents constitués de plusieurs pics dont l'espacement varie globalement entre 200 et 600 fs conformément aux simulations.

La figure 6.25 représente les profils reconstruits pour différentes longueurs de jet, pour une densité électronique de 7×10^{19} et une vitesse de groupe de $(1,09 \pm 0,04)c$. Cette figure permet dégager une tendance globale avec la complexification des structures pour les grandes longueurs de jet.

Enfin, la figure 6.26 montre les profils mesurés pour un jet de 10 mm, respectivement pour les densités $4,4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (a) et $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (b). On observe des allures similaires dans les deux cas, avec cependant à haute densité une nette réduction de la durée (induite par l'interruption anticipée du gain) et des structures plus rapides (espacement de 700 fs à basse densité contre 300 fs environ à haute densité). Ces mesures ont été réalisées pour une vitesse de groupe de $1,05c$. Rappelons que pour les vitesses de groupe supérieures à c , les profils simulés sont dominés par l'ASE et ne sont en aucun cas comparables aux profils mesurés par notre diagnostic qui ne prend en compte que l'harmonique amplifiée.

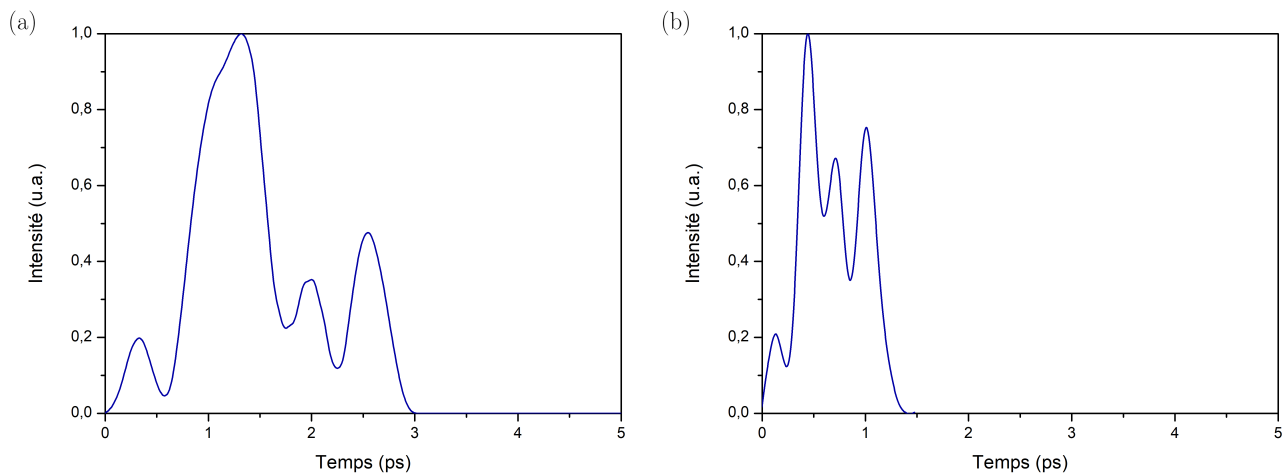


FIGURE 6.26 – Profils temporels mesurés par la seconde technique de reconstruction présentée en 5.1.5.2 pour un jet de 10 mm, une vitesse de groupe proche de $1,05c$ et une densité électronique de respectivement $4,4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (a) et $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en (b).

Les modifications de l'allure du profil temporel par la vitesse de groupe mériteraient sans aucun doute une étude plus détaillée. Des simulations et calculs complémentaires pourraient permettre de mieux cerner ce phénomène complexe, dont on comprend pour le moment peu de choses. Une refonte complète du code DAGON pourrait notamment permettre de séparer l'ASE de l'harmonique amplifiée, et ainsi de pouvoir comparer de façon juste les profils simulés et mesurés dans les cas où la vitesse de groupe est supérieure à c ou dans les cas où le délai d'injection harmoniques n'est pas optimal et l'ASE est pour le moment largement dominante. La diminution du bruit sur notre diagnostic de mesure du profil temporel, la réduction des diverses incertitudes (concernant en particulier la vitesse de groupe, la densité, la longueur d'amplification effective), ainsi que le développement d'une méthode plus poussée de reconstruction des structures (éventuellement basée sur un filtrage du bruit résiduel dans l'espace de Fourier) semblent constituer de bonnes pistes d'amélioration du côté expérimental.

Rappelons finalement que DAGON ajuste la vitesse de création du gain artificiellement par la vitesse de propagation du pic de densité et de température électroniques. Le code ne simule aucun faisceau infrarouge et aucun effet spectral. Il ne prend donc pas en compte qu'au sein même du faisceau pompe infrarouge, les différentes composantes spectrales se propagent à des vitesses différentes (et ce d'autant plus qu'on travaille à haute densité, comme on le voit sur la figure 6.1). On pourrait supposer raisonnablement que cet effet est bien moins impactant que la désynchronisation entre l'infrarouge et l'XUV, l'écart de vitesse étant plus réduit, et c'est pourquoi il a été négligé ici. Néanmoins, cela pourrait avoir des conséquences et pourrait être analysé dans une étude complémentaire.

6.3.4 Impact de la vitesse de groupe sur la dynamique de l'amplification

Une pratique courante pour estimer la dynamique temporelle du gain, proposée en 2005 dans [117] et expliquée en 4.2.2.1, consiste en la mesure de l'énergie de l'harmonique amplifiée en fonction du délai d'injection harmoniques. Il faut noter que cette mesure ne constitue en aucun cas une mesure exacte du gain, mais qu'il a été montré, à basse densité, que la dynamique temporelle de l'amplification ainsi mesurée est similaire à la dynamique temporelle du gain faible signal, telle que simulée par OFIKinRad [104][105]. En revanche, à haute densité, nous avons observé des allures très différentes entre ces deux courbes (voir 4.2.2.1). Dans cette section, nous allons voir comment et dans quelle mesure la vitesse de groupe du faisceau pompe pourrait permettre d'expliquer ce résultat.

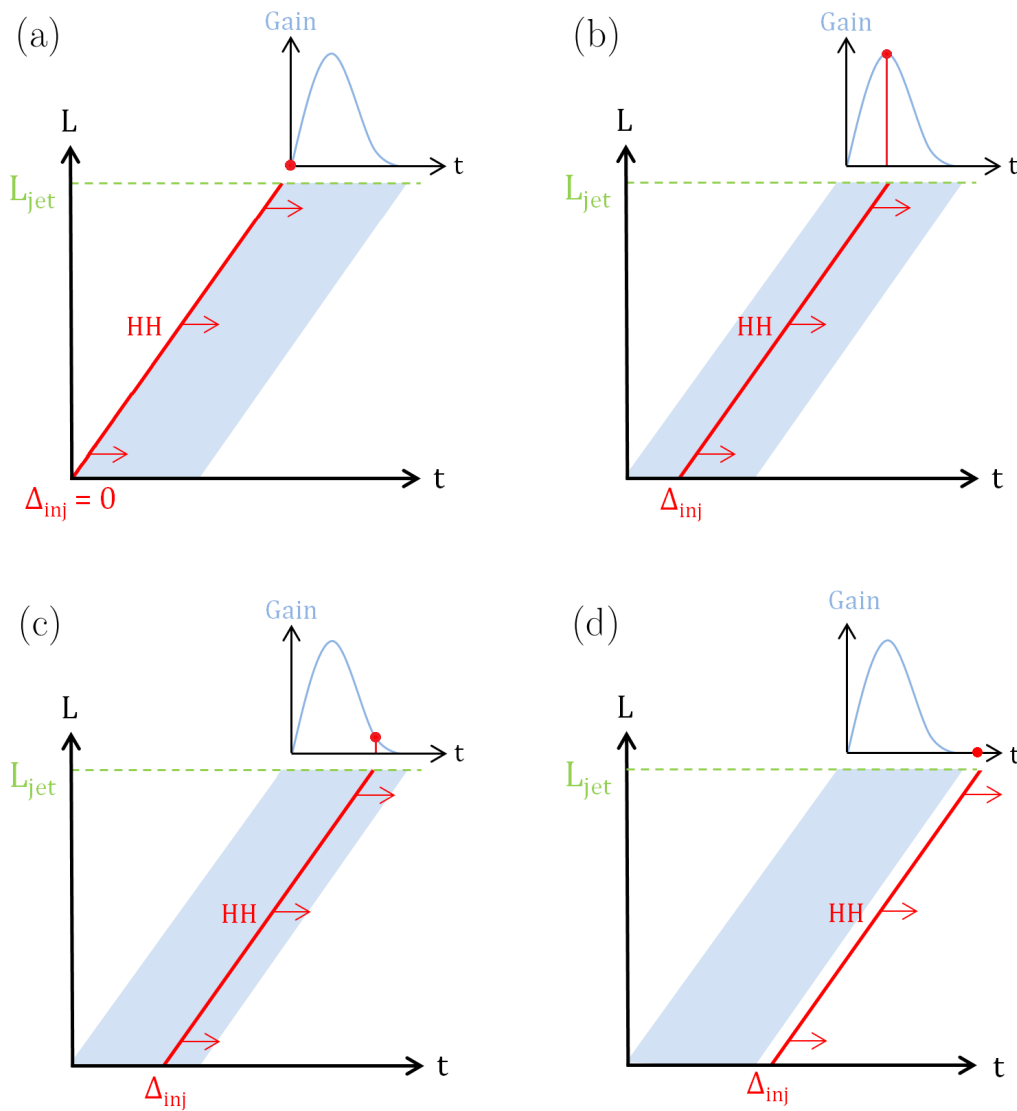


FIGURE 6.27 – Schéma de principe de la mesure de dynamique de l'amplification lorsque $v_g = c$. L représente la longueur d'amplification, t le temps. Une pente sur ce graphe correspond à une vitesse. L'harmonique expérimente ici toujours le même gain au cours de sa propagation. Il y a amplification dans les cas (a), (b) et (c).

Supposons pour commencer que la vitesse de groupe du faisceau pompe est c . On se base sur la figure 6.27 pour expliquer ce qu'il se passe physiquement. Dans le cas (a), l'harmonique (en rouge) est injectée à l'instant $\Delta_{inj} = 0$ et se propage dans le plasma à une vitesse c . La zone de gain (en bleu) est créée à la vitesse de propagation du faisceau pompe, soit ici c . Elle est donc représentée, dans ce graphe, par la même pente que les harmoniques. Le gain a une allure temporelle donnée, illustrée dans l'insert en haut à droite. Dans les cas (b), (c) et (d), on fait varier le délai d'injection des harmoniques. L'harmonique et le faisceau pompe se propagent ici à la même vitesse, l'harmonique expérimente toujours le même coefficient de gain au cours de sa propagation (en se plaçant en régime faible signal et en négligeant la saturation du gain). Ainsi, l'intégrale du gain vu par l'harmonique injectée à Δ_{inj} au cours de sa propagation est proportionnelle au coefficient de gain faible signal évalué en ce même instant Δ_{inj} . On observe également qu'il n'y a amplification que pour les délais d'injection compris entre l'instant $t = 0$ et l'instant qui marque la fin de la durée de vie du gain. Cette configuration est équivalente à un cas basse densité, la dispersion du plasma étant alors faible.

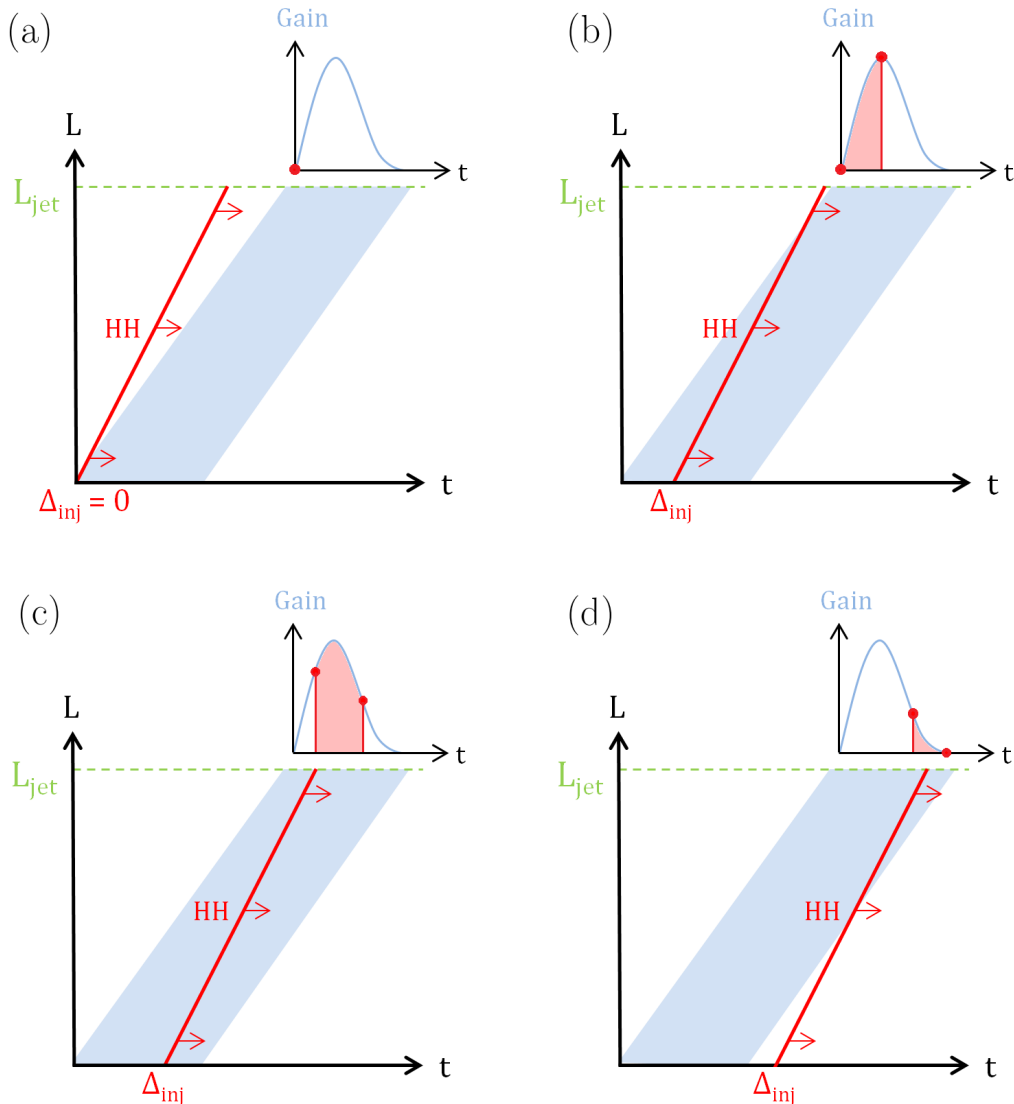


FIGURE 6.28 – Schéma de principe de la mesure de dynamique de l'amplification lorsque $v_g < c$. L'harmonique expérimente un coefficient de gain qui évolue avec sa propagation. Les gains vus par l'harmonique sont représentés en rouge dans l'insert illustrant la dynamique temporelle du gain.

En revanche à haute densité, la vitesse de groupe du faisceau pompe est naturellement inférieure à c . Ce cas est représenté sur la figure 6.28. En (a), pour $\Delta_{inj} = 0$, l'harmonique se propage plus rapidement que le gain ne se crée et n'est donc pas amplifiée. En (b), en (c) et en (d), pour trois instants Δ_{inj} fixés différents de 0, l'harmonique est amplifiée mais n'expérimente pas le même coefficient de gain tout au long de sa propagation. Contrairement au cas précédent, l'intégrale du gain vu par l'harmonique en Δ_{inj} n'est pas proportionnelle au coefficient de gain évalué en cet instant. Alors que pour $v_g = c$, l'amplification ne se produisait que lorsque l'injection avait lieu (en $L = 0$) pendant la durée de vie du gain, on constate ici qu'il y a amplification pour

des délais d'injection supérieurs pour lesquels l'harmonique commence à se propager après le temps de vie du gain. L'harmonique est en effet plus rapide que le gain, et peut donc le rattraper même si elle est injectée plus tardivement.

Sur la figure 6.29, on compare l'allure temporelle du gain faible signal en rouge (tel que calculé par OFI-KinRad pour une densité électronique de $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) à l'intégrale normalisée de ce gain en fonction du délai d'injection harmoniques en variations de bleu. L'intégrale du gain faible signal est calculée pour différentes vitesses de groupes inférieures à c en (a) et supérieures à c en (b). Dans le cas où la vitesse de groupe est égale à c , l'intégrale du gain en fonction du délai d'injection harmoniques correspond à l'allure temporelle du gain faible signal. Dès lors qu'il y a désynchronisation entre les harmoniques et la vitesse de création du gain, l'intégrale du gain diffère du gain faible signal. En particulier, on observe que plus la vitesse de groupe du faisceau pompe s'éloigne de c , plus la durée de l'intégrale du gain est grande. En effet, comme nous venons de le voir dans le cas $v_g < c$ sur la figure 6.28, la désynchronisation permet d'amplifier l'harmonique pour des délais d'injection (définis en $L = 0$) supérieurs à la durée de vie du gain. Plus la désynchronisation est importante, plus l'amplification est possible pour des délais d'injection longs. Dans le cas $v_g > c$, le même effet se produit mais du côté des délais d'injection négatifs. Les harmoniques se propagent alors moins rapidement que le gain n'est créé : elles ne peuvent plus être amplifiées pour des délais d'injection supérieurs à la durée de vie du gain, mais le peuvent si elles sont injectées avant qu'on commence à créer le gain. C'est alors la zone de gain qui les rattrapent.

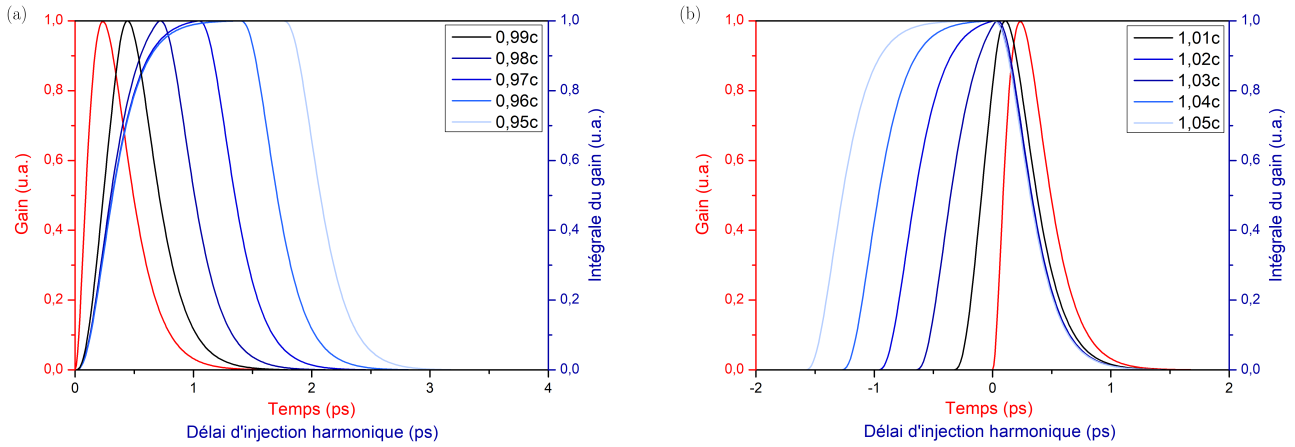


FIGURE 6.29 – Allure temporelle du gain faible signal pour $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ en rouge. Intégrale du gain normalisée en fonction du délai d'injection harmoniques en bleu pour différentes vitesses de groupe inférieures à c en (a) et supérieures à c en (b).

L'évolution de la durée de l'intégrale du gain est reportée sur la figure 6.30 (a) : on s'intéresse ici à la durée totale sur laquelle il y a amplification, on choisit donc le critère à $1/e^2$. Comme nous venons de le voir sur la figure précédente, on observe que la durée de l'intégrale diminue et tend vers la durée du gain lorsque la vitesse de groupe du faisceau pompe se rapproche de c . Notons néanmoins que cet effet n'est pas parfaitement symétrique par rapport à $v_g = c$. On trace également sur la figure 6.30 (b) l'évolution du délai d'injection optimum (qui correspond au délai d'injection pour lequel l'intégrale du gain est maximum) en fonction de la vitesse de groupe du faisceau pompe. Comme on peut déjà le constater sur la figure 6.29, le délai d'injection optimum varie avec la vitesse de groupe. Il croît rapidement lorsque celle-ci est inférieure à c et décroît lentement lorsqu'elle y est supérieure.

D'après nos calculs, la vitesse de groupe du faisceau pompe a un impact conséquent sur le gain vu par l'harmonique au cours de sa propagation pour un délai d'injection donné. On peut donc supposer que la vitesse de groupe a, de fait, une influence sur la dynamique de l'amplification qui correspond à la courbe de l'énergie de l'harmonique injectée intégrée tout au long de sa propagation dans l'amplificateur en fonction du délai d'injection. On mesure donc la dynamique de l'amplification pour différentes vitesses de groupe, respectivement obtenues en faisant varier le chirp temporel β à α fixé non nul. On trace sur la figure 6.31 (a) la durée de la dynamique d'amplification mesurée à $1/e^2$. L'incertitude sur la durée est estimée à $\pm 0,2 \text{ ps}$, celle sur la vitesse de groupe est calculée en fonction de l'incertitude connue sur α et β . On observe nettement une augmentation de la durée de la dynamique de l'amplification lorsque la désynchronisation devient de plus en plus importante. Cette tendance semble cohérente avec l'observation faite par calculs.

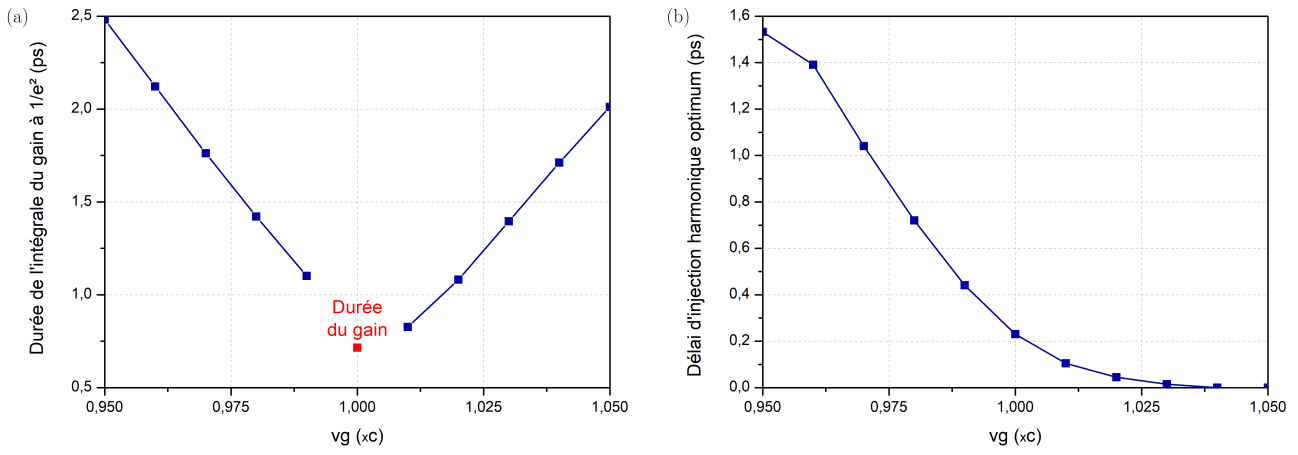


FIGURE 6.30 – (a) Durée calculée de l’intégrale du gain à $1/e^2$, (b) Position de l’optimum de l’intégrale du gain en fonction de la vitesse de groupe du faisceau pompe.

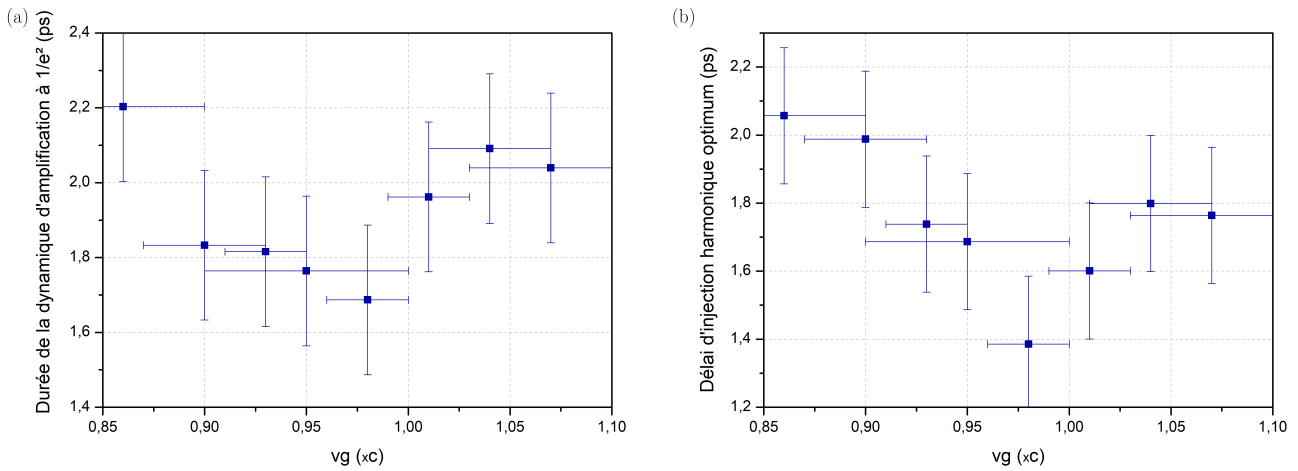


FIGURE 6.31 – (a) Durée de la dynamique d’amplification mesurée à $1/e^2$, (b) Délai d’injection harmoniques optimum en fonction de la vitesse de groupe du faisceau pompe.

La figure 6.31 (b) représente l’évolution du délai d’injection optimum avec la vitesse de groupe du faisceau pompe. Il faut noter que la vitesse de groupe a été ajustée grâce à la quantité de chirp temporel, et donc à la distance entre les réseaux du compresseur du faisceau pompe. La modification du trajet du faisceau pompe a ainsi nécessité d’effectuer une nouvelle synchronisation (voir couplage temporel en 3.3.3) entre les faisceaux pompe et générateur d’harmoniques pour chaque vitesse de groupe étudiée. Le délai d’injection optimum est ici donné par rapport à la synchronisation (correspondant au délai 0 ps) effectuée à une vitesse de groupe donnée. On constate sur nos mesures que plus la désynchronisation augmente, plus le délai optimum se décale vers les délais élevés, que ce soit pour une vitesse de groupe inférieure ou supérieure à c . La tendance observée par mesure de la dynamique d’amplification est donc différente de celle obtenue par calculs de l’intégrale du gain qui prédisent que l’optimum d’injection se décale vers les délais longs pour $v_g < c$ et vers les délais courts pour $v_g > c$. Rappelons néanmoins que la mesure de la dynamique d’amplification ne constitue en aucun cas une mesure directe du gain, ou même de son intégrale fonction du délai d’injection. Bien que les mesures aient montrées que la dynamique de l’amplification soit semblable à l’allure temporelle du gain faible signal dans les cas basse densité pour lesquels $v_g = c$ [104][105], absolument rien ne garantit qu’on puisse attendre de manière générale que la dynamique de l’amplification soit similaire à l’allure de l’intégrale du gain faible signal en fonction du délai d’injection. Nous pouvons seulement affirmer que l’énergie de l’harmonique injectée à un instant donné dépend (de façon très complexe) du gain qu’elle aura perçu tout au long de sa propagation et est donc liée, d’une certaine manière, à l’intégrale du gain pour un délai d’injection fixé. Nos calculs, ne pouvant être directement comparés à nos mesures, permettent d’expliquer que la désynchronisation infrarouge/XUV impacte l’intégrale du gain puisque l’harmonique voit un gain petit signal différent au cours de sa propagation (en négligeant la saturation). Nos résultats expérimentaux montrent, quant à eux, l’impact de la vitesse de groupe du faisceau pompe sur la dynamique de l’amplification.

Evolution de la dynamique de l'amplification en fonction de la longueur de jet à $v_g \neq c$

Lorsque la vitesse de groupe du faisceau est différente de c , nous avons observé que la dynamique d'amplification et que l'intégrale du gain en fonction du délai d'injection harmoniques étaient plus longues temporellement que le gain faible signal. Ceci est dû à une désynchronisation entre la zone de gain et l'harmonique injectée, qui voit différents coefficients de gain au cours de sa propagation dans le milieu amplificateur. Cet effet résulte donc, théoriquement comme expérimentalement, d'une intégration sur la longueur d'amplification. A vitesse de groupe fixée (différente de c toujours), on peut donc s'attendre logiquement à ce que la longueur d'amplification ait également une influence.

On représente sur la figure 6.32 (a) l'allure temporelle du gain faible signal en rouge et l'intégrale de ce gain calculée en fonction du délai d'injection harmonique pour une vitesse de groupe de $1,05c$ et différentes longueurs de jet variant entre 5 mm et 10 mm. On constate que, si le délai d'injection optimum ne varie pas en fonction de la longueur d'amplification, ce n'est pas le cas de la durée de l'intégrale du gain. L'évolution de cette dernière est illustrée sur la figure 6.32 (b) : elle augmente de façon conséquente de 1,2 ps à 5 mm à 2,0 ps à 10 mm. Plus la longueur d'amplification est grande, plus l'amplification est possible pour des délais d'injection lointains.

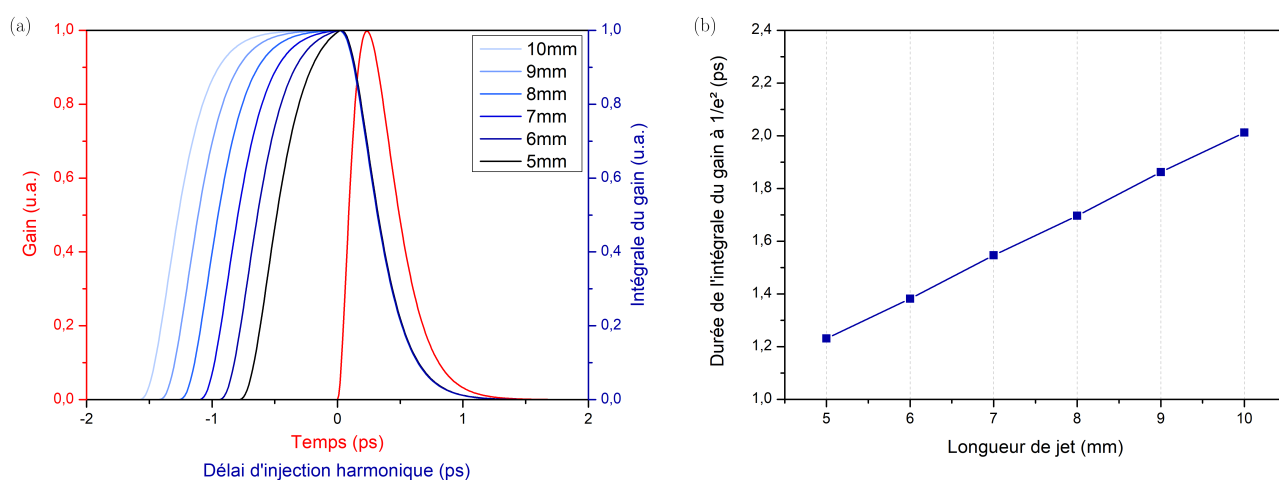


FIGURE 6.32 – (a) En rouge, allure temporelle du gain faible signal pour $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. En bleu, intégrales du gain normalisées en fonction du délai d'injection harmonique pour $v_g = 1,05c$ et différentes longueurs de jet. (b) Evolution de la durée de l'intégrale du gain fonction du délai d'injection harmonique à $1/e^2$ avec la longueur de jet.

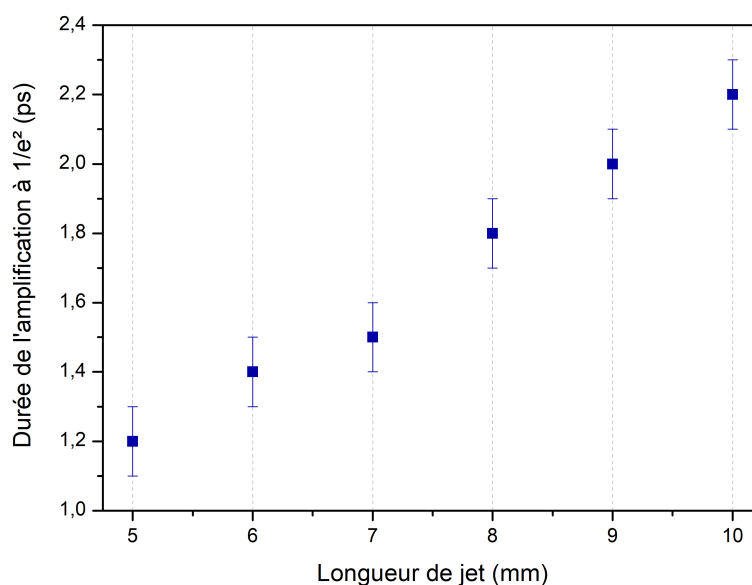


FIGURE 6.33 – Durée de la dynamique d'amplification mesurée en fonction de la longueur de jet pour une vitesse de groupe proche de $1,05c$, une densité électronique de $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

On tente de voir si la longueur de jet a le même impact sur la dynamique de l'amplification : on mesure la durée de l'amplification à $1/e^2$ en fonction de la longueur de jet pour une vitesse de groupe proche de $1,05c$. Cette mesure est représentée sur la figure 6.33. On constate une évolution similaire à celle obtenue par les calculs avec une augmentation de la durée de la dynamique d'amplification de 1,2 ps à 5 mm à 2,2 ps à 10 mm. Les dynamiques d'amplification mesurées correspondantes sont illustrées sur la figure 6.34.

Contrairement au cas basse densité où il n'y a pas de désynchronisation et où la dynamique de l'amplification est semblable à l'évolution temporelle du gain faible signal, de nombreux paramètres complexes interviennent à haute densité et influencent la dynamique de l'amplification. Nos mesures et calculs ne permettent pas de tout expliquer, mais démontrent que la vitesse de groupe du faisceau pompe et la longueur d'amplification effective ont une influence conséquente et peuvent expliquer, au moins partiellement, une durée de la dynamique de l'amplification plus longue que la durée du gain faible signal, et un décalage de l'optimum de l'amplification par rapport à l'optimum du gain (voir 4.2.2.1).

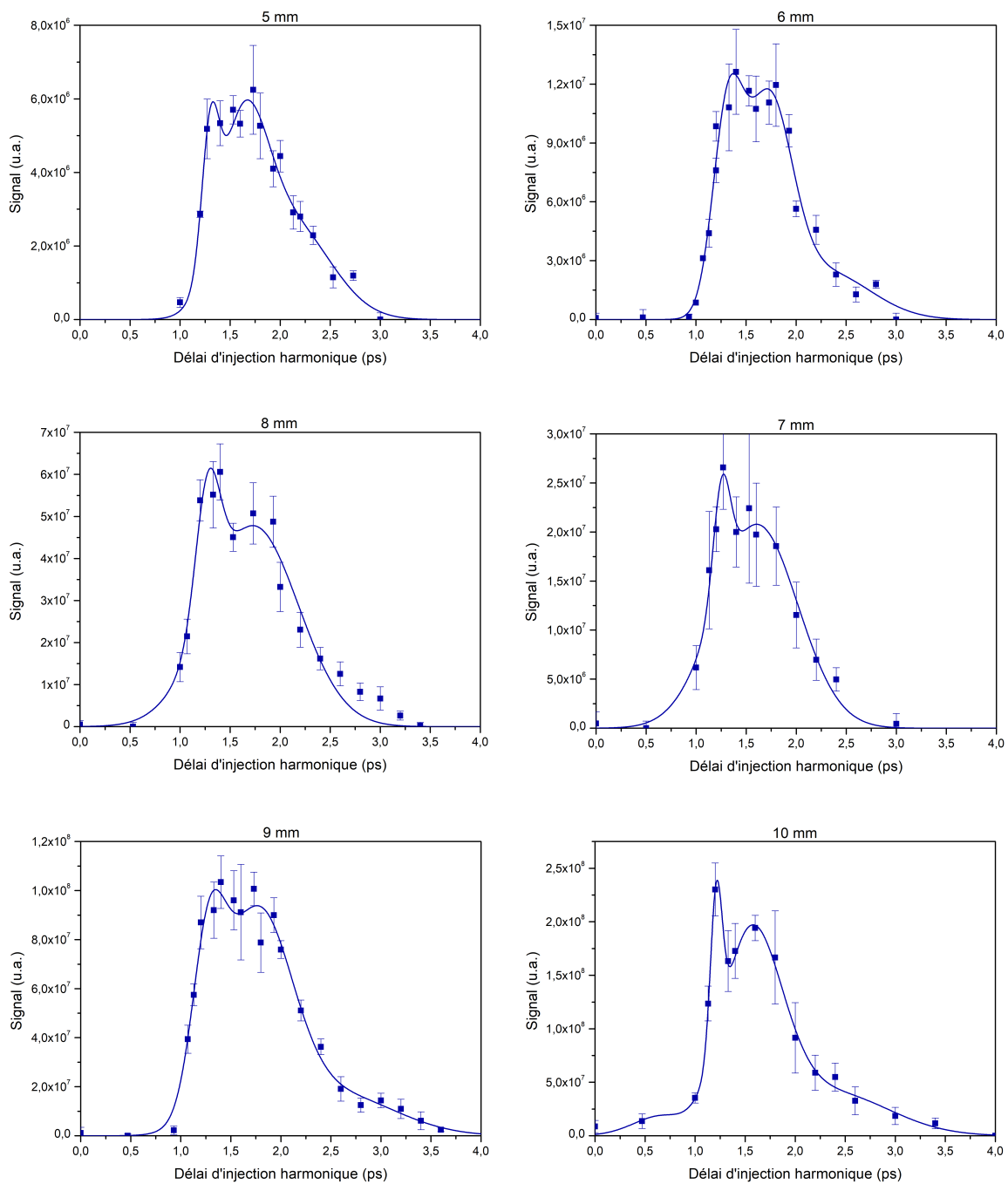


FIGURE 6.34 – Dynamique de l'amplification mesurées pour une vitesse de groupe proche de $1,05c$, une densité électronique de $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et une longueur de jet variant entre 5 et 10 mm. Les points de mesure sont obtenus par répétabilité sur 5 tirs. Les courbes en traits pleins sont un guide pour l'œil.

6.4 Conclusion

L'étude des couplages spatio-temporels des lasers intenses est un domaine de la recherche en plein essor. Depuis quelques années, l'ajustement de la vitesse de groupe grâce aux couplages spatio-temporels est une technique vers laquelle beaucoup d'intérêts convergent tant elle est prometteuse et porteuse de perspectives pour l'interaction laser-plasma. Bien que déjà démontrée expérimentalement dans le vide avec une impulsion femtoseconde [244] ou dans un plasma avec des impulsions modérément intenses [245][246], cette technique n'avait jamais été appliquée à une impulsion ultra-intense ($> 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$) se propageant dans un plasma. Nous apportons ici la preuve que ceci est réalisable et que les limites fondamentales induites par la dispersion du plasma peuvent être surpassées avec la première application concrète du "flying focus effect", ici dans le cas d'un laser XUV injecté en schéma de pompage longitudinal.

Dans notre cas, nous avons pu montrer que la compensation de la dispersion naturelle du plasma présente un grand nombre de bénéfices, qui ont fait l'objet d'une publication récente [247], tels qu'une extraction de l'énergie améliorée jusqu'à 60% ou encore une durée d'impulsion constante avec la longueur d'amplification qui promet un gain considérable en termes de puissance de sortie de la source, avec l'accès à des impulsions énergétiques (obtenues par des milieux amplificateurs longs) et courtes. Des durées d'impulsion sans précédent de 350 fs RMS ont pu être démontrées expérimentalement pour un jet de 10 mm en couplant l'effet de la densité électronique présenté en section 5.2 et la compensation de la dispersion. En outre, la synchronisation de la vitesse de création du gain avec la propagation de l'harmonique injectée devient absolument nécessaire lorsqu'on travaille à haute densité. Elle permet alors de travailler avec une longueur de déphasage infinie au lieu de quelques centaines de microns, ce qui offre la perspective d'encore meilleures performances.

Au delà même de l'amélioration des propriétés de notre source, cette étude basée sur l'ajustement de la vitesse de groupe du faisceau pompe s'est révélée extrêmement riche. Nous avons pu observer une physique très complexe, avec notamment l'apparition de structures temporelles sophistiquées dans le profil de l'impulsion XUV induites par la désynchronisation entre la zone de gain et l'harmonique injectée, qui laisse de multiples pistes à explorer.

Soulignons également que nous avons ici démontré expérimentalement pour la première fois l'ajustement de la vitesse de groupe d'un faisceau de très haute intensité dans un plasma, ce qui ouvre des perspectives pour de nombreuses expériences d'interaction laser-plasma réalisées à haute densité également limitées par la dispersion naturelle du plasma. Par exemple, dans le cas de l'accélération d'électrons par sillage laser (ou LWFA pour "Laser WakeField Acceleration"), la différence de vitesse entre le laser et le paquet d'électrons provoque un déphasage responsable d'une décélération des électrons, ce qui restreint la longueur d'accélération et le gain en énergie du faisceau d'électrons [248]. Pour l'accélération de photons [249], de hautes densités électroniques sont requises car elles induisent un fort gradient de l'indice de réfraction et en conséquence un important décalage en fréquence. Néanmoins, ces conditions favorables sont accompagnées par une réduction de la longueur d'interaction à cause d'un découplage entre les photons et l'onde d'ionisation.

Conclusion générale et perspectives

Dans cette thèse, nous avons travaillé sur la physique, la caractérisation et l'amélioration des performances d'un laser XUV collisionnel OFI injecté. Cette dernière est principalement déterminée par notre capacité à augmenter le nombre de photons émis et à réduire la durée d'impulsion. Comme nous avons pu le voir à travers l'ensemble de ce manuscrit, différents paramètres peuvent être optimisés en ce sens mais la clef pour y parvenir est l'augmentation de la densité électronique du plasma amplificateur.

Cela implique le développement de techniques de guidage du faisceau pompe à haute densité. Dans ce manuscrit, nous avons caractérisé l'évolution temporelle du profil de densité électronique du guide d'onde, sa transmission, et l'impact du guidage sur les performances énergétiques du laser XUV. Nous avons étudié le canal plasma généré par différentes séquences d'impulsions laser. Seule la séquence "ignitor-heater" a permis de guider de façon satisfaisante à des densités proches des 10^{20} cm^{-3} . Des études complémentaires seront nécessaires pour accroître l'efficacité de ce système, dont la transmission ne dépasse, pour le moment, pas les 40% pour 10 mm de propagation.

Nous avons pu constater que le chauffage du plasma, essentiel pour le pompage de la transition laser par les collisions entre les électrons chauds et les ions, dépend de la densité électronique. A basse densité (typiquement entre 10^{18} cm^{-3} et 10^{19} cm^{-3}), le chauffage des électrons est, comme l'ionisation, assuré par OFI. L'énergie cinétique acquise par les électrons dépendant fortement de la polarisation du champ, il est impératif que ce dernier soit polarisé circulairement pour pomper efficacement la transition. En revanche, à plus haute densité, nous avons démontré que le mécanisme de chauffage prédominant est la diffusion Raman stimulée, qui est indépendante de la polarisation du faisceau pompe. Nos résultats expérimentaux sont en bon accord avec des simulations FBPIC.

Un axe majeur de ce manuscrit a consisté en l'étude des propriétés temporelles de la source. Nous avons répondu à cette problématique en développant un diagnostic innovant permettant la mesure du profil temporel de l'impulsion XUV en un tir unique avec une résolution de l'ordre de 200 fs. Ce diagnostic, adaptable à la plupart des sources ultra-rapides XUV, nous a permis d'identifier et d'étudier l'impact de différents paramètres, notamment la densité électronique, sur la durée d'impulsion XUV. En adéquation avec la réduction de la durée de l'amplification induite par la surionisation des ions lasants et avec des simulations Maxwell-Bloch, nous avons mesuré des durées d'impulsions passant de 1,3 ps RMS à $3,9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ à 640 fs RMS à $7,6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Il s'agit de la première mesure de durée d'impulsion femtoseconde pour un laser XUV collisionnel.

Minimiser la dispersion naturelle du plasma a constitué un autre enjeu important de cette thèse. Nous y avons répondu par l'introduction de couplages spatio-temporels dans le faisceau pompe. La quantité de chirp temporel a été contrôlée grâce à la distance entre les réseaux du compresseur du faisceau pompe, et la quantité de PFC grâce à l'insertion de doublets chromatiques de focales infinies dans le faisceau pompe. Ainsi, l'ajustement de la vitesse de groupe d'un faisceau de très haute intensité ($> 10^{18} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$) dans un plasma a pu être démontré pour la première fois expérimentalement. Cela offre la possibilité concrète de s'affranchir de la dispersion naturelle du plasma, problématique pour la plupart des expériences d'interaction laser-plasma réalisées à haute densité (accélération de photons, ou d'électrons par sillage laser), ce qui laisse ainsi présager de nombreuses avancées.

Dans le cas de notre source injectée à 32,8 nm, cette technique a permis de faire varier la désynchronisation entre l'harmonique injectée et la zone de gain. Comme on pouvait s'y attendre, nous avons pu constater que l'extraction de l'énergie était sensible à cette désynchronisation et pouvait atteindre jusqu'à 60% mesurés en compensant la dispersion naturelle du plasma. Un autre résultat important concerne à nouveau les propriétés temporelles de la source : nous avons montré, expérimentalement et numériquement, qu'une désynchronisation entre la zone de gain et l'harmonique induisait l'apparition de structures encore mal comprises dans le profil temporel, et un étirement temporel de l'impulsion XUV au cours de sa propagation. Sans compensation de la dispersion naturelle du plasma, le gain en énergie par l'augmentation de la longueur d'amplification est donc obtenu au détriment de la durée d'impulsion. En revanche, nous avons montré que la compensation de ce phé-

nomène permet de maintenir la durée d'impulsion constante au cours de l'amplification. Le profil temporel est alors constitué des classiques oscillations de Rabi induites par l'oscillation de l'inversion de population. Des durées sans précédent de 350 fs RMS ont pu être démontrées expérimentalement pour une amplification sur 10 mm, une densité électronique de $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et une vitesse de groupe très proche de c . Mais l'optimisation de cette source ne s'arrête pas ici.

Un potentiel bien plus important est en effet promis par la compensation de la dispersion naturelle du plasma. La longueur de déphasage peut être considérablement étendue en introduisant les quantités adéquates de PFC et de chirp temporel. Les seules contraintes à l'amélioration des performances du laser à 32,8 nm sont désormais purement techniques. L'optimisation de la source dépend maintenant principalement des densités électroniques et des longueurs d'amplification qu'on sera capable d'atteindre.

Les perspectives d'augmentation de la puissance de ce type de laser XUV sont encourageantes. A des densités de $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, l'intensité de saturation est théoriquement supérieure à $10^{11} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ et pourrait offrir des impulsions de quelques dizaines de μJ . Des durées inférieures à 100 fs peuvent être attendues dans ces conditions. Pour y parvenir, il est envisageable d'optimiser le délai entre l'ignitor et le heater ce qui n'a pas été fait ici et de développer de nouvelles buses (optimisation du gradient et du profil longitudinal de densité grâce aux paramètres géométriques de la buse). Il est également pertinent de doubler le faisceau pompe en fréquence, ce qui permettrait de multiplier la densité critique par 4.

On maîtrise actuellement avec succès l'injection et le guidage dans des jets de 10 mm. En vue d'augmenter la longueur d'amplification, une optimisation des techniques de guidage sera nécessaire : pour le moment, près de la moitié de l'énergie pompe est perdue en entrée du guide d'onde. Une alternative possible à la création d'un canal, préformé par un faisceau infrarouge focalisé en une ligne focale sur toute la longueur de jet grâce à un axicon, est l'utilisation d'une axiparabole (voir annexe B). Cette dernière peut être conçue pour focaliser directement le faisceau pompe en une ligne focale de longueur donnée avec une intensité suffisante le long de cette ligne pour permettre la génération des ions lasants. Cela simplifierait d'une part le schéma expérimental de façon conséquente puisqu'il n'y aurait plus besoin de créer un guide d'onde, et permettrait d'autre part, avec le contrôle de la quantité de PFC, d'ajuster la vitesse de groupe sans avoir besoin d'introduire du chirp temporel.

Au delà même de l'optimisation de notre source, cette thèse a permis une étude en profondeur des lasers XUV collisionnels OFI injectés par harmoniques, dont la physique sous-jacente est exceptionnellement riche. Nous nous sommes penchés sur la compréhension de nombreux phénomènes physiques, et avons ouvert la voie à de nouvelles pistes de recherche qui restent à explorer. En particulier, nous nous sommes beaucoup souciés des propriétés temporelles de la source en fonction de différents paramètres, mais une étude de ses propriétés spectrales, sur lesquelles nous n'avons pas travaillé ici, serait particulièrement intéressante. Notons également que les structures temporelles qui se développent dès qu'il y a désynchronisation entre l'harmonique injectée et la zone de gain mériteraient très certainement une étude plus approfondie en vue de comprendre leur origine. Soulignons aussi que les oscillations de Rabi dans le profil temporel, prédites par la théorie lorsque l'harmonique injectée se propage de manière synchronisée avec la fenêtre de gain, n'ont pas pu être observées expérimentalement pour le moment. Néanmoins, nous savons maintenant que leur observation expérimentale peut être grandement facilitée en travaillant à basse densité où leur période peut être résolue plus aisément, et où la dispersion du plasma est naturellement très faible.

Les performances atteintes pendant cette thèse, ainsi que les développements futurs décrits précédemment, montrent que notre source a aujourd'hui un niveau de maturité suffisant pour envisager de nombreuses applications, nécessitant des hautes intensités sur cible ou des durées ultra-brèves pour l'étude de la dynamique de phénomènes ultra-rapides, auparavant réservées aux grandes installations. Une expérience encourageante présentée dans l'annexe F a notamment permis la première démonstration expérimentale de génération de seconde harmonique dans cette gamme spectrale [147]. Ce travail préliminaire ouvre la voie à des études d'optique non linéaire dans la gamme XUV en laboratoire. D'autres applications sont envisageables à l'avenir, tirant profit des améliorations présentées dans ce manuscrit et des caractéristiques singulières de ce type de source.

Annexe A

OFIKinRad

Le code OFIKinRad est basé sur le code COFIXE [180]. Il permet de simuler l'évolution locale d'un plasma produit par une interaction entre une impulsion laser intense, dont le profil temporel est supposé gaussien, et un gaz initialement neutre.

Les paramètres d'entrée du code sont :

- l'intensité laser, égale à $10^{17} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ dans toutes les simulations réalisées ici
- le temps de montée de l'impulsion laser fixé à 60 fs
- la longueur d'onde du laser fixée à 820 nm
- la polarisation du laser, circulaire pour toutes les simulations du chapitre 2 sauf mention contraire
- la densité atomique neutre de krypton, qui varie typiquement entre $1,25 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et $1,25 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ dans le chapitre 2
- l'état d'ionisation initial qui est nul
- la température électronique initiale, ici égale à 0,026 eV

L'interaction entre l'impulsion laser intense et la cible gazeuse induit l'ionisation et le chauffage des électrons par le champ (mécanisme OFI pour "Optical Field Ionization"). On considère ici les 36 niveaux d'ionisation du krypton et les 93 niveaux atomiques du Kr^{8+} . Les taux d'ionisation tunnel sont obtenus à partir de la théorie ADK [158] (voir 2.2.1.2). Ceux-ci permettent de calculer l'évolution temporelle du degré d'ionisation moyen, et donc celle de la densité électronique, ainsi que la distribution énergétique initiale des électrons. Soulignons que cette distribution initiale est non Maxwellienne dans le cas d'une polarisation circulaire (cf 2.2.2.1). L'évolution temporelle de la distribution énergétique des électrons, et donc de la température électronique, est ensuite calculée selon l'équation de Fokker-Planck (voir 2.3.2.1).

L'évolution des populations atomiques est déterminée par l'ensemble des processus atomiques ayant lieu dans le plasma : les processus collisionnels comme l'excitation / la désexcitation collisionnelle et l'ionisation collisionnelle, et les processus radiatifs comme l'absorption, la désexcitation spontanée ou l'émission stimulée. Les taux de recombinaison collisionnelle et radiative sont également pris en compte. Le processus fondamental de l'inversion de population est l'excitation collisionnelle. On s'intéresse donc en particulier à la variation de population n_i induite par celle-ci. Pour l'excitation d'un ion d'un niveau i à un niveau j , cette variation s'écrit :

$$\frac{dn_i}{dt} = \sum_j C_{ji} n_e n_j - C_{ij} n_e n_i \quad (\text{A.1})$$

avec n_e la densité électronique et C_{ij} le taux collisionnel entre les niveaux i et j . La force de collision de la transition $i \rightarrow j$ étant identique à celle de la transition inverse, on a $C_{ij} = C_{ji}$. Notons que les taux collisionnels dépendent de la distribution énergétique des électrons calculée précédemment. L'ionisation collisionnelle est, quant à elle, prise en compte via le calcul du taux de Lotz [250]. A partir de l'évolution temporelle des populations atomiques impliquées dans la transition laser, le code calcule l'inversion de population, le gain petit signal, l'émissivité et l'intensité de saturation (voir 2.1.2, 2.1.3 et 2.1.4).

Les approximations principales du code sont les suivantes :

- Le code est 0D et calcule donc le gain en un point de l'espace. L'évolution locale du gain calculée par OFIKinRad est entièrement déterminée par l'état initial du plasma et son interaction avec une impulsion laser intense.
- Ce modèle dépend uniquement du temps et ne prend donc pas en compte les phénomènes qui peuvent modifier l'état macroscopique du plasma, notamment l'expansion du plasma. Cette dernière résulte de

l'augmentation conséquente de la température électronique suivant l'ionisation. La vitesse d'expansion du plasma est typiquement de quelques dizaines de microns par nanoseconde. Le temps caractéristique des paramètres étudiés étant ici de l'ordre de quelques dizaines de picosecondes, l'expansion du plasma et la variation de densité induite sont négligées.

- Les pertes radiatives du plasma sont dues au fait que les photons émis peuvent ne pas être réabsorbés, ce qui est principalement le cas pour les transitions entre deux niveaux excités (au contraire des transitions entre le fondamental et un niveau excité). Cela provoque une perte définitive de leur énergie pour le plasma. Un coefficient de pertes radiatives est introduit dans le code pour prendre en compte ce phénomène.
- L'ionisation par le champ et la cinétique du plasma sont découplées. La durée d'interaction est en effet de l'ordre de la durée d'impulsion laser soit quelques dizaines de femtosecondes, et est donc plus courte que le temps caractéristique de la cinétique du plasma.

Annexe B

Axiparabole

Une axiparabole est un miroir asphérique réfléchissant un faisceau collimaté en une ligne focale étendue. En fonction de leur coordonnée radiale r sur le miroir, les rayons sont focalisés à la distance $f(r) = f_0 + z(r)$ avec f_0 la distance focale nominale, qui est ici non nulle, et $z(r) \in [0, \delta]$, $|\delta|$ correspondant à la longueur de la ligne focale. Notons que δ peut être positif ou négatif. Dans le second cas, les rayons de plus grand diamètre sont focalisés en amont de f_0 .

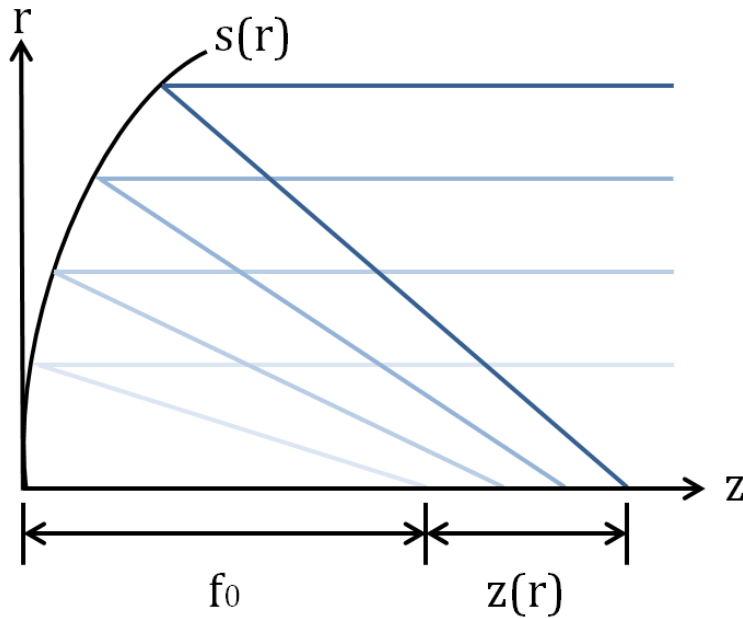


FIGURE B.1 – Schéma de principe de l'axiparabole.

La densité linéique de rayons le long de la ligne focale $\lambda_z(z)$ est reliée à la densité surfacique de rayons $I_0(r)$ sur l'axiparabole par la relation :

$$\lambda_z(z)dz = 2\pi r I_0(r)dr \quad (\text{B.1})$$

Pour un faisceau top-hat, on a $I_0(r) = P_0/(\pi R^2)$ avec P_0 la puissance incidente et R le rayon du faisceau. Cela mène à :

$$\frac{dr}{dz} = \frac{\lambda_z(z)R^2}{2P_0r} \quad (\text{B.2})$$

et donc à :

$$r(z) = R \left(\int_0^z \frac{\lambda_z(z')}{P_0} dz' \right)^{1/2} \quad (\text{B.3})$$

Dans notre cas, on cherche à avoir le long de la ligne focale une intensité constante qui permette de générer les ions lasants. Cela se traduit par $\lambda_z(z) = P_0/\delta$, et on aboutit à :

$$z(r) = \delta \left(\frac{r}{R} \right)^2 \quad (\text{B.4})$$

La figure B.2 représente cette distance z en fonction du rayon incident sur l'axiparabole pour une ligne focale de 15 mm.

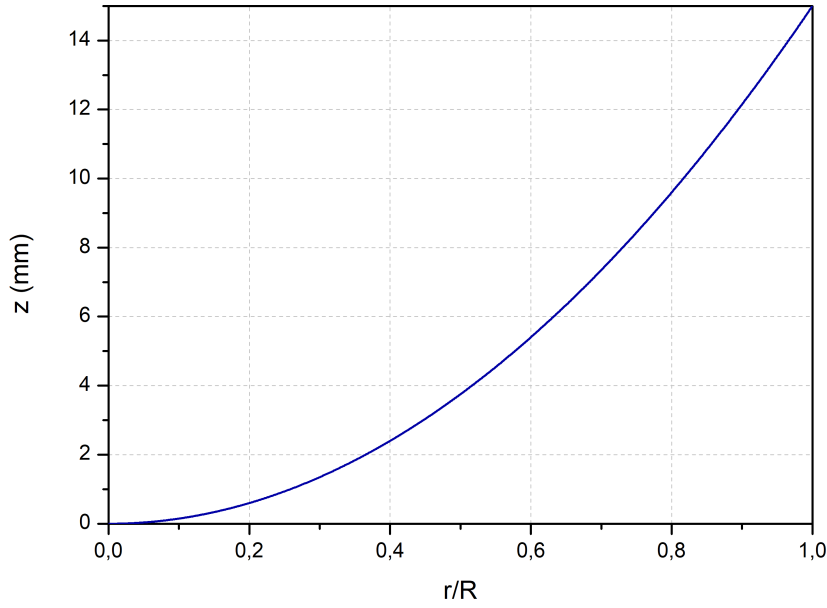


FIGURE B.2 – Distance focale z en fonction du rayon incident sur l'axiparabole pour une ligne focale de 15 mm.

Le champ à une distance $f_0 + d$ de l'axiparabole est donné, dans le régime de diffraction de Fresnel, par la formule :

$$E(r, d) = \frac{-iE_0}{\lambda(f_0 + d)} e^{ik(f_0 + d + \frac{r^2}{2(f_0 + d)})} \int_0^R \int_0^{2\pi} e^{-ik \frac{rr'}{f_0 + d} \cos(\theta)} d\theta e^{ik \left(\frac{r'^2}{2(f_0 + d)} - 2s(r') \right)} r' dr' \quad (\text{B.5})$$

avec E_0 le champ incident et $s(r)$ la surface de l'axiparabole. Cette surface peut être déterminée par le logiciel *Zemax* de sorte à obtenir une focale $f_0 = 750$ mm et une ligne de longueur $\delta = 15$ mm. A partir de cette surface, on peut ainsi calculer la distribution d'intensité de la ligne focale représentée sur la figure B.3. Nous avons ici pris en compte un faisceau top-hat de rayon $R = 45$ mm, d'énergie 1,5 J et de durée 30 fs. Le faisceau focalisé par l'axiparabole est de type Bessel. La surface ici conçue permet de maintenir une intensité suffisante pour générer les ions lasants Kr^{8+} sur plus de 10 mm.

Notons que cette optique pourrait permettre de grandement simplifier la chaîne laser XUV. En effet, elle pourrait remplacer le miroir sphérique qui focalise le faisceau pompe, rendant alors obsolète la création d'un guide d'onde grâce à la focalisation directe du faisceau pompe en une ligne focale.

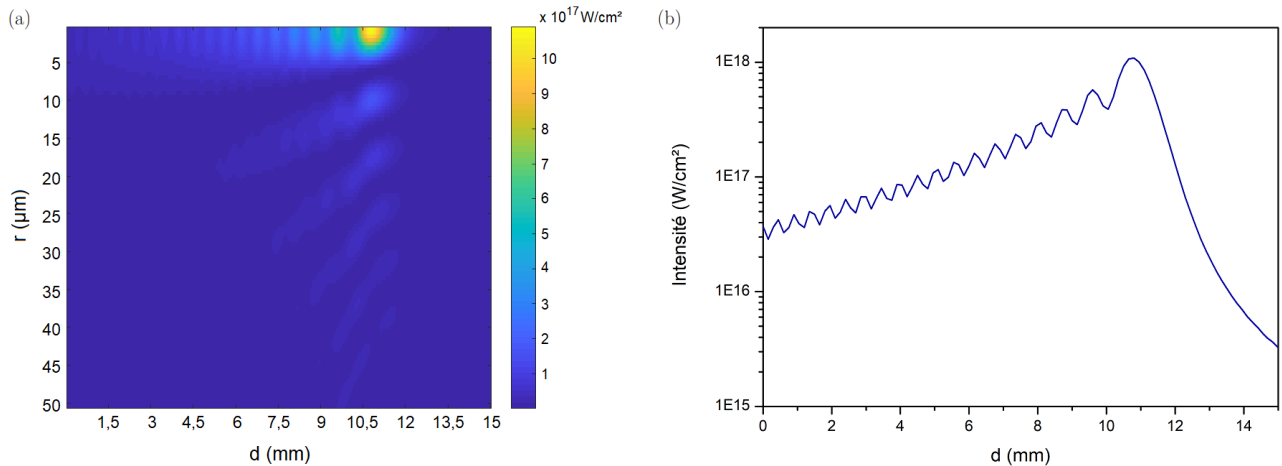


FIGURE B.3 – (a) Carte d'intensité de la ligne focale. (b) Intensité sur l'axe ($r = 0$) de la ligne focale produite par l'axiparabole conçue sur *Zemax*.

Le chemin optique de la lumière se propageant dans le vide depuis l'axiparabole jusque l'axe optique est donné par :

$$p(r) = \sqrt{[s(r) + f(r)]^2 + r^2} - s(r) \quad (\text{B.6})$$

et la vitesse du pic d'énergie v le long de la ligne focale déposée dans le vide par :

$$\frac{v}{c} = \left(\frac{dp}{dz} \right)^{-1} \quad (\text{B.7})$$

soit :

$$\frac{v}{c} = 1 + \frac{r^2}{2f^2} \quad (\text{B.8})$$

Ce modèle théorique, développé pour une propagation dans le vide, peut être ajusté pour prendre en compte la propagation dans un plasma, comme c'est le cas en pratique. On considère alors la réfraction à l'interface vide / plasma et la modification de la vitesse de la lumière. La vitesse de groupe de la ligne focale dans le plasma v_p peut alors s'écrire :

$$v_p = v \left(1 - \frac{n_e}{2n_c} \left(1 + \frac{r^2}{2f^2} \right) \right) \quad (\text{B.9})$$

Rappelons que dans le cas général, r est donné en (B.3) et dépend de la puissance incidente P_0 du faisceau. Il y a donc un lien direct entre la vitesse de groupe et l'intensité locale. Grâce aux couplages spatio-temporels, il est possible de découpler ce lien pour contrôler la vitesse de groupe le long de la ligne focale.

L'axiparabole permet de focaliser différents faisceaux annulaires en différents plans focaux distribués suivant la direction longitudinale en fonction de leur coordonnée radiale incidente. En introduisant dans le faisceau un retard radial $\tau(r)$ (i.e. en introduisant de la PFC), on peut donc contrôler le moment d'arrivée de ces faisceaux annulaires sur l'axiparabole et donc ajuster la vitesse de groupe. La vitesse de groupe devient alors :

$$v_{p,m} = \left(\frac{d(p + c\tau)}{dz} \right)^{-1} \quad (\text{B.10})$$

En considérant que $p \gg c\tau$, on peut montrer que :

$$\frac{v_{p,m}}{c} = \frac{v_p}{c} \left(1 - \frac{v}{c} \frac{d\tau}{dr} \frac{dr}{dz} \right) \quad (\text{B.11})$$

Ainsi, le retard radial requis pour générer un pic d'intensité qui se propage à vitesse de constante $v_{p,m} = c + v_0$ est donné par :

$$c \frac{d\tau}{dr} = \left(\frac{v}{c} - \frac{v}{v_p} - \frac{v_0 v}{v_p c} \right) \left(\frac{c}{v} \right)^2 \frac{dz}{dr} \quad (\text{B.12})$$

La vitesse de groupe peut alors être ajustée indépendamment de l'intensité, à des valeurs subluminales comme supraluminales.

Annexe C

Dispersion angulaire / Chirp spatial

Définition

La dispersion angulaire est un couplage spatio-temporel qui correspond à une variation de l'inclinaison du front d'onde en fonction de la longueur d'onde i.e. chaque longueur d'onde se propage dans une direction différente. Cela se traduit dans le domaine temporel par du Pulse Front Tilt (PFT), défini comme une différence d'inclinaison entre le front d'onde et le front d'impulsion. En d'autres termes, la dispersion angulaire est équivalente au PFT dans le domaine de Fourier. La focalisation d'un faisceau contenant de la dispersion angulaire génère du chirp spatial [240][241][251] : une variation de la position transverse du foyer avec la longueur d'onde comme le montre la figure C.1.

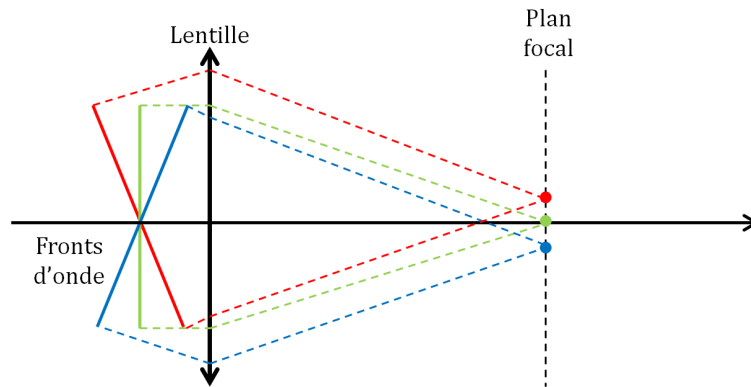


FIGURE C.1 – Focalisation d'une impulsion contenant de la dispersion angulaire. La dispersion angulaire se traduit en champ lointain (i.e. au foyer) par du chirp spatial.

Ajustement et mesure de la quantité de chirp spatial

De la dispersion angulaire indésirable peut être introduite dans un faisceau laser par de petits désalignements dans la chaîne ou par des optiques présentant des imperfections, ce qui peut nuire à la qualité de la tache focale. Il est alors souhaitable de corriger ces défauts.

Par ailleurs, certaines applications, comme la mise en forme d'impulsions femtosecondes [252] ou le contrôle de l'angle d'émission d'électrons accélérés par sillage laser [253], nécessitent de séparer transversalement différentes composantes spectrales d'une impulsion de manière délibérée et contrôlée.

Dans la direction de dispersion du compresseur, du chirp spatial peut être introduit facilement en changeant le parallélisme des réseaux. Plus généralement, il a été proposé de placer une lentille à distance focale d'un réseau de diffraction [252]. Mais cette solution ne permet que d'introduire une quantité précise de chirp spatial, en fonction des propriétés du réseau.

Nous avons vu dans le chapitre 6 qu'un doublet chromatique de focale infinie inséré avant compression dont on fait varier la position longitudinale dans un faisceau divergent pouvait permettre d'ajuster dynamiquement la quantité de PFC. Ce même doublet peut être utilisé pour contrôler dynamiquement la quantité de chirp spatial, comme nous l'avons montré dans [242]. Lorsque le doublet est parfaitement centré dans le faisceau,

aucun chirp spatial n'est introduit contrairement au cas où le doublet est décentré, comme on le voit sur la figure C.2. L'ajustement de la quantité de chirp spatial repose donc sur la position transverse du doublet dans le faisceau.

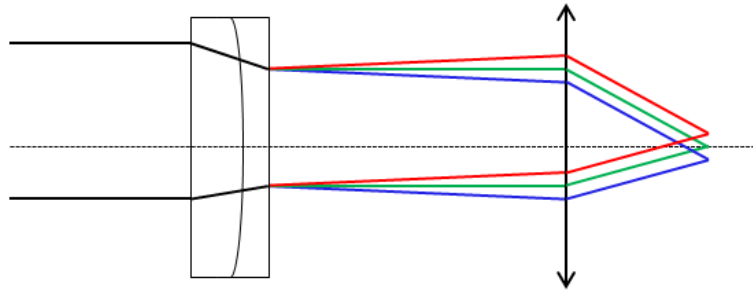


FIGURE C.2 – Introduction de dispersion angulaire / chirp spatial par décentrage d'un doublet chromatique. Le faisceau est focalisé par une lentille paraxiale pour mettre en évidence la présence de chirp spatial.

L'ajustement du chirp spatial grâce à cette technique peut être visualisé de deux manières différentes :

- On observe sur la figure C.3 la tache focale du faisceau et on mesure son intensité pic en fonction du centrage du doublet, en bleu dans la direction latérale et en rouge dans la direction verticale. L'intensité pic est maximum pour un centrage parfait du doublet, qui correspond à la position 0 dans les deux directions. Dans chaque direction, lorsqu'on décentre progressivement le doublet, on constate une claire diminution de l'intensité qui résulte de l'introduction de chirp spatial. En haut de la figure C.3, on montre le profil spatial du faisceau au foyer pour différentes positions verticales du doublet. Pour un centrage parfait, la tache est plus intense et plus circulaire que dans les autres cas, où elle s'étire dans la direction du décentrage à cause de la séparation spatiale des différentes composantes spectrales.

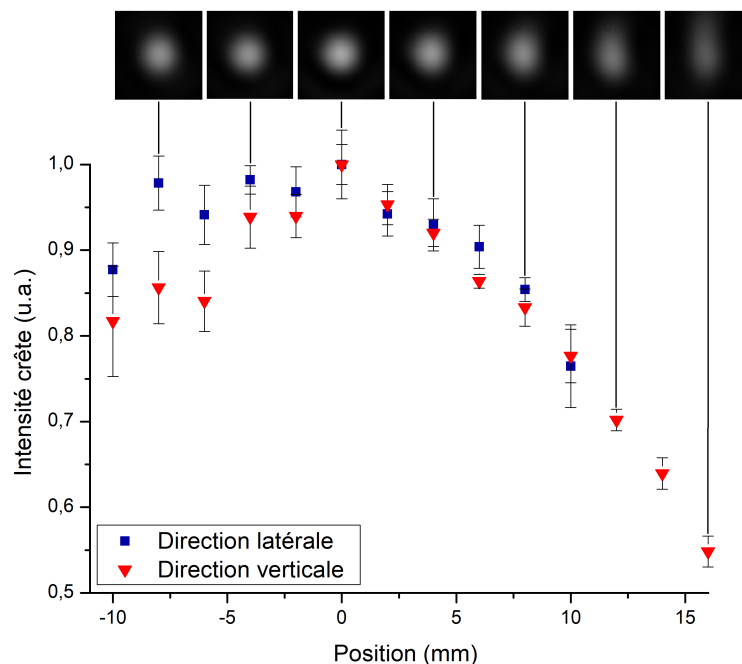


FIGURE C.3 – Intensité pic au foyer en fonction de la position latérale en bleu, ou verticale en rouge du doublet. En haut, profil spatial du faisceau observé au foyer pour différentes positions verticales du doublet.

- Comme pour mesurer la quantité de PFC dans le chapitre 6, il est possible d'utiliser un Dazzler pour la mesure de la quantité de chirp spatial. A l'aide du Dazzler, on sélectionne simultanément deux composantes spectrales respectivement centrées à 775 nm et 825 nm et de largeur $\Delta\lambda = 10$ nm. La figure C.4 représente le profil spatial de ce faisceau à deux couleurs au foyer pour différents alignements du doublet. En (a), le doublet est parfaitement centré. On observe alors une unique tache de rayon environ 200 μm à $1/e^2$. En (b), le doublet est parfaitement centré verticalement mais décentré de 13 mm latéralement. On voit clairement que les deux longueurs d'onde sont séparées latéralement. En (c), le

doublet est parfaitement centré latéralement mais décentré de 15 mm en vertical ce qui résulte en un chirp spatial vertical. En (d), le doublet est décentré de 7 mm en vertical et de 13 mm en latéral : les deux composantes spectrales sont alors séparées verticalement et latéralement. La dispersion angulaire causée par le décentrage maximum de 15 mm dans la direction verticale est ici de $3,2 \mu\text{rad} \cdot \text{nm}^{-1}$. Pour comparaison, la dispersion angulaire requise en [253] pour défléchir un faisceau d'électrons de 4 mrad est de l'ordre de $1 \mu\text{rad} \cdot \text{nm}^{-1}$. Il faut néanmoins noter que des simulations sur le logiciel *Zemax* montrent qu'un décentrage du doublet de 13 mm en latéral et 7 mm en vertical introduit un astigmatisme à 45° de $0,05\lambda$. Cependant, cette aberration indésirable ne varie pas en fonction de la longueur d'onde et peut donc être facilement corrigée au miroir déformable.

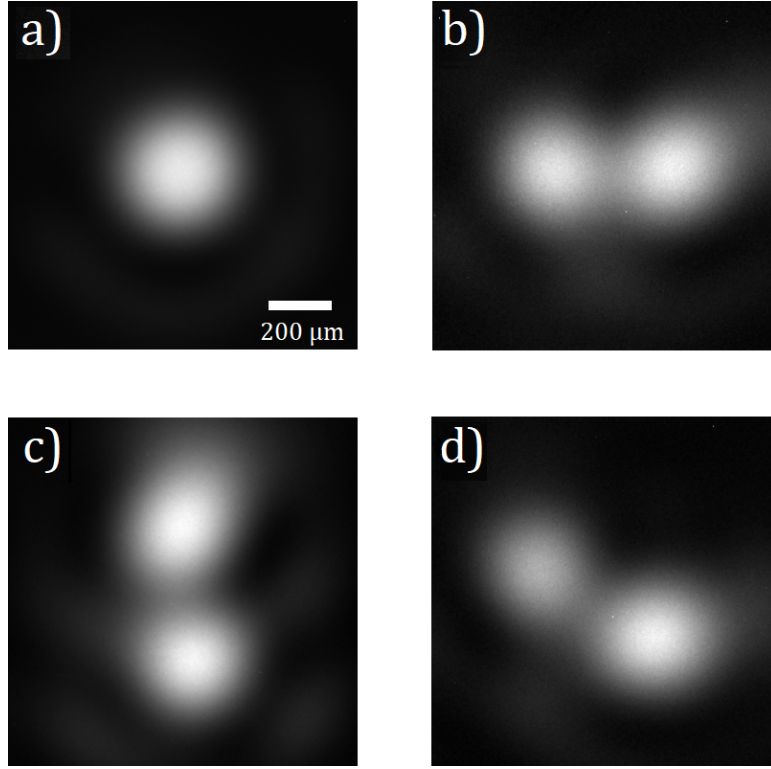


FIGURE C.4 – Profil spatial au foyer d'un faisceau à deux couleurs (775 nm et 825 nm) pour : (a) un centrage parfait du doublet, (b) un centrage vertical parfait et un décentrage de 13 mm en latéral, (c) un centrage parfait en latéral et un décentrage de 15 mm en vertical, (d) un décentrage vertical de 7 mm et latéral de 13 mm. Le rayon à $1/e^2$ en (a) est de l'ordre de 200 μm .

On peut souligner que l'introduction de dispersion angulaire avant les réseaux peut changer légèrement la compression. On considère un angle d'incidence sur le compresseur $\theta_i + \Delta\theta(\lambda)$ avec $\Delta\theta \ll 1$ qui représente une dispersion angulaire linéaire avec la longueur d'onde i.e. $\Delta\theta = \kappa\lambda$ avec κ un réel en $\mu\text{rad} \cdot \text{nm}^{-1}$. En développant $\sin(\theta_i + \Delta\theta)$ au premier ordre, on obtient $\sin(\theta_i + \Delta\theta) \approx \sin(\theta_i) + \Delta\theta\cos(\theta_i)$. En utilisant la loi des réseaux à l'ordre +1, on peut montrer que $\sin(\theta_{+1}) \approx \sin(\theta_i) - \lambda(\frac{1}{d} - \kappa\cos(\theta_i))$ avec d le pas du compresseur. L'introduction de dispersion angulaire revient donc, en termes de compression, à voir un réseau d'une période d' différente donnée par $\frac{1}{d'} = \frac{1}{d} - \kappa\cos(\theta_i)$. La compression peut alors être optimisée pour cette nouvelle période en changeant la distance entre les réseaux. Dans notre cas, ce n'est pas nécessaire puisque $\frac{1}{d}$ est de l'ordre de 10^6m^{-1} , et $\kappa\cos(\theta_i)$ est de l'ordre de 10^3m^{-1} .

Annexe D

Doublet chromatique

Comme expliqué dans le chapitre 6, l'insertion d'un ou de plusieurs doublets chromatiques de focale infinie dans le faisceau pompe avant compression permet de faire varier la quantité de PFC et donc la vitesse de groupe de ce faisceau. Dans nos expériences, on travaille soit sans doublet, soit avec un doublet, soit avec deux doublets ceux-ci étant alors identiques. La chaîne laser contenant, notamment à cause de ses nombreux systèmes afocaux constitués de lentilles, naturellement une grande quantité de PFC, le doublet chromatique a été conçu sur le logiciel *Zemax* pour compenser ce PFC. La figure D.1 représente le décalage longitudinal du plan focal introduit par le doublet, simulé par *Zemax*. Le doublet est constitué d'une lentille convergente (lentille 1) en BK7 et d'une lentille divergente (lentille 2) en SF5, séparées par du vide. Les caractéristiques du doublet sont données dans le tableau D.1.

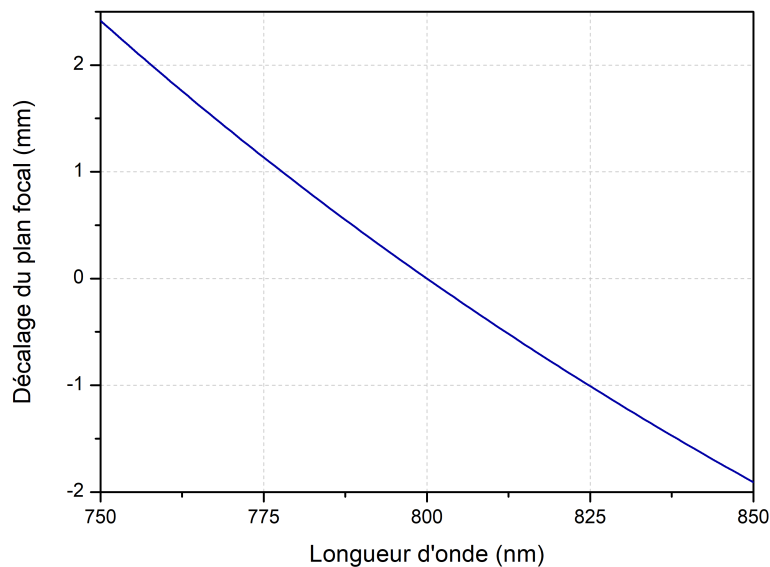


FIGURE D.1 – Décalage longitudinal du plan focal introduit par le doublet chromatique seul en fonction de la longueur d'onde.

Diamètre	100 mm
Rayon de courbure, lentille 1	736 CC mm and 210,6 CX mm
Rayon de courbure, lentille 2	214,67 CC mm and 499,8 CX mm
Épaisseur, lentille 1	4,68 mm
Épaisseur, vide	2 mm
Épaisseur, lentille 2	10,4 mm

TABLE D.1 – Caractéristiques du doublet chromatique.

Le doublet est optimisé pour que toute autre aberration que l'aberration chromatique longitudinale soit minimisée. Les simulations sur *Zemax* montrent que la plus forte aberration introduite par ce doublet, s'il est parfaitement aligné, est l'aberration sphérique inférieure à $5 \times 10^{-3} \lambda$. Comme discuté dans l'annexe précédente, le décentrage du doublet introduit du chirp spatial et de l'astigmatisme à 45° facilement corrigeables. Un tilt extrême de 2° peut introduire $0,2\lambda$ d'astigmatisme et $0,2\lambda$ de coma.

Effet du doublet sur la phase spectrale de deuxième ordre

Le doublet est susceptible d'introduire de la phase spectrale de deuxième ordre, également appelée GDD pour "Group Delay Dispersion" qui correspond à un retard de groupe dépendant de la longueur d'onde, et donc de modifier la durée d'impulsion du faisceau. En prenant en compte une dispersion de $44,6 \text{ fs}^2/\text{mm}$ pour le BK7 et de $126,4 \text{ fs}^2/\text{mm}$ pour le SF5 et la variation de l'épaisseur des lentilles avec le rayon, on calcule la GDD totale introduite par le doublet et son impact sur la durée d'impulsion. La figure D.2 (a) illustre la durée d'impulsion après le doublet calculée en fonction du rayon pour une durée d'impulsion initiale de 30 fs. La durée varie assez peu en fonction du rayon et ces variations faibles peuvent être minimisées davantage en optimisant le chirp. La durée moyenne dans le faisceau passe de 30,9 fs sans optimisation du chirp à 30,3 fs avec. La figure (b) montre l'évolution de la durée d'impulsion après le doublet moyennée sur un faisceau top-hat en fonction de la durée d'impulsion initiale. La courbe $Y = X$ est tracée en pointillés. Elle met en évidence qu'avec une bonne optimisation du chirp, la durée d'impulsion n'est pas affectée significativement par le doublet tant qu'elle est supérieure à 15 fs.

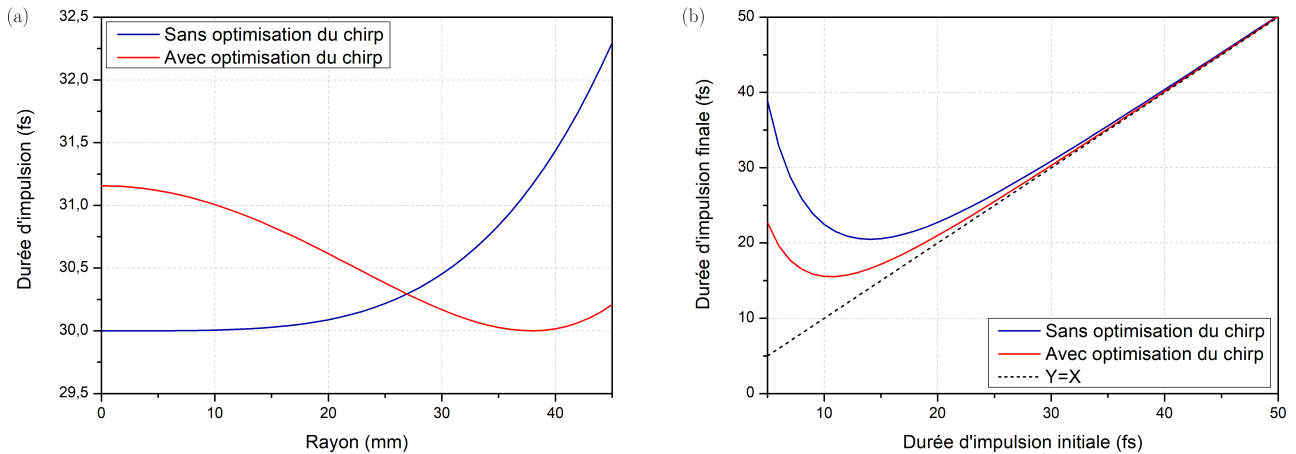


FIGURE D.2 – Effet du doublet sur la phase spectrale d'ordre 2 : (a) Durée d'impulsion après le doublet en fonction du rayon du faisceau, pour une durée initiale de 30 fs. (b) Durée d'impulsion après le doublet moyennée sur un faisceau top-hat en fonction de la durée d'impulsion initiale.

Annexe E

Evolution de la durée d'impulsion avec le délai d'injection harmoniques

La durée d'impulsion du laser XUV collisionnel injecté a été au cœur de cette thèse. Grâce au diagnostic développé dans le chapitre 5, nous avons étudié son évolution en fonction de différents paramètres : la densité électronique en 5.2, et la longueur de l'amplification ainsi que la vitesse de groupe du faisceau pompe dans la section 6.3.3. Dans cette dernière, nous avons vu que la durée d'impulsion était étroitement liée à la synchronisation entre la zone de gain, créée par le faisceau pompe infrarouge, et les harmoniques XUV. Il est donc assez naturel de penser que le délai d'injection harmoniques peut avoir un impact sur cette durée d'impulsion. C'est pourquoi nous avons mesuré la durée d'impulsion de la source injectée en fonction du délai d'injection harmoniques pour différentes vitesses de groupes. Ces mesures, effectuées pour un jet de 10 mm et une densité électronique de $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, sont représentées en rouge sur la figure E.1, en parallèle des dynamiques d'amplification mesurées dans les mêmes conditions. La vitesse de groupe vaut respectivement $(1,09 \pm 0,04)c$ en (a), $(1,00 \pm 0,03)c$ en (b) et $(0,98 \pm 0,02)c$ en (c).

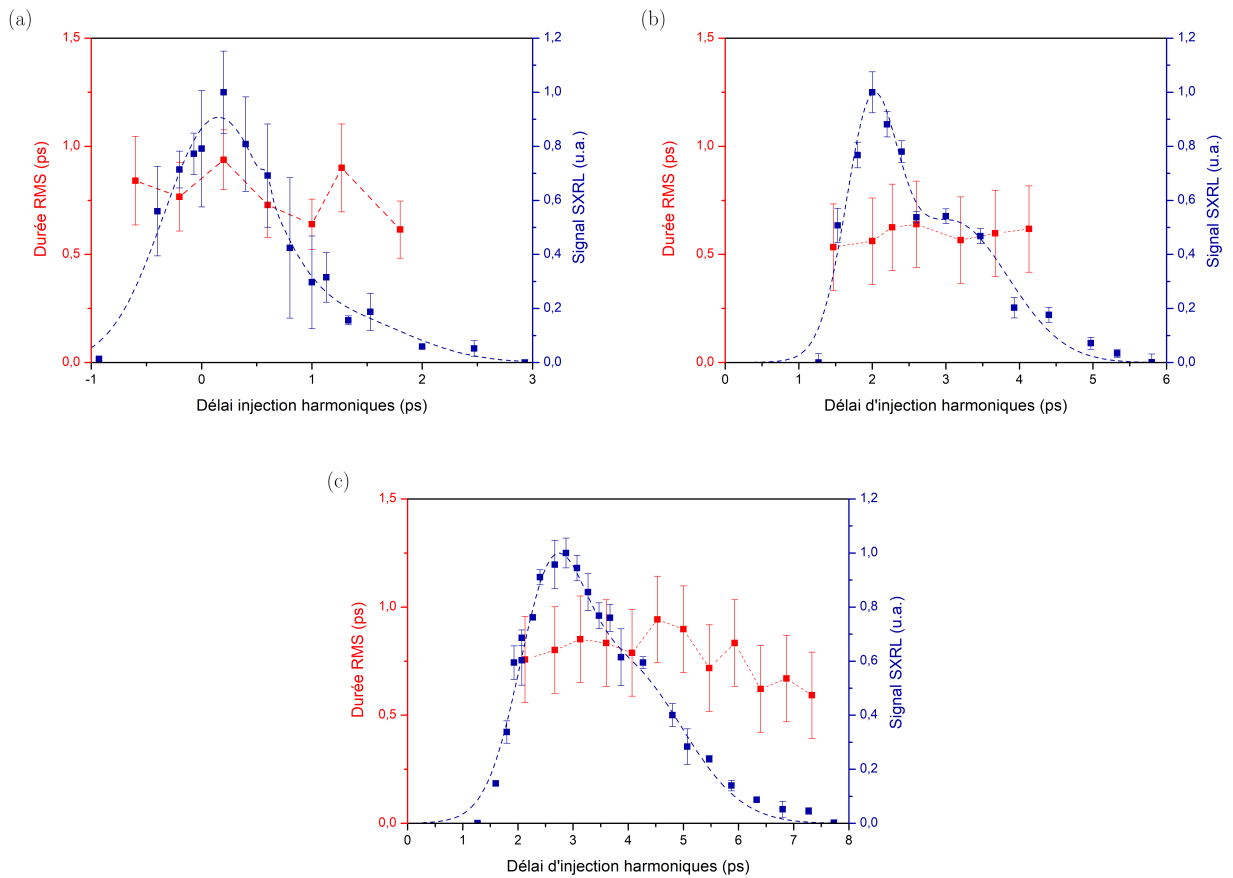


FIGURE E.1 – En bleu, dynamique de l'amplification. En rouge, durée RMS de l'impulsion XUV en fonction du délai d'injection harmoniques. Mesures effectuées pour un jet de 10 mm, une densité électronique de $7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. La vitesse de groupe vaut : $(1,09 \pm 0,04)c$ en (a), $(1,00 \pm 0,03)c$ en (b) et $(0,98 \pm 0,02)c$ en (c).

On peut globalement noter que, quelque soit la vitesse de groupe, la durée d'impulsion apparaît quasiment constante en fonction du délai d'injection harmoniques. L'écart-type est dans tous les cas sous les 150 fs, et inférieur à l'incertitude de mesure de ± 200 fs. On constate donc en pratique, que le délai d'injection n'a que peu d'influence sur la durée d'impulsion.

Nous avons également essayé d'étudier l'évolution de la durée d'impulsion simulée par DAGON en fonction du délai d'injection harmoniques. Comme expliqué en 6.3.3.2, il est vite apparu que l'ASE domine très largement dans le cas d'un délai d'injection non optimum, et rendent les simulations incomparables aux résultats expérimentaux. La confrontation de nos mesures en fonction du délai d'injection harmoniques à des simulations ne sera pertinente que lorsque le code aura été modifié pour permettre d'isoler proprement l'harmonique amplifiée de l'ASE.

Annexe F

Application à la génération de seconde harmonique dans l'XUV

La spectroscopie à partir de la génération de seconde harmonique est devenu un outil indispensable pour la science des surfaces [254][255][256]. Si les processus non linéaires ont été largement observés dans l'infrarouge et le visible depuis leur première démonstration expérimentale en 1961 [257], la gamme spectrale des XUV reste relativement peu explorée en raison du peu de sources disposant de l'intensité et de la cohérence suffisantes. Les XFELs ont néanmoins permis d'observer la première génération de seconde harmonique dans un échantillon de diamant avec une intensité sur cible de l'ordre de $10^{16} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ dans les X durs autour de 7 keV (1,7 Å) en 2014 [145], et dans un échantillon de graphite dans les X mous à 284 eV avec une intensité sur cible de l'ordre de $10^{12} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$ en 2018 [146]. Notre objectif est ici de générer de la seconde harmonique en focalisant notre source laser à 32,8 nm produite par interaction laser-plasma sur un échantillon de titane de 50 nm d'épaisseur.

Principe théorique de la génération de seconde harmonique

On considère un milieu diélectrique isotrope homogène non magnétique et sans pertes, constitué d'un ensemble de dipôles électriques. Sous l'effet d'un champ électrique \mathbf{E} , ces dipôles oscillent et génèrent collectivement un terme de source \mathbf{P} appelée polarisation macroscopique.

Les équations de Maxwell permettent de calculer l'équation d'Helmholtz satisfaite par le champ (voir 2.4.1) :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}(\mathbf{r}, t)}{\partial t^2} \quad (\text{F.1})$$

avec la polarisation \mathbf{P} qui provient de la densité de courant de polarisation $\mathbf{J}_{\mathbf{P}} = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}$.

Dans le domaine de Fourier, cette équation se réécrit :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{\omega^2}{c^2 \epsilon_0} \mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) \quad (\text{F.2})$$

avec la polarisation qui peut être décomposée, tant que l'amplitude du champ incident est inférieure à la force du champ électrique atomique, en une série de puissance du champ électrique i.e. en une somme de n ordres où on se limitera ici aux ordres 1 et 2 :

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) + \dots + \mathbf{P}^{(n)}(\mathbf{r}, \omega) \approx \mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) + \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) \quad (\text{F.3})$$

Le terme de premier ordre correspond à une polarisation linéaire (i.e. proportionnelle au champ électrique) :

$$\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \quad (\text{F.4})$$

Le terme du second ordre correspond à une polarisation non linéaire qui varie quadratiquement avec le champ :

$$\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(\omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) \quad (\text{F.5})$$

avec respectivement $\chi^{(1)}(\omega)$ et $\chi^{(2)}(\omega)$ les tenseurs de susceptibilité de premier et second ordre. L'équation de Helmholtz peut alors être réécrite comme :

$$\Delta \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) + \epsilon_r(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = -\frac{\omega^2}{c^2 \epsilon_0} \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) \quad (\text{F.6})$$

avec $\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$ le tenseur de permittivité diélectrique relative, relié à l'indice de réfraction du milieu par $n^2(\omega) = \epsilon_r(\omega)$.

On considère une onde plane se propageant suivant z définie par :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = A(z, \omega) e^{ik(\omega)z} \mathbf{e}_r \quad (\text{F.7})$$

avec $k(\omega)$ le vecteur d'onde à la pulsation ω respectant la relation de dispersion du matériau $k^2(\omega) = \epsilon_r(\omega) \frac{\omega^2}{c^2}$.

On peut montrer que l'équation (F.6) devient alors :

$$\frac{\partial^2 A(z, \omega)}{\partial z^2} + 2ik \frac{\partial A(z, \omega)}{\partial z} = -\frac{\omega^2}{c^2 \epsilon_0} P^{(2)}(z, \omega) e^{-ikz} \quad (\text{F.8})$$

Dans le cadre de l'approximation paraxiale, on estime que les variations de A suivant z sont lentes devant l'oscillation du champ décrite par e^{ikz} :

$$\left| \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} \right| \ll \left| 2k \frac{\partial A}{\partial z} \right| \quad (\text{F.9})$$

L'équation (F.8) se simplifie donc en :

$$\frac{\partial A(z, \omega)}{\partial z} = \frac{i\omega}{2\epsilon_0 n(\omega) c} P^{(2)}(z, \omega) e^{-ikz} \quad (\text{F.10})$$

En réinjectant l'expression de la polarisation non linéaire à 2ω donnée par :

$$P^{(2)}(z, 2\omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) A^2(z, \omega) e^{2ik(\omega)z} \quad (\text{F.11})$$

dans l'équation (F.10), il vient :

$$\frac{\partial A(z, 2\omega)}{\partial z} = \frac{i\omega}{n(2\omega)c} \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) A^2(z, \omega) e^{-i\Delta k z} \quad (\text{F.12})$$

avec $\Delta k = k(2\omega) - 2k(\omega)$, qu'on appelle condition d'accord de phase.

En intégrant (F.12) dans l'approximation paramétrique (i.e. en supposant que la polarisation non linéaire est constante suivant z), on obtient finalement l'expression du champ à 2ω qui est fonction quadratique du champ à ω :

$$A(z, 2\omega) = \frac{\omega}{n(2\omega)c} \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) A^2(z, \omega) \frac{1 - e^{-i\Delta k z}}{\Delta k} \quad (\text{F.13})$$

A partir de l'équation (F.13), on peut facilement montrer que :

$$I(2\omega) \propto |\chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega)|^2 I^2(\omega) \quad (\text{F.14})$$

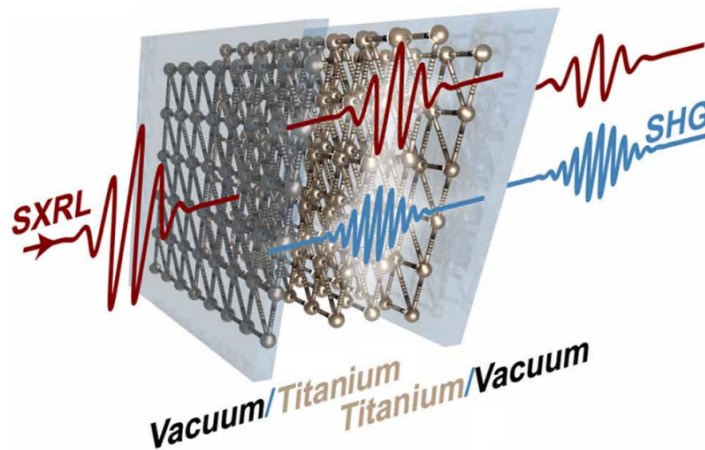


FIGURE F.1 – Génération de seconde harmonique en face avant de l'échantillon de titane permise par la rupture de symétrie à l'interface air-vide.

D'un point de vue macroscopique, un champ électrique de pulsation ω incident sur un échantillon de titane génère une polarisation à 2ω qui rayonne à 2ω . Comme nous venons de le montrer, l'intensité du champ rayonné à 2ω est théoriquement proportionnelle au carré de l'intensité du champ à ω . La seconde harmonique est générée grâce aux propriétés du titane. Il s'agit d'un matériau au cœur centro-symétrique, mais qui présente une rupture de cette symétrie à l'interface vide-titane. A cet endroit, le tenseur de susceptibilité d'ordre 2 est non nul et permet l'émission de seconde harmonique. Celle-ci étant ainsi confinée à la surface de l'échantillon, la condition d'accord de phase est toujours respectée. L'épaisseur de l'échantillon de titane étant de 50 nm et la longueur de pénétration du rayonnement à 32,8 nm dans ce matériau étant de 13 nm, on peut raisonnablement penser que l'émission à 2ω est obtenue en face avant de l'échantillon comme le montre la figure F.1.

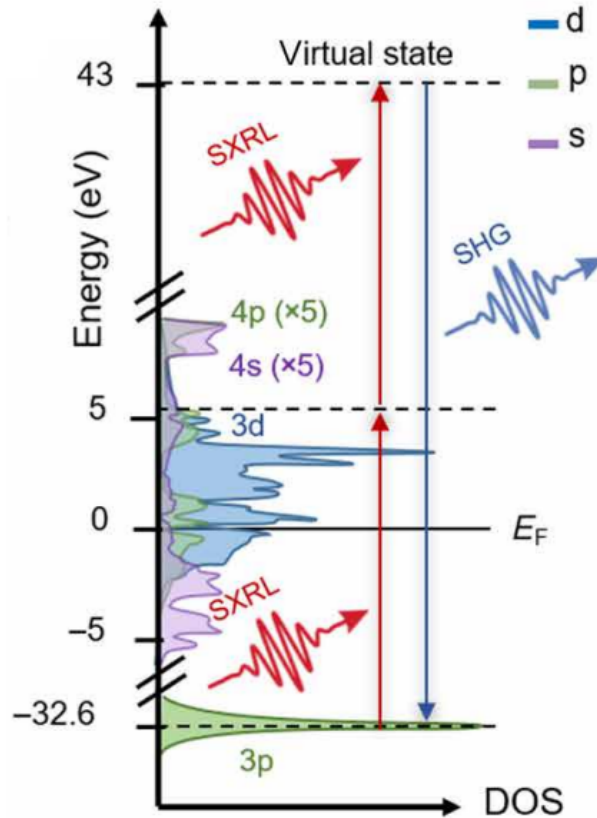


FIGURE F.2 – Densité d'état du titane, et schéma énergétique de la génération de seconde harmonique produite par l'absorption d'un premier photon à 32,8 nm (i.e. 37,8 eV) entre le niveau 3p et le niveau 3d vide, et d'un deuxième photon correspondant à une excitation ultérieure jusqu'à un niveau virtuel.

D'un point de vue énergétique, la génération de seconde harmonique résulte de l'absorption de 2 photons à ω . Comme le montre la figure F.2, l'absorption du premier photon à 32,8 nm correspond exactement à une excitation de 37,8 eV entre le niveau 3p et le niveau 3d vide du titane et l'absorption du second photon correspond à l'excitation ultérieure à un état virtuel.

Démonstration de la génération de seconde harmonique à partir d'un laser XUV

Le schéma de l'expérience réalisée pour générer la seconde harmonique de notre source laser XUV est représenté sur la figure F.3. Le faisceau XUV est focalisé sur l'échantillon de titane de 50 nm d'épaisseur grâce à un miroir ellipsoïdal de focale 33 cm à 10° d'incidence avec une réflectivité de l'ordre de 70%. La dimension de la tache focale est estimée à $4,5 \pm 1,5 \mu\text{m}$, la limite de diffraction étant $3 \mu\text{m}$. Cette expérience a été réalisée en réalité au tout début de cette thèse, soit avant les optimisations présentées dans le manuscrit. L'énergie du faisceau XUV était alors de l'ordre de $0,11 \pm 0,02 \mu\text{J}$ (obtenue avec un jet de 10 mm et une densité électronique de $4,5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). Une durée d'impulsion de $1,3 \pm 0,2 \text{ ps RMS}$ a été mesurée dans ces conditions grâce au diagnostic présenté au chapitre 4, résultant en une intensité sur cible de $(5,4 \pm 2,2) \times 10^{11} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. Le spectromètre utilisé pour analyser le signal issu de l'interaction entre le faisceau XUV et l'échantillon est constitué d'un miroir toroïdal recouvert d'or à 5° d'incidence, de réflectivité proche de 80% à 16,4 nm et 32,8 nm et de focale 33 cm, d'un réseau de diffraction en transmission (1000 traits/mm), et d'une caméra CCD XUV refroidie à -50°C .

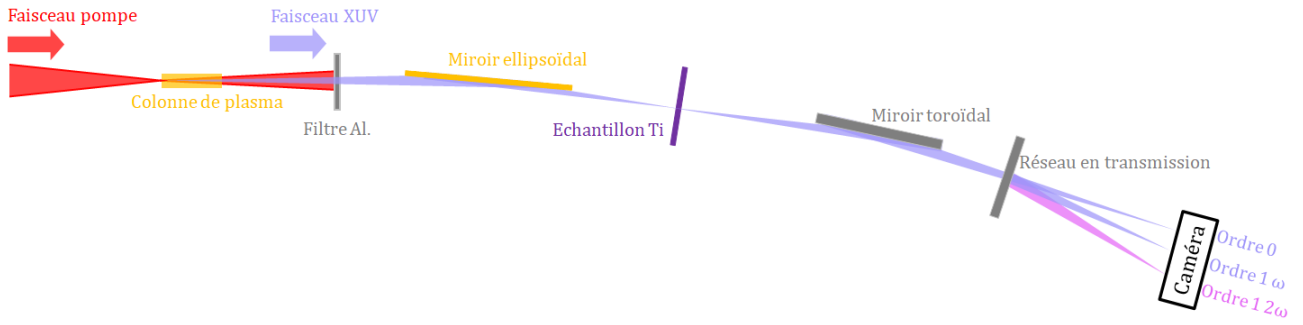


FIGURE F.3 – Schéma de l'expérience de génération de seconde harmonique : le laser à 32,8 nm est focalisé grâce à un miroir ellipsoïdal sur un échantillon de titane de 50 nm d'épaisseur. L'analyse du signal est ensuite permise par un spectromètre constitué d'un miroir toroïdal, d'un réseau de diffraction en transmission et d'une caméra CCD XUV.

La figure F.4 montre en (a) un spectre obtenu par l'accumulation de 250 tirs. Il est à noter que la fluence sur cible, estimée à $0,7 \pm 0,3 \text{ J} \cdot \text{cm}^{-2}$, dépasse le seuil de dommage de l'échantillon. Ce dernier a donc été déplacé entre chaque tir sur une zone non encore exposée. Sur ce spectre, on peut observer dans l'ordre ± 1 un fort signal à ω , et également distinguer un faible signal dont la position peut correspondre à celle attendue pour la seconde harmonique. L'hypothèse de la seconde harmonique est vérifiée en traçant en (b) l'énergie du signal supposé à 2ω en fonction du carré de l'énergie à ω . Le signal à 2ω évolue, comme attendu, linéairement avec le signal au carré à ω (i.e. quadratiquement avec le signal à ω). La pente de cette courbe donne une efficacité de conversion $\eta = 0,023 \pm 0,005$.

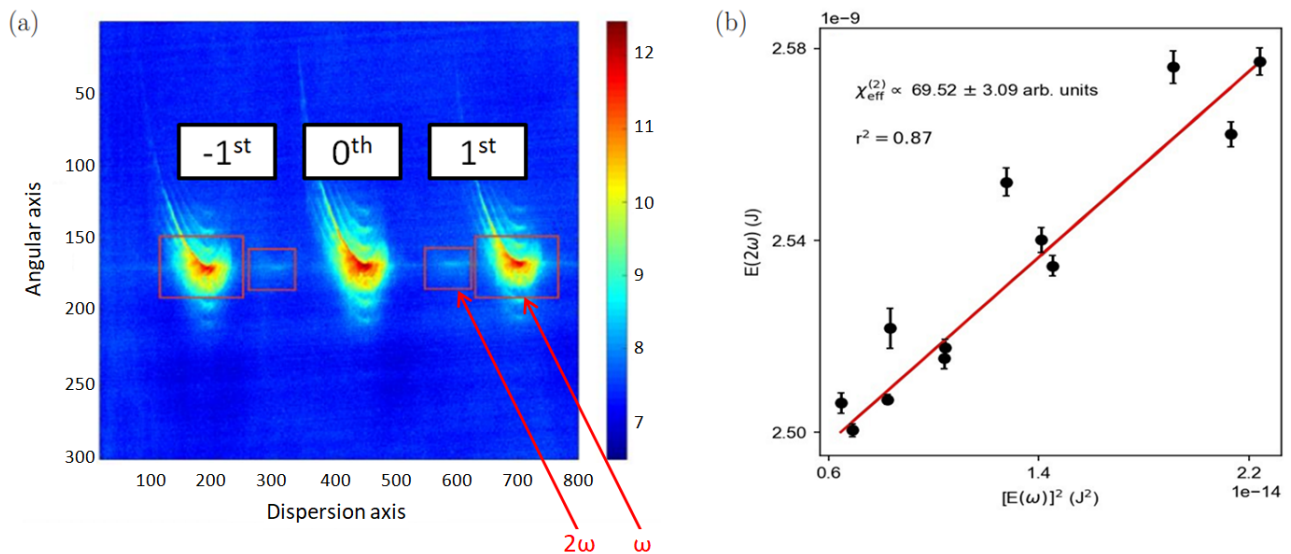


FIGURE F.4 – (a) Spectre obtenu en accumulant 250 tirs. (b) Énergie du signal à 2ω en fonction de l'énergie au carré du signal à ω .

La génération de seconde harmonique a ainsi pu être démontrée pour la première fois dans cette gamme spectrale avec une source laser XUV compacte d'une intensité de quelques $10^{11} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$. L'efficacité de conversion mesurée dépasse les 10^{-2} . Ces accomplissements ont récemment fait l'objet d'une publication [147], et offrent de nombreuses perspectives en spectroscopie, ainsi qu'en physique des matériaux. Soulignons que ces résultats ont été obtenus en début de thèse avec des impulsions XUV de 0,1 μJ et 1,3 ps RMS. Des résultats bien meilleurs peuvent être attendus avec l'amélioration des performances démontrée au cours de cette thèse : des impulsions contenant jusqu'à 2 μJ , et de durées descendant jusqu'à 350 fs RMS ont en effet été démontrées dans ce manuscrit, résultant en une amélioration de l'intensité d'un facteur 80 environ.

Annexe G

Liste des publications et communications

Publications

Publié : F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, [A. Kabacinski](#), S. Sebban, Two-Color Soft X-Ray Lasing in a High-Density Nickel-like Krypton Plasma, *Physical Review Letters*, Vol. 124, Iss. 13, 3 April 2020

Publié : [A. Kabacinski](#), F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, A. Tafzi, S. Sebban, Monitoring Shot-to-Shot Variations of Soft X-Ray Sources using Aluminum Foils, *Review of Scientific Instruments*, Vol.91, Iss.10, 8 October 2020

Publié : [A. Kabacinski](#), K. Oubrerie, J.-P. Goddet, J. Gautier, F. Tissandier, O. Kononenko, A. Tafzi, A. Leblanc, S. Sebban and C. Thauray, Measurement and Control of Main Spatio-Temporal Couplings in a CPA Laser Chain, *Journal of Optics*, Vol. 23, Nb 6, 26 April 2021

Publié : T. Helk, E. Berger, S. Jammuch, L. Hoffmann, [A. Kabacinski](#), J. Gautier, F. Tissandier, J. P. Goddet, H.-T. Chang, J.W. Oh, C. D. Pemmaraju, T. A. Pascal, S. Sebban, C. Spielmann and M. Zuerch, Table-top Nonlinear Extreme Ultraviolet Spectroscopy, *Science Advances*, Vol.7, Nb. 21, 19 May 2021

Publié : A. K. Pandey, O. Guilbaud, F. Sanson, I. Papagiannouli, [A. Kabacinski](#), F. Tissandier, F. Harms, G. Beaugrand, G. Dovillaire, E. Baynard, J. Demailly, B. Lucas, O. Neveu, M. Pittman, D. Ros, S. Sebban, P. Balcou, S. Kazamias, Single-shot wavefront characterization of high topological charge extreme-ultraviolet vortex, *Proc. International Conference on X-Ray Lasers 2020*, 8 July 2021

Publié : [A. Kabacinski](#), F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, I. Andriyash, P. Zeitoun, S. Sebban, E. Oliva, M. Kozlova, Femtosecond Soft X-Ray Lasing in Dense Collisionally-Pumped Plasma, *Physical Review Research*, Vol. 4, Iss. 3, 18 July 2022

Publié : [A. Kabacinski](#), E. Oliva, F. Tissandier, J. Gautier, M. Kozlova, J.-P. Goddet, I. Andriyash, C. Thauray, P. Zeitoun, S. Sebban, Spatio-Temporal Couplings for Controlling Group Velocity in Longitudinally Pumped Seeded Soft X-Ray Lasers, *Nature Photonics*, doi : 10.1038/s41566-023-01165-5, 2 March 2023

Publié, dans le cadre de l'enseignement du MODAL Holographie à l'Ecole Polytechnique : B. Douet, T. Tedoldi, [A. Kabacinski](#), A. Morana, G. Gallot and R. Bouganne, Digital micromirror device for holographic and Fourier optics applications, *The Emergent Scientist*, 6 August 2021

Communications orales

Conférence (orateur) : [A. Kabacinski](#), P. Dumont, J. Gautier, J.-P. Goddet, C. Thauray, F. Sylla, Measuring Spectral Focal Shift of Short Laser Pulse with DAZZLER Spectrum Shaping and INSIGHT Techniques, *GDR UP 2020*, 26 February 2020

Conférence : : A. K. Pandey, O. Guilbaud, F. Sanson, I. Papagiannouli, A. Kabacinski, F. Tissandier, F. Harms, G. Beaugrand, G. Dovillaire, E. Baynard, J. Demailly, B. Lucas, O. Neveu, M. Pittman, D. Ros, S. Sebban, Ph. Balcou, S. Kazamias, Extreme ultraviolet vortex, and vector-vortex beams, *International Conference on X-Ray Lasers 2020*, 8 December 2020

Conférence (orateur invité) : S. Sebban, A. Kabacinski, E. Oliva, F. Tissandier, J.-P. Goddet, A. Tafzi, F. Tuitje, T. Helk, C. Spielmann, M. Kozlova, M. Zuerch and J. Gautier, Progress on laser-driven soft X-ray lasers at LOA, *International Conference on X-Ray Lasers 2020*, 9 December 2020

Conférence : M. Zuerch, T. Helk, E. Berger, S. Jannuch, L. Hoffmann, A. Kabacinski, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, H.-T. Chang, J. Oh, C. D. Pemmaraju, T. Pascal, S. Sebban, C. Spielmann, Second Harmonic Generation using a seeded soft X-ray laser, *APS March Meeting 2021*, 15-19 March 2021

Conférence : : T. Helk, E. Berger, L. Hoffmann, A. Kabacinski, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, S. Sebban, C. Spielmann, M. Zuerch, Extreme Ultraviolet Second Harmonic Generation using a seeded soft X-ray laser, *CLEO*, June 2021

Conférence (orateur invité) : A. Kabacinski, J. Gautier, F. Tissandier, M. Kozlova, J.-P. Goddet, A. Tafzi, E. Oliva, F. Tuitje, T. Helk, C. Spielmann, M. Zuerch and S. Sebban, Recent progress on laser-driven soft X-ray lasers at LOA, *International Laser Physics Workshop LPHYS21*, 19-23 July 2021

Prix

Pierre Jaeglé Award 2020 (Best student oral presentation), *International Conference on X-Ray Lasers 2020*

Best student award, *ELI Summer School 2021*

Two-Color Soft X-Ray Lasing in a High-Density Nickel-like Krypton PlasmaF. Tissandier,^{*} J. Gautier, J.-P. Goddet, A. Kabacinski, and S. Sebban*Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA Paris, Ecole Polytechnique, CNRS, Institut Polytechnique de Paris, 828 Boulevard des Maréchaux, F-91761 Palaiseau cedex, France*J. Nejdli[✉] and M. Kozlová[✉]*ELI-Beamlines project, Institute of Physics of the Czech Academy of Science, Na Slovance 2, 182 21 Prague 8, Czech Republic*

G. Maynard

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, Université Paris Sud, CNRS, Université Paris Saclay, F-91405 Orsay Cedex, France

(Received 20 December 2019; revised manuscript received 25 February 2020; accepted 12 March 2020; published 1 April 2020)

We report evidence of strong lasing on the $4p-4s$ transition at 62.7 nm in nickel-like krypton occurring simultaneously with the usual $4d-4p$ lasing at 32.8 nm. The gain dynamics of both transitions were experimentally and numerically investigated and found comparable. The two-color amplifier was seeded by the same harmonic pulse, therefore producing a short-duration coherent two-color soft x-ray laser pulse. Both transitions offer similar prospects of pulse energy and duration and could lead to the delivery of intense and ultrashort two-color coherent soft x-ray pulses with a controllable delay.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.124.133902](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.133902)

Ultrashort and coherent hard or soft x-ray sources are invaluable tools to probe ultrafast dynamics of the matter on the nanometer scale and have many applications in physics, chemistry, and biology. They extended nonlinear optics into the x-ray domain and provided a basis for many time-resolved experimental schemes. In particular, the chemical selectivity provided by tuning the excitation wavelength to a core electron resonance has been widely used. The ability to operate these sources in a two-color configuration, i.e., to generate two synchronized or delayed pulses of different wavelength, plays a key role in the further development of pump-probe techniques. It has a huge potential for time-resolved studies of x-ray-induced phenomena in atomic, molecular, or condensed state systems, and provides methods for techniques such as multiwavelength x-ray diffraction. A large wavelength separation can also be beneficial to x-ray diffraction of nanocrystals or single particles to discriminate diffracted x rays of the pump and probe pulse.

As a consequence, there has been tremendous effort in research and development at free-electron laser facilities worldwide toward two-color generation schemes [1–3], and successful soft x-ray time-resolved magnetic scattering experiments have recently been performed [4,5]. Soft x-ray free-electron lasers undoubtedly offer unrivaled performances but suffer from tremendous costs and limited access [6]. On the other hand, laboratory-sized seeded plasma-based soft x-ray lasers are compact, display impressive optical properties [7–9], and provide photon-rich pulses [10] (up to 10^{15}) within a few hundreds femtosecond [11] as well as circular polarization capabilities [12].

Adapted engineering offers promising perspectives for pulse energy [13] and duration [14], but their efficient operation is, so far, limited to a single wavelength.

The amplifying medium of these lasers is a hot plasma of multicharged ions created by the interaction of an intense laser pulse with solid or gas targets. Hot electrons transfer energy to the ions via collisions and allow a population inversion between excited ionic states to take place. This permits a strong amplification of spontaneous emission (ASE) generating pulses with a high temporal coherence. This so-called collisional pumping scheme [15] has been proven to be efficient with ionic species resistant to collisional ionization, which is the main emitter-depleting process. Such species include neon, palladium, and nickel-like ions, the latter being the most promising to generate gain at shorter wavelengths [16–18] down to 3.5 nm [19]. In Ni-like ions, the largest population inversion takes place between the $3d^9 4d$ (1S_0) and $3d^9 4p$ (1P_1) levels. A simultaneous and much weaker lasing effect has also been observed on a neighboring wavelength [20], most likely coming from another $4d(J=0)-4p(J=1)$ transition [21].

In addition, the self-photopumped $4f(^1P_1) - 4d(^1P_1)$ lasing transition has been predicted and achieved in several Ni-like ions [22]. In this scheme, radiation trapping allows a large radiation field to build up on the $3d^{10}(^1S_0) - 3d^9 4f(^1P_1)$ resonance line and populate the $4f$ upper lasing level by photopumping [23].

In this Letter we report the first amplification of the $3d^9 4p(^1P_1) - 3d^9 4s(^1D_2)$ transition of Ni-like Kr ions [24] at 62.7 nm (see Fig. 1, inset) and consequent dual-wavelength soft x-ray lasing. The upper level is populated by

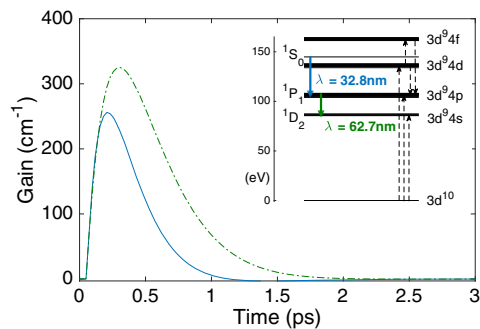


FIG. 1. Calculated gain of the Kr IX $4p-4s$ and $4d-4p$ transitions for a Kr density of 10^{19} cm^{-3} . Inset: Kr IX levels and lasing transitions.

collisions from the ground state by electrons with an energy around 110 eV, and from excited states. Contrary to the conventional collisional scheme [25], the lower level cannot radiatively relax to the ground state. However, it is quickly depleted thanks to collisional processes that are strongly dominant over radiative processes. In high-density plasmas, collisional processes are actually also responsible for emptying the lower level in the $4d-4p$ lasing scheme at 32.8 nm since the radiative lifetime of the $4p$ level (10 ps) is much longer than the collisional timescale (< 1 ps). Finally, it is worth noting that the $3d^9 4p$ (1P_1) state is involved in both transitions, suggesting both lasing effects occur at least partially as a cascade process.

We modeled the two-color amplifier using a time-dependent collisional-radiative code [26]. It computes the optical-field ionization of krypton and following plasma kinetics taking into account 93 levels of the Kr IX ion up to the $3d^9 6s$ excited states. Figure 1 shows the calculation of the gain coefficients of both lasing transitions for a pump intensity of 10^{17} W/cm^2 and a neutral Kr density of 10^{19} cm^{-3} . The $4d-4p$ gain peaks at 260 cm^{-1} and lasts about 500 fs, while the $4p-4s$ gain peaks at 330 cm^{-1} and lasts about 800 fs. The collisional excitation effective cross section from the ground state to the $4s$ levels is one order of magnitude (around 10^{18} cm^{-2}) lower than to the $4p$ and $4d$ levels (around 10^{19} cm^{-2}) for electron energies of a few hundreds eV, while populating from the excited levels does not get effective until the overall number of lasing ions is negligible. As a consequence, the $4s$ population stays lower than that of higher excited states, mechanically increasing the $4p-4s$ gain. Finally, we calculated that the saturation intensity for the $4d-4p$ amplification is about $6 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$ while that of the $4p-4s$ is only $1 \times 10^9 \text{ W/cm}^2$.

The soft x-ray amplifier is created experimentally by focusing a circularly polarized 1.4 J, 30 fs Ti:sapphire pump laser pulse into a few-millimeter-long krypton gas jet. The Kr atoms are ionized up to the Ni-like stage [25,27] and the circular polarization allows electron heating by above-threshold ionization [28]. To overcome the strong refraction of the pump beam by the plasma, an optically

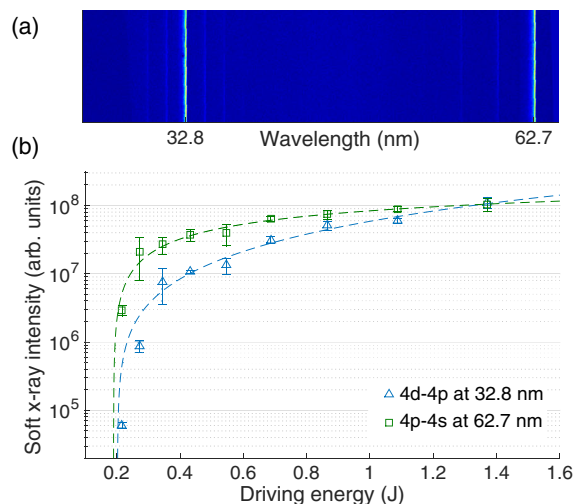


FIG. 2. (a) Raw end-on spectrum of the Ni-like Kr amplifier pumped by a 0.6 J pulse. The satellite lines come from diffraction by the mesh supporting the grating. (b) Variations of the 32.8 and 62.7 nm emissions with the pump energy. Each measurement results from an average over 5 shots. The dashed curves are fits by a power function.

preformed plasma waveguide was implemented [29,30]. It is created by focusing a 100 mJ, 30 fs “ignitor” pulse followed by a 700 mJ, 600 ps “heater” pulse using an axicon lens. After hydrodynamic expansion of the plasma, the electron density profile is suitable to guide the pump beam [31]. The amplifier electron density typically ranges from a few 10^{19} cm^{-3} to 10^{20} cm^{-3} . It can be seeded with a resonant high-order harmonic (HOH) to improve the spatial characteristics of the beam. More details on the experimental setup can be found in Ref. [11].

Figure 2(a) shows the raw on-axis spectrum of a 3-mm-long Ni-like Kr plasma column pumped by a 0.6 J infrared pulse. Both soft x-ray lines can be observed at a comparable intensity. Figure 2(b) displays a simultaneous measurement of the intensity of both lines as a function of driving pulse energy. The data take into account the spectral efficiency of the spectrometer. No lasing effect was observed for a driving energy lower than 0.2 J. As expected in the collisional scheme, both emissions increase smoothly when we increase the driving energy. This is mostly due to a larger Ni-like Kr column and an overall higher number of lasing ions.

Also noticeable is the sharp rise of the $4p-4s$ emission followed by a slow increase, while the $4d-4p$ emission rises less steeply but still seems to increase at maximum driving energy. This behavior is in good agreement with the relative higher gain and lower saturation intensity of the $4p-4s$ amplification discussed earlier. For low pump energies, the Ni-like Kr plasma is indeed expected to be shorter, and therefore the $4d-4p$ amplification less saturated. At maximum pump energy, the intensity of both lines becomes similar.

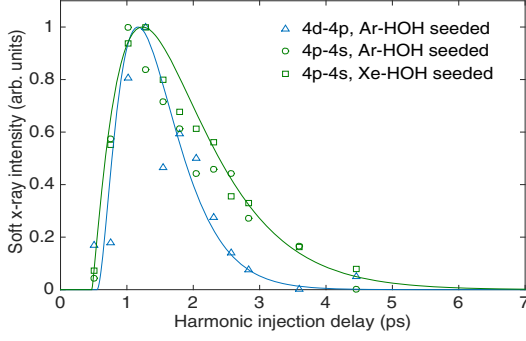


FIG. 3. Gain dynamics of the $4d-4p$ and $4p-4s$ laser transitions: intensity of both seeded lines while scanning the seeding delay. The electron density was $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

We investigated the amplifier temporal dynamics by seeding it with a high-order harmonic radiation. A 30 mJ, 30 fs Ti:sapphire pulse is focused into a 5-mm-long gas cell filled with xenon or argon, and the generated HOH beam is relayed into the main amplifier using a grazing-incidence toroidal mirror. The 13th and 25th harmonics can be, respectively, tuned to the 62.7 and 32.8 nm transitions by chirping and spectrally clipping the driver pulse.

The amplifier electron density for these measurement was $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ and the gas jet length 5 mm. The 13th harmonic was generated in xenon, and since the 25th harmonic was beyond the generation cutoff, only the 62.7 nm transition was seeded. The 62.7 nm signal intensity was plotted in Fig. 3 (square markers) as a function of the delay between the creation of the amplifier and the injection of the HOH pulse. Since both lasing transitions share the $4p$ state, seeding the $4p-4s$ transition could increase the $4d-4p$ ASE level by desaturating the gain. We simultaneously monitored the 32 nm signal but cannot firmly conclude that there is a correlation.

Argon is usually efficient at generating HOH within the 20–40 nm range. However, when the 25th harmonic generated in argon was tuned to 32.8 nm, the 13th harmonic was broad and intense enough to seed the $4p-4s$ transition as well. The simultaneous probing of the gain dynamics at 32.8 and 62.7 nm (round markers) by HOH generated in argon are also displayed in Fig. 3. Because of stability issues, the data points of each set represent the maximum intensity measured over 4 consecutive shots. The data were fitted by a gamma density function whose shape is similar to that of the calculated gain displayed in Fig. 1. The three curves have also been normalized with respect to each other to simplify the comparison. There is no significant difference between the dynamics of the 62.7 nm gain whether the 32.8 nm transition is seeded (HOH in Ar) or not (HOH in Xe). Both datasets were therefore fitted by the same curve. We can see from the fitted curves that the 62.7 nm gain is longer (1.7 ps FWHM) than the 32.8 nm gain (1 ps FWHM). This is in good agreement with the calculation shown in Fig. 1. However, the calculated gains are about

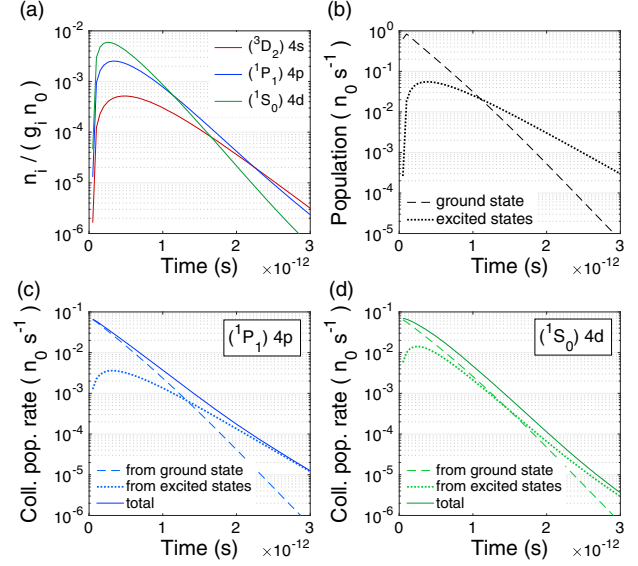


FIG. 4. Collisional-radiative calculations for an initial krypton density of $n_0 = 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ of the different populations of (a) all involved energy levels in the lasing transitions and (b) ground state and sum of all the excited states. Panels (c) and (d) show the contributions of ground state and excited states in the collisional population rate of the involved $4p$ and $4d$ levels, respectively.

twice as short as our measurements. This may be due to substantial lasing in lower-density regions of the amplifier. Despite this discrepancy, the relative variations are well modeled.

We also numerically investigated the gain duration of both transitions. Figure 4(a) shows a calculation of the population evolution of the involved $4d$, $4p$, and $4s$ levels. We see that the 32.8 nm gain completely vanishes after 1.1 ps while the 62.7 nm gain vanishes after about twice that time. It is interesting to compare it to Fig. 4(b) showing the evolution of the ground state population as well as that of all the excited states. As expected, both curves show a global decrease due to depleting of the Kr^{8+} ions by collisional ionization. The ground state is depleted faster due to thermalization of the plasma. It can also be noticed that after 1.1 ps there are more ions in an excited state than in the ground state. Figures 4(c) and 4(d) provide more details by showing the collisional population rates $\sum_{j \neq i} C_{ji} n_j n_e$ for the involved $4p$ and $4d$ levels. C_{ji} represents the collisional transition rate calculated by averaging the collisional effective cross section between the i and j levels over the electron velocity distribution of the plasma. Since the $4p$ and $4d$ levels have a very close energy (110 and 145 eV, respectively) and the electron distribution tends to thermalize quickly, they both exhibit identical populating rate from the ground state. Also, from Fig. 4(d) we see that the contributions of the ground state and excited states to transitions to the $4d$ level are very similar. Even after 1.1 ps, when the latter get more abundant, the decay of $4d$ population is steady. It means

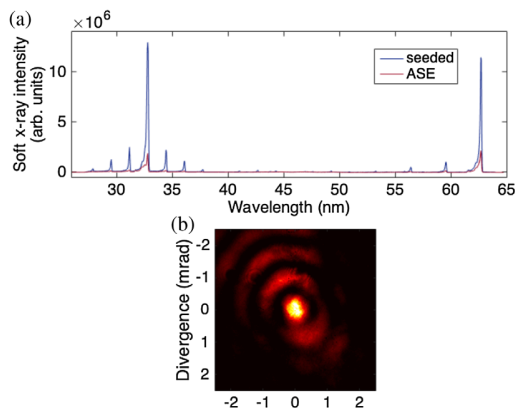


FIG. 5. (a) Spectrum of the two-color ASE and seeded emission and (b) far-field profile of the beam in identical conditions.

that transitions from the excited states to the $4d$ level are not favored. On the contrary, we can see in Fig. 4(c) that after 1.1 ps, transitions from excited states are much more efficient at populating the $4p$ level, thus slowing the decay of $4p$ population.

Because of thermalization of the plasma, the fraction of excited Kr IX ions increases over time. As a consequence, on average the $4p$ level stays populated longer than the $4d$. In addition, the $4p$ level is also populated by lasing down from the $4d$ level. Both mechanisms are the reason why the $4p$ - $4s$ population inversion lasts longer. The lower-energy $4s$ level follows the same tendency. However, there are not many lasing ions left in the plasma at that point.

Finally, in Fig. 5(a) is displayed the spectrum of the two-color seeded emission, using HOH generated in argon. The experimental conditions were that of Fig. 2. We tuned the harmonic spectrum to produce a similar intensity on both lines. In Fig. 5(b) is shown the footprint of the corresponding seeded laser beam, recorded using an on-axis soft x-ray CCD camera. Thanks to spatial filtering of the seed by the amplifier gain, it is very narrowly collimated with a divergence of less than 1 mrad and exhibits a symmetric shape. According to previous work, a full spatial coherence [20,32] and diffraction-limited wave front [7] are expected. The presence of several rings around the central spot is the consequence of an overionized volume at the entrance of the plasma due to a high pump intensity [33]. This volume does not exhibit gain and its relative weight is increased by the short gas jet length (3 mm). The shape of the amplifier is expected to be closer to a tube, generating such kind of Bessel-like far-field profile. In different conditions, a Gaussian-like beam can be produced as well. Calibrating using the two-color beam footprint shown in Fig. 5(b), we can estimate a pulse energy of more than $0.3 \mu\text{J}$ with a similar contribution from both wavelengths. The experimental conditions were however not optimized for a maximum energy output. Using a 5-mm-long amplifier and seeding it with the 13th harmonic generated in xenon,

we measured a total pulse energy of $0.5 \mu\text{J}$ at 62.7 nm and an amplification factor (ratio between the seeded beam intensity and the seed, within the amplifier bandwidth) of 1000, therefore very similar to what can be obtained at 32.8 nm in optimal conditions [11].

In conclusion, we have observed for the first time a strong lasing effect at 62.7 nm on the $4p(J=1)$ - $4s(J=2)$ transition of Ni-like Kr ions. As for the well-documented $4d(J=0)$ - $4p(J=1)$ transition at 32.8 nm, the population inversion is pumped by collisions with hot electrons, and both lasing effects occur concurrently. Lasing on this transition is enabled by the fast collisional processes depleting the lower level. For that reason, it should occur as well on transient-pumping Ni-like soft x-ray amplifiers. However, since the transition wavelength is about twice that of the $4d$ - $4p$ transition, there are strong requirements on the spectral bandwidth of the detection system such as a large spectrometer sensor, or adequate metallic filters to allow detection of both lines. The $4p$ - $4s$ line can also easily be confused with the second diffraction order of the $4d$ - $4p$ line, although the diffraction pattern of the grating support structure [satellite lines in the spectrum in Fig. 5(a)] is a clear evidence of the 62.7 nm line.

We studied the gain dynamics of this new soft x-ray lasing transition by seeding it with a high-order harmonic and found out that it was very similar, although slightly longer, to that of the usual 32.8 nm transition. This was supported by numerical calculations. We were also able to assess that the 62.7 nm seed was amplified by a factor of about 1000. In light of these measurements, the 62.7 nm transition should definitely allow generation of subpicosecond, multimicrojoule level pulses provided adequate plasma density tailoring and seed optimization.

Finally, we seeded both 32.8 and 62.7 nm transitions simultaneously with the same high-order harmonic pulse. Fine-tuning of the harmonic spectrum allowed generation of a similar intensity on both wavelengths. The output radiation is likely the first two-color coherent and ultrashort soft x-ray laser pulse generated in a plasma amplifier. The potentials of both transitions are comparable in terms of gain duration or pulse energy and could lead to the production of a laboratory-scale plasma-based intense two-color coherent soft x-ray laser source. While optimization of both wavelength radiations is limited when seeding with the same pulse, using two different seed pulses could further enhance the overall number of photons, as well as enable adjustment of the two color's relative intensities. It would also allow us to control the delay between the two wavelengths and therefore open new prospects of using this source for two-color pump-probe experiments.

J. N. and M. K. acknowledge the support from project LQ1606 of the Czech Ministry of Education, Youth and Sports and project ADONIS (CZ.02.1.01/0.0/0.0/16_019/0000789) from European Regional Development Fund.

This work was supported by Grant Agency of the Czech Republic Project No. 18-27340S. This work is supported by “Investissements d’Avenir” Labex PALM (ANR-10-LABX-0039-PALM) and has received funding from the European Union’s Horizon 2020 research and innovation program under Grant Agreement No. 654148 Laserlab-Europe.

*fabien.tissandier@ensta-paris.fr


- [1] A. A. Lutman, R. Coffee, Y. Ding, Z. Huang, J. Krzywinski, T. Maxwell, M. Messerschmidt, and H.-D. Nuhn, Experimental Demonstration of Femtosecond Two-Color X-Ray Free-Electron Lasers, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 134801 (2013).
- [2] E. Allaria *et al.*, Two-colour pump-probe experiments with a twin-pulse-seed extreme ultraviolet free-electron laser, *Nat. Commun.* **4**, 2476 (2013).
- [3] T. Hara, Y. Inubushi, T. Katayama, T. Sato, H. Tanaka, T. Tanaka, T. Togashi, K. Togawa, K. Tono, M. Yabashi, and T. Ishikawa, Two-colour hard x-ray free-electron laser with wide tunability, *Nat. Commun.* **4**, 2919 (2013).
- [4] E. Ferrari *et al.*, Widely tunable two-colour seeded free-electron laser source for resonant-pump resonant-probe magnetic scattering, *Nat. Commun.* **7**, 10343 (2016).
- [5] E. Ferrari *et al.*, Element selective probe of the ultra-fast magnetic response to an element selective excitation in Fe-Ni compounds using a two-color FEL source, *Photonics* **4**, 6 (2017).
- [6] B. W. J. McNeil and N. R. Thompson, X-ray free-electron lasers, *Nat. Photonics* **4**, 814 (2010).
- [7] J.-P. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, P. Zeitoun, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, M. Ribière, D. Douillet, T. Lefrou, G. Iaquaniello, F. Burgy, G. Maynard, B. Cros, B. Robillard, T. Mocek, J. Nejd, M. Kozlova, and K. Jakubczak, Aberration-free laser beam in the soft x-ray range, *Opt. Lett.* **34**, 2438 (2009).
- [8] M. Berrill, D. Alessi, Y. Wang, S. R. Domingue, D. H. Martz, B. M. Luther, Y. Liu, and J. J. Rocca, Improved beam characteristics of solid-target soft x-ray laser amplifiers by injection seeding with high harmonic pulses, *Opt. Lett.* **35**, 2317 (2010).
- [9] L. Li, Y. Wang, S. Wang, E. Oliva, L. Yin, T. T. T. Le, S. Daboussi, D. Ros, G. Maynard, S. Sebban, B. Hu, J. J. Rocca, and P. Zeitoun, Wavefront improvement in an injection-seeded soft x-ray laser based on a solid-target plasma amplifier, *Opt. Lett.* **38**, 4011 (2013).
- [10] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux, and D. Phalippou, Multi-millijoule, highly coherent x-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification, *Phys. Rev. A* **66**, 063806 (2002).
- [11] A. Depresseux *et al.*, Table-top femtosecond soft x-ray laser by collisional ionization gating, *Nat. Photonics* **9**, 817 (2015).
- [12] A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, G. Lambert, B. Vodungbo, J.-P. Goddet, A. Tafzi, J. Nejd, M. Kozlova, G. Maynard, H. T. Kim, K. Ta Phuoc, A. Rousse, P. Zeitoun, and S. Sebban, Demonstration of a Circularly Polarized Plasma-Based Soft-X-Ray Laser, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 083901 (2015).
- [13] E. Oliva, M. Fajardo, L. Li, M. Pittman, T. T. T. Le, J. Gautier, G. Lambert, P. Velarde, D. Ros, S. Sebban, and Ph. Zeitoun, A proposal for multi-tens of GW fully coherent femtosecond soft x-ray lasers, *Nat. Photonics* **6**, 764 (2012).
- [14] O. Larroche and A. Klisnick, Two-dimensional Maxwell-Bloch simulation of quasi- π -pulse amplification in a seeded XUV laser, *Phys. Rev. A* **88**, 033815 (2013).
- [15] A. V. Vinogradov and V. N. Shlyaptsev, Amplification of ultraviolet radiation in a laser plasma, *Sov. J. Quantum Electron.* **13**, 1511 (1983).
- [16] D. Alessi, Y. Wang, B. M. Luther, L. Yin, D. H. Martz, M. R. Woolston, Y. Liu, M. Berrill, and J. J. Rocca, Efficient Excitation of Gain-Saturated Sub-9-nm-Wavelength Tabletop Soft-X-Ray Lasers and Lasing Down to 7.36 nm, *Phys. Rev. X* **1**, 021023 (2011).
- [17] B. A. Reagan, M. Berrill, K. A. Wernsing, C. Baumgarten, M. Woolston, and J. J. Rocca, High-average-power, 100-Hz-repetition-rate, tabletop soft-x-ray lasers at sub-15-nm wavelengths, *Phys. Rev. A* **89**, 053820 (2014).
- [18] A. Rockwood, Y. Wang, S. Wang, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, and J. J. Rocca, Compact gain-saturated x-ray lasers down to 6.85 nm and amplification down to 5.85 nm, *Optica* **5**, 257 (2018).
- [19] B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. J. Fields, C. J. Keane, J. A. Koch, R. A. London, D. L. Matthews, S. Maxon, S. Mrowka, A. L. Osterheld, J. H. Scofield, G. Shimkaveg, J. E. Trebes, and R. S. Walling, Short wavelength x-ray laser research at the Lawrence Livermore National Laboratory, *Phys. Fluids B* **4**, 2326 (1992).
- [20] Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, High-Brightness Injection-Seeded Soft-X-Ray-Laser Amplifier Using a Solid Target, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 123901 (2006).
- [21] E. P. Ivanova, Wavelengths of the $4d-4p$, 0–1 transitions of x-ray lasers in Ni-like ions with $Z \leq 79$, *Opt. Spectrosc.* **118**, 506 (2015).
- [22] J. Nilsen, J. Dunn, A. L. Osterheld, and Y. Li, Lasing on the self-photopumped nickel-like $4f^1P_1 \rightarrow 4d^1P_1$ x-ray transition, *Phys. Rev. A* **60**, R2677 (1999).
- [23] L. Masoudnia, M. Ruiz-Lopez, and D. Bleiner, Table-top two-color soft x-ray laser by means of Ni-like plasmas, *Phys. Plasmas* **23**, 043108 (2016).
- [24] S. S. Churilov, A. N. Ryabtsev, and J.-F. Wyart, Analysis of the 4–4 transitions in the Ni-like Kr IX spectrum, *Phys. Scr.* **71**, 457 (2005).
- [25] B. E. Lemoff, C. P. J. Barty, and S. E. Harris, Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-times-ionized noble gases, *Opt. Lett.* **19**, 569 (1994).
- [26] B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban, and G. Maynard, Characterization of the collisionally pumped optical-field-ionized soft-x-ray laser at 41.8 nm driven in capillary tubes, *Phys. Rev. A* **73**, 033801 (2006).
- [27] S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, Ph. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau,

- L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin, Demonstration of a Ni-like Kr Optical-Field-Ionization Collisional Soft X-Ray Laser at 32.8 nm, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 253901 (2002).
- [28] S. Sebban, L. M. Upcraft, P. Balcou, M. Pittman, R. Haroutunian, G. Grillon, C. Valentin, A. Rousse, J.-P. Rousseau, L. Notebaert, D. Hulin, T. Mocek, B. Rus, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, and G. Jamelot, Investigations of collisionally pumped optical field ionization soft-x-ray lasers, *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 195 (2003).
- [29] Y.-F. Xiao, H.-H. Chu, H.-E. Tsai, C.-H. Lee, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen, Efficient generation of extended plasma waveguides with the axicon ignitor-heater scheme, *Phys. Plasmas* **11**, L21 (2004).
- [30] M.-C. Chou, P.-H. Lin, C.-A. Lin, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen, Dramatic Enhancement of Optical-Field-Ionization Collisional-Excitation X-Ray Lasing by an Optically Preformed Plasma Waveguide, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 063904 (2007).
- [31] E. Oliva, A. Depresseux, M. Cotelo, A. Lifschitz, F. Tissandier, J. Gautier, G. Maynard, P. Velarde, and S. Sebban, Hydrodynamic evolution of plasma waveguides for soft-x-ray amplifiers, *Phys. Rev. E* **97**, 023203 (2018).
- [32] J.-P. Goddet, S. Sebban, A. S. Morlens, J. Gautier, J.-P. Rousseau, F. Burgy, P. Zeitoun, C. Valentin, C. Hauri, G. Maynard, A. Boudaa, J. P. Caumes, H. Merdji, T. Mocek, M. Kozlova, and K. Jakubczak, Demonstration of a spatial filtering amplifier for high-order harmonics, *Opt. Lett.* **32**, 1498 (2007).
- [33] F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribière, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, J.-P. Goddet, F. Burgy, C. Valentin, A. Rousse, J. Nejdil, T. Mocek, and G. Maynard, Bessel spatial profile of a soft x-ray laser beam, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 231106 (2010).

Monitoring shot-to-shot variations of soft x-ray sources using aluminum foils

Cite as: Rev. Sci. Instrum. 91, 103001 (2020); doi: 10.1063/5.0021999
Submitted: 16 July 2020 • Accepted: 26 September 2020 •
Published Online: 8 October 2020



Adeline Kabacinski,^{a)}  Fabien Tissandier, Julien Gautier, Jean-Philippe Goddet, Amar Tafzi,
and Stéphane Sebban

AFFILIATIONS

Laboratoire D'Optique Appliquée, ENSTA-Paristech, CNRS, Ecole Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 Bv des
Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

^{a)} Author to whom correspondence should be addressed: adeline.kabacinski@ensta-paris.fr

ABSTRACT

We report a straightforward beam splitter in the soft x-ray spectral range using a thin oxidized aluminum foil. As it allows us to monitor reliably shot-to-shot variations in energy and in energy distribution, this beam splitter is of high interest for the simultaneous use of diagnostics for soft x-rays sources. We measure a transmission of 0.5 and a reflectivity of 0.018 at 22.5° of incidence with a soft x-ray laser working at 32.8 nm. These values are in good agreement with the theory. As the theory predicts a reflectivity and a transmission of both 12% at 52.5° of incidence for 32.8 nm, it can also be useful for experiments that require the division and recombination of a beam, for instance, interferometry or pump-probe technique with an intense soft x-ray source.

Published under license by AIP Publishing. <https://doi.org/10.1063/5.0021999>

I. INTRODUCTION

Soft x-ray radiation have many applications in a wide scope of domains and led to significant breakthroughs as well in biology, in chemistry, and in material sciences. Indeed, the short wavelength of this radiation confers it the status of an invaluable tool to probe ultrafast dynamics of matter at nanometer spatial resolutions. In this spectral range, systems for the beam splitting are crucial, both for having the light available simultaneously to several users of the radiation from a Free Electron Laser and for implementing simultaneous diagnostics of the source to monitor shot-to-shot variations of the source.^{1,2} Beam splitting using reflective gratings have been proposed³ and even successfully implemented in soft x-ray interferometers.^{4,5} Unfortunately, they are not well suited to ultrashort radiations since they cause stretching of the diffracted orders. Therefore, this technique requires time-compensated configurations.⁶ Optical multilayers have also been tested as beam splitters. They consist of nanoscale bilayers that act as artificial Bragg-reflecting crystals.^{7,8} They are highly reflective but very narrowband.

In this letter, we report a straightforward monitoring of a soft x-ray beam using a naturally oxidized 0.15 μm -thick aluminum foil at 22.5° near-normal incidence as a beamsplitter. The measured transmission of this foil is 0.5, while its measured reflectivity around 0.02

at this angle is in good agreement with theory. This technique is of high interest since it allows shot-to-shot or accumulative monitoring of soft x-ray beam energy profile and pointing in the 20 nm–50 nm range.

II. EXPERIMENTAL SETUP

The experiment was carried out using a laser-driven S-polarized seeded soft x-ray laser (SXRL) source. An optical-field-ionized Ni-like Kr soft x-ray amplifier at a wavelength of 32.8 nm^{9,10} is obtained by focusing a 1.4 J, 30 fs Ti:Sapphire laser pulse into a 10 mm-long gas jet of Krypton. To overcome the strong refraction of the pump beam by the plasma, an optically preformed plasma waveguide is implemented using a 700 mJ, 600 ps pulse focused by an axicon over the whole gas length.^{11,12} The spatial characteristics of the Soft X-Ray Laser (SXRL) are improved by seeding the amplifier with a high-order harmonic beam¹³ generated by focusing a third infrared ultrashort pulse in an argon-filled cell.¹⁴

After generation of the SXRL beam, the residual infrared radiation is blocked by two 0.45 μm -thick aluminum filters with a total measured transmission of a few percents at 32.8 nm. The SXRL beam is then beamsplitted by a mirror-like aluminum foil of thickness 0.15 μm at 22.5° near-normal incidence. This foil is covered

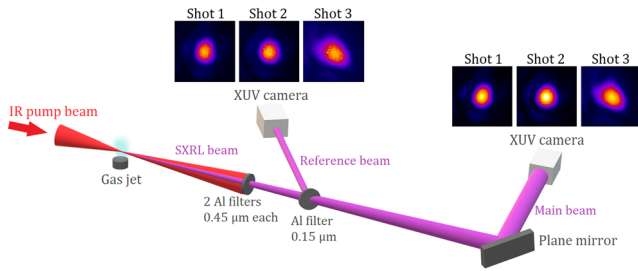


FIG. 1. Setup of the experiment: after the generation of the SXRL beam, the infrared radiation is blocked by two $0.45\ \mu\text{m}$ -thick aluminum filters. The SXRL beam is then beamsplit by an aluminum foil of thickness $0.15\ \mu\text{m}$ at 22.5° near-normal incidence. The spatial profile of the reference beam is recorded by reflection with a XUV camera. The spatial profile of the main beam is recorded by transmission with a XUV camera after a plane mirror at 45° of incidence.

by a thin natural oxidation layer of thickness expected to be lower than 15 nm. Indeed, there seems to be a natural limit to the oxide growth at about this thickness except under extreme conditions.¹⁵ This oxidation layer degrades the transmission from almost 70% to a measured value of 50%. The reflected part of the beam, henceforth called reference, is recorded using a soft x-ray CCD camera. The main, transmitted, part of the beam is recorded by a similar soft x-ray CCD camera after a 20% reflectivity multilayer plane mirror at 45° incidence. This mirror is removable and usually used to free the passage to other experiments. The setup is shown in Fig. 1.

III. ALUMINUM FOIL PERFORMANCE AS A BEAM SPLITTER

A. Shot-to-shot monitoring

Figure 1 also illustrates spatial profiles obtained on both paths on, respectively, the same shots. They exhibit a strong shot-to-shot

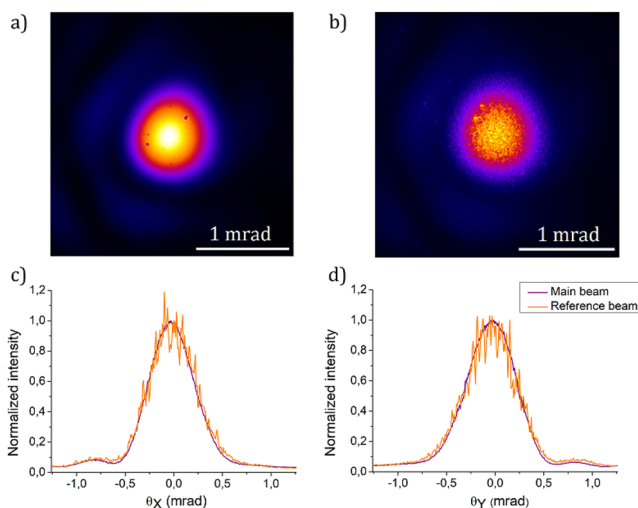


FIG. 2. Spatial profiles of the same shot of the SXRL obtained on (a) the main beam and (b) the reference (reflected) beam and their respective cross sections in (c) X and (d) Y.

resemblance, also highlighted by Fig. 2, which displays spatial profiles of the same shot of the SXRL obtained on both paths and their respective cross sections in the X (horizontal) and Y (vertical) directions. Considering the fit of the reference cross section with the main beam cross section in a given direction, we measure a coefficient of determination R^2 of 0.974 in X and 0.983 in Y. The reflected beam profile is grainier than the transmitted one. However, the general shape of the beam is preserved.

We were also able to reliably monitor shot-to-shot variations of the absolute energy and its spatial distribution. Figure 3(a) displays the shot-to-shot integrated energies in terms of number of counts obtained on the reference and the main paths, measured over a surface defined by the FWHM criterion. As the beam propagates longer in the case of the main beam, the integrated energies were calculated on a surface proportional to the distance between the source and the given XUV camera. Considering the normalized shot-to-shot ratio of the integrated energy measured on the reference path over the one measured on the main path, we obtain a mean of 0.90 and a standard deviation of 0.05 on a statistics of 20 shots. The divergence of the SXRL beam and the beam pointing are also conserved. On a statistics of 20 shots, we measure at $1/e^2$ an average divergence of $1.25 \times 1.32\ \text{mrad}^2$ for the main beam and an average divergence of

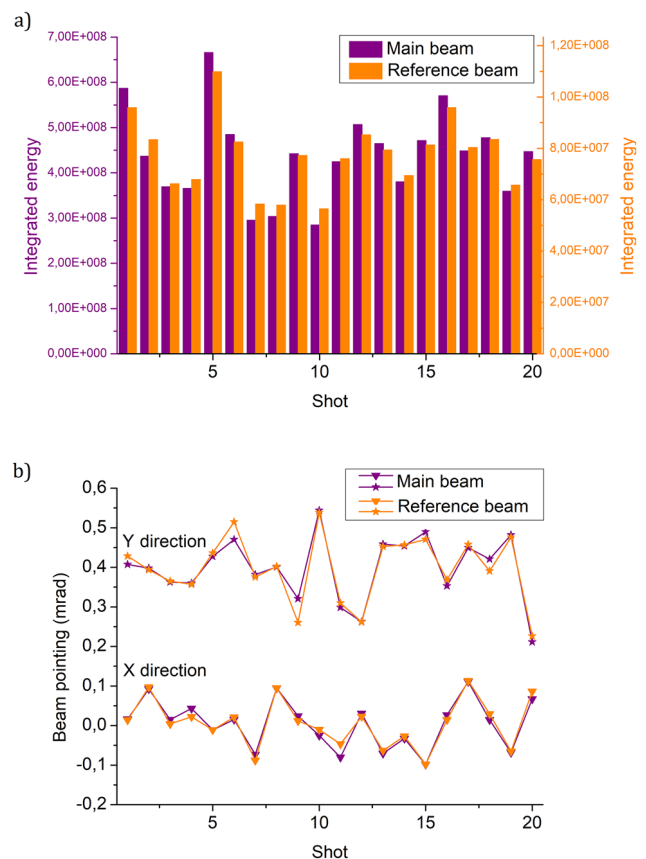


FIG. 3. On a statistics of 20 shots, (a) integrated energies in number of counts obtained on equivalent surfaces, and (b) beam pointing in X and Y directions. For the sake of readability, the pointing in Y has been increased by 0.4. Purple stands for the main beam, and orange stands for the reference beam.

$1.23 \times 1.27 \text{ mrad}^2$ for the reference beam. The beam divergence stability amounts to 20.2% of the mean divergence on the main path and 20.8% of the mean divergence on the reference path. Figure 3(b) illustrates the shot-to-shot beam pointings in, respectively, X and Y directions. For the sake of readability, the pointing in Y has been increased by 0.4. Purple stands for the main beam as orange stands for the reference beam. The beam pointing was evaluated considering the position in X and Y of the center of mass of a given shot with respect to the mean center of mass.

The SXRL shot-to-shot stability depends on many parameters, among which are the shot-to-shot stability of the infrared pump laser in energy and in beam pointing. Indeed, the instability of the pump laser energy, estimated to be 3% of average energy, can cause significant fluctuations in the nonlinear process of harmonics generation. As for the instability of the pump laser beam pointing, it influences the spatial coupling between the harmonics and the plasma amplifier and therefore the seeded SXRL performances.

B. Reflectivity measurement

By comparing the integrated energies over an equivalent surface in both paths, we can deduce an experimental value of the reflectivity of the oxidized aluminum foil. Indeed, the energy emitted from the plasma can be assessed for the main path knowing the transmission and reflectivity coefficients of each optical elements, the camera gain, conversion rate, and quantum efficiency. We can deduce on the main path an average energy of the SXRL of $0.7 \mu\text{J}$ and, thus, infer in the same manner a reflectivity of 0.018 ± 0.006 on a statistics of 20 shots.

IV. THEORETICAL FORECASTS AND PERSPECTIVES

The measured value can be compared to the theoretical reflection coefficient calculated, referring to data books,¹⁶ by the Fresnel's equation and generalized to the case of several interfaces by a recurrence formula.¹⁷ Considering the Debye–Waller factor, which involves scattering at the surface, the real reflection coefficient of a material is given by¹⁸

$$r = r_0 e^{-2k_i k_t \sigma^2}, \quad (1)$$

with r_0 being the reflection coefficient of a perfectly smooth interface, k_i and k_t being the normal components of the incident and transmitted wave vectors, respectively, and σ being the rms surface roughness of the material, measured to be 0.5 nm by the manufacturer on a similar foil.

The theoretical reflectivity of a $0.15 \mu\text{m}$ thick aluminum foil is shown in Fig. 4 as a function of the incident angle with respect to the normal surface in solid lines for different wavelengths: 20 nm, 32.8 nm, and 40 nm in blue, green, and red, respectively. Figure 4(a) concerns a film without oxidation, while (b) considers an oxidation layer. At 32.8 nm and an incident angle of 22.5° , we obtain a theoretical reflectivity of 10^{-3} in the case without oxidation. This value is enhanced up to 0.023 with the oxidation layer. This last value is in good agreement with the experimental value we obtain.

On the same figure, the transmission of the same aluminum foil is plotted in dotted lines. The theoretical transmission at 32.8 nm and normal incidence is 0.7 without oxidation and 0.5 with oxidation. According to Fig. 4(a), using an aluminum foil without oxidation, the best compromise to have a 50/50 beamsplitter at 32.8 nm is

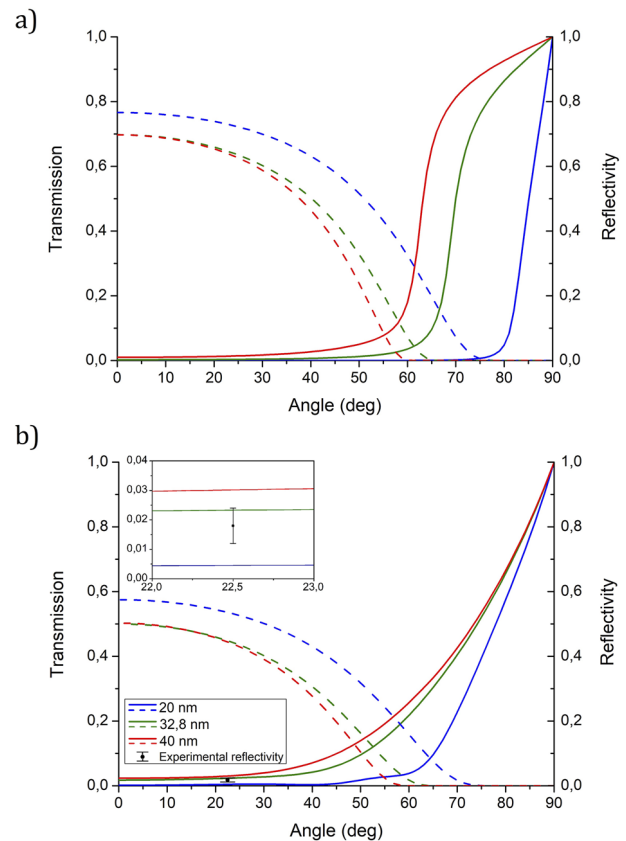


FIG. 4. (a) (Solid lines) Reflectivity of a $0.15 \mu\text{m}$ thick film of aluminum as a function of the angle of incidence with respect to the normal surface and (dotted lines) transmission of this film as a function of the angle of incidence with respect to the normal surface at 20 nm, 32.8 nm, and 40 nm in blue, green, and red, respectively. (b) The same graph in the case of a $0.15 \mu\text{m}$ thick film of aluminum with natural oxidation. The experimental reflectivity is represented by a black point and an error bar. For the sake of readability, a zoom between 22° and 23° has been added as an inset.

at 61.5° of incidence with reflectivity and transmission both equal to 5%. The use of an oxidized aluminum foil improves this result up to 12% of both reflectivity and transmission at 52.5° . Note that all these calculations take into account an s-polarized soft x-ray radiation since it yields the higher reflectivity and thus the most interesting results. For a p-polarized field, it would drop to 8% at best at 32.8 nm.

This outcome provides a cheaper and simplified setup for experiments whose interest is no longer to be demonstrated, requiring the division and the recombination of the beam, such as interferometry and pump-probe technique. Indeed, soft x-ray interferometry is used not only for laser linewidth measurements^{19,20} but also for electron density measurements of high density plasmas.²¹

V. SUMMARY

We have reported a beam splitter in the soft x-ray spectral range using a thin oxidized aluminum foil. Using an SXRL at 32.8 nm, we measured a transmission coefficient of 0.5 and a reflectivity of 0.018 at 22.5° of incidence with respect to the normal surface in

agreement with the calculations, which provide a factor 0.023 at this wavelength. This beamsplitter allows a reliable and stable shot-to-shot monitoring of soft x-ray sources in terms of energy and energy distribution. Thus, this method is straightforward and highly useful for the use of simultaneous diagnostics as well for plasma-based soft x-ray lasers as free electron lasers in this spectral range. This beamsplitter also opens up perspectives for experiments such as interferometry and pump-probe technique as the theory predicts a 12% of both reflectivity and transmission at 32.8 nm. Comparable outcomes can be expected in a wide x-ray band.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors gratefully acknowledge the financial support from “Investissements d’Avenir” Labex PALM (Grant No. ANR-10-LABX-0039-PALM) and the European Union’s Horizon 2020 Research and Innovation Program under Grant Agreement No. 654148 LaserlabEurope.

DATA AVAILABILITY

The data that support the findings of this study are available from the corresponding author upon reasonable request.

REFERENCES

- ¹D. H. Martz, D. Alessi, B. M. Luther, Y. Wang, D. Kemp, M. Berrill, and J. J. Rocca, “High-energy 13.9 nm table-top soft-x-ray laser at 2.5 Hz repetition rate excited by a slab-pumped Ti:sapphire laser,” *Opt. Lett.* **35**, 1632–1634 (2010).
- ²M. Berrill, D. Alessi, Y. Wang, S. R. Domingue, D. H. Martz, B. M. Luther, Y. Liu, and J. J. Rocca, “Improved beam characteristics of solid-target soft x-ray laser amplifiers by injection seeding with high harmonic pulses,” *Opt. Lett.* **35**, 2317–2319 (2010).
- ³Y. Liu, X. Tan, Z. Liu, X. Xu, Y. Hong, and S. Fu, “Soft x-ray holographic grating beam splitter including a double frequency grating for interferometer pre-alignment,” *Opt. Express* **16**, 14761–14770 (2008).
- ⁴J. Filevich, K. Kanizay, M. C. Marconi, J. L. A. Chilla, and J. J. Rocca, “Dense plasma diagnostics with an amplitude-division soft-x-ray laser interferometer based on diffraction gratings,” *Opt. Lett.* **25**, 356–358 (2000).
- ⁵J. Grava, M. A. Purvis, J. Filevich, M. C. Marconi, J. J. Rocca, J. Dunn, S. J. Moon, and V. N. Shlyaptsev, “Dynamics of a dense laboratory plasma jet investigated using soft x-ray laser interferometry,” *Phys. Rev. E* **78**, 016403 (2008).
- ⁶L. Poletto, P. Azzolin, and G. Tondello, “Beam-splitting and recombining of free-electron-laser extreme-ultraviolet radiation,” *Appl. Phys. B* **78**, 1009–1011 (2004).
- ⁷A. J. R. van den Boogaard, F. A. van Goor, E. Louis, and F. Bijkerk, “Wavelength separation from extreme ultraviolet mirrors using phaseshift reflection,” *Opt. Lett.* **37**, 160–162 (2012).
- ⁸F. Delmotte, M.-F. Ravet, F. Bridou, F. Varnière, P. Zeitoun, S. Hubert, L. Vanbostal, and G. Soullie, “X-ray–ultraviolet beam splitters for the Michelson interferometer,” *Appl. Opt.* **41**, 5905–5912 (2002).
- ⁹S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, P. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin, “Demonstration of a Ni-like Kr optical-field-ionization collisional soft x-ray laser at 32.8 nm,” *Phys. Rev. Lett.* **89**, 253901 (2002).
- ¹⁰B. E. Lemoff, C. P. Barty, and S. E. Harris, “Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-times-ionized noble gases,” *Opt. Lett.* **19**, 569–571 (1994).
- ¹¹A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, J. Nejd, M. Kozlova, G. Maynard, J. P. Goddet, A. Tafzi, A. Lifschitz, H. T. Kim, S. Jacquemot, V. Malka, K. Ta Phuoc, C. Thauray, P. Rousseau, G. Iaquaniello, T. Lefrou, A. Flacco, B. Vodungbo, G. Lambert, A. Rousse, P. Zeitoun, and S. Sebban, “Table-top femtosecond soft x-ray laser by collisional ionization gating,” *Nat. Photonics* **9**, 817–821 (2015).
- ¹²M.-C. Chou, P.-H. Lin, C.-A. Lin, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen, “Dramatic enhancement of optical-field-ionization collisional-excitation x-ray lasing by an optically preformed plasma waveguide,” *Phys. Rev. Lett.* **99**, 063904 (2007).
- ¹³Y. Wang, E. Granados, F. Pedaci, D. Alessi, B. Luther, M. Berrill, and J. J. Rocca, “Phase-coherent, injection-seeded, table-top soft-x-ray lasers at 18.9 nm and 13.9 nm,” *Nat. Photonics* **2**, 94–98 (2008).
- ¹⁴P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin, “A high-intensity highly coherent soft x-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam,” *Nature* **431**, 426–429 (2004).
- ¹⁵F. R. Powell, P. W. Vedder, J. F. Lindblom, and S. F. Powell, “Thin film filter performance for extreme ultraviolet and x-ray applications,” *Opt. Eng.* **29**, 614 (1990).
- ¹⁶See <http://www.cxro.lbl.gov> for X-ray data booklet, Center for X-ray Optics and Advanced Light Source, 2009.
- ¹⁷E. Spiller, “Characterization of multilayer coatings by x-ray reflection,” *Rev. Phys. Appl.* **23**, 1687–1700 (1988).
- ¹⁸L. Nevot, B. Pardo, and J. Corno, “Characterization of X-UV multilayers by grazing incidence x-ray reflectometry,” *Rev. Phys. Appl.* **23**, 1675–1686 (1988).
- ¹⁹J. L. A. Chilla, O. E. Martinez, M. C. Marconi, and J. J. Rocca, “Soft-x-ray interferometer for single-shot laser linewidth measurements,” *Opt. Lett.* **21**, 955–957 (1996).
- ²⁰A.-S. Morlens, P. Zeitoun, L. Vanbostal, P. Mercere, G. Faivre, S. Hubert, P. Troussel, C. Remond, R. Marmoret, F. Delmotte, M.-F. Ravet, and M. Rouillay, “Study of XUV beam splitter flatness for use on a Michelson interferometer,” *Laser Part. Beams* **22**, 279–284 (2004).
- ²¹L. B. D. Silva, T. W. Barbee, R. Cauble, P. Celliers, D. Ciarlo, S. Libby, R. A. London, D. Matthew, S. Mrowka, J. C. Moreno, D. Röss, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber, “Electron density measurements of high density plasmas using soft x-ray laser interferometry,” *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3991 (1995).

Letter

Measurement and control of main spatio-temporal couplings in a CPA laser chain

Adeline Kabacinski , Kosta Oubrerie, Jean-Philippe Goddet, Julien Gautier, Fabien Tissandier, Olena Kononenko, Amar Tafzi, Adrien Leblanc , Stéphane Sebban and Cédric Thauray

Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-Paristech, CNRS, Ecole Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 Bv des Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

E-mail: adeline.kabacinski@ensta-paris.fr

Received 22 January 2021, revised 24 March 2021

Accepted for publication 15 April 2021

Published 26 April 2021



Abstract

We report a straightforward method to control main spatio-temporal couplings in a chirped pulse amplification (CPA) laser chain system using a specially designed chromatic doublet in a divergent beam configuration. The centering of the doublet allows for the control of the spatial chirp of the CPA laser chain, while its longitudinal position in the divergent beam enables the control of the amount of longitudinal chromatism in a wide dynamic range. The performance of this technique is evaluated by measuring main spatio-temporal couplings with a simple method, based on an ultrafast pulse shaper, which allows for a selection of narrow windows of the spectrum.

Supplementary material for this article is available [online](#)

Keywords: lasers, optics, CPA laser chain, spatio-temporal couplings, longitudinal chromatism / pulse front curvature, spatial chirp

(Some figures may appear in colour only in the online journal)

1. Introduction

Chirped pulse amplification (CPA) laser chains are being more and more used as they provide applications in a wide range of domains, thanks to their ultrashort and intense pulses [1]. The beam properties in the spatial domain can be controlled thanks to deformable mirrors or spatial light modulators [2], while acousto-optic programmable dispersive filters allows for a temporal and spectral shaping of ultrashort beam [3]. However, the control of spatio-temporal couplings (STCs) [4] still represents a challenge in the shaping of ultrashort pulses.

Indeed, high energy CPA laser systems require large beam expanders, which can introduce couplings, better known as pulse front curvature in the near field and longitudinal

chromatism in the far field, deteriorating the spatio-temporal focusing performance [5]. A precise and dynamic adjustment of the STCs would also pave the way for new advances. Indeed, numerical calculations show that the combination between longitudinal chromatism and temporal chirp allows for the control of the velocity of ultrashort pulses under vacuum [6, 7], therefore offering perspectives for laser-driven acceleration of ions [8], or to avoid velocity mismatch effects in experiments involving the propagation of multiple pulses of different frequencies in a dispersive medium [11]. Adjustment of longitudinal chromatism, along with spatial-phase shaping, also opens up prospects for phase-locked laser wakefield acceleration of relativistic electrons [9, 10]. Longitudinal chromatism due to lenses can be entirely avoided by replacing

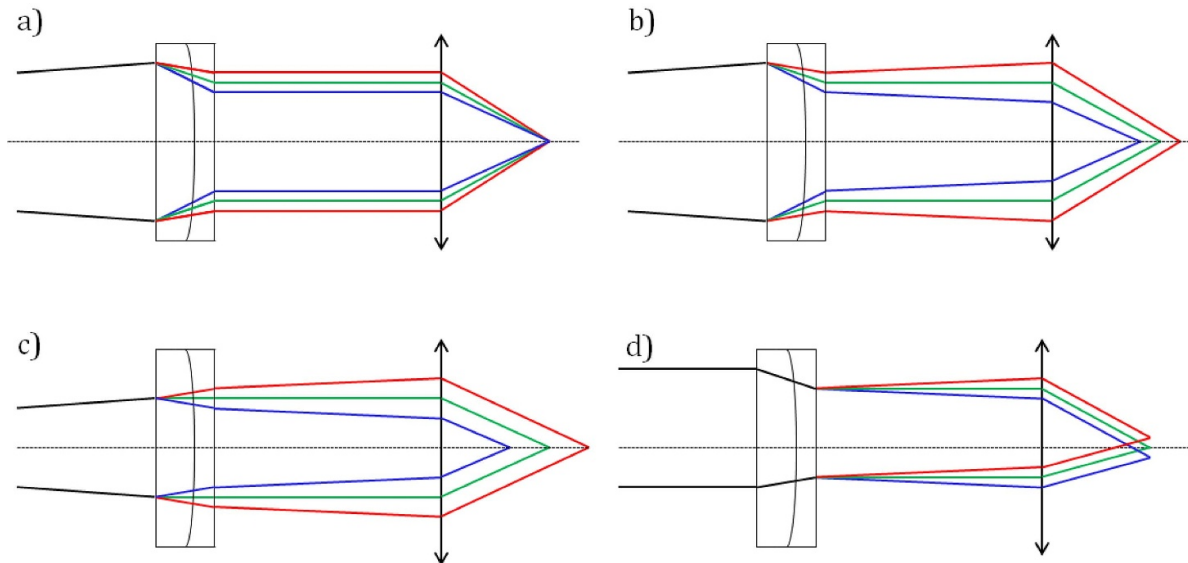


Figure 1. Schematics of the principle of the experiment. Rays plots for: (a) a doublet designed to compensate exactly the longitudinal chromatism of the beam. (b), (c) A doublet designed to introduce longitudinal chromatism for the same beam divergence but for a different longitudinal position of the doublet in this beam. (d) A chromatic doublet off-center with respect to the beam. In (d), the input beam is collimated to ease comprehension. A paraxial lens is added in each case to visualize the impact of the doublet.

them by reflective optics, like spherical or parabolic mirrors. Yet, the former often introduce spherical aberration and even astigmatism, when the latter are expensive and more difficult to implement. Several compensation schemes have been proposed using reflective, refractive, or diffractive optical components [12–15]. All these methods have their own advantages and drawbacks. However, they have in common the inability to adjust continuously the longitudinal chromatism. A dynamic chromatic aberration pre-compensation scheme for ultrashort laser chains has been suggested [16]. It consists in a system, requiring vacuum to avoid air breakdown, composed of two lenses and a spherical mirror, each being on a translation stage. Although being efficient and having a good dynamic, this system remains expensive, complex and bulky.

Another STC is inherent to ultrashort laser chains: pulse compressors require the introduction of massive amounts of angular dispersion, i.e. angular variation of the average wavelength in the beam [17], which is equivalent to pulse front tilt in the Fourier space. Focusing a beam containing angular dispersion/pulse front tilt generates spatial chirp, i.e. variation of the focus transverse position with respect to the wavelength. Although supposed to be completely removed with a perfect alignment, small misalignments as well as optics imperfections, are likely to cause non-desired angular dispersion, once again affecting the spatio-temporal focusing performance of the beam. On the other hand, some applications, like femto-second pulse shaping [18] or control of the emission angle of laser-plasma accelerated electrons [20], require to separate spatially the different wavelengths deliberately and in a controlled manner. This can easily be done in the dispersion direction of the compressor gratings by changing their parallelism. More generally, some solutions have been suggested, like placing a lens one focal length away from a grating [18]. But this proposition is only suitable to introduce a precise amount of

spatial chirp, depending on the properties of the chosen grating.

In this letter, we report a straightforward method to control STCs using a chromatic doublet, inserted in a divergent beam configuration. This technique is of high interest since it allows to adjust both spatial chirp thanks to the centering of the doublet, and longitudinal chromatism in a wide dynamic range. The doublet design can easily be adapted to all types of applications.

2. Principle and design of the doublet

The control of the STCs (longitudinal chromatism and spatial chirp) is ensured by the properties of the doublet, and its longitudinal and transverse position in the beam. The principle on which this technique is based is as follows, and illustrated on figure 1.

For decades, doublets have been used to reduce chromatic aberrations. They consist of two lenses, one convergent and one divergent, made of two different glasses which disperse wavelengths differently. Their properties are chosen to correct exactly the longitudinal chromatism. Therefore, there is no spreading of the focusing point along the beam propagation direction. Such an achromat is displayed on figure 1(a) for a divergent beam. The represented doublet has an infinite focal length. On the contrary, doublets can be used to introduce a certain amount of longitudinal chromatism, characterized by the spectral focal shift (SFS), i.e. the distance between the respective focus of the considered wavelengths. The amount of longitudinal chromatism cannot be adjusted for a given doublet used in a collinear beam. However, this is not the case in a divergent beam as it can be seen on figures 1(b) and (c). They represent ray plots for an input

beam with the same divergence, but for a different longitudinal position of the doublet in this beam. The focal planes of the different wavelengths are much closer to each other in (b) than in (c). Thus, using a doublet in a divergent beam allows for the adjustment of longitudinal chromatism. As shown on figure 1(d), a decentering of the doublet induces angular dispersion and therefore a variation of the focus transverse position with respect to the wavelength. The more off-center the beam, the more the wavelengths are separated from each other in the transverse plane. Therefore, varying on the transverse (vertical and lateral) positions of the doublet, the amount of spatial chirp can be adjusted within the plane perpendicular to the propagation axis, and not only along one axis.

The doublet used for this experiment was specially designed for our laser chain using the software Zemax. The doublet is composed of a convergent lens in BK7 and of a divergent lens in SF5. The doublet is vacuum-spaced. The B integral of the doublet is estimated to be 3 mrad. It has an infinite focal length at 800 nm and is suited to a beam with a divergence of $\theta = 1.75^\circ$. More details concerning its design are given in the supplementary materials (available online at stacks.iop.org/JOPT/23/06LT01/mmedia). It is conceived to introduce a variation of a few fs cm^{-2} when translating the doublet longitudinally over a range of 40 cm. The doublet is optimized to minimize other aberrations. More details about the residual aberrations are provided in the supplementary materials. Moreover, moving the doublet by 40 cm along the optical axis only introduce a defocus of a few hundred of microns. Thus, the adjustment of the longitudinal chromatism can be performed without modifying the position of the focal plane.

The experiment was carried out using a five-stages amplification Ti:Sa laser chain delivering 30fs-duration pulses with an energy up to 5 J at a repetition rate of 1 Hz. The spectrum of the laser is centered around 800 nm, with a spectral width of 150 nm at $1/e^2$. The doublet is inserted in vacuum environment in a divergent beam configuration, in the last afocal system of the chain before recompression to minimize the B integral. The inconvenients of the implementation of the doublet at this location, as well as the effect of the doublet on second and third phase order, are provided in the supplementary materials. The doublet is placed on a 40 cm translation mount in the longitudinal direction. Its axial position will therefore be expressed by the distance d between itself and the last lens of the last afocal system. The doublet is also motorized in vertical and lateral directions, to ease its centering and thus the adjustment of the spatial chirp. The measurement of longitudinal chromatism has been performed with a 60 mm beam diameter at the output of the last afocal system, while the measurement of spatial chirp has been performed with a 30 mm beam diameter.

3. Measurement and control of longitudinal chromatism

The performance of our dynamic correction using the specially designed doublet was evaluated thanks to the following

method, performed at reduced power to prevent damaging the amplifiers. An acousto-optic programmable dispersive filter (FastLite Dazzler ultrafast pulse shaper) installed upstream the amplification stages, is used to select a narrow window of the spectrum of width $\Delta\lambda = 10$ nm. In practice, the incident beam propagates through a birefringent crystal, mounted on a piezoelectric transducer which creates a longitudinal traveling acoustic wave. The diffraction efficiency for each phase-matched optical spectral component is adjusted by modulating the amplitude of the traveling acoustic wave. By modulating its frequency, the longitudinal position where the diffraction occurs in the crystal for each spectral component can be tuned. Thus, controlling the spectral phase and the amplitude of the incident beam, certain components can be attenuated, resulting in the selection of a narrow window of the spectrum. The beam is then focused by a lens of 2 m focal length. With a CCD camera scanning through the Rayleigh zone of this lens, the longitudinal position of the focal plane for a given spectral component can be precisely located. For this measurement, three narrow windows, respectively centered on 775, 800 and 825 nm, were used. The setup of the experiment is shown on figure 2. The whole laser chain is not represented, except its last afocal system. The measurements are performed for different values of the distance d between the doublet and the last lens of the last afocal system.

The results of these measurements are displayed on figure 3 for several values of d : (a) 12 cm, (b) 30 cm, (c) 50 cm. It shows the peak intensity of the beam with respect to the longitudinal position of the CCD camera for 775 nm in blue, 800 nm in green and 825 nm in red. The measurement points are represented by squares, with error bars calculated as the standard error determined by repeatability over five shots. These points are fitted by Lorentzians, represented in solid lines.

The performance of the doublet is evaluated through measurement of the shift of the focal plane for different wavelengths, called spectral focal shift (SFS). The obtained values are listed in the table 1. The uncertainties are evaluated considering the sum of the fit standard errors for the respective wavelengths.

Therefore, our specially designed doublet allows for the control of the longitudinal chromatism in the far field, and therefore of the pulse front curvature in the near field in a wide dynamic range. For a radial retardation $\tau(r) = \alpha r^2$ introduced by pulse front curvature, we define the parameter α which quantifies the strength of the pulse front curvature. It can directly be related to the spectral focal shift δ_f at the focus of a f focal length optic between two given wavelengths separated from δ_λ by the following formula: $\delta_f(\omega) = 2f^2\alpha c \frac{\delta_\lambda}{\lambda}$. In our configuration, a 40 cm range on the position of the doublet induces a linear variation of the SFS between 775 and 825 nm from 1.81 mm to 5.35 mm, which corresponds to a variation of pulse front curvature from $\alpha = 1.26 \text{ fs cm}^{-2}$ to 3.60 fs cm^{-2} . This range can be settled with a different design of the doublet, and thus be adjusted to all kind of applications to control precisely the amount of introduced longitudinal chromatism, whether in positive or in negative.

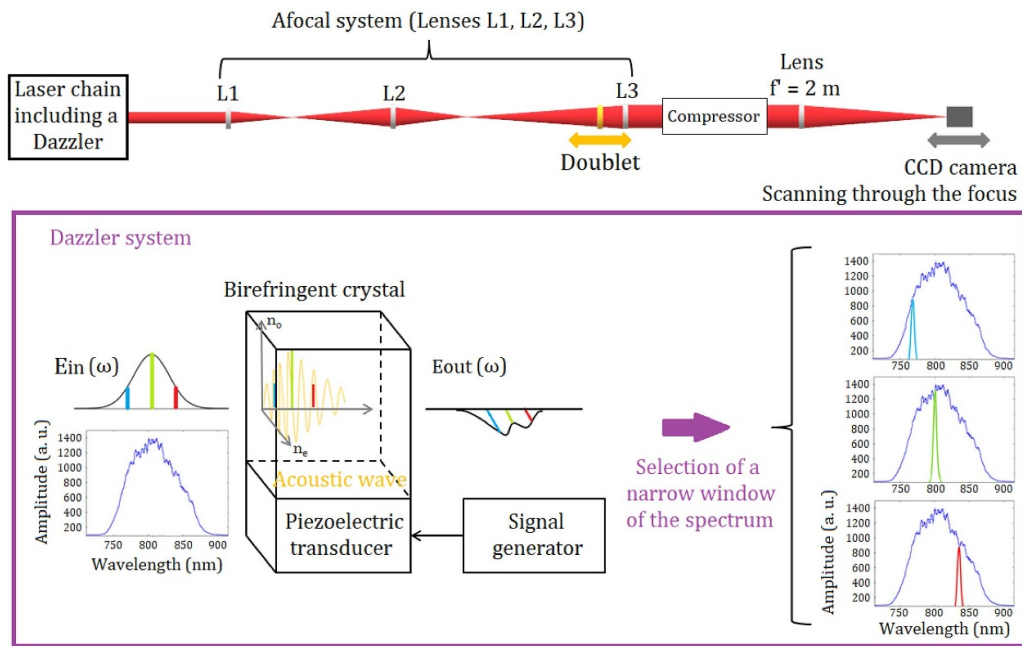


Figure 2. Setup of the experiment. An ultrafast pulse shaper, installed upstream the amplification stages, selects a narrow window of the initial spectrum. The longitudinal focal plane, for a given spectral component, is located precisely with a CCD camera scanning through the focus of a lens of 2 m focal length. The doublet is inserted in the last afocal system, before recompression. It is placed on a 40 cm translation mount in the longitudinal direction and is also motorized in vertical and lateral directions. The measurements are performed for different distances d between the doublet and the last lens of the afocal system. The whole laser chain is not represented, except its last afocal system.

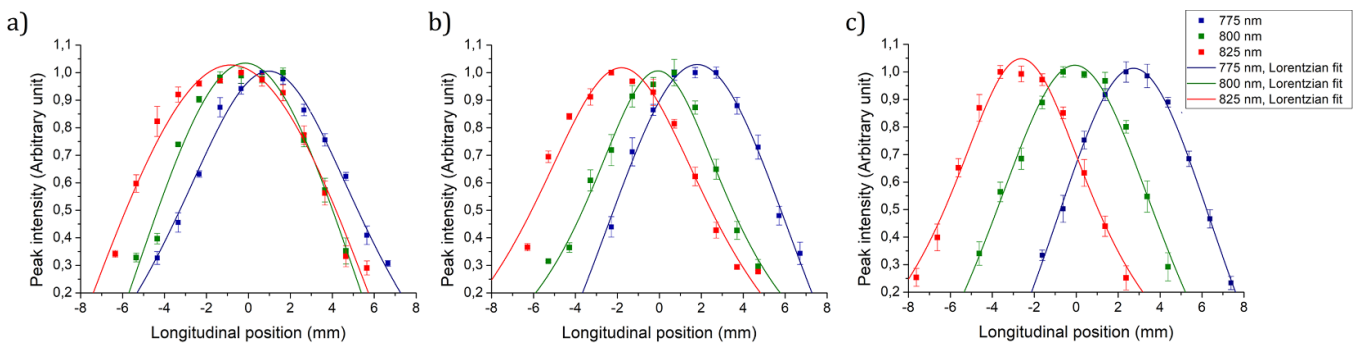


Figure 3. Peak intensity of the beam with respect to the longitudinal position of the CCD camera for 775 nm in blue, 800 nm in green, 825 nm in red, (a) for $d = 12$ cm, (b) for $d = 30$ cm, (c) for $d = 50$ cm.

Table 1. Measured values of the spectral focal shift between 775 and 800 nm, and of the spectral focal shift between 775 and 825 nm for different values of d .

	SFS 775–800 nm	SFS 775–825 nm
$d = 12$ cm	(1.14 ± 0.09) mm	(1.81 ± 0.09) mm
$d = 30$ cm	(1.87 ± 0.08) mm	(3.62 ± 0.09) mm
$d = 50$ cm	(2.79 ± 0.06) mm	(5.35 ± 0.06) mm

4. Spatial chirp control

The use of this doublet also enables the correction of another STC. To visualize the impact of the centering of the doublet on the spatial chirp, we measure the peak intensity of the beam at focus with respect to the transverse position of the doublet. It is represented on figure 4, in purple for the lateral direction

and in orange for the vertical direction. This figure enhances a maximum peak intensity for a perfect centering of the doublet, marked by position 0 in both directions. For each direction, there is a clear decrease of intensity when the doublet is not perfectly centered. Indeed, as it has been shown on figure 1, a decentering of the doublet introduces spatial chirp which results in a separation of the different frequency components at focus in the transverse directions. This can easily be visualized at the top of figure 4, showing spatial profiles of the beam at focus for different vertical doublet positions. For a perfect centering, the profile is more intense than in the other cases and circular, while it stretches in the direction of the decentering due to the separation of wavelengths.

Another way to display the angular dispersion in the near field/spatial chirp in the far field consists in using again the ultrafast pulse shaper to adjust the spectrum so that it remains only two peaks, in this case at 775 and 825 nm respectively,

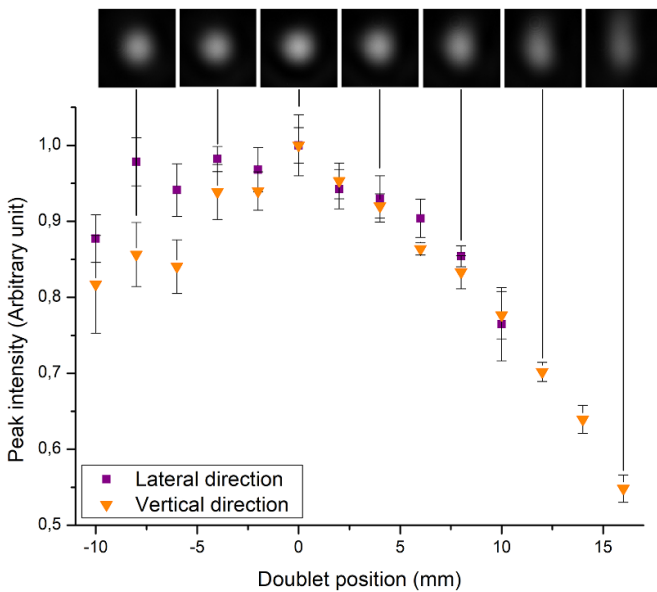


Figure 4. Peak intensity at focus with respect to the transverse position of the doublet. Purple stands for the horizontal direction, orange for the vertical direction. At the top, spatial profiles of the beam for different vertical doublet positions are shown.

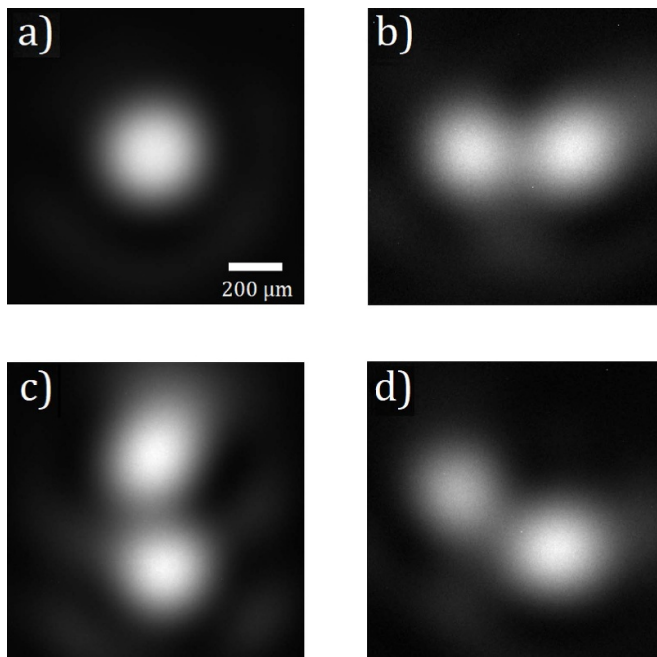


Figure 5. Spatial profiles of two-colour (775 and 825 nm) laser beam pulse at the focus: (a) for a perfect centering of the doublet, (b) for a perfect vertical centering and a lateral decentering of 13 mm, (c) for a perfect lateral centering and a vertical decentering of 15 mm, and (d) for a vertical decentering of 7 mm and a lateral decentering of 13 mm. The beam radius at $1/e^2$ on (a) is of the order of 200 μm .

each with a width $\Delta\lambda = 10$ nm. A similar method was used to measure spatial dispersion by filtering spectrally the beam to create well separated peaks in the spectrum [19]. Figure 5 shows spatial profiles of the beam at the focus for different decentering of the doublet: (a) was obtained for a perfect

centering of the doublet, (b) for a perfect vertical centering and a lateral decentering of 13 mm, (c) for a perfect lateral centering and a vertical decentering of 15 mm, and (d) a vertical decentering of 7 mm and a lateral decentering of 13 mm. The maximum decentering shown here, 15 mm in the vertical direction, causes an angular dispersion of $3.2 \mu\text{rad nm}^{-1}$. For comparison, the angular dispersion required in [20] was $1 \mu\text{rad nm}^{-1}$ to deflect the electron beam by 4 mrad. Such a decentering of the doublet introduces small aberrations: simulations performed with Zemax showed that a decentering of 13 mm in lateral and 7 mm in vertical introduces 0.05λ of 45° astigmatism. As this value does not vary with the wavelength, it can easily be corrected with a deformable mirror.

Varying the vertical and lateral position of the doublet, the position of one wavelength relatively to the other can easily be selected, and thus the amount of spatial chirp can be adjusted. This should be of high interest for pulse shaping experiments as the accuracy of pulse shaping depends on the degree of spatial chirp at the focal plane.

5. Summary

In summary, we have reported a straightforward method to evaluate the longitudinal chromatism of a CPA laser chain, using an ultrafast pulse shaper to locate precisely the focal plane of different spectral components. This technique is easy-to-implement since it only requires an acousto-optic dispersive filter, available in most laser facilities, and a focusing optic. This process allowed us to assess the performance of a chromatic doublet regarding the control of STCs. The longitudinal position of the doublet, inserted in a divergent beam configuration, enables the regulation of the amount of longitudinal chromatism in a wide dynamic range. This technique can easily be adapted to most laser chains by adjusting the design of the doublet. Furthermore, the centering of the doublet allows for the control of the degree of spatial chirp at focus. It opens up prospects for numerous applications requiring the adjustment of STCs.

Data availability statement

The data that support the findings of this study are available upon reasonable request from the authors.

Acknowledgment

This work has received funding from the European Union's Horizon 2020 Research and Innovation programme under Grant No. 730871 (project ARIES).

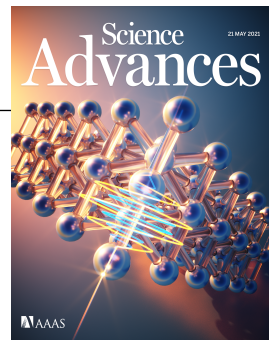
ORCID iDs

Adeline Kabacinski  <https://orcid.org/0000-0002-9197-768X>

Adrien Leblanc  <https://orcid.org/0000-0002-5894-6611>

References

- [1] Nolte S, Schrepel F and Dausinger F 2016 *Ultrashort Pulse Laser Technology* (Berlin: Springer)
- [2] Weiner A M 2000 Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators *Rev. Sci. Instrum.* **71** 1929–60
- [3] Verluise F, Laude V, Cheng Z, Spielmann C and Tournois P 2000 Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping *Opt. Lett.* **25** 575–7
- [4] Akturk S, Gu X, Bowlan P and Trebino R 2010 Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses *J. Opt.* **12** 093001
- [5] Bor Z 1989 Distortion of femtosecond laser pulses in lenses *Opt. Lett.* **14** 119–21
- [6] Sainte-Marie A, Gobert O and Quere F 2017 Controlling the velocity of ultrashort light pulses in vacuum through spatio-temporal couplings *Optica* **4** 1298–304
- [7] Froula D H *et al* 2018 Spatiotemporal control of laser intensity *Nat. Photon.* **12** 262–5
- [8] Macchi A, Borghesi M and Passoni M 2013 Ion acceleration by superintense laser-plasma interaction *Rev. Mod. Phys.* **85** 751–93
- [9] Caizergues C, Smartsev S, Malka V and Thauray C 2020 Phase-locked laser-wakefield electron acceleration *Nat. Photon.* **14** 475–79
- [10] Palastro J P, Shaw J L, Franke P, Ramsey D, Simpson T T and Froula D H 2020 Dephasingless laser wakefield acceleration *Phys. Rev. Lett.* **124** 134800
- [11] Depresseux A *et al* 2015 Table-top femtosecond soft x-ray laser by collisional ionization gating *Nat. Photon.* **9** 817–21
- [12] Madjidi-Zolbanine H and Froehly C 1979 Holographic correction of both chromatic and spherical aberrations of single glass lenses *Appl. Opt.* **18** 2385–93
- [13] Piestun R and Miller D 2001 Spatiotemporal control of ultrashort optical pulses by refractive–diffractive–dispersive structured optical elements *Opt. Lett.* **26** 1373–5
- [14] Bahk S-W, Bromage J and Zuegel J 2014 Offner radial group delay compensator for ultra-broadband laser beam transport *Opt. Lett.* **39** 1081–4
- [15] Neauport J, Blanchot N, Rouyer C and Sauteret C 2007 Chromatism compensation of the PETAL multipetawatt high-energy laser *Appl. Opt.* **46** 1568–74
- [16] Cui Z *et al* 2019 Dynamic chromatic aberration pre-compensation scheme for ultrashort petawatt laser systems *Opt. Express* **27** 16812–22
- [17] Gu X, Akturk S and Trebino R 2004 Spatial chirp in ultrafast optics *Opt. Commun.* **242** 599–604
- [18] Weiner A M, Heritage J P and Kirschner E M 1988 High-resolution femtosecond pulse shaping *J. Opt. Soc. Am. B* **5** 1563–72
- [19] Börzsönyi A, Mangin-Thro L, Cheriaux G and Osvay K 2012 Two-dimensional single-shot measurement of angular dispersion for compressor alignment *Opt. Lett.* **38** 410–12
- [20] Popp A *et al* 2010 All-optical steering of laser-wakefield-accelerated electron beams *Phys. Rev. Lett.* **105** 215001



OPTICS

Table-top extreme ultraviolet second harmonic generation

Tobias Helk^{1,2,*†}, Emma Berger^{3,4†}, Sasawat Jamnuch^{5†}, Lars Hoffmann⁶, Adeline Kabacinski⁷, Julien Gautier⁷, Fabien Tissandier⁷, Jean-Philippe Goddet⁷, Hung-Tzu Chang³, Juwon Oh³, C. Das Pemmaraju⁸, Tod A. Pascal^{5,9,10}, Stephane Sebban⁷, Christian Spielmann^{1,2,*}, Michael Zuercher^{1,3,4,6,*}

The lack of available table-top extreme ultraviolet (XUV) sources with high enough fluxes and coherence properties has limited the availability of nonlinear XUV and x-ray spectroscopies to free-electron lasers (FELs). Here, we demonstrate second harmonic generation (SHG) on a table-top XUV source by observing SHG near the Ti $M_{2,3}$ edge with a high-harmonic seeded soft x-ray laser. Furthermore, this experiment represents the first SHG experiment in the XUV. First-principles electronic structure calculations suggest the surface specificity and separate the observed signal into its resonant and nonresonant contributions. The realization of XUV-SHG on a table-top source opens up more accessible opportunities for the study of element-specific dynamics in multicomponent systems where surface, interfacial, and bulk-phase asymmetries play a driving role.

INTRODUCTION

Nonlinear interactions between light and matter not only form the basis for the generation of light at wavelengths spanning the terahertz to x-ray regimes but also enable spectroscopies that yield unique insight into fundamental material properties (1–3). When describing the nonlinear light-matter interaction, a material's polarization response to incident light of frequency ω can be approximated as a power series in increasing powers of the electric field $E(\omega)$, where only noncentrosymmetric materials, interfaces, and surfaces permit nonvanishing even-order terms. For this reason, second harmonic generation (SHG) and sum-frequency generation (SFG) are inherently sensitive to broken inversion symmetry (4, 5). Up to a constant factor, the frequency-dependent effective second-order nonlinear-susceptibility $\chi^{(2)}$ can be extracted experimentally via the relationship

$$I(2\omega) \propto |\chi^{(2)}(2\omega; \omega + \omega)|^2 I(\omega)^2 \quad (1)$$

where $I(\omega)$ is the intensity at frequency ω . While optical nonlinear spectroscopies have been highly insightful probes of interfacial chemistry (6–9) and broken symmetries in solid-state systems (10), optical light can couple efficiently to multiple excitation pathways, rendering spectra difficult to interpret in multi-element samples (11, 12). The desire to gain core-level specificity in nonlinear spectroscopies is thus motivated by the study of complex systems with wide-ranging

applications including all-solid-state batteries with multiple buried interfaces, ferroelectric materials that, by definition, have bulk-phase structural asymmetries, and low-dimensional heterostructures, to name a few examples.

Popular element-specific probing methods include photoelectron and linear x-ray spectroscopies, which are sensitive to either surface or bulk properties, respectively, but not both, prompting recent efforts to apply nonlinear spectroscopies to the x-ray regime (13). The first promising experiments at free-electron lasers (FELs) have demonstrated soft x-ray (SXR) SHG as a viable technique to study noncentrosymmetric materials (14–16), surfaces (17), and buried organic-inorganic interfaces (18) when the energy of the fundamental or its SHG counterpart matches an allowed electronic transition. With FEL sources, the inherent intensity jitter lends itself naturally to calculating the nonlinear response via Eq. 1. The next frontier in x-ray SHG lies in the development of compact table-top sources capable of delivering high enough x-ray photon fluxes for nonlinear techniques. Given the moderate input intensities ($\sim 10^{12}$ W/cm²) required for FEL-SHG that are in line with numerical estimations of intensities required for two-photon absorption (19), it is not unreasonable to think that high-power table-top HHG (high harmonic generation)-based sources could be used in a similar scheme (17, 20–23).

Here, we report the first extreme ultraviolet second harmonic generation (XUV-SHG) experiment above the Ti M edge (32.6 eV), which also represents the first table-top demonstration of SHG at photon energies beyond the UV regime. A comparison of our observations with density functional perturbation theory (DFPT) and real-time time-dependent density functional theory (RT-TDDFT) calculations suggests resonant contributions to SHG from Ti-3p to Ti-3d transitions at the Ti surface. This proof-of-concept experiment demonstrating XUV-SHG aims to present on viable parameter ranges that will enable XUV-SHG at similar high-flux table-top sources.

RESULTS

In the experimental setup depicted in Fig. 1A, a 37.8-eV HHG-SXRL (soft x-ray laser) (20, 24) with an average input energy of 111 ± 23 nJ, pulse duration of 1.73 ± 0.13 ps, and Gaussian-like beam profile

¹Institute of Optics and Quantum Electronics, Abbe Center of Photonics, Friedrich-Schiller University, 07743 Jena, Germany. ²Helmholtz Institute Jena, 07743 Jena, Germany. ³Department of Chemistry, University of California, Berkeley, Berkeley, CA 94720, USA. ⁴Materials Science Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA 94720, USA. ⁵ATLAS Materials Physics Laboratory, Department of NanoEngineering and Chemical Engineering, University of California, San Diego, La Jolla, CA 92023, USA. ⁶Fritz Haber Institute of the Max Planck Society, 14195 Berlin, Germany. ⁷Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA Paris, Ecole Polytechnique, CNRS, Institut Polytechnique de Paris, Palaiseau, France. ⁸Stanford Institute for Materials and Energy Sciences, SLAC National Accelerator Laboratory, Stanford, CA 94025, USA. ⁹Materials Science and Engineering, University of California, San Diego, La Jolla, CA 92023, USA. ¹⁰Sustainable Power and Energy Center, University of California, San Diego, La Jolla, CA 92023, USA.

*Corresponding author. Email: tobias.helk@uni-jena.de (T.H.); christian.spielmann@uni-jena.de (C.S.); mwz@berkeley.edu (M.Z.)

†These authors contributed equally to this work.

Copyright © 2021
The Authors, some
rights reserved;
exclusive licensee
American Association
for the Advancement
of Science. No claim to
original U.S. Government
Works. Distributed
under a Creative
Commons Attribution
NonCommercial
License 4.0 (CC BY-NC).

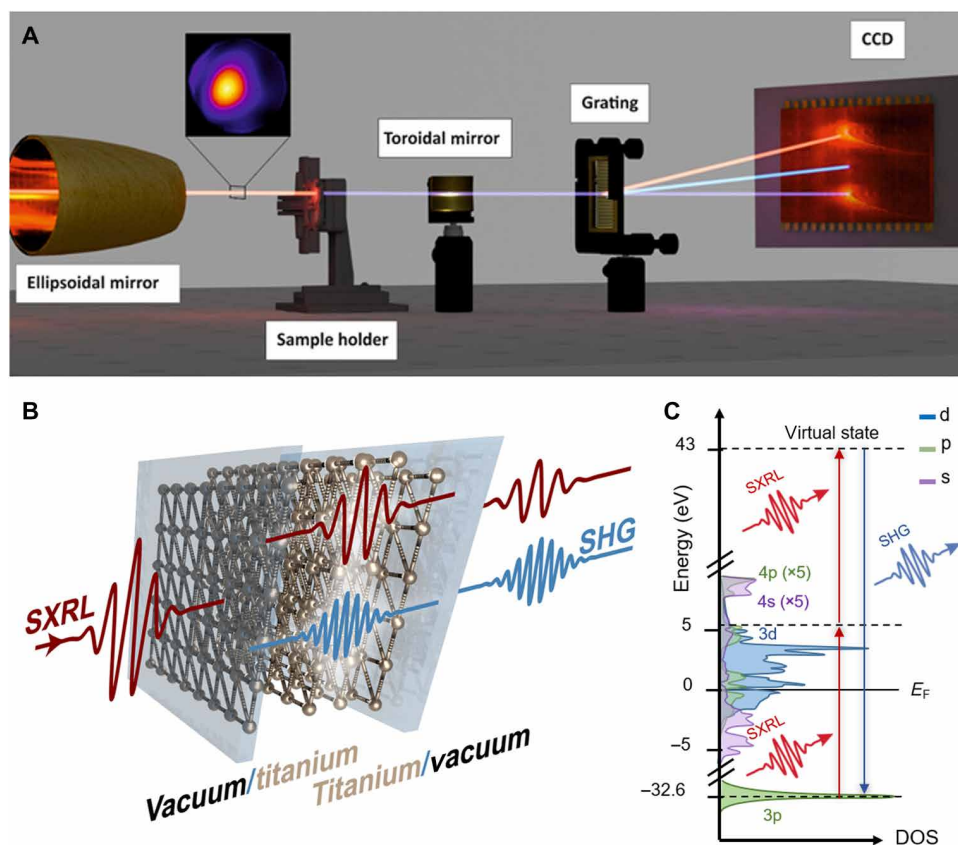


Fig. 1. Experimental setup and energy diagram for SXRL-SHG at the Ti $M_{2,3}$ edge. (A) From left, the setup includes the incoming 37.8-eV HHG-SXRL pulse (red beam, far-field beam profile in inset) that is focused by an ellipsoidal mirror onto the Ti foil surface, where SHG is generated (blue beam) and propagates collinearly with the fundamental. The divergent field is refocused with a toroidal mirror onto a grating that disperses the SHG and fundamental beams simultaneously onto a CCD camera. (B) Schematic diagram of the origin of the SHG emission. Inversion symmetry is broken on the front Ti surface, allowing for SHG. The fundamental and SHG beams exit from the rear foil surface. (C) Ti orbital-resolved density of states (DOS) (40). The SHG emission results from on-resonant excitation of 3p core states (-32.6 eV) to an empty intermediate state of 3d character ($+5.2$ eV) and subsequently to a virtual state ($+43$ eV).

(Fig. 1A, inset) was tightly focused using a Au-coated ellipsoidal mirror onto a Ti foil (hexagonal centrosymmetric, $6/mmm$ point group) placed at the rear focal plane of the ellipsoid with an on-target spot size of $4.5 \pm 1.5 \mu\text{m}$ and average intensity of $4.1 \pm 1.9 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (Fig. 1B). Given the 50-nm thickness of the Ti foil and the estimated 13-nm attenuation depth of 37.8-eV photons in Ti (25), it is likely that the SHG signal was predominately generated on the front face of the foil, and SHG emission from the rear surface can be disregarded. These estimations are supported by the fact that measurements were also performed with 100-nm foils, for which no statistically significant SHG could be found, and by complementary DFPT simulations discussed below. Given that the SHG emission is confined to the Ti surface layer, the SHG emission is always phase-matched. Spectra recorded without the sample present lacked SHG signal between the 0th and ± 1 st diffraction order, thus confirming that SHG emission was not a result of second harmonic contamination in incoming SXRL beam (fig. S2). This is an advantage of plasma-based sources as opposed to undulator based ones, since harmonic contributions to the incident beam are expected in the latter but not the former (26).

The on-target fluence of $0.7 \pm 0.3 \text{ J/cm}^2$ surpassed the single-shot damage threshold as evidenced by consistent sample damage, which required moving the sample to an unexposed spot for each laser

shot. Since the Ti conduction band (CB) consists primarily of 3d states, the 37.8-eV linear absorption can be attributed in part to a resonant dipole-allowed inter-shell transition from 3p core states to empty 3d CB states with SHG emerging from a subsequent transition to a virtual state 43 eV above the Fermi energy E_F (Fig. 1C).

The outgoing photons were refocused using a Au toroidal mirror and dispersed with a transmission grating (1000 lines/mm) onto a deep-cooled charge-coupled device (CCD; Princeton-MTE), enabling a simultaneous analysis of the fundamental and SHG peaks. The pulse energy was calibrated with respect to the counts on the CCD by measuring the shot-to-shot fluctuations of the SXRL and correlating the statistics with those observed on the CCD. A characteristic spectrum featuring the fundamental and SHG peaks is shown in Fig. 2A. Measurements of the seeded SXRL linewidth using a high-resolution spectrometer confirmed a linewidth at full width at half maximum of 2.6 meV, which is poorly resolved but expected since the spectrometer was optimized to cover more than one octave at low resolution to be sensitive for SHG. The broadened linewidth of the second harmonic is due to aberrations of the imaging spectrometer but otherwise expected to be the same order of magnitude as that of the fundamental. The background-corrected spectra were analyzed by integrating the peaks observed on the CCD and aggregating single-shot spectra according to the intensity of the

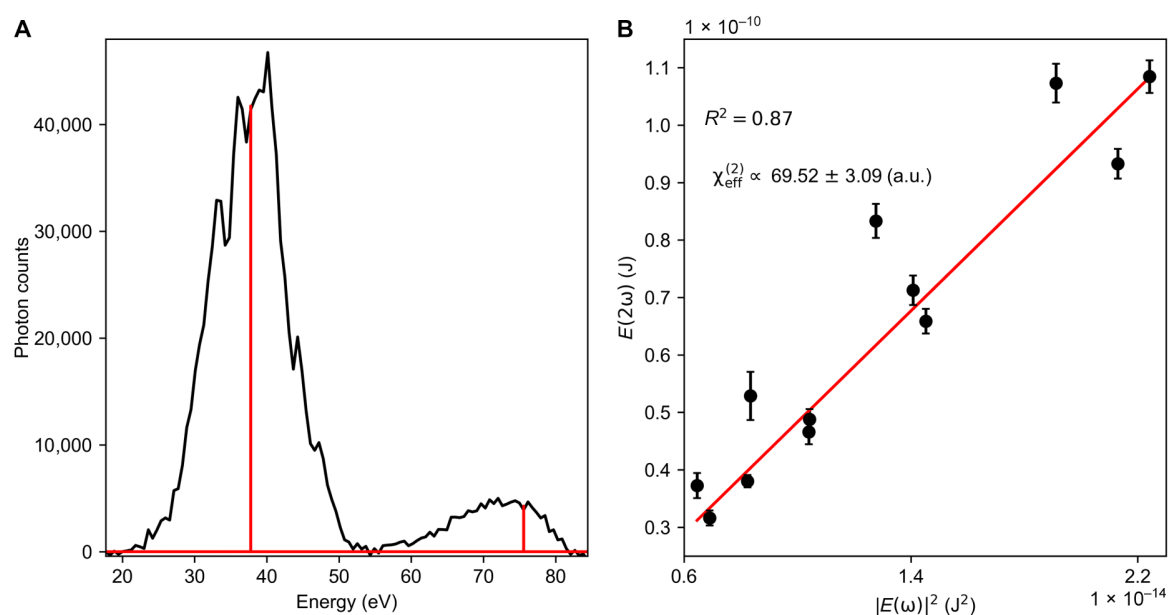


Fig. 2. Representative spectrum of fundamental and second harmonic peaks where the second harmonic response scales quadratically with that of the fundamental. (A) Representative spectrum of the fundamental and SHG signals (black). The linewidth is not resolved in this spectrum because of the spectrometer being optimized for high sensitivity exhibiting poor spectral resolution. The true linewidth of the SXRL was separately measured ($\Delta E \approx 2.6$ meV) with a high-resolution spectrometer (red line). The linewidth of the SHG signal is assumed to be of the same order of magnitude as that of the fundamental. (B) The nonlinear energy dependence of the SHG signal with respect to the fundamental. A linear equation (red line) is fit to experimental data plotted as $|E(\omega)|^2$ versus $E(2\omega)$ (black dots with 1 SD error bars, determined by the SD in photon counts on the CCD resulting from averaging shots at the same fundamental pulse energy together).

fundamental. The slope of a plot relating the on-target energies of the fundamental and SHG peaks allows retrieval of $\chi^{(2)}$ via Eq. 1 (Fig. 2B). To understand the SHG process in detail, first-principles DFPT (27) and RT-TDDFT calculations were performed using the *exciting* all-electron full-potential computer package using the formalism of Sharma and Ambrosch-Draxl (28) that uses linearized augmented plane-wave and local orbital methods, the results of which will be discussed below (29, 30).

DISCUSSION

The quadratic modulo intensity dependence of the observed emission peak at 75.6 eV with respect to the energy of the fundamental (37.8 eV) was confirmed by a coefficient of determination (R^2) value of 0.87 (Fig. 2B) when plotting the incident pulse energies, $|E(\omega)|^2$ versus $E(2\omega)$. These results are in agreement with RT-TDDFT calculations performed using a development version of the SIESTA (31) electronic structure code. Here, a Ti slab was driven under an XUV monochromatic pulse to investigate its interaction with varying laser field intensity. The nonlinear second harmonic response was confirmed by fitting the current density, $J(2\omega)$, to a quadratic equation in the driving electric field strength (fig. S8). Hence, we ascribe the observed feature at 75.6 eV to a second-order nonlinear process involving frequency-doubling of the incoming SXRL beam. Using the mean yield of the SHG, fundamental, and input parameters of the SXRL, the SHG conversion efficiency was estimated to be $\eta = 0.023 \pm 0.005$.

Given the monochromaticity of the SXRL beam, it was not possible to measure the SHG spectrum across the Ti $M_{2,3}$ edge. However, linear absorption measurements performed with a table-top HHG

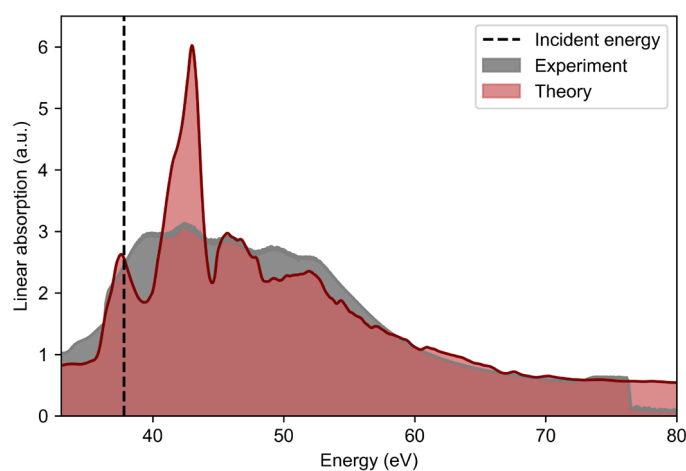


Fig. 3. The linear absorption spectrum from a broadband HHG source of the Ti foil. The experimentally measured onset of the Ti $M_{2,3}$ edge can clearly be seen (gray) and is confirmed by a calculated absorption spectrum (red). The incident energy used in the SHG experiment of 37.8 eV (black dashed line) lies well within the resonantly enhanced region of the absorption spectrum. a.u., arbitrary units.

source (Fig. 3) suggest that the efficiency of SHG at 37.8 eV could have a contribution from a resonantly-enhanced excitation process. From the linear absorption measurements, it can be seen that 37.8 eV lies well within the primary absorption feature due to the dipole-allowed 3p to 3d transition.

Previous FEL experiments estimated a threshold power for nonlinear effects in the hard x-ray regime exceeding 10^{16} W/cm² (14). In the SXR regime, efficient SHG at incident intensities of $\approx 10^{12}$ W/cm²

was observed (17, 32). Our results demonstrate efficient SHG with smaller intensities ($\approx 10^{11}$ W/cm²). The relatively lower intensities required here for SHG as opposed to those in the SXR regime could be due to the fewer number of K-shell electronic states and the weaker coupling of dipole moments between K-shell and valence electrons (17, 18). Although beyond the scope of this first experimental work in the XUV, it appears worthwhile to explore how the nonlinear conversion efficiencies scale with the energies of core states in future theoretical work.

As for the surface specificity of this technique, DFPT calculations performed within the dipole approximation of the nonlinear susceptibility across the Ti M_{2,3} edge find a bulk response more than nine orders of magnitude smaller than that originating from the surface (fig. S9). These results agree with symmetry considerations that predict SHG exclusively from the surface given that the vacuum-sample interface is noncentrosymmetric, while the bulk is not. This disparity in contributions points to the possibility that measuring relative differences in XUV-SHG emission after altering the surface chemistry of a centrosymmetric sample would be an element-specific probe of a changing surface environment.

In conclusion, we have shown the first successful demonstration of XUV-SHG with surface specificity indicated by first-principles calculations and performed nonlinear spectroscopy on a table-top SXRL system. In contrast with the energies required for SHG at FEL sources, it was possible that a table-top SXRL with nanojoule input energies and tight focusing could generate second harmonic radiation at 75.6 eV. In addition, the large number of transition metal elements with M edges in the XUV window potentially makes XUV-SHG a feasible technique for investigating the intrinsic properties of transition metal molecular complexes, heterojunctions, interfaces, and noncentrosymmetric materials with elemental specificity. The findings presented here hint at opportunities to perform time-resolved femtosecond or even attosecond nonlinear XUV spectroscopy experiments using, for example, the high-energy, wavelength-tunable XUV-HHG-based sources at the Extreme Light Infrastructure (33), up-scalable sources based on relativistic surface harmonics (34), or even broadband attosecond HHG-based table-top sources (35–37). With a small focus, peak intensities using the latter have reached 10^{14} W/cm² and have demonstrated two-photon absorption in atoms and molecules (38). Our first demonstration of nonlinear XUV spectroscopy on the table-top holds great promise to expand the nonlinear suite to tunable XUV-SFG to record broadband surface and interface spectra and reduce the temporal resolution by using few-femtosecond compressed optical gate pulses.

MATERIALS AND METHODS

The goal of the experiment was to measure SHG from a Ti surface at an SXRL. The linear XUV absorption spectrum was first measured with a broadband table-top HHG source to confirm the location of the Ti M_{2,3} edge. A sub-4-fs, broadband NIR (near infrared) pulse centered at 730-nm was focused into an Ar gas jet, producing high harmonics. The linear absorption spectrum was collected by measuring the broadband XUV transmission through vacuum (T_{vac}) and through a 50-nm-thick Ti foil (T_{Ti}). Sets of these two measurements were repeated 127 times to determine the average absorbance $A = -\log(T_{\text{Ti}}/T_{\text{vac}})$.

The SHG measurements were subsequently conducted at the Laboratoire d'Optique Appliquée using the Salle Jaune Ti:Sapphire laser system (24), which delivers three independently compressed

multiterawatt femtosecond pulses at a repetition rate of 10 Hz. The SXRL works by coupling a resonant HHG pulse into an SXR amplifier. The amplifier is a plasma of Kr⁸⁺ ions emitting at the $3d^9 4d_{(j=0)} \rightarrow 3d^9 4p_{(j=1)}$ transition at 32.8-nm (37.8-eV) generated by optical field ionization of a high-density Kr gas jet by an ultrashort infrared pump pulse (1.5 J, 30-fs, focused at 3×10^{18} W/cm²). As a result of the high electron density of the plasma (up to 10^{20} e⁻/cm³), the pump pulse cannot propagate in the plasma. A waveguide was therefore implemented beforehand by focusing a 0.7-J, 0.6-ns infrared pulse in the gas jet using an axicon lens (39). The HHG was seeded with a 15-mJ, 30-fs infrared pulse focused in an Ar-filled gas cell and coupled into the Kr⁸⁺ amplifier using a grazing incidence toroidal mirror. The 25th harmonic of the HHG spectrum was tuned to the lasing transition by chirping the driver pulse, and the injection delay was set to 1.2 ps to match the SXRL gain peak position.

The SXRL was focused with an ellipsoidal mirror of a focal length of 33 cm (3- μ m diffraction limit) onto the sample. An upper limit on the focal spot of 6- μ m was estimated by the distance it required to move the position of the incident beam in the sample plane between laser shots because of the sample damage. The irradiated spot size was thus estimated to be 4.5 ± 1.5 μ m. To ensure that the sample plane was aligned with the focal position, the z position (optical axis) of the sample was varied until a threshold intensity strong enough to burn holes into the foil was reached. After hitting the sample, the fundamental and SHG beams were focused with a toroidal mirror ($f = 33$ cm) onto a cooled CCD camera (2048 \times 2048 pixels of which a 1024 \times 1024 quadrant was used because of the low pixel quality in the middle of the camera, pixel pitch of 13.5 μ m, -50°C). A total of 394 spectra were recorded, 248 of which had full resolution of the CCD chip and 146 of which with a hardware binned camera of 2×2 pixels.

SUPPLEMENTARY MATERIALS

Supplementary material for this article is available at <http://advances.sciencemag.org/cgi/content/full/7/21/eabe2265/DC1>

REFERENCES AND NOTES

1. E. T. J. Nibbering, D. A. Wiersma, K. Duppen, Ultrafast nonlinear spectroscopy with chirped optical pulses. *Phys. Rev. Lett.* **68**, 514–517 (1992).
2. K. Tanaka, H. Hirori, M. Nagai, THz nonlinear spectroscopy of solids. *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol.* **1**, 301–312 (2011).
3. K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, I. Inoue, T. Osaka, T. Katayama, M. Yabashi, A. Koide, T. Yokoyama, T. Ishikawa, Nonlinear spectroscopy with x-ray two-photon absorption in metallic copper. *Phys. Rev. Lett.* **121**, 083901 (2018).
4. R. W. Boyd, *Nonlinear Optics (3rd Edition)* (Academic Press, 2008).
5. B. E. A. Saleh, M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics* (John Wiley & Sons Inc., 1991).
6. P. B. Petersen, R. J. Saykally, On the nature of ions at the liquid water surface. *Annu. Rev. Phys. Chem.* **57**, 333–364 (2006).
7. Y. R. Shen, Surface properties probed by second-harmonic and sum-frequency generation. *Nature* **337**, 519–525 (1989).
8. K. B. Eisenthal, Liquid interfaces probed by second-harmonic and sum-frequency spectroscopy. *Chem. Rev.* **96**, 1343–1360 (1996).
9. Y. R. Shen, Optical second harmonic generation at interfaces. *Annu. Rev. Phys. Chem.* **40**, 327–350 (1989).
10. D. Hsieh, J. W. McIver, D. H. Torchinsky, D. R. Gardner, Y. S. Lee, N. Gedik, Nonlinear optical probe of tunable surface electrons on a topological insulator. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 057401 (2011).
11. M. Dantus, Coherent nonlinear spectroscopy: From femtosecond dynamics to control. *Annu. Rev. Phys. Chem.* **52**, 639–679 (2001).
12. T. Yagasaki, S. Saito, Fluctuations and relaxation dynamics of liquid water revealed by linear and nonlinear spectroscopy. *Annu. Rev. Phys. Chem.* **64**, 55–75 (2013).
13. P. M. Kraus, M. Zürich, S. K. Cushing, D. M. Neumark, S. R. Leone, The ultrafast x-ray spectroscopic revolution in chemical dynamics. *Nat. Rev. Chem.* **2**, 82–94 (2018).

14. S. Schwartz, M. Fuchs, J. B. Hastings, Y. Inubushi, T. Ishikawa, T. Katayama, D. A. Reis, T. Sato, K. Tono, M. Yabashi, S. Yudovich, S. E. Harris, X-ray second harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 163901 (2014).
15. S. Yamamoto, T. Omi, H. Akai, Y. Kubota, Y. Takahashi, Y. Suzuki, Y. Hirata, K. Yamamoto, R. Yukawa, K. Horiba, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, S. Owada, K. Tono, M. Yabashi, E. Shigemasa, S. Yamamoto, M. Kotsugi, H. Wadati, H. Kumigashira, T. Arima, S. Shin, I. Matsuda, Element selectivity in second-harmonic generation of GaFeO₃ by a soft-x-ray free-electron laser. *Phys. Rev. Lett.* **120**, 223902 (2018).
16. E. Berger, S. Jammuch, C. Uzundal, C. Woodahl, H. Padmanabhan, A. Amado, P. Manset, Y. Hirata, I. Matsuda, V. Gopalan, Y. Kubota, S. Owada, K. Tono, M. Yabashi, Y. Shi, C. Schwartz, W. Drisdell, J. Freeland, T. Pascal, M. Zuerch, Direct observation of symmetry-breaking in a 'ferroelectric' polar metal. arXiv:2010.03134 (2020).
17. R. K. Lam, S. L. Raj, T. A. Pascal, C. D. Pemmaraju, L. Foglia, A. Simoncig, N. Fabbri, P. Miotti, C. J. Hull, A. M. Rizzuto, J. W. Smith, R. Mincigrucchi, C. Masciovecchio, A. Gessini, E. Allaria, G. De Ninno, B. Diviacco, E. Roussel, S. Spampinati, G. Penco, S. Di Mitri, M. Trovò, M. Danailov, S. T. Christensen, D. Sokaras, T.-C. Weng, M. Coreno, L. Poletto, W. S. Drisdell, D. Prendergast, L. Giannessi, E. Principi, D. Nordlund, R. J. Saykally, C. P. Schwartz, Soft x-ray second harmonic generation as an interfacial probe. *Phys. Rev. Lett.* **120**, 023901 (2018).
18. C. P. Schwartz, S. L. Raj, S. Jammuch, C. J. Hull, P. Miotti, R. K. Lam, D. Nordlund, C. B. Uzundal, C. D. Pemmaraju, R. Mincigrucchi, L. Foglia, A. Simoncig, M. Coreno, C. Masciovecchio, L. Giannessi, L. Poletto, E. Principi, M. Zuerch, T. A. Pascal, W. S. Drisdell, R. J. Saykally, Ångström-resolved interfacial structure in organic-inorganic junctions. arXiv:2005.01905 (2020).
19. K. Midorikawa, Y. Nabekawa, A. Suda, XUV multiphoton processes with intense high-order harmonics. *Prog. Quantum Electron.* **32**, 43–88 (2008).
20. S. Sebban, A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, J. Nejdil, M. Kozlova, G. Maynard, J. P. Goddet, A. Tafzi, A. Lifschitz, H. T. Kim, S. Jacquemot, P. Rousseau, P. Zeitoun, A. Rouse, Toward compact and ultra-intense laser based soft x-ray lasers. *Plasma Phys. Control. Fusion* **60**, 014030 (2018).
21. E. Takahashi, Y. Nabekawa, K. Midorikawa, Generation of 10- μ J coherent extreme-ultraviolet light by use of high-order harmonics. *Opt. Lett.* **27**, 1920–1922 (2002).
22. R. Klas, S. Demmler, M. Tschernajew, S. Hädrich, Y. Shamir, A. Tünnermann, J. Rothhardt, J. Limpert, Table-top milliwatt-class extreme ultraviolet high harmonic light source. *Optica* **3**, 1167–1170 (2016).
23. T. Helk, M. Zürich, C. Spielmann, Perspective: Towards single shot time-resolved microscopy using short wavelength table-top light sources. *Struct. Dyn.* **6**, 010902 (2019).
24. A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, J. Nejdil, M. Kozlova, G. Maynard, J. P. Goddet, A. Tafzi, A. Lifschitz, H. T. Kim, S. Jacquemot, V. Malka, K. Ta Phuoc, C. Thauray, P. Rousseau, G. Iaquinello, T. Lefrou, A. Flacco, B. Vodungbo, G. Lambert, A. Rouse, P. Zeitoun, S. Sebban, Table-top femtosecond soft x-ray laser by collisional ionization gating. *Nat. Photonics* **9**, 817–821 (2015).
25. B. L. Henke, E. M. Gullikson, J. C. Davis, X-ray interactions: Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at E = 50–30,000 eV, Z = 1–92. *At. Data Nucl. Data Tables* **54**, 181–342 (1993).
26. M. Fuchs, R. Weingartner, A. Popp, Z. Major, S. Becker, J. Osterhoff, I. Cortie, B. Zeitler, R. Höllein, G. D. Tsakiris, U. Schramm, T. P. Rowlands-Rees, S. M. Hooker, D. Habs, F. Krausz, S. Karsch, F. Grüner, Laser-driven soft-x-ray undulator source. *Nat. Phys.* **5**, 826–829 (2009).
27. P. Hohenberg, W. Kohn, Inhomogeneous electron gas. *Phys. Rev.* **136**, B864–B871 (1964).
28. S. Sharma, C. Ambrosch-Draxl, Second-harmonic optical response from first principles. *Phys. Scr.* **T109**, 128–134 (2004).
29. A. Gulans, S. Kontur, C. Meisenbichler, D. Nabok, P. Pavone, S. Rigamonti, S. Sagmeister, U. Werner, C. Draxl, Exciting: A full-potential all-electron package implementing density-functional theory and many-body perturbation theory. *J. Phys. Condens. Matter* **26**, 363202 (2014).
30. S. Sagmeister, C. Ambrosch-Draxl, Time-dependent density functional theory versus Bethe-Salpeter equation: An all-electron study. *Phys. Chem. Chem. Phys.* **11**, 4451–4457 (2009).
31. J. M. Soler, E. Artacho, J. D. Gale, A. Garcia, J. Junquera, P. Ordejón, D. Sánchez-Portal, The SIESTA method for ab initio order-N materials simulation. *J. Phys. Condens. Matter* **14**, 2745–2779 (2002).
32. K. Yamamoto, Y. Kubota, M. Suzuki, Y. Hirata, K. Carva, M. Berritta, K. Takubo, Y. Uemura, R. Fukaya, K. Tanaka, W. Nishimura, T. Ohkoshi, T. Katayama, T. Togashi, K. Tamasaku, M. Yabashi, Y. Tanaka, T. Seki, K. Takanashi, P. M. Oppeneer, H. Wadati, Ultrafast demagnetization of Pt magnetic moment in L1₀-FePt probed by magnetic circular dichroism at a hard x-ray free electron laser. *New J. Phys.* **21**, 123010 (2019).
33. I. Makos, I. Orfanos, A. Nayak, J. Peschel, B. Major, I. Liontos, E. Skantzakis, N. Papadakis, C. Kalpouzos, M. Dumergue, S. Kühn, K. Varju, P. Johnsson, A. L'Huillier, P. Tzallas, D. Charalambidis, A 10-gigawatt attosecond source for non-linear XUV optics and XUV-pump-XUV-probe studies. *Sci. Rep.* **10**, 3759 (2020).
34. O. Jahn, V. E. Leshchenko, P. Tzallas, A. Kessel, M. Krüger, A. Münzer, S. A. Trushin, G. D. Tsakiris, S. Kahaly, D. Kormin, L. Veisz, V. Pervak, F. Krausz, Z. Major, S. Karsch, Towards intense isolated attosecond pulses from relativistic surface high harmonics. *Optica* **6**, 280–287 (2019).
35. P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte, G. D. Tsakiris, Direct observation of attosecond light bunching. *Nature* **426**, 267–271 (2003).
36. E. J. Takahashi, P. Lan, O. D. Mücke, Y. Nabekawa, K. Midorikawa, Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses. *Nat. Commun.* **4**, 2691 (2013).
37. F. Ferrari, F. Calegari, M. Lucchini, C. Vozzi, S. Stagira, G. Sansone, M. Nisoli, High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields. *Nat. Photonics* **4**, 875–879 (2010).
38. B. Manschwet, L. Rading, F. Campi, S. Maclot, H. Coudert-Alteirac, J. Lahl, H. Wikmark, P. Rudawski, C. M. Heyl, B. Farkas, T. Mohamed, A. L'Huillier, P. Johnsson, Two-photon double ionization of neon using an intense attosecond pulse train. *Phys. Rev. A* **93**, 061402(R) (2016).
39. E. Oliva, A. Depresseux, M. Cotelo, A. Lifschitz, F. Tissandier, J. Gautier, G. Maynard, P. Velarde, S. Sebban, Hydrodynamic evolution of plasma waveguides for soft-x-ray amplifiers. *Phys. Rev. E* **97**, 023203 (2018).
40. A. Jain, S. P. Ong, G. Hautier, W. Chen, W. D. Richards, S. Dacek, S. Cholia, D. Gunter, D. Skinner, K. A. Ceder, K. A. Persson, Commentary: The Materials Project: A materials genome approach to accelerating materials innovation. *APL Mater.* **1**, 011002 (2013).
41. K. Yabana, G. F. Bertsch, Time-dependent local-density approximation in real time. *Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys.* **54**, 4484–4487 (1996).
42. G. F. Bertsch, J.-I. Iwata, A. Rubio, K. Yabana, Real-space, real-time method for the dielectric function. *Phys. Rev. B Condens. Matter Mater. Phys.* **62**, 7998–8002 (2000).
43. C. D. Pemmaraju, F. D. Vila, J. J. Kas, S. A. Sato, J. J. Rehr, K. Yabana, D. Prendergast, Velocity-gauge real-time TDDFT within a numerical atomic orbital basis set. *Comput. Phys. Commun.* **226**, 30–38 (2018).
44. Y. Takimoto, F. D. Vila, J. J. Rehr, Real-time time-dependent density functional theory approach for frequency-dependent nonlinear optical response in photonic molecules. *J. Chem. Phys.* **127**, 154114 (2007).
45. J. P. Perdew, A. Zunger, Self-interaction correction to density-functional approximations for many-electron systems. *Phys. Rev. B* **23**, 5048–5079 (1981).

Acknowledgments: We thank D. Attwood, C. Schwartz, C. Uzundal, and F. Tuitje for fruitful discussions. **Funding:** The research leading to these results has received funding from the European Community's Horizon 2020 research and innovation program under grant agreement no. 654148 (Laserlab Europe). M.Z. acknowledges support by the Max Planck Society (Max Planck Research Group) and the Federal Ministry of Education and Research (BMBF) under "Make our Planet Great Again - German Research Initiative" (grant no. 57427209 "QUESTforENERGY") implemented by DAAD. This work is supported by Investissements d'Avenir Labex PALM (ANR-10-LABX-0039-PALM). J.O. is supported by Basic Science Research Program through the National Research Foundation of Korea funded by the Ministry of Education (2019R1A6A3A03032979). H.-T.C. acknowledges support from the U.S. Air Force Office of Scientific Research nos. FA9550-19-1-0314 and FA9550-20-1-0334 and the W. M. Keck Foundation award no. 046300-002. This research used resources of the National Energy Research Scientific Computing Center, a DOE Office of Science User Facility supported by the Office of Science of the U.S. Department of Energy under contract no. DE-AC02-05CH11231. This work also used the Extreme Science and Engineering Discovery Environment (XSEDE), which is supported by NSF grant no. ACI-1548562. C.S. acknowledges support from the Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG; German Research Foundation) under Germany's Excellence Strategy—EXC 2051 (no. 390713860), "Balance of the Microverse." M.Z. acknowledges funding by the W. M. Keck Foundation (no. 993922), funding from the UC Office of the President within the Multicampus Research Programs and Initiatives (no. M21PL3263), and funding from Laboratory Directed Research and Development Program at Berkeley Lab (no. 107573). **Author contributions:** T.H., L.H., A.K., J.G., F.T., J.-P.G., S.S., and M.Z. performed the experiments. A.K., J.G., F.T., J.-P.G., and S.S. built, optimized, and operated the SXRL. A.K. performed detailed characterization of the SXRL and focus geometry. T.H., A.K., E.B., and M.Z. analyzed the data. S.J., C.D.P., and T.A.P. performed the simulations. J.O. and H.-T.C. performed linear absorption measurements. M.Z. conceived the experiment. C.S. and M.Z. supervised the project. T.H., E.B., and M.Z. wrote the manuscript with input from all authors. **Competing interests:** The authors declare that they have no competing interests. **Data and materials availability:** All data needed to evaluate the conclusions in the paper are available on the Dryad repository under DOI <https://doi.org/10.6078/D1Z11P>. Additional data related to this paper may be requested from the authors.

Submitted 2 September 2020


Accepted 30 March 2021

Published 19 May 2021


10.1126/sciadv.abe2265

Citation: T. Helk, E. Berger, S. Jammuch, L. Hoffmann, A. Kabacinski, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, H.-T. Chang, J. Oh, C. D. Pemmaraju, T. A. Pascal, S. Sebban, C. Spielmann, M. Zuerch, Table-top extreme ultraviolet second harmonic generation. *Sci. Adv.* **7**, eabe2265 (2021).

Femtosecond soft x-ray lasing in dense collisionally-pumped plasma

Adeline Kabacinski , Fabien Tissandier, Julien Gautier, Jean-Philippe Goddet, Igor Andriyash, Philippe Zeitoun, and Stéphane Sebban*

Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-Paristech, CNRS, Ecole Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 828 Bv des Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

Eduardo Oliva 

Instituto de Fusión Nuclear “Guillermo Velarde” and Departamento de Ingeniería Energética, E.T.S.I. Industriales, Universidad Politécnica de Madrid, 28040 Madrid, Spain

Michaela Kozlová 

ELI Beamlines Project, Institute of Physics CAS, Praha 8, and Czech Republic Institute of Plasma Physics CAS, 182 00 Praha 8, Czech Republic



(Received 4 April 2022; accepted 8 June 2022; published 18 July 2022)

We report the first experimental measurement of a strong pulse shortening of a seeded plasma-based soft x-ray laser at high electron densities. As a consequence of the gain gating caused by subsequent collisional ionization, the duration drops from 1.4 ps to an unprecedented value of 520 fs RMS when the electron density increases from 4 to $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. These measurements, performed with an original single-shot method, are in good agreement with results from 3D Maxwell-Bloch simulations.

DOI: [10.1103/PhysRevResearch.4.L032009](https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.4.L032009)

Introduction. Intense and short soft x-ray pulses offer possibilities for studying ultrafast phenomena in matter at the nanometer scale [1–3]. Collisional plasma-based soft x-ray lasers (SXRLs) have the advantage of producing high energy pulses [4] and being compact, therefore enabling, for instance, to perform holographic imaging, second harmonic generation for material science, and interferometry of high density plasmas [5–7]. A variety of SXRLs with energies ranging from 1 μJ to 10 mJ is now available in the wavelength range 6–63 nm [8–10] at a repetition rate up to 400 Hz [11].

However, the pulse duration of these sources is still rather long, ranging from 1.1 ps [12,13] up to 100 ps [4], thus limiting the scope of possible applications. To overcome this constraint, the transposition of chirped pulse amplification technique to the soft x-ray range has been proposed [14]. This theoretical scheme inferred SXRL pulses as short as 200 fs but to our knowledge has not been experimentally demonstrated so far. Other research directions have been considered to bring SXRL in the ultrafast domain. The so-called recombination scheme [15] in plasmas is an attractive candidate, but requires drastic plasma conditions. More recently, the innershell ionization scheme has demonstrated ultrafast durations in the

keV range, however this scheme requires a very intense hard x-ray free-electron laser [16].

Our work is based on an alternative approach relying on the collisional ionization gating of the gain media [17]. In the collisional pumping scheme, the population inversion allowing for a soft x-ray emission is achieved thanks to electron-ion collisions. When the plasma density is increased, more frequent collisions lead to higher gain and saturation intensity but also to an overionization of the lasing ion. It provokes a premature interruption of the gain, which should result in an expected shorter pulse duration. Observation of this feature was made possible by seeding the SXRL amplifier using a highorder harmonic (HH) source at the wavelength of the lasing transition. The gain duration of the seeded amplifier was measured [17] to be as short as 450 fs FWHM for an electron density of 10^{20} cm^{-3} by varying the timing of injection of the seed pulse into the amplifier. Although sub-picosecond duration pulses have been inferred at high densities by simulations, no direct measurement of the SXRL pulse duration had been performed so far in these extreme conditions.

This paper experimentally demonstrates a significant and systematic reduction of the seeded SXRL pulse duration when increasing the density of the amplifier. We measured an SXRL pulse duration as short as 520 fs RMS, therefore breaking the picosecond barrier and opening the path to much shorter durations at higher lasing densities. This investigation was made possible as a consequence of the development of an original jitterfree singleshot temporal profiler based on the rapid reflectivity drop of a soft x-ray multilayer mirror following its irradiation by an ultrashort infrared pulse. It is suited to soft x-ray pulses which are not intense enough to

*stephane.sebban@ensta-paris.fr

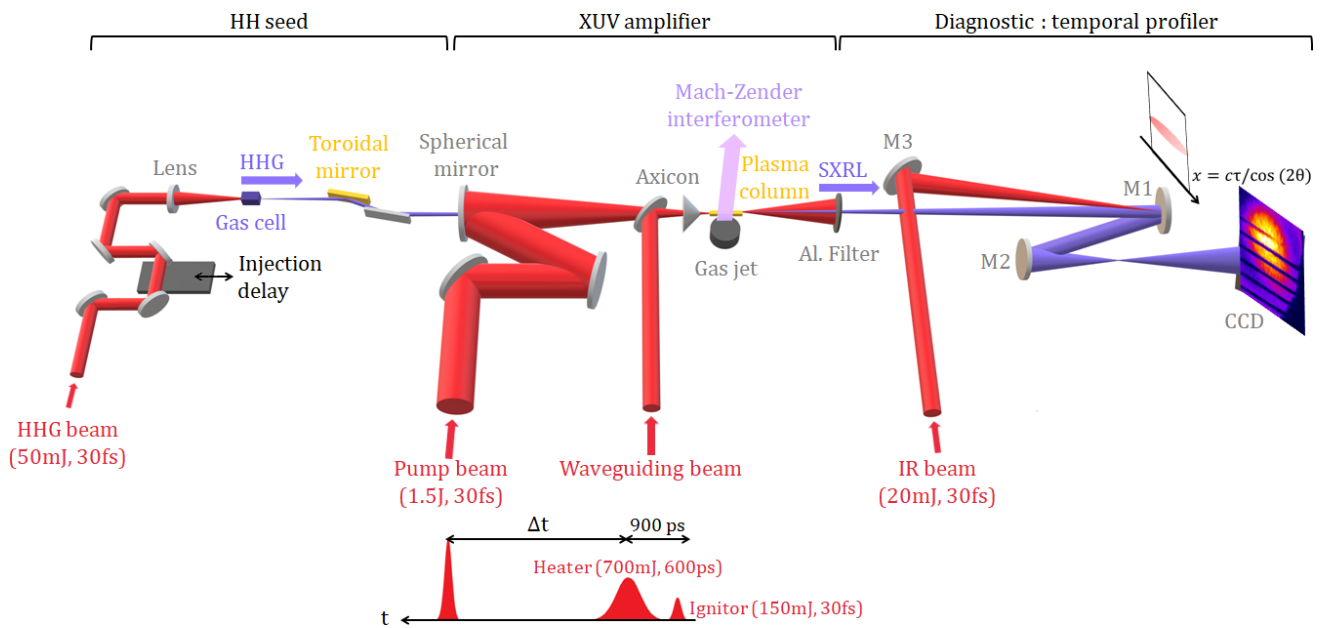


FIG. 1. Experimental setup: generation of the seeded soft x-ray laser and measurement of its temporal profile using a single-shot diagnostic. The soft x-ray beam arrives on a soft x-ray multilayer mirror (M1) with a near-normal incidence. The multilayer mirror is then imaged by a soft x-ray spherical mirror (M2) on a CCD camera. M1 is pumped in a traveling wave geometry by an infrared beam (20 mJ, 30 fs) using an oblique incidence spherical mirror (M3). An example of a measurement is shown, representing the recorded image of the partially reflected SXRL beam on the damaged multilayer mirror. The line on the top corresponds to the current shot, for which the infrared laser is currently propagating. Those on the bottom are post-mortem shots for which the infrared line has already traveled.

induce ultrafast changes of optical properties in matter, and is useful to measure the envelope of their temporal profile even if asymmetric with a femtosecond resolution. Moreover, this method can achieve a measurement in a singleshot where most of the other existing techniques require the previous knowledge of reference measurements.

Experimental Setup. The experiment was performed at Laboratoire d’Optique Appliquée using a multi-terawatt Ti:Sa laser system providing several beams at 1 Hz around a central wavelength of 820 nm. A first pulse of 1.5 J and 30 fs was focused into a 10 mm long gas jet of krypton, resulting in an intensity of $4 \times 10^{18} \text{ Wcm}^{-2}$, to generate a Ni-like Kr soft x-ray amplifier emitting at a wavelength of 32.8 nm (Fig. 1) [18].

To overcome the strong refraction preventing the pump beam propagation along the full length of the gas jet, a second beam was used to preform a plasma waveguide. The beam was composed of two pulses: an “igniter” pulse (150 mJ, 30 fs) followed 900 ps later by a “heater” pulse (700 mJ, 600 ps), both focused by an axicon lens over the whole gas length [19]. The electron density builds up as first electrons generated by the “igniter” get heated and foster avalanche collisional ionization. After 1 ns, the natural hydrodynamic plasma expansion provokes a consequent ejection of electrons. The plasma channel then spreads out, and the density gradient decreases with time [20]. By adjusting the delay Δt between the waveguiding sequence and the pump beam, the amplifier electron density can thus be varied in the range from 4 to $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. The electron density was measured shot-to-shot using a Mach-Zender interferometer with an uncertainty of 10^{19} cm^{-3} [20].

To boost the SXRL output and improve its spatial quality [21,22], a “seed” HH pulse was generated using another

infrared pulse (30 mJ, 30 fs) focused in an argon-filled cell. The 25th harmonic signal was optimized by changing the gas pressure, the beam energy and the focusing conditions, and spectrally tuned onto the amplifier ASE laser line at 32.8 nm by chirping the HH driver beam. The output of the HH source was imaged at the entrance of the amplifying krypton plasma, using a grazing incidence gold coated toroidal mirror, allowing an efficient coupling into the SXRL gain region. The amplification of the seed by the krypton amplifier results in a 32.8 nm Gaussian-like beam profile with a divergence of about 1 mrad. The shot-to-shot pointing variations were estimated to be around 0.1 mrad RMS. In the best conditions, the output energy of our seeded 32.8 nm laser has been measured to be up to $2 \mu\text{J}$ per shot.

To measure the SXRL pulse duration we have developed a new diagnostic enabling single-shot operation with a reasonable time resolution in the soft x-ray range. Existing temporal diagnostics such as streak cameras, cross-correlation techniques [23–25] or methods based on the laser-assisted photoelectric effect [26–28], on the inner-shell resonant absorption [29–31], or on the transient change of optical reflectivity [32] are very powerful tools. However, most of these techniques require several shots or the previous knowledge of reference measurements and are not able to simultaneously provide sufficient temporal resolution and discriminate the front from the rear of the soft x-ray pulse, which is of importance in the case of SXRL where asymmetric gain temporal evolution is theoretically expected.

Our single-shot temporal profiler diagnostic is illustrated in Fig. 1. It is based on a pump-probe technique allowing measurement of the transient reflectivity of a laser-damaged soft x-ray mirror using the 32.8 nm laser as a probe. The

32.8 nm SXRL beam is reflected by a near-normal incidence B₄C/Si multilayer mirror (M1) having 25% peak reflectivity. The M1 mirror surface is imaged onto a CCD camera using an $f = 500$ mm soft x-ray spherical mirror (M2) with a magnification of 2. The 32.8 nm SXRL beam is used here to probe shot to shot the M1 mirror reflectivity. Simultaneously, an infrared pump beam (20 mJ, 30 fs), issued from the same laser system, ensuring an entirely jitter-free measurement, is focused on the M1 mirror surface using an $f = 300$ mm spherical mirror (M3) at an incidence angle θ comprised between 30° and 38° depending on the measurement (Fig. 1). The resulting 8-mm-long focus line deposits its energy on the mirror, ablating the mirror surface within a few tens of femtoseconds [33]. The laser intensity necessary to ensure a total extinction of the soft x-ray reflectivity was found to be lower than 10^{14} Wcm⁻². Aluminum foils, positioned just after the gas jet and in front of the CCD, are used to filter out the IR-coming from, respectively, the beam pumping the plasma amplifier and the beam pumping the multilayer mirror- from the x-ray signal.

This technique intrinsically causes the pump beam wavefront to be tilted with respect to the mirror surface, allowing the energy deposition on the mirror to travel along the focal line [34,35]. The corresponding spatial coordinate x in the multilayer mirror plane thus corresponds to $\tau = x \cos(2\theta)/c$, the arrival time of the infrared beam. The traveling wave velocity is therefore given by $c/\cos(2\theta)$, here comprised between $2c$ and $4c$. The accurate synchronization of the pump pulse, as well as the calibration between spatial and temporal coordinates, were determined by scanning the infrared beam delay line. Since the multilayer mirror is reflective before pump energy deposition and absorbing when damaged, the reflected soft x-ray intensity profile arriving simultaneously with the infrared line, named $I(x)$, results from an integration of the temporal profile of the soft x-ray pulse:

$$I\left(x = \frac{c\tau}{\cos(2\theta)}\right) = I_0(x) \int_{-\infty}^{+\infty} \phi(t)R(t - \tau) dt \quad (1)$$

where ϕ is the temporal intensity profile of the soft x-ray pulse, I_0 represents the reference (i.e. reflected by undamaged mirror) spatial profile of the SXRL beam, and R is a Heaviside function equal to 1 if $t - \tau < 0$ and 0 otherwise. This equation is similar to the one used when performing a knife-edge beam profile measurement [36]. It should be noted that, in this setup, the temporal window that can effectively be probed during the shot is given by the spatial extension of the soft x-ray line focus along the x direction. Here, this time span is about 4 ps which is sufficient considering the expected pulse duration.

Figure 2(a) shows the recorded image of the partially reflected SXRL beam on the damaged multilayer mirror at an electron density of 7.6×10^{19} cm⁻³. The line on the top represents the current shot, for which the infrared laser is currently propagating. The lines on the bottom are post-mortem shots for which the infrared laser has already traveled. The beam horizontal cross-sections I_0 and I , plotted respectively in green and blue in Fig. 2(b), are extracted on a singleshot and fitted to avoid spurious numerical amplification of the noise during postprocessing. The reference intensity I_0 has a Gaussian

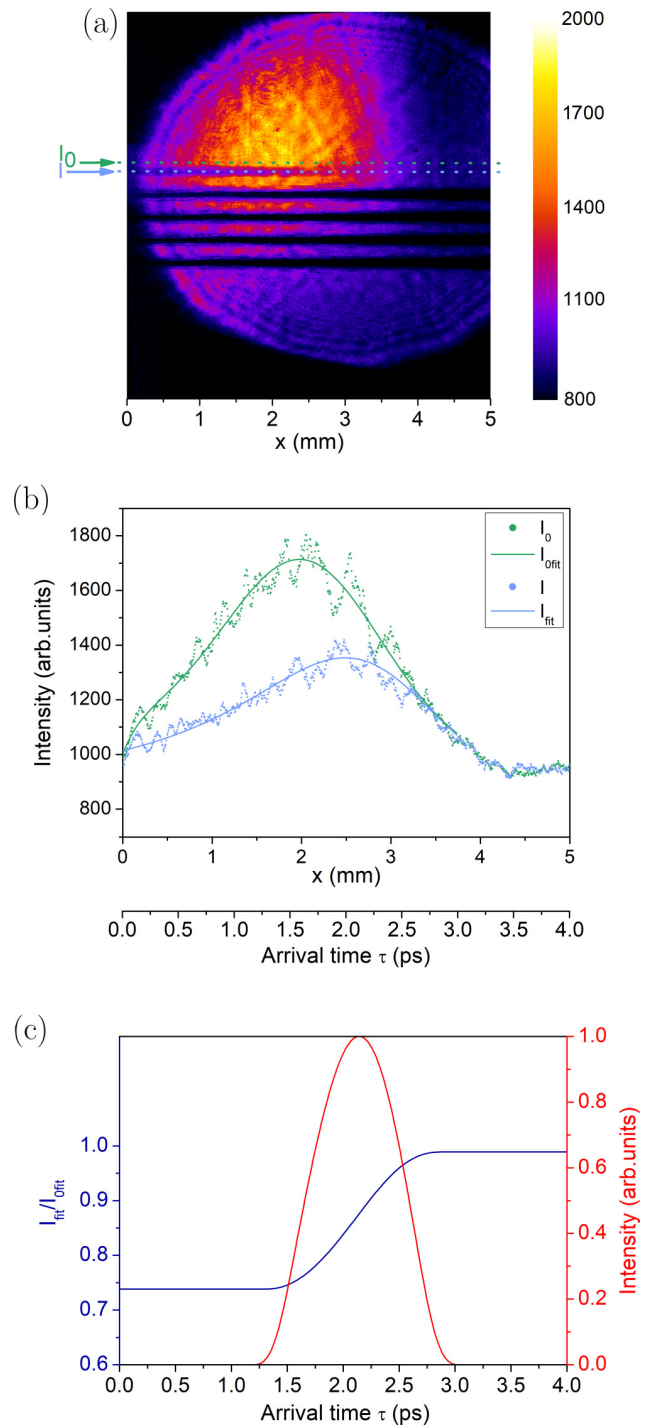


FIG. 2. Example of a single-shot reconstruction of the SXRL temporal profile at an electron density of 7.6×10^{19} cm⁻³ : I_0 and I , respectively in green and light blue, are recorded on a singleshot and are then fitted. The temporal profile in red is finally derived from the derivative of the ratio $I_{\text{fit}}/I_{0\text{fit}}$ in dark blue.

shape. The intensity I is fitted with an exponentially modified Gaussian curve to conserve the reference shape while taking into account the ablating process. The normalized intensity profile is finally obtained by reversing the equation 1, i.e. by calculating the derivative of the ratio $I_{\text{fit}}/I_{0\text{fit}}$. This ratio,

as well as the reconstructed temporal profile, are plotted in Fig. 2(c). Since τ represents the arrival time of the infrared beam, the origin of the temporal profile is arbitrary.

The resolution of the pulse duration measurement depends on a few factors: the multilayer mirror ablation time (about 30 fs), the uncertainty of the calibration between the spatial and the temporal coordinates (here 0.5 fs/pixel), the spatial resolution of the imaging system in the x direction (estimated to be around 50 μm equivalent to 40 fs), and the fitting uncertainty which can induce a maximum error of 50 fs. The effective resolution of our diagnostic has been estimated to be as short as 200 fs.

Results and discussion. The purpose of this paper is to demonstrate experimentally the reduction of the SXRL pulse duration induced by the gain quenching at high densities down to the femtosecond time scale. An estimation of the gain duration can be obtained by measuring the soft x-ray intensity as a function of the delay between the creation of the plasma amplifier and the injection time of the HH seed. Figures 3(a) and 3(b) display this measurement in red for the respective electron densities of 4.4 and $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Uncertainties are determined by measuring the repeatability over five shots. These data clearly show a stronger amplification of the seed pulse when the injection time is synchronized with the gain period and reveal the actual amplification dynamics at a given electron density. The amplification period is shorter and starts earlier with steeper slope for higher plasma densities. Here we inferred that the maximum amplification is respectively achieved at 1.8 ps and 1.2 ps after the plasma creation when electron density ranges from 4.4 to $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. The amplification respectively lasts for about 1.7 ps to 1.0 ps RMS. Indeed, collisional overionization of the lasing-ion is favored at high densities. As the amplifier lifetime strongly depends on the depletion rate of the lasing population, increasing the electron density results in a premature interruption of the lasing action. As a consequence, the amplification duration is shortened at high densities.

Jointly with the amplification dynamics, duration measurements of the 32.8 nm seeded SXRL have been performed for several electron densities. These measurements have been performed thanks to the above-described diagnostic. Reconstruction of the temporal profiles obtained for 4.4 and $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ are respectively shown in green in Figs. 3(a) and 3(b). Here, the rising edge of the pulse is artificially set on the rising edge of the amplification dynamics. The RMS pulse duration has been measured to drop from 1.2 ± 0.3 ps at $4.4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ to 520 ± 200 fs at $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, which is the first direct measurement of a sub-picosecond SXRL pulse. The measured temporal profile shown in Fig. 3(b) is the shortest pulse obtained at this electron density. Furthermore, these measurements show that the temporal profile of the 32.8 nm SXRL exhibits the same faster rising edge at high densities as the measured amplification dynamics. It can be noted that the pulse duration is shorter than the amplification duration. This can be explained by the fact that the amplification duration is estimated by the measurement of the SXRL signal with respect to the harmonic injection delay. Since the SXRL signal is integrated over propagation and as the pump and seed pulses have inherently different group velocities, the measured amplification dynamics is longer than the theoretic

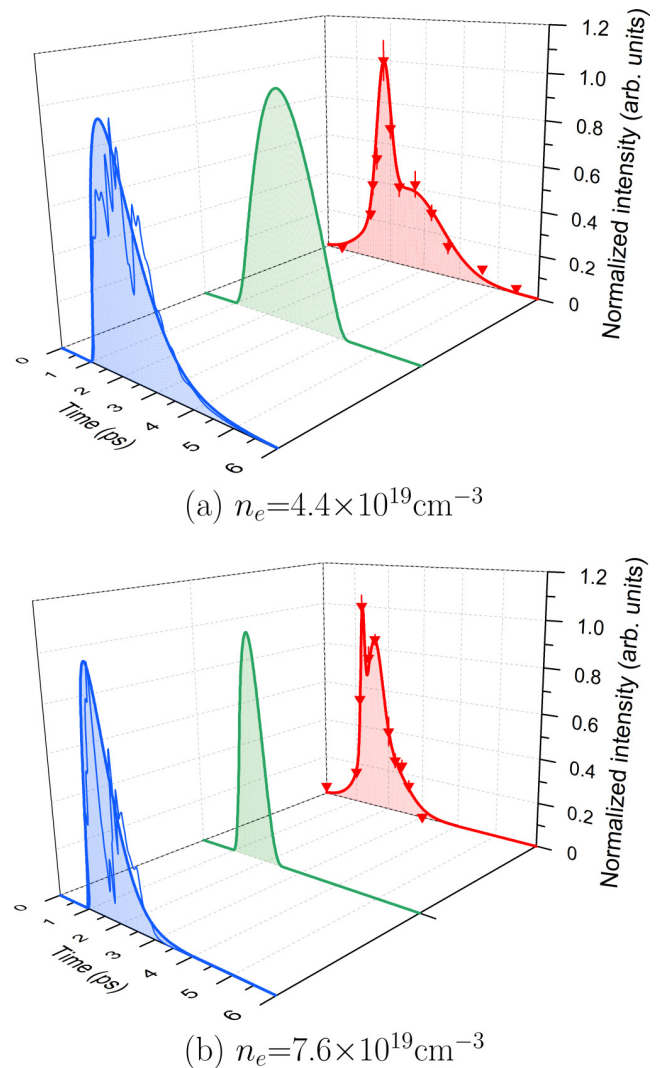


FIG. 3. Measured amplification dynamics in red, measured temporal profiles in green, and simulated temporal profiles in blue for different electron densities of the plasma amplifier. The measured temporal profile shown in the case of $n_e = 7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ is the shortest pulse obtained at this electron density.

cal gain duration and therefore longer than the pulse duration. Also it can be noticed that the SXRL pulse duration is much longer than the harmonics duration, which is due to the strong spectral gain narrowing induced by amplification [37].

Experimental temporal profiles have also been compared to simulated profiles obtained with the DAGON 3D Maxwell-Bloch code [38,39] which models the full spatio-temporal structure of the HH seed amplified through the plasma amplifier. DAGON uses as input the 3D structure of the plasma amplifier, as given by hydrodynamic and Particle-In-Cell (PIC) simulations. The creation and evolution of the plasma waveguide is modeled with the 2D radiative hydrodynamics code ARWEN [40,41]. This code solves the equations of compressible fluid dynamics coupled to energy transfer processes: electronic diffusion, radiative transfer, and laser propagation and absorption. The resulting density profile is fed to a 2D axisymmetric PIC code, FBPIC [42]. This code solves

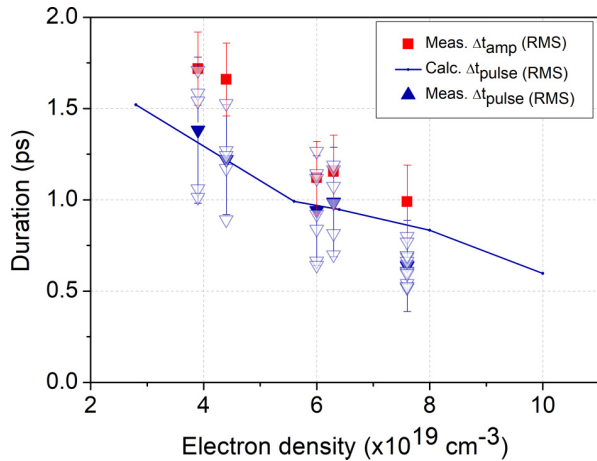


FIG. 4. Respectively in red and blue, RMS measured amplification duration (Δt_{amp}) and RMS pulse duration (Δt_{pulse}) with respect to the electron density of the plasma amplifier. Triangles and squares are used for measurements points. Filled symbols are used for averaging over few shots. Empty triangles stand for shot-to-shot measurements. Solid lines correspond to the 3D Maxwell-Bloch simulations.

Maxwell's equations and the relativistic motion equations for the macroparticles that model the plasma. The temporal dynamics of the lasing ion and population inversion is modeled with the collisional-radiative code OFIKinRad [43]. Nonequilibrium effects are taken into account by solving a Fokker-Planck equation to compute the electron energy distribution function and, afterwards, the cross sections. The output of FBIC and OFIKinRad is used by DAGON to compute the temporal dynamics of the plasma amplifier. DAGON solves the set of 3D Maxwell-Bloch equations in the paraxial and slowly varying envelope approximation, taking into account the temporal dynamics of the amplifier medium. The three-dimensional aspect of the code is required to take into account the plasma inhomogeneities [44], as well as the 3D stochastic structure of the Amplified Spontaneous Emission (ASE). We modeled a $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m} \times 10 \text{mm}$ amplifier, using a mesh consisting in $100 \times 100 \times 2000$ cells. The timestep was fixed to 10 fs. Simulations, shown in blue in Fig. 3, exhibit intensity modulations that can not be observed experimentally. The envelope of the simulated profiles is plotted on the same graph to ease the comparison with our measurements. When increasing the electron density from Fig. 3(a) to 3(b), the simulated RMS duration of the envelope is reduced from 1.5 ps to 0.8 ps, in good agreement with measurements. It can be noted that the simulated temporal profile has slightly faster rising time than falling edge in agreement with the shape observed in the temporal profile and amplification dynamics measurements.

Systematic measurements and simulations for electron densities ranging from $3.9 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ to 10^{20} cm^{-3} have been performed. The corresponding RMS amplification and pulse durations are represented in Fig. 4. Squares and triangles stand for measurements, empty triangles are used for shot-to-shot measurements. The uncertainty on each pulse duration measurement point is obtained by taking into consideration the measurement uncertainty described above and the

repeatability uncertainty over between 5 and 10 shots, resulting in a total enlarged uncertainty on the RMS pulse duration comprised between 250 fs (for the highest densities) and 400 fs (for the lowest densities) depending on the measurement point. Measurements exhibit a monotonic reduction of the amplification duration from $1.7 \pm 0.2 \text{ ps}$ to $1.0 \pm 0.2 \text{ ps}$ RMS when the electron density is increased from 3.9 to $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. The pulse duration appears to be strongly correlated to the amplification duration and is consequently reduced from $1.4 \pm 0.4 \text{ ps}$ down to $640 \pm 250 \text{ fs}$ RMS. The direct experimental demonstration of the pulse duration reduction induced by the gain quenching at high densities is therefore achieved for the first time. The shortest pulse duration that we obtained on a singleshot at $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ is $520 \pm 200 \text{ fs}$ RMS is the shortest collisional SXRL duration ever directly reported. The SXRL pulse duration values issued from the 3D Maxwell-Bloch calculations are plotted in solid lines on the same graph. Simulations are in good agreement with those experimental results, and predict that the pulse duration continues to decrease for density as high as 10^{20} cm^{-3} , which is accessible although the current configuration does not allow to reach it.

Conclusion. In summary, we have demonstrated experimentally a femtosecond collisional plasma-based SXRL, with the first direct measurement of sub-picosecond pulses. Measurements exhibit a reliable decrease of the pulse duration, correlated with the reduction of the amplification period when the density increases up to $7.6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. An unprecedented duration of 520 fs has therefore been measured in close agreement with the theoretical predictions, thus experimentally breaking the decade-long picosecond range. The proposed original single-shot method is enabling to measure pulse duration for most fast and ultrafast sources in the soft x-ray range with a resolution as short as 200 fs. The simultaneous measurement of the unperturbed reference beam here is an asset in mitigating shot-to-shot fluctuations of the laser plasma-based soft x-ray sources. The measured temporal profiles are in agreement with 3D time-dependent Maxwell-Bloch simulations over a wide range of electron density therefore enabling the validation of plasma kinetic codes on a subpicosecond time scale. Simulations predict even shorter durations at 10^{20} cm^{-3} , paving the way for numerous applications requiring high intensity soft x-ray pulses to excite or probe ultrafast processes in matter at nanometer scale.

Acknowledgments. This work is supported "Investissements d'Avenir" by Labex PALM (ANR-10-LABX-0039-PALM) and has received funding from the European Union's Horizon 2020 research and innovation program under Grant Agreement No. 654148 Laserlab-Europe, and was also supported by Grant agency of the Czech Republic, Project No. 18-27340S. The authors acknowledge support from COST (European Cooperation in Science and Technology for funding the Action TUMIEE (CA17126) supporting this work. E.O. received funds from the Universidad Politécnic de Madrid and the Comunidad Autónoma de Madrid, línea de actuación estímulo a la investigación de jóvenes doctores, project CROM and the Spanish Ministerio de Ciencia e Innovación through a Ramón y Cajal RYC2018-026238-I fellowship.

- [1] K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, J. Blums, A. Cavalleri, C. Dietrich, A. Tarasevitch, I. Uschmann, E. Förster, M. Kammler, M. H. von Hoegen, and D. von der Linde, Femtosecond X-ray measurement of coherent lattice vibrations near the Lindemann stability limit, *Nature (London)* **422**, 287 (2003).
- [2] E. Gagnon, P. Ranitovic, X.-M. Tong, C. L. Cocke, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and A. S. Sandhu, Soft X-ray-driven femtosecond molecular dynamics, *Science* **317**, 1374 (2007).
- [3] H. N. Chapman, S. P. Hau-Riege, M. J. Bogan, S. Bajt, A. Barty, S. Boutet, S. Marchesini, M. Frank, B. W. Woods, W. H. Benner, R. A. London, U. Rohner, A. Szöke, E. Spiller, T. Möller, C. Bostedt, D. A. Shapiro, M. Kuhlmann, R. Treusch, E. Plönjes *et al.*, Femtosecond time-delay X-ray holography, *Nature (London)* **448**, 676 (2007).
- [4] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlová, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux, and D. Phalippou, Multimillijoule, highly coherent X-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification, *Phys. Rev. A* **66**, 063806 (2002).
- [5] P. W. Wachulak, M. C. Marconi, R. A. Bartels, C. S. Menoni, and J. J. Rocca, Soft X-ray laser holography with wavelength resolution, *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **25**, 1811 (2008).
- [6] T. Helk, E. Berger, S. Jamnuch, L. Hoffmann, A. Kabacinski, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, H.-T. Chang, J. Oh, C. D. Pemmaraju, T. A. Pascal, S. Sebban, C. Spielmann, and M. Zuerch, Table-top extreme ultraviolet second harmonic generation, *Sci. Adv.* **7**, eabe2265 (2021).
- [7] J. Filevich, J. J. Rocca, E. Jankowska, E. C. Hammarsten, K. Kanizay, M. C. Marconi, S. J. Moon, and V. N. Shlyaptsev, Two-dimensional effects in laser-created plasmas measured with soft X-ray laser interferometry, *Phys. Rev. E* **67**, 056409 (2003).
- [8] A. Rockwood, Y. Wang, S. Wang, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, and J. J. Rocca, Compact gain-saturated X-ray lasers down to 6.85 nm and amplification down to 5.85 nm, *Optica* **5**, 257 (2018).
- [9] B. E. Lemoff, C. P. Barty, and S. E. Harris, Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-times-ionized noble gases, *Opt. Lett.* **19**, 569 (1994).
- [10] F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, A. Kabacinski, S. Sebban, J. Nejdil, M. Kozlová, and G. Maynard, Two-Color Soft X-Ray Lasing in a High-Density Nickel-like Krypton Plasma, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 133902 (2020).
- [11] J. J. Rocca, B. A. Reagan, C. Baumgarten, Y. Wang, S. Wang, M. Pedicone, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, C. N. Kyaw, L. Yin, H. Wang, M. C. Marconi, and C. S. Menoni, Progress in high repetition rate soft X-ray laser development and pump lasers at Colorado State University, *X-ray Lasers and Coherent X-ray Sources: Development and Applications*, Vol. 10243 (SPIE, USA, 2017).
- [12] Y. Wang, M. Berrill, F. Pedaci, M. M. Shakya, S. Gilbertson, Z. Chang, E. Granados, B. M. Luther, M. A. Larotonda, and J. J. Rocca, Measurement of 1-ps soft X-ray laser pulses from an injection-seeded plasma amplifier, *Phys. Rev. A* **79**, 023810 (2009).
- [13] A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, R. Smith, G. Jamelot, C. Chenais-Popovics, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, F. Strati, G. J. Tallents, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A. G. MacPhee, F. Bortolotto, P. V. Nickles, and K. A. Janulewicz, Demonstration of a 2-ps transient X-ray laser, *Phys. Rev. A* **65**, 033810 (2002).
- [14] E. Oliva, M. Fajardo, L. Li, M. Pittman, T. T. T. Le, J. Gautier, G. Lambert, P. Velarde, D. Ros, S. Sebban, and P. Zeitoun, A proposal for multi-tens of GW fully coherent femtosecond soft X-ray lasers, *Nat. Photonics* **6**, 764 (2012).
- [15] P. Amendt, D. C. Eder, and S. C. Wilks, X-Ray Lasing by Optical-Field-Induced Ionization, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2589 (1991).
- [16] H. C. Kapteyn, Photoionization-pumped X-ray lasers using ultrashort-pulse excitation, *Appl. Opt.* **31**, 4931 (1992).
- [17] A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, J. Nejdil, M. Kozlová, G. Maynard, J. P. Goddet, A. Tafzi, A. Lifschitz, H. T. Kim, S. Jacquemot, V. Malka, K. T. Phuoc, C. Thauray, P. Rousseau, G. Iaquaniello, T. Lefrou, A. Flacco, B. Vodungbo *et al.*, Table-top femtosecond soft X-ray laser by collisional ionization gating, *Nat. Photonics* **9**, 817 (2015).
- [18] S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, P. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin, Demonstration of a Ni-Like Kr Optical-Field-Ionization Collisional Soft X-Ray Laser at 32.8 nm, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 253901 (2002).
- [19] M. C. Chou, P. H. Lin, C. A. Lin, J. Y. Lin, J. Wang, and S. Y. Chen, Dramatic Enhancement of Optical-Field-Ionization Collisional-Excitation X-Ray Lasing by an Optically Preformed Plasma Waveguide, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 063904 (2007).
- [20] E. Oliva, A. Depresseux, M. Cotelto, A. Lifschitz, F. Tissandier, J. Gautier, G. Maynard, P. Velarde, and S. Sebban, Hydrodynamic evolution of plasma waveguides for soft X-ray amplifiers, *Phys. Rev. E* **97**, 023203 (2018).
- [21] P. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, P. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin, A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam, *Nature (London)* **431**, 426 (2004).
- [22] Y. Wang, E. Granados, F. Pedaci, D. Alessi, B. Luther, M. Berrill, and J. J. Rocca, Phase-coherent, injection-seeded, table-top soft X-ray lasers at 18.9 nm and 13.9 nm, *Nat. Photonics* **2**, 94 (2008).
- [23] Y. Kobayashi, O. Yoshihara, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe, Femtosecond measurement of high-order harmonic pulse width and electron recombination time by field ionization, *Opt. Lett.* **21**, 417 (1996).
- [24] Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe, 27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics, *Opt. Lett.* **23**, 64 (1998).
- [25] T. Sekikawa, T. Katsura, S. Miura, and S. Watanabe, Measurement of the Intensity-Dependent Atomic Dipole Phase of a High Harmonic by Frequency-Resolved Optical Gating, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 193902 (2002).
- [26] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz, Observation of Laser-Assisted Auger Decay in Argon, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2180 (1994).
- [27] A. Bouhal, R. Evans, G. Grillon, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, and D. von der Linde, Cross-correlation measurement of femtosecond non-

- collinear high-order harmonics, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 950 (1997).
- [28] 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 (London)* **414**, 509 (2001).
- [29] K. Oguri, H. Nakano, T. Nishikawa, and N. Uesugi, Cross-correlation measurement of ultrashort soft X-ray pulse emitted from femtosecond laser-produced plasma using optical field-induced ionization, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 4506 (2001).
- [30] K. Oguri, T. Ozaki, T. Nishikawa, and H. Nakano, Femtosecond-resolution measurement of soft X-ray pulse duration using ultra-fast population increase of singly charged ions induced by optical-field ionization, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **78**, 157 (2004).
- [31] K. Oguri, T. Nishikawa, T. Ozaki, and H. Nakano, Sampling measurement of soft X-ray-pulse shapes by femtosecond sequential ionization of Kr⁺ in an intense laser field, *Opt. Lett.* **29**, 1279 (2004).
- [32] O. Krupin, M. Trigo, W. F. Schlotter, M. Beye, F. Sorgenfrei, J. J. Turner, D. A. Reis, N. Gerken, S. Lee, W. S. Lee, G. Hays, Y. Acremann, B. Abbey, R. Coffee, M. Messerschmidt, S. P. Hau-Riege, G. Lapertot, J. Lüning, P. Heimann, R. Soufli *et al.*, Temporal cross-correlation of X-ray free electron and optical lasers using soft X-ray pulse induced transient reflectivity, *Opt. Express* **20**, 11396 (2012).
- [33] U. Teubner, U. Wagner, and E. Förster, Sub-10 fs gating of optical pulses, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **34**, 2993 (2001).
- [34] R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith, and V. N. Shlyaptsev, High-Repetition-Rate Grazing-Incidence Pumped X-Ray Laser Operating at 18.9 nm, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 103901 (2005).
- [35] M. Grünig, C. Imesch, F. Staub, and J. Balmer, Saturated X-ray lasing in Ni-like Sn at 11.9 nm using the GRIP scheme, *Optics Communication* **282**, 267 (2009).
- [36] S. Handa, T. Kimura, H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi, Extended knife-edge method for characterizing sub-10-nm X-ray beams, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A* **616**, 246 (2009).
- [37] F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribiere, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, A. B. Sardinha, J.-P. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, C. Valentin, A. Rousse, O. Guilbaud, A. Klisnick, J. Nejd, T. Mocek, and G. Maynard, Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft X-ray amplifier, *Phys. Rev. A* **81**, 063833 (2010).
- [38] E. Oliva, M. Cotelo, J. C. Escudero, A. González-Fernández, A. Sanchís, J. Vera, S. Vicéns, and P. Velarde, DAGON: a 3D Maxwell-Bloch code, *Proc. SPIE 10243, X-ray Lasers and Coherent X-ray Sources: Development and Applications*, Vol. 10243 (SPIE, USA, 2017).
- [39] E. Oliva, E. V. Fernandez-Tello, M. Cotelo, P. M. Gil, J. A. Moreno, and P. Velarde, 3D multi-scale modelling of plasma-based seeded soft X-ray lasers, *The European Physical Journal D* **75**, 290 (2021).
- [40] F. Ogando and P. Velarde, Development of a radiation transport fluid dynamic code under AMR scheme, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer* **71**, 541 (2001).
- [41] M. Cotelo, P. Velarde, A. de la Varga, D. Portillo, C. Stehlé, U. Chaulagain, M. Kozlova, J. Larour, and F. Suzuki-Vidal, Simulation of radiative shock wave in Xe of last PALS experiments, *High Energy Density Phys.* **17**, 68 (2015), 10th International Conference on High Energy Density Laboratory Astrophysics.
- [42] R. Lehe, M. Kirchen, I. A. Andriyash, B. B. Godfrey, and J.-L. Vay, A spectral, quasi-cylindrical and dispersion-free particle-in-cell algorithm, *Comput. Phys. Commun.* **203**, 66 (2016).
- [43] B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban, and G. Maynard, Characterization of the collisionally pumped optical-field-ionized soft X-ray laser at 41.8nm driven in capillary tubes, *Phys. Rev. A* **73**, 033801 (2006).
- [44] F. Tuitje, P. M. Gil, T. Helk, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, A. Guggenmos, U. Kleineberg, S. Sebban, E. Oliva, C. Spielmann, and M. Zürch, Nonlinear ionization dynamics of hot dense plasma observed in a laser-plasma amplifier, *Light Sci. Appl.* **9**, 187 (2020).

Spatio-temporal couplings for controlling group velocity in longitudinally pumped seeded soft X-ray lasers

Received: 11 July 2022

Accepted: 24 January 2023

Published online: 02 March 2023

 Check for updates

Adeline Kabacinski¹, Eduardo Oliva², Fabien Tissandier¹, Julien Gautier¹, Michaela Kozlová^{3,4}, Jean-Philippe Goddet¹, Igor A. Andriyash¹, Cédric Thauray¹, Philippe Zeitoun¹ & Stéphane Sebban¹✉

Controlling the group velocity of an ultrashort laser pulse by means of spatio-temporal couplings has been proposed to overcome the inherent limitations in laser–plasma interactions. Here we report how this method improves the performance of a seeded soft X-ray laser (SXRL), which intrinsically suffers from group velocity mismatch between the infrared pump beam, used to generate the plasma amplifier, and the soft X-ray seed beam. The energy extraction was measured to be three times higher when the pump group velocity varied from 0.55c to 1.05c. We also demonstrate that the SXRL pulse duration is governed by the pump beam velocity. By compensating the natural group velocity mismatch, the SXRL pulse duration can be kept constant along its propagation, resulting in energetic pulses (up to 2 μ J) as short as 350 fs. Such achievements constitute an experimental demonstration of the so-called ‘flying focus effect’ in an application by controlling the group velocity of a high-intensity laser pulse propagating in a plasma.

The laser–plasma interaction has aroused great interest because of its applications in scientific, medical and industrial domains^{1,2}. A plasma is a negative dispersion medium in which the propagation velocity of a wave depends on its wavelength, and the longer the wavelength, the slower the wave propagates. This effect becomes increasingly important as the plasma density increases, and often has limiting consequences. For example, in laser-wakefield accelerators³, dephasing originates from the difference between the laser and electron-bunch velocities. This causes electrons to move into a phase region of the plasma that is decelerating, therefore restricting the acceleration length and the electron-beam energy gain. In photon accelerators⁴, high plasma densities are required as they produce a strong refractive index gradient and consequently a strong associated frequency shift. However, these favourable conditions are accompanied by stronger

plasma dispersion, resulting in faster decoupling between the photon beam and the ionization wave, and thus in shorter interaction lengths. In longitudinally pumped seeded soft X-ray lasers (SXRLs), the plasma dispersion results in a desynchronization between the infrared beam used to pump the amplifier and the soft X-ray seed beam. This inevitably leads to a temporal stretching of the SXRL pulse and to a poor energy extraction from the energy contained in the amplified spontaneous emission (ASE) to the amplified seed. Moreover, high electron densities and long amplifiers are key for SXRL optimization, but in these conditions the natural desynchronization between the gain and the seed becomes so strong that it prevents amplification (Supplementary Figs. 1 and 2). For further improvements of the source, compensating the plasma dispersion will therefore become the most limiting factor and will have to be systematically addressed.

¹Laboratoire d’Optique Appliquée, ENSTA-Paristech, CNRS, Ecole Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, Palaiseau, France. ²Instituto de Fusión Nuclear ‘Guillermo Velarde’ and Departamento de Ingeniería Energética, E.T.S.I. Industriales, Universidad Politécnica de Madrid, Madrid, Spain.

³ELI Beamlines Project, Institute of Physics CAS, Praha, Czech Republic. ⁴Institute of Plasma Physics CAS, Praha, Czech Republic.

✉ e-mail: stephane.sebban@ensta-paris.fr

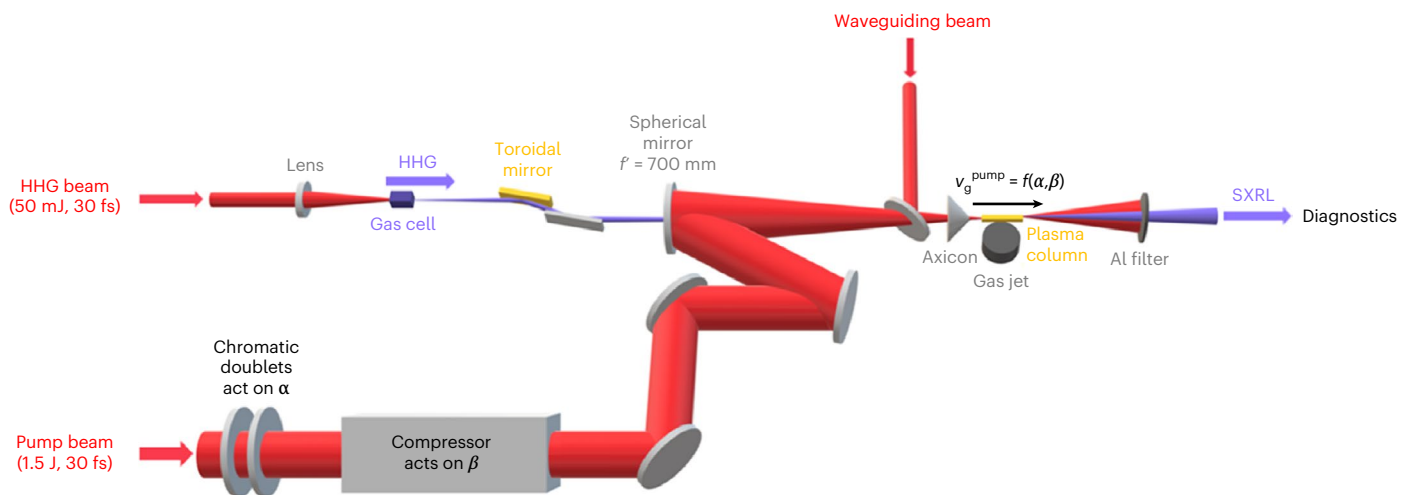


Fig. 1 | Experimental set-up. Generation of the seeded SXRL with a longitudinal pumping scheme. The group velocity v_g^{pump} of the pump beam is controlled by adjustment of spatio-temporal couplings. PFC, characterized by parameter α , is

varied by inserting chromatic doublets of infinite focal length in the beam before compression. Temporal chirp, characterized by β , is adjusted by varying the distance between the gratings of the compressor.

One proposal to overcome these bottlenecks is to control the group velocity of the laser beam along the Rayleigh length. Several techniques have been suggested for this purpose^{5–8}. One of them is based on the use of two spatio-temporal couplings (STCs). Pulse front curvature (PFC; quantified by α (in units of fs cm^{-2}), equivalent in the far field to longitudinal chromatism) induces the different spectral components of a beam to be focused at different longitudinal positions. Coupled with temporal chirp (quantified by β (in units of fs^2)), which changes the timing between these different wavelengths, PFC enables control of the velocity of the peak intensity of an ultrashort pulse on axis⁹. This phenomenon is known as the ‘flying focus effect’. Depending on the amount of those STCs, the peak intensity can be deposited either from the back to the front of the focal region, or in the opposite direction. Subluminal to superluminal pulses have been demonstrated¹⁰, paving the way for novel control of laser–plasma interactions. With this method, the ability to adjust the velocity of a femtosecond pulse in vacuum has been demonstrated¹¹, as well as the ability to drive ionization waves of arbitrary velocity, which has been experimentally observed with moderate laser intensities^{12,13}. Although simulations promise breakthroughs for photon acceleration¹⁴ or Raman amplification¹⁵, direct experimental application with high-intensity lasers has not been reported as yet.

This Article describes the application of this flying focus effect to a high-intensity laser pulse ($4 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$) propagating in a plasma, and demonstrates the benefit of controlling the group velocity in the laser–plasma interaction in the benchmark case of a longitudinally pumped seeded SXRL. The development of SXRLs has been motivated by the hope of carrying out, at the laboratory scale, single-shot dynamical studies in the nanometre-wavelength domain. Seeded SXRLs are energetic sources¹⁶ that are available in a wide spectral range^{17–19}. Their amplifying medium is a highly charged plasma, created by the interaction of an intense laser beam with a solid²⁰ or a gas²¹. Population inversion is achieved thanks to collisional excitation, resulting in strong ASE in the soft X-ray range (typically $3.5 \mu\text{J}$). The spatial properties of the SXRL beam can be improved by seeding the amplifier with high-order harmonics (HH)^{22,23}, resulting in a coherent Gaussian-like diffraction-limited beam²⁴. The harmonics and the seeded SXRL energies being respectively below 1 nJ and close to $2 \mu\text{J}$, the amplification factor is $\sim 2,000$.

Nevertheless, the seeding process has intrinsic limitations, as the soft X-ray seed naturally propagates faster than the infrared pump into the plasma amplifier. This group velocity mismatch increases at high

electron densities, which are required to generate a short gain life time as well as intense amplification^{25,26}. For example, at an electron density of $n_e = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, the soft X-ray beam basically propagates at the speed of light, c , whereas the infrared pump beam only propagates at $0.97c$. This consequently leads to a desynchronization between the seed and the subpicosecond gain window²⁵, preventing a centimetre-scale amplification length. For transient SXRLs, the use of a travelling wave has been proposed to match the heating of the plasma with the propagation of the soft X-ray photons in the plasma column²⁷. However, this technique is not suitable for a longitudinal geometry and has never been used to compensate the plasma dispersion.

In this Article we investigate how the desynchronization between the gain and the seed affects the energy and pulse duration of SXRLs by harnessing spatio-temporal couplings (PFC and temporal chirp) to control the group velocity of the pump beam. The amount of PFC is varied by inserting chromatic doublets of infinite focal length in the pump beam, and the amount of temporal chirp is adjusted with the distance between the gratings of the pump compressor (Fig. 1 and Methods). The PFC enables us to deposit the intensity of the pump beam in a line along the longitudinal direction. Temporal chirp changes the delay at which a given spectral component arrives at a given longitudinal position. The group velocity of the pump beam can therefore be set at a value that is different from the natural group velocity induced by plasma dispersion at a given electron density.

We first investigated the amount of energy contained in the amplified seed, and its proportion with respect to the energy obtained in the purely ASE regime (that is, the maximum energy that can be extracted) while varying the synchronization between the seed and the gain. This measurement was performed for $\alpha = 4, -2$ and -9 fs cm^{-2} (the uncertainty in α was $\pm 1 \text{ fs cm}^{-2}$). The pump-beam group velocity was controlled—for a given α , which should be different from 0 to permit the adjustment—with the amount of temporal chirp. The variation of the seeded SXRL signal versus β is shown in blue in Fig. 2. As $|\beta|$ increases, the SXRL signal naturally decreases due to the drop of the pump intensity induced by pulse stretching²¹. Without group velocity adjustment, this decrease should be symmetrical with respect to the optimum chirp. However, an asymmetric behaviour is observed. In Fig. 2a, the signal drops sharply for positive values of chirp, and diminishes rather smoothly for negative chirps. In Fig. 2c, this asymmetry is reversed, with a sharp drop for negative chirps and a smoother decrease for positive chirps. In Fig. 2b, the signal seems almost symmetrical, the coefficient α being close to 0.

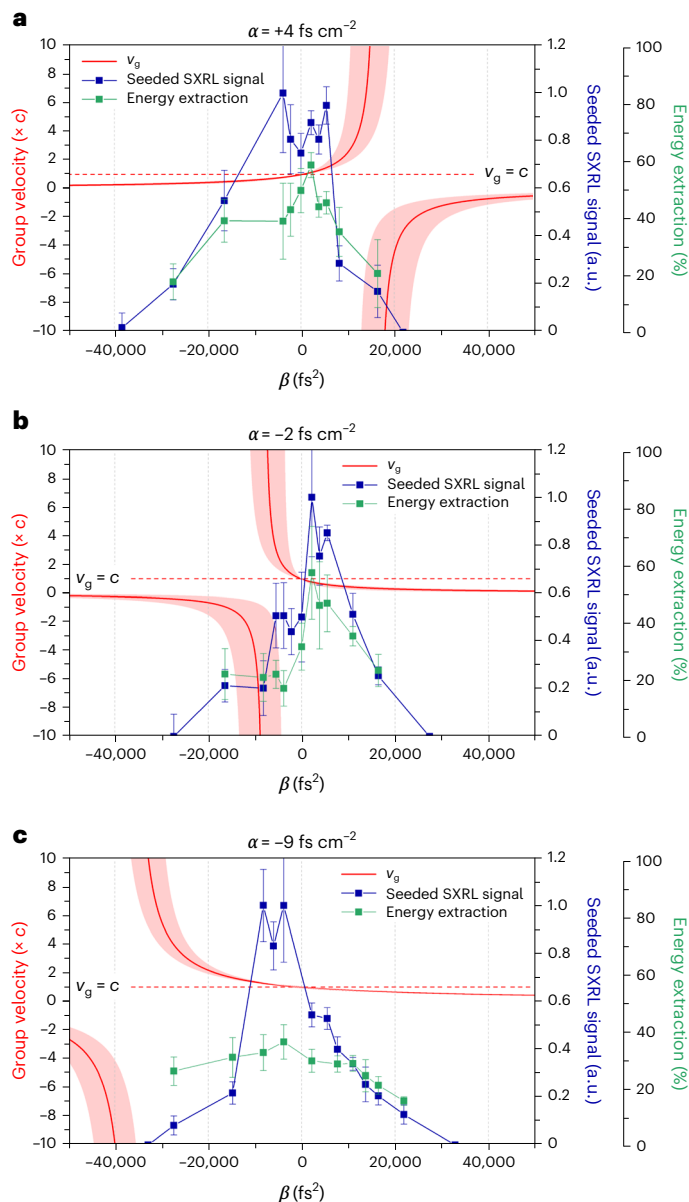


Fig. 2 | Measurements of the impact of group velocity on SXRL energy. a–c. The seeded SXRL signal with respect to temporal chirp β is shown in blue, and the energy extraction as a ratio of energy contained in the seeded beam to the energy in ASE is shown in green. Measurement points in blue and green are presented as mean values ($N = 5$) \pm s.e.m. The infrared group velocity with respect to temporal chirp is shown in red. Measurements were performed for three different values of α : $+4 \text{ fs cm}^{-2}$ (a), -2 fs cm^{-2} (b) and -9 fs cm^{-2} (c).

On the same graphs, the group velocity is plotted with respect to temporal chirp in red. The error band corresponds to an uncertainty of $\pm 1 \text{ fs cm}^{-2}$ for α and 500 fs^2 (corresponding to a systematic error of $100 \mu\text{m}$ on the optimum compression) for β . The shape of the group velocity with respect to β depends on α . In particular, the group velocity displays an asymptote at a chirp of $\beta = \frac{2\alpha}{c}$ (Methods). The location of this asymptote depends on α and explains well the asymmetric behaviour observed for the seeded signal. Indeed, the desynchronization between the seed and the gain region becomes stronger and faster as the mismatch between the soft X-rays and the infrared increases. When the infrared propagates at c , the seed stays synchronized with the gain optimum along the propagation. For small mismatches, the seed is desynchronized with the gain optimum,

but continues to be amplified in different gain regions. When the mismatch increases, the seed meets weaker gain regions over shorter times and is therefore less and less amplified. The side of the asymptote in the group velocity is a critical region where the signal drops sharply due to important desynchronization. In contrast, the signal declines more smoothly when the group velocity gently goes away from c .

The energy extraction is also shown in Fig. 2 (in green). This is calculated as the ratio of the energy contained in the amplified seed to the energy measured in ASE (without seeding, see Methods and Supplementary Fig. 3). In Fig. 2a, the energy extraction increases from $19 \pm 6\%$ to $59 \pm 4\%$ between $0.55c$ and $1.05c$, obtained, respectively, for a chirp around $-30,000 \text{ fs}^2$ and an optimized chirp of $2,000 \text{ fs}^2$. We measure an optimum energy extraction of $58 \pm 16\%$ in Fig. 2b and $37 \pm 6\%$ in Fig. 2c, obtained for the investigated group velocities that are closest to c in each case. The energy extraction is therefore optimal when compensating the natural dispersion of the plasma, the seed being synchronized with the optimum gain, and is degraded when the group velocity mismatch increases. It should be noted that the experimental conditions were stable during a given scan at fixed α . However, due to difficulties in maintaining identical experimental conditions on a day-to-day basis (with the laser energy and beams overlapping), the optimum energy extraction was not constant for the investigated configurations. We emphasize that the dispersion compensation does not necessarily need a huge sacrifice in pump intensity: for example, in Fig. 2a, the group velocity is equal to c for $\beta = 300 \text{ fs}^2$, which corresponds to a pulse duration of 37 fs (instead of 30 fs at optimum chirp). This results in an intensity of $3 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$ (instead of $4 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$), sufficient to generate the lasing ions.

We next studied how the SXRL pulse duration depends on the infrared-pump-beam group velocity. Pulse duration measurements were performed at an electron density close to $n_e = 7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$, using a recently developed technique²⁶. Figure 3 shows (blue symbols) the measured SXRL root-mean-square (r.m.s.) pulse duration with respect to the gas jet length for different group velocities. Linear regressions of the pulse-duration measurements with respect to the jet length are plotted in red. The figure shows different behaviours depending on the group velocity mismatch. For a strong desynchronization (Fig. 3a, $v_g = 1.09c \pm 0.04c$), the pulse duration increases quickly with respect to the jet length with a slope of $89 \pm 20 \text{ fs mm}^{-1}$. For a minor desynchronization (Fig. 3c, $v_g = 0.98c \pm 0.02c$), the pulse duration increases more gently. Measurements were performed for two different electron densities for this group velocity ($n_e = 6 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ and $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$). The difference in their respective slopes can be explained by the uncertainty on the group velocity, here between $0.96c$ and c for both cases, though not necessarily identical. In Fig. 3b, where $v_g = 1.00c \pm 0.03c$, the pulse duration remains nearly constant with respect to the jet length, with a slope of $6 \pm 10 \text{ fs mm}^{-1}$. Experimentally, the stronger the group velocity mismatch, the more the SXRL pulse is stretched when propagating along the amplifier.

This behaviour was investigated using the DAGON 3D Maxwell–Bloch code²⁸ for an electron density of $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. The simulated amplified pulse intensity (false colour) and population inversion (greyscale) for different group velocities and after different propagation lengths are shown in Fig. 4. When the group velocity is equal to c (upper row), the SXRL pulse duration remains constant along the propagation in the plasma as the seed beam is synchronized with the gain region. In contrast, when the group velocity is different from c (lower row, here $0.95c$), the soft X-rays propagate faster than the infrared beam. This desynchronization results in a stretching of the SXRL during its propagation as the tail of the soft X-ray pulse is progressively amplified.

In Fig. 5a, the r.m.s. simulated pulse duration is plotted with respect to the jet length and for a group velocity ranging from $0.95c$ to $1.1c$. The SXRL pulse duration is almost constant to $\sim 350 \text{ fs}$ at c , increases from 350 fs to 900 fs between 1 and 10 mm at $1.05c$, and from 350 fs to 1.7 ps between 1 and 10 mm at $1.1c$. Therefore, at a given electron density

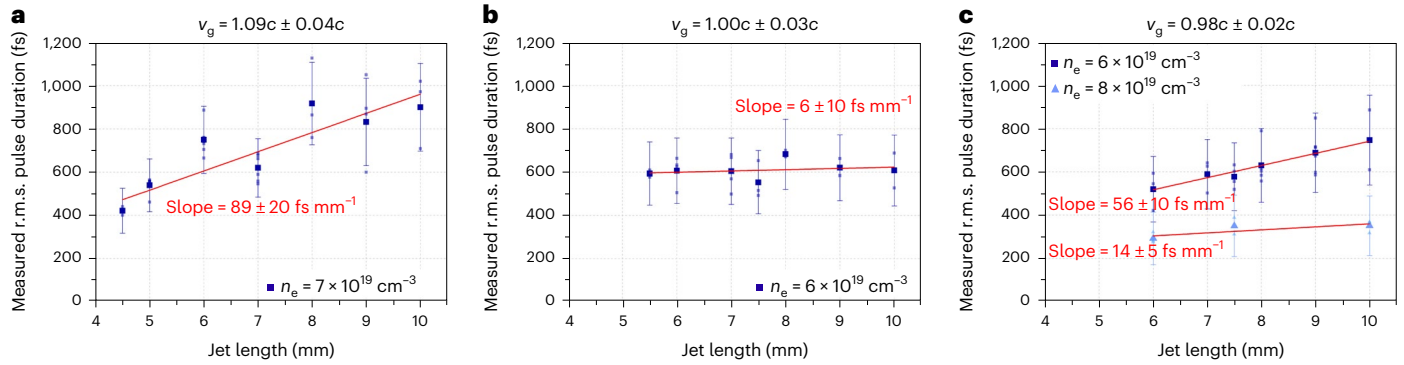


Fig. 3 | Measurements of the impact of group velocity on SXRL pulse duration. **a–c**, Evolution of pulse duration with respect to jet length for group velocities of $1.09c \pm 0.04c$ (**a**), $1.00c \pm 0.03c$ (**b**) and $0.98c \pm 0.02c$ (**c**). In blue are shown measurements of the r.m.s. pulse duration of the SXRL with respect to the jet length. The measurements were performed for different group velocities of

the pump beam (respectively larger than, equal to and smaller than c) at an electron density close to $n_e = 7 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Linear regressions of these measurements are shown in red. Small symbols are used for individual points, and large symbols show averages over a few shots ($N = 5$). Data are presented as mean values \pm s.e.m.

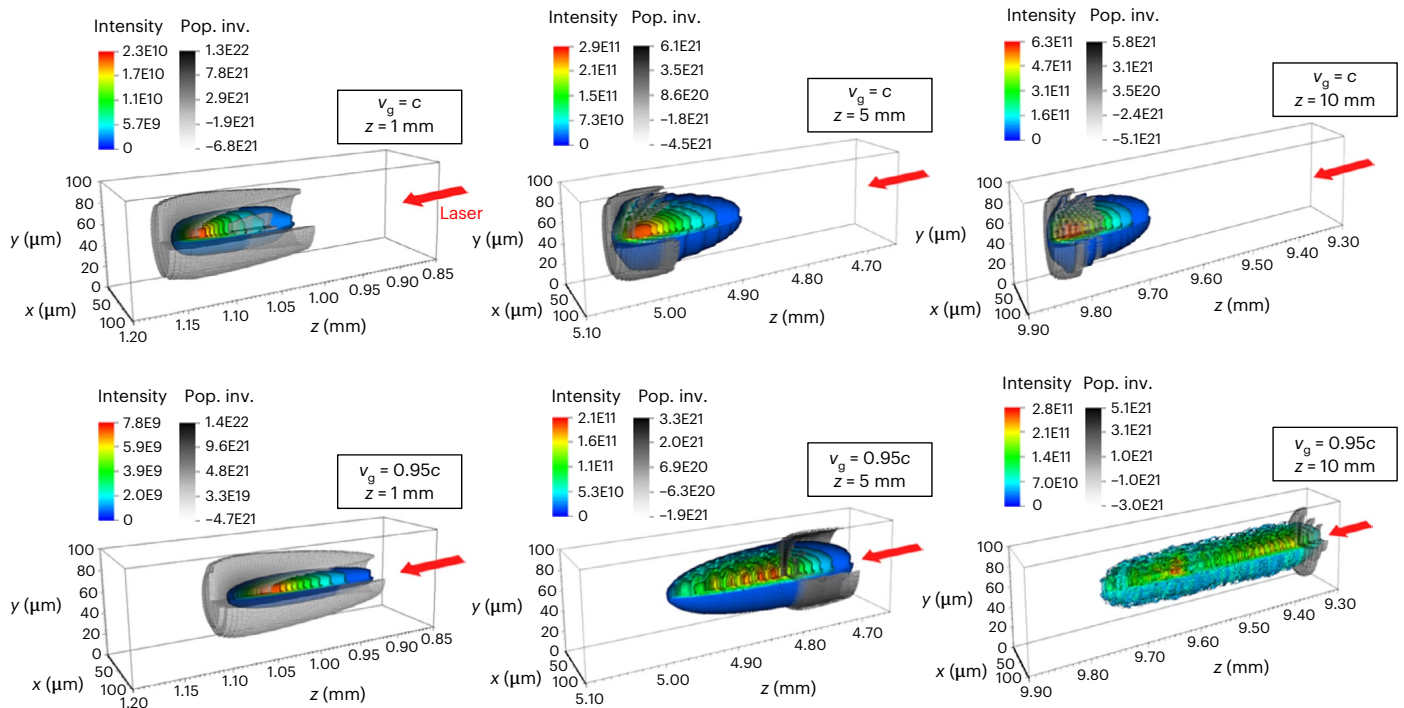


Fig. 4 | Three-dimensional simulations of the amplified SXRL pulse. Simulated amplified pulse intensity (false colour) and population inversion (greyscale) for a group velocity of c (upper row) and $0.95c$ (lower row) after 1 mm, 5 mm and 10 mm (left to right).

and a given plasma amplifier length, the pulse duration can be adjusted in a wide range thanks to control of the group velocity by STCs. The simulated r.m.s. pulse duration with respect to group velocity after 10 mm of propagation is shown in Fig. 5b. The pulse duration is clearly reduced (from 1.7 ps at $1.1c$ to 350 fs at c) when locking the pump and seed velocities. It should be noted that the simulated pulse duration here is 20 fs shorter at $0.99c$ than at c . This can probably be explained by the r.m.s. criterion, as this takes into account the shape of the pulse, which depends on the group velocity.

An increase in the SXRL seed amplification can be achieved by resorting to high electron densities and long amplifying media^{25,26}, crucially requiring plasma dispersion compensation (Supplementary Fig. 2). As demonstrated here, the energy that can be gained by lengthening the amplifier is obtained at the expense of the pulse duration if the dispersion is not compensated. This cost is increasingly important

when the electron density and the amplifier length are raised, as the desynchronization becomes stronger. For a natural group velocity of $v_g = 0.97c$ at an electron density close to 10^{20} cm^{-3} , simulations predict a stretching from 350 fs at 1 mm to 640 fs at 10 mm, that is, a pulse that is almost twice as long as it would be if the pump velocity were artificially set at c , thus allowing us to keep the pulse duration constant along the propagation. Furthermore, as established previously, controlling the pump group velocity also allows for optimization of energy extraction. Therefore, dispersion compensation offers great potential for SXRL optimization and brings opportunities for applications requiring high intensities.

Controlling the natural velocity mismatch between the pump and the seed beams also paves the way for applications requiring pulses at a femtosecond timescale. For decades, the pulse duration of collisional SXRL has ranged between 1.1 ps (ref. 29) and 100 ps (ref. 16). It has

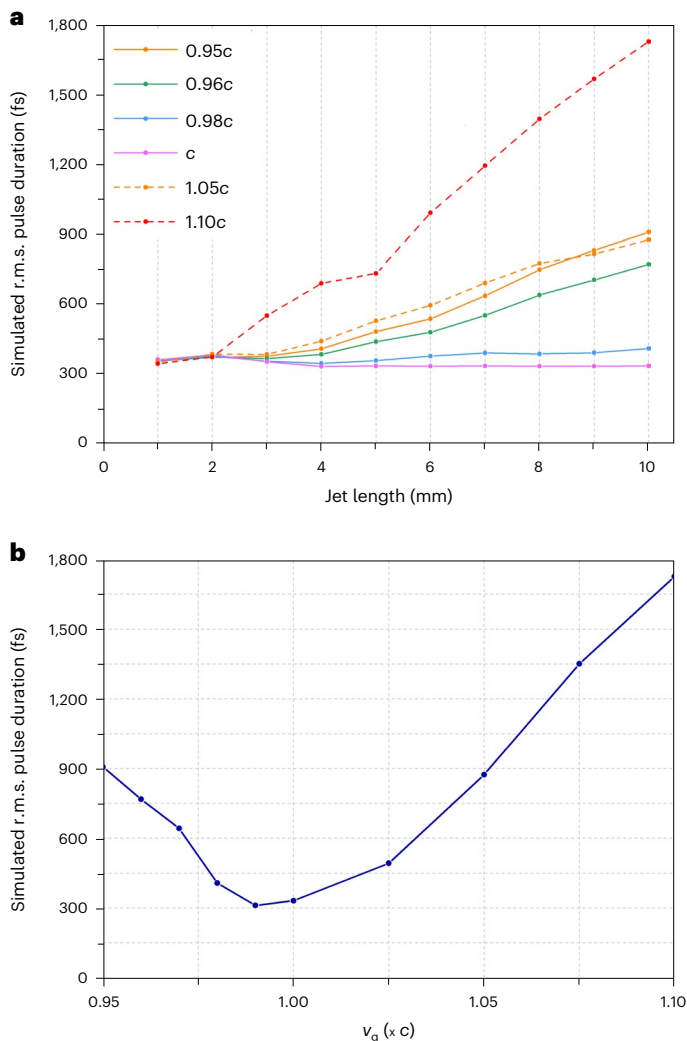


Fig. 5 | Simulations of the impact of group velocity on SXRL pulse duration. **a, b**, Simulations of the r.m.s. SXRL pulse duration at $n_e = 8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ with respect to jet length for different group velocities of the infrared beam (**a**) and with respect to the infrared group velocity for a 10-mm-long jet (**b**).

been experimentally shown only recently that femtosecond durations are achievable by quenching the amplification while raising the electron density of the plasma amplifier²⁶. Figure 3c shows that the pulse length can be substantially shortened by combining the pulse duration reduction induced by the increase in electron density (here from 6×10^{19} to $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) and controlling the pump group velocity (here set at $0.98c \pm 0.02c$). This results in a measured r.m.s. duration of $350 \pm 200 \text{ fs}$, in agreement with simulations, obtained with energetic pulses (up to $2 \mu\text{J}$) generated with a 10-mm plasma amplifier, which is the shortest collisional SXRL pulse duration ever reported.

In summary, suppression of the group velocity mismatch improves the performance of current state-of-the-art SXRLs, and offers considerable potential to continue on this path. The compensation of natural dispersion in SXRLs fosters opportunities for many applications requiring ultrashort pulses, or high intensities such as in nonlinear extreme-ultraviolet optics³⁰, and provides an avenue to perform single-shot, high-resolution dynamical studies at the femtosecond timescale³¹ with a table-top source. This Article also presents the direct application of the flying focus effect to a high-intensity laser pulse propagating in a plasma, and illustrates that fundamental limitations of laser-plasma interactions induced by plasma dispersion can be overcome thanks to STCs,

opening prospects in a wide scope of domains such as photon acceleration or laser-wakefield acceleration.

Online content

Any methods, additional references, Nature Portfolio reporting summaries, source data, extended data, supplementary information, acknowledgements, peer review information; details of author contributions and competing interests; and statements of data and code availability are available at <https://doi.org/10.1038/s41566-023-01165-5>.

References

1. Eliezer, S. & Mima, K. *Applications of Laser-Plasma Interactions* (CRC Press, 2009).
2. Malka, V. et al. Principles and applications of compact laser-plasma accelerators. *Nat. Phys.* **4**, 447–453 (2008).
3. Esarey, E., Schroeder, C. B. & Leemans, W. P. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1229–1285 (2009).
4. Mendonca, J. T. *Theory of Photon Acceleration* (CRC Press, 2000).
5. Andriyash, I., Balcou, P. & Tikhonchuk, V. Collective properties of a relativistic electron beam injected into a high intensity optical lattice. *Eur. Phys. J. D* **65**, 533–540 (2011).
6. Debus, A. et al. Circumventing the dephasing and depletion limits of laser-wakefield acceleration. *Phys. Rev. X* **9**, 031044 (2019).
7. Palastro, J. P. et al. Dephasingless laser wakefield acceleration. *Phys. Rev. Lett.* **124**, 134802 (2020).
8. Caizergues, C., Smartsev, S., Malka, V. & Thauray, C. Phase-locked laser-wakefield electron acceleration. *Nat. Photon.* **14**, 475–479 (2020).
9. Sainte-Marie, A., Gobert, O. & Quéré, F. Controlling the velocity of ultrashort light pulses in vacuum through spatio-temporal couplings. *Optica* **4**, 1298–1304 (2017).
10. Froula, D. H. et al. Spatiotemporal control of laser intensity. *Nat. Photon.* **12**, 262–265 (2018).
11. Jolly, S. W., Gobert, O., Jeandet, A. & Quéré, F. Controlling the velocity of a femtosecond laser pulse using refractive lenses. *Opt. Express* **18**, 4888–4897 (2020).
12. Turnbull, D. et al. Ionization waves of arbitrary velocity. *Phys. Rev. Lett.* **120**, 225001 (2018).
13. Franke, P. et al. Measurement and control of large diameter ionization waves of arbitrary velocity. *Opt. Express* **27**, 31978–31988 (2019).
14. Howard, A. J. et al. Photon acceleration in a flying focus. *Phys. Rev. Lett.* **123**, 124801 (2018).
15. Turnbull, D. et al. Raman amplification with a flying focus. *Phys. Rev. Lett.* **120**, 024801 (2018).
16. Rus, B. et al. Multimillijoule, highly coherent X-ray laser at 21-nm operating in deep saturation through double-pass amplification. *Phys. Rev. A* **66**, 063806 (2002).
17. Rockwood, A. et al. Compact gain-saturated X-ray lasers down to 6.85 nm and amplification down to 5.85 nm. *Optica* **5**, 257–262 (2018).
18. Lemoff, B. E., Barty, C. P. & Harris, S. E. Femtosecond-pulse-driven, electron-excited XUV lasers in eight-times-ionized noble gases. *Opt. Lett.* **19**, 569–571 (1994).
19. Tissandier, F. et al. Two-color soft X-ray lasing in a high-density nickel-like krypton plasma. *Phys. Rev. Lett.* **124**, 133902 (2020).
20. Wang, Y. et al. High-brightness injection-seeded soft-X-ray-laser amplifier using a solid target. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 123901 (2006).
21. Sebban, S. et al. Demonstration of a Ni-like Kr optical-field-ionization collisional soft X-ray laser at 32.8 nm. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 253901 (2002).
22. Zeitoun, P. et al. A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam. *Nature* **431**, 426–429 (2004).

23. Wang, Y. et al. Phase-coherent, injection-seeded, table-top soft-X-ray lasers at 18.9 nm and 13.9 nm. *Nat. Photon.* **2**, 94–98 (2008).
24. Goddet, J. P. et al. Aberration-free laser beam in the soft X-ray range. *Opt. Lett.* **34**, 2438–2440 (2009).
25. Depresseux, A. et al. Table-top femtosecond soft X-ray laser by collisional ionization gating. *Nat. Photon.* **9**, 817–821 (2015).
26. Kabacinski, A. et al. Femtosecond soft X-ray lasing in dense collisionally-pumped plasma. *Phys. Rev. Res.* **4**, L032009 (2022).
27. Klisnick, A. et al. Transient pumping of a Ni-like Ag X-ray laser with a subpicosecond pump pulse in a traveling-wave irradiation geometry. *J. Opt. Soc. Am. B* **17**, 1093–1097 (2000).
28. Oliva, E. et al. DAGON: a 3D Maxwell-Bloch code. In *Proc. SPIE 10243, X-ray Lasers and Coherent X-ray Sources: Development and Applications* Vol. 10243 (SPIE, 2017); <https://doi.org/10.1117/12.2265044>
29. Wang, Y. et al. Measurement of 1-ps soft X-ray laser pulses from an injection-seeded plasma amplifier. *Phys. Rev. A* **79**, 023810 (2009).
30. Helk, T. et al. Table-top extreme ultraviolet second harmonic generation. *Sci. Adv.* <https://doi.org/10.1126/sciadv.abe2265> (2021).
31. Sokolowski-Tinten, K. et al. Femtosecond X-ray measurement of coherent lattice vibrations near the Lindemann stability limit. *Nature* **422**, 287–289 (2003).

Publisher's note Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.

Springer Nature or its licensor (e.g. a society or other partner) holds exclusive rights to this article under a publishing agreement with the author(s) or other rightsholder(s); author self-archiving of the accepted manuscript version of this article is solely governed by the terms of such publishing agreement and applicable law.

© The Author(s), under exclusive licence to Springer Nature Limited 2023

Methods

Laser system

The experiment was conducted at the Laboratoire d'Optique Appliquée with the 'Salle Jaune' Ti:sapphire laser system, which delivers three beams at 1 Hz around a central wavelength of 820 nm: a pump beam (1.5 J, 30 fs), a waveguiding beam composed of two pulses—an 'ignitor' pulse (150 mJ, 30 fs) followed 900 ps later by a 'heater' pulse (700 mJ, 600 ps)—and a HH driver beam (30 mJ, 30 fs). A part of the pump beam (20 mJ, 30 fs) is used for pulse duration measurements.

SXRL

The soft X-ray amplifier at 32.8 nm was generated by focusing the intense infrared pump beam with a spherical mirror ($f = 700$ mm) into the krypton gas jet, resulting in an intensity of 4×10^{18} W cm⁻² and enabling the generation of the lasing ion. Population inversion is achieved thanks to an efficient pumping by hot electrons, allowing for a lasing of the $3d^9 4d_{j=0} \rightarrow 3d^9 4p_{j=1}$ transition of nickel-like krypton at 32.8 nm (ref. ²¹). The gas jet length can be adjusted under vacuum between 4.5 and 10 mm thanks to a motorized blade covering a part of the slit nozzle.

To overcome the strong refraction of the pump beam induced by the plasma, an optically preformed plasma waveguide was implemented using the second beam (composed of two pulses, 'ignitor' + 'heater'), which is focused by an axicon lens over the whole gas length³². The electron density builds up as electrons generated by the ignitor become heated and foster avalanche collisional ionization. The natural hydrodynamic plasma expansion then starts, and the generated electrons are ejected out of the optical axis, thus allowing pump beam propagation³³. The waveguide transmission was assessed to be around 40% by integrating the whole energy of the beam profile imaged at the entrance and at the output of the plasma channel. The electron density of the plasma amplifier was measured with a Mach-Zender interferometer.

The soft X-ray seed^{22,23} was implemented by focusing an infrared driver beam into a gas cell filled with argon. The on-target intensity was assessed to be $\sim 2 \times 10^{14}$ W cm⁻². The 25th harmonic signal was optimized by changing the gas pressure and the beam energy, tuning the beam aperture with a motorized iris and adjusting the longitudinal position of the lens, and spectrally tuned onto the amplifier ASE laser line at 32.8 nm by chirping the HH driver beam. The seeding was accomplished by imaging the harmonic output at the entrance of the plasma amplifier using a 5° grazing-incidence gold-coated toroidal mirror in a 1.5–1-m conjugation. Special attention was paid to spatial and temporal matching. The spatial coupling of the HH beam and the SXRL gain region was done in the infrared by overlapping the infrared driver with the focal spot of the pump. The temporal overlap between the HH signal and the SXRL amplification period was approached by synchronizing the infrared driver and the pump beams with an accuracy of 30 fs.

Adjustment of the pump-beam group velocity

The group velocity of the pump beam was controlled by adjusting the amount of two spatio-temporal couplings: the PFC and the temporal chirp. PFC is equivalent to longitudinal chromatism in the far field, and is quantified by its strength α (in units of fs cm⁻²), given by

$$z(\omega) = 2cf^2\alpha \frac{\Delta\omega}{\omega}$$

where $z(\omega)$ is the longitudinal position of the focusing plane of frequency ω , f is the focal length (here $f = 700$ mm for the spherical mirror focusing the pump beam), and $\Delta\omega$ is the frequency offset with respect to ω_0 , the central frequency of the pump beam. To introduce, in practice, a precise amount of PFC into the beam, chromatic doublets of infinite focal length were inserted before compression¹¹. Here the quantity of PFC was varied by working with two doublets ($\alpha = +4$ fs cm⁻²), with a single doublet ($\alpha = -2$ fs cm⁻²) or without doublet ($\alpha = -9$ fs cm⁻²).

Coefficient α was measured with an uncertainty of ± 1 fs cm⁻². It can be noted that the amount of PFC can also be adjusted dynamically by changing the longitudinal position of a single chromatic doublet inserted in a divergent beam³⁴.

The second required STC is the temporal chirp, given by parameter $\beta = -\left(\frac{d^2\phi}{d^2\omega}\right)_{\omega_0}$, the second-order derivative of the spectral phase (in units of fs²). In practice, the amount of temporal chirp of the pump beam was adjusted by changing the distance between the gratings of the compressor, because β is proportional to this.

Finally, the group velocity v_g can be derived from

$$\frac{v_g}{v_g^{\text{nat}}} = \frac{1}{1 - \left(\frac{\omega_0}{2f^2}\right)\left(\frac{\beta}{\alpha}\right)}$$

where v_g^{nat} is the natural group velocity given by $v_g^{\text{nat}} = c\sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c}}$, with n_e the electron density of the plasma and n_c^{λ} the critical density at a given wavelength.

Energy measurements

The energy measurements were performed using a 25° off-axis soft X-ray parabola with a focal length of 200 mm, a deflecting plane mirror at an incidence angle of 80° and a soft X-ray camera with resolution of $1,024 \times 1,024$ pixels. The interferential multilayer coating of the parabola, designed to yield a high reflectivity at 32.8 nm, was deposited at the Institut d'Optique, France. The system images a plane at -1.4 m from the soft X-ray plasma source with a magnification of 0.6. The signal was measured in the purely ASE regime (without seeding) and within the amplified seed (with seeding). The energy extraction was derived as the ratio of the energy contained in the amplified seed to the total energy contained in the ASE, which represents the maximum energy that can be extracted (Supplementary Fig. 3 provides more details). The measurements were performed for three different α coefficients and for a distance between the compression gratings varying in the range -7 to +7 mm around the optimum compression. Error bars were determined by repeatability over a few shots (standard error of the mean).

Pulse-duration measurements

The SXRL pulse duration was measured using a single-shot temporal profiler as described in ref. ²⁶. This measurement is based on a pump-probe technique allowing measurement of the transient reflectivity of a laser-damaged soft X-ray mirror using the 32.8-nm laser as a probe. A soft X-ray multilayer was irradiated simultaneously with the SXRL beam and with an intense infrared femtosecond pulse in a travelling-wave geometry. The envelope of the temporal profile could be retrieved with a resolution as short as 200 fs. Uncertainties were determined taking into account this resolution and the repeatability over a few shots. The measurements were performed at electron densities close to 7×10^{19} cm⁻³, for different jet lengths and group velocities of the pump beam.

3D Maxwell-Bloch simulations

The simulations were performed using the DAGON 3D Maxwell-Bloch code^{28,35}. The group velocity of the pump beam can be varied as an input parameter of this code, which models the full spatio-temporal structure of the amplification of high-order harmonics along the pulse propagation in a krypton plasma amplifier. The creation and evolution of the plasma waveguide is modelled with the 2D radiative hydrodynamics code ARWEN^{36,37}. This code solves the equations of compressible fluid dynamics coupled to energy-transfer processes: electronic diffusion, radiative transfer and laser propagation and absorption. The resulting density profile is fed to a 3D quasi-cylindrical spectral particle-in-cell code, FBPIC³⁸. This code solves Maxwell's equations and the relativistic motion equations for the macroparticles

that model the plasma. The temporal dynamics of the lasing ion and population inversion is modelled with the collisional-radiative code OFIKinRad³⁹. Non-equilibrium effects are taken into account by solving a Fokker–Planck equation to compute the electron energy distribution function and, afterwards, the cross-sections. The output of FBPIC and OFIKinRad is used by DAGON to compute the temporal dynamics of the plasma amplifier. DAGON solves the set of 3D Maxwell–Bloch equations in the paraxial and slowly varying envelope approximation, taking into account the temporal dynamics of the amplifier medium. The 3D aspect of the code is required to take into account the waveguide and the inhomogeneities of the plasma. These inhomogeneities mainly come from the over-ionization induced in regions where the intensity reaches the threshold to produce higher charged ions due to focusing effects⁴⁰. In addition to this, the code also takes into account the 3D stochastic structure of the ASE. We modelled a $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m} \times 10\ \text{mm}$ amplifier, using a mesh consisting of $100 \times 100 \times 2,000$ cells. The time step was fixed to 10 fs.

Data availability

The main datasets supporting the findings of this study are provided within the paper. Additional data are available from the corresponding authors upon reasonable request.

References

- Chou, M. C. et al. Dramatic enhancement of optical-field-ionization collisional-excitation X-ray lasing by an optically preformed plasma waveguide. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 063904 (2007).
- Oliva, E. et al. Hydrodynamic evolution of plasma waveguides for soft-X-ray amplifiers. *Phys. Rev. E* **97**, 023203 (2018).
- Kabacinski, A. et al. Measurement and control of main spatio-temporal couplings in a CPA laser chain. *J. Opt.* **23**, 06LT01 (2021).
- Oliva, E. et al. 3D multi-scale modelling of plasma-based seeded soft X-ray lasers. *Eur. Phys. J. D* <https://doi.org/10.1140/epjd/s10053-021-00298-y> (2021).
- Ogando, F. & Velarde, P. Development of a radiation transport fluid dynamic code under AMR scheme. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.* **71**, 541–550 (2001).
- Cotelo, M. et al. Simulation of radiative shock waves in Xe of last PALS experiments. *High Energy Density Phys.* **17**, 68–73 (2015).
- Lehe, R., Kirchen, M., Andriyash, I. A., Godfrey, B. B. & Vay, J.-L. A spectral, quasi-cylindrical and dispersion-free particle-in-cell algorithm. *Comput. Phys. Commun.* **203**, 66–82 (2016).
- Cros, B. et al. Characterization of the collisionally pumped optical-field-ionized soft-X-ray laser at 41.8 nm driven in capillary tubes. *Phys. Rev. A* **73**, 033801 (2006).
- Tuitje, F. et al. Nonlinear ionization dynamics of hot dense plasma observed in a laser-plasma amplifier. *Light. Sci. Appl.* <https://doi.org/10.1038/s41377-020-00424-2> (2020).

Acknowledgements

This work is supported by ‘Investissement d’Avenir’ (ANR-10-LABX-0039-PALM (F.T. and S.S.) and ANR-18-EURE-0014 (A.K.)) and has received funding from the European Union’s Horizon 2020 research and innovation programme under grant agreement no. 654148 Laserlab-Europe. This work is also supported by the Grant Agency of the Czech Republic, project no. 18-27340S (M.Z.). We acknowledge support from COST (European Cooperation in Science and Technology) for funding the Action TUMIEE (CA17126) supporting this work. This work is also supported by the Universidad Politécnica de Madrid and the Comunidad Autónoma de Madrid, línea de actuación estímulo a la investigación de jóvenes doctores, project CROM and the Spanish Ministerio de Ciencia e Innovación through a Ramón y Cajal RYC2018-026238-I fellowship (E.O.), and by Plan Estatal de Investigación Científica, Técnica y de Innovación (Spain Ministerio de Ciencia e Innovación), grant no. PID2021-124129OB-I00 (E.O.).

Author contributions

A.K., F.T., J.G., M.K. and S.S. designed and built the experiment and performed the measurements. A.K. analysed the experimental results. E.O. developed the DAGON code. E.O. and A.K. performed the numerical simulations. J.-P.G. operated the upgraded laser system of ‘Salle Jaune’. I.A.A., C.T. and P.Z. supported the project. All the authors contributed to the writing of the paper.

Competing interests

The authors declare no competing interests.

Additional information

Supplementary information The online version contains supplementary material available at <https://doi.org/10.1038/s41566-023-01165-5>.

Correspondence and requests for materials should be addressed to Stéphane Sebban.

Peer review information *Nature Photonics* thanks Samuel Barber and the other, anonymous, reviewer(s) for their contribution to the peer review of this work.

Reprints and permissions information is available at www.nature.com/reprints.

Supplementary information

Dephasing length and need for plasma dispersion compensation in the case of seeded SXRLs

The natural group velocity of a given wavelength in a plasma is given by :

$$v_g^{\text{nat}}(\lambda) = c \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c^\lambda}} \quad (1)$$

with n_e the electron density of the plasma and n_c^λ the critical density at a given wavelength. As shown in figure 1, whereas the natural group velocity of the soft X-ray seed (32.8 nm) is constant at c , the natural group velocity of the infrared decreases strongly with the electron density. Otherwise consequently beneficial, high electron densities widens the gap and increases the mismatch between the gain generated by the infrared pump beam and the soft X-ray seed.

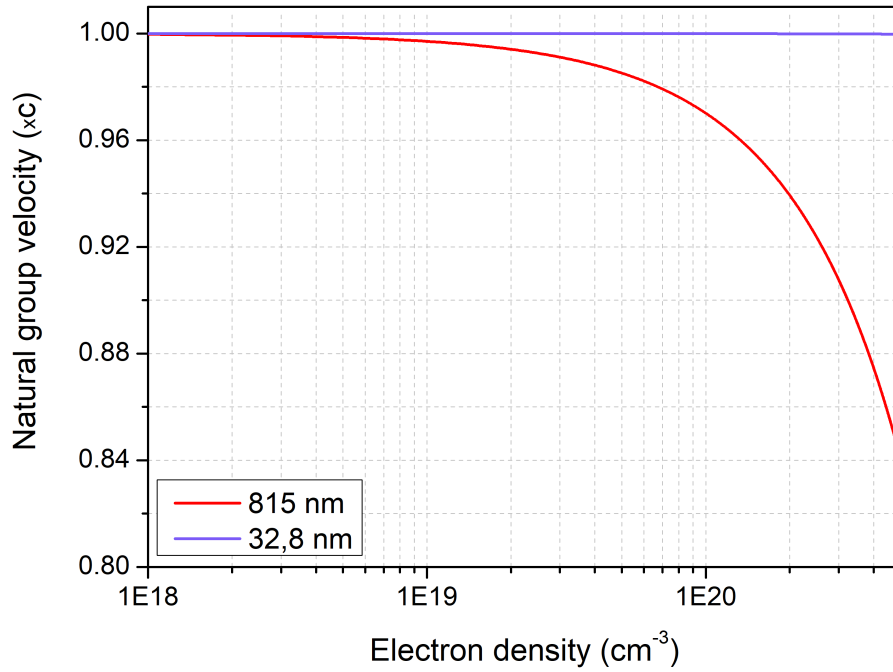


Figure 1. Natural group velocity of the infrared pump beam, and of the soft X-ray seed with respect to the electron density of the plasma amplifier.

The dephasing length L_d represents the maximum length of the amplifier. It is given by :

$$L_d = \left| \frac{c \cdot \Delta G}{1 - \frac{v_g}{c}} \right| \quad (2)$$

with v_g the group velocity of the pump beam and ΔG the gain duration. It can be defined taking into account the gain duration at $1/e^2$ or the RMS gain duration. The dephasing length therefore refers to respectively the maximum length over which there is amplification even if weak ($1/e^2$), or the maximum length over which there is a consequent amplification i.e. synchronization of the seed with the gain optimum (RMS). It can be noted that, if the group velocity of infrared tends towards c , the dephasing length tends towards the infinite. Indeed, the seed stays perfectly synchronized with the gain optimum and there is no limitation, in terms of length, to amplification whatever the electron density. However, when considering the natural group velocity, the

dephasing length consequently decreases, as shown in figure 2, due to the gain duration reduction (desirable to obtain short pulse durations) and the plasma dispersion which becomes a limiting factor.

In our work, the measurements were performed at $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. The natural dephasing length is 10 mm at $1/e^2$ which means that there is at least a weak amplification on the whole jet length. However, the seed is synchronized with the gain optimum only during a propagation of 4 mm (RMS dephasing length). The benefits of dispersion compensation in this case are described in the main text of the paper.

For further improvements, the performance of a SXRL mainly depends on our capability to increase the electron density of the plasma or the active amplifier length. As the electron density increases, electron collisions with Kr^{8+} ions contribute to build up the population inversion, leading to higher gain and signal. In the same time, collisions provoke an overionization of the lasing ion and thus an anticipated interruption of the gain, leading to shorter pulse durations. As the amplifier length increases, the output energy increases first exponentially and then linearly in the saturated regime. Further optimization will therefore require higher plasma densities and longer amplification lengths. However, the RMS dephasing length decreases down to 3 mm at $1 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ and to less than 100 μm at $5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, intrinsically limiting the amplification of shorter and more energetic SXRL pulses. Compensating the plasma dispersion therefore becomes crucial.

Maxwell-Bloch simulations performed in¹ show that the RMS pulse duration, which can be kept constant along the propagation as demonstrated in our work, can be as short as 50 fs for an electron density of $4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. In practice, such an electron density can be easily achieved by optimizing the guiding technique. Regarding the pulse energy, up to 14 μJ in ASE regime have been demonstrated in¹ for a 20 mm gas jet. Considering the optimum energy extraction of 60% demonstrated in our paper, which we believe can be further improved by adjusting the coupling conditions and the seed energy, it is reasonable to expect 8 μJ in seeded regime for a 20 mm amplifier with dispersion compensation. By designing new gas jets (with an optimization of the electron density gradient and longitudinal profile) and improving our guiding technique, we can expect to work with amplifiers of a few centimeters, typically 3 cm, or even more. We can therefore estimate that the seeded energy can reach a few tens of μJ within 50 fs pulses at a few 10^{20} cm^{-3} with plasma dispersion compensation.

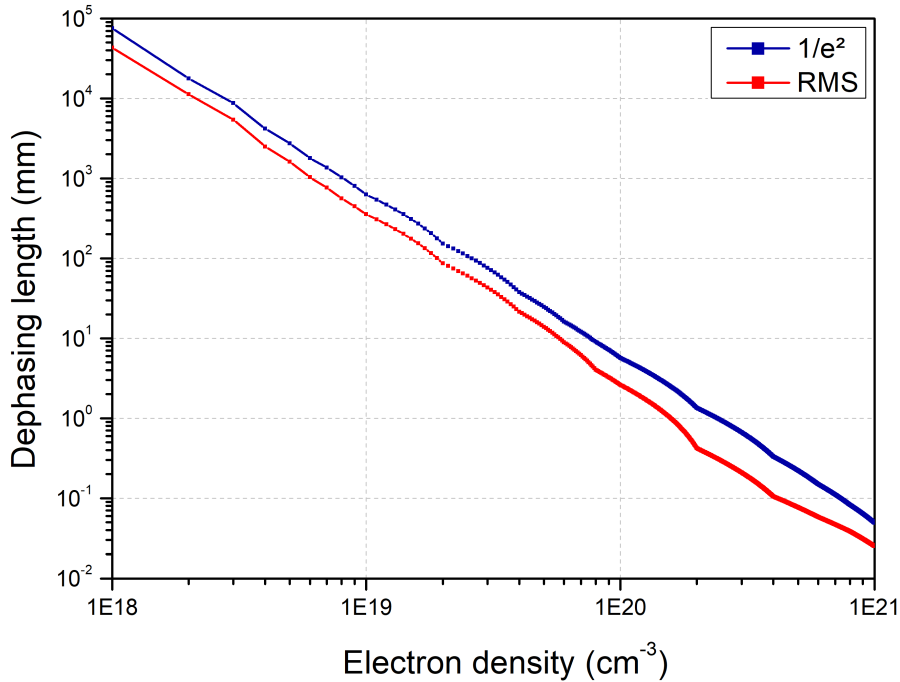


Figure 2. Evolution of the dephasing length with respect to the electron density of the plasma amplifier. This curve has been derived taking into account the natural group velocity of infrared and the gain duration simulated with the OFIKinRad code.

Energy measurements and definition of energy extraction

On one hand, the SXRL energy is measured in purely ASE regime (without seeding, figure 3(a)) integrating counts within a divergence of around 10 mrad. It corresponds to the maximum energy that can be extracted. On the other hand, the SXRL energy is measured (figure 3 (b)) in seeded regime integrating counts within a divergence of roughly 1 mrad in order to take only the amplified seed into account, regardless of the residual ASE. We define the energy extraction as the ratio of the energy contained in the amplified seed to the total energy obtained in purely ASE regime. Here, the energy extraction is measured with respect to the group velocity, which is adjusted thanks to the amount of temporal chirp β . It can be noted that the energy extraction is not defined for extreme values of β , where there is no ASE signal and no amplified signal because of an insufficient intensity to generate the lasing ions.

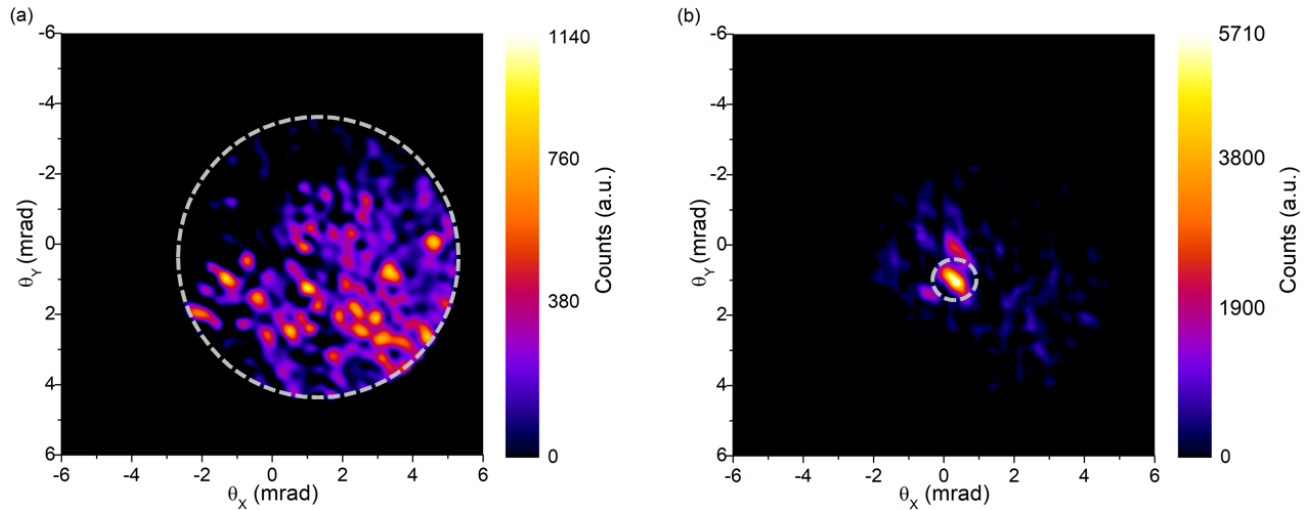


Figure 3. (a) Energy distribution in ASE regime (without seeding), (b) Energy distribution in seeded regime : we can observe a strong amplified seed in the center and residual ASE around. The energy extraction is defined as the ratio of the energy in the amplified seed to the energy in purely ASE regime. The integrated counts are respectively measured in (a) and (b) within the grey circles.

References

1. Depresseux, A. *et al.* Table-top femtosecond soft x-ray laser by collisional ionization gating. *Nat. Photonics* **9**, 817–821, DOI: <https://doi.org/10.1038/nphoton.2015.225> (2015).

Bibliographie

- [1] T. H. Maiman. Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187 :493–494, 1960. 7, 17
- [2] D. L. Matthews, P. L. Hagelstein, M. D. Rosen, M. J. Eckart, N. M. Ceglio, A. U. Hazi, H. Medeck, B. J. MacGowan, J. E. Trebes, B. L. Whitten, E. M. Campbell, C. W. Hatcher, A. M. Hawryluk, R. L. Kauffman, L. D. Pleasance, G. Rambach, J. H. Scofield, G. Stone, and T. A. Weaver. Demonstration of a soft x-ray amplifier. *Physical Review Letters*, 54 :110, 1985. 7, 17, 19, 21
- [3] B. E. Lemoff, G. Y. Yin, C. L. Gordon III, C. P. J. Barty, and S. E. Harris. Demonstration of a 10-hz femtosecond-pulse-driven xuv laser at 41.8 nm in xe ix. *Physical Review Letters*, 74 :1574, 1995. 7, 24
- [4] S. Sebban, T. Mocek, D. Ros, L. Upcraft, P. Balcou, R. Haroutunian, G. Grillon, B. Rus, A. Klisnick, A. Carillon, G. Jamelot, C. Valentin, A. Rousse, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, and D. Hulin. Demonstration of a ni-like kr optical-field-ionization collisional soft x-ray laser at 32.8 nm. *Physical Review Letters*, 89(25), February 2002. 7, 24, 96
- [5] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, and M. H. R. Hutchinson. Spatial coherence measurement of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation. *Physical Review Letters*, 77 :4756, 1996. 7, 17
- [6] Ph. Zeitoun, G. Faivre, S. Sebban, T. Mocek, A. Hallou, M. Fajardo, D. Aubert, Ph. Balcou, F. Burgy, D. Douillet, S. Kazamias, G. de Lachèze-Murel, T. Lefrou, S. le Pape, P. Mercère, H. Merdji, A. S. Morlens, J. P. Rousseau, and C. Valentin. A high-intensity highly coherent soft x-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam. *Nature*, 431 :426–429, September 2004. 7, 11, 26, 29, 64
- [7] J. Ph. Goddet, S. Sebban, J. Gautier, Ph. Zeitoun, C. Valentin, F. Tissandier, T. Marchenko, G. Lambert, M. Ribières, D. Douillet, T. Lefrou, G. Iaquaniello, F. Burgy, G. Maynard, B. Crosv B. Robillard, T. Mocek, J. Nejd, M. Kozlova, and K. Jakubczak. Aberration-free laser beam in the soft x-ray range. *Optics Letters*, 34 :2438–2440, 2009. 7, 27, 93
- [8] A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, J. Nejd, M. Kozlova, G. Maynard, J. P. Goddet, A. Tafzi, A. Lifschitz, H. T. Kim, S. Jacquemot, V. Malka, K. Ta Phuoc, C. Thauray, P. Rousseau, G. Iaquaniello, T. Lefrou, A. Flacco, B. Vodungbo, G. Lambert, A. Rousse, P. Zeitoun, and S. Sebban. Table-top femtosecond soft x-ray laser by collisional ionization gating. *Nature Photonics*, 9 :817–821, November 2015. 7, 25, 30, 44, 138, 139
- [9] A. Depresseux. *Development of an ultrashort and intense collisional OFI plasma-based soft X-ray laser*. PhD thesis, 2015. 7, 25, 27, 30, 44, 56, 63, 95, 105, 115
- [10] E. Koch. *Handbook on Synchrotron Radiation*. North Holland Publishing Company, 1983. 10
- [11] F. R. Elder, A. M. Gurewitsch, R. V. Langmuir, and H. C. Pollock. Radiation from electrons in a synchrotron. *Physical Review*, 71(11) :829–830, 1947. 10
- [12] M.-E. Couprie, J.-C. Denard, L. Farvacque, G. Le Bec, A. Nadji, and J.-L. Revol. Le rayonnement synchrotron, une source de lumière dédiée à la recherches. *Reflète de la physique*, 34-35 :18–23, 2013. 10
- [13] Site internet du synchrotron soleil. <https://www.synchrotron-soleil.fr/fr>. 10
- [14] H. Motz. Applications of the radiation from fast electron beams. *Journal of Applied Physics*, 22(5) :527, 1950. 10
- [15] D. A. G. Deacon, L. R. Elias, J. M. J. Madey, G. J. Ramian, H. A. Schwettman, and T. I. Smith. First operation of a free-electron laser. *Physical Review Letters*, 38(16) :892, 1977. 10
- [16] K. J. Kim and M. Xie. Self-amplified spontaneous emission for short wavelength coherent radiation. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, 331(1-3) :359–364, 1993. 10
- [17] G. Dattoli. *Lectures on the Free Electron Laser Theory and Related Topics*. World Scientific, 1993. 11
- [18] G. Lambert, T. Hara, D. Garzella, T. Tanikawa, M. Labat, B. Carre, H. Kitamura, T. Shintake, M. Bougeard, S. Inoue, Y. Tanaka, P. Salieres, H. Merdji, O. Chubar, O. Gobert, K. Tahara, and M.-E. Couprie. Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light. *Nature Physics*, 4(4) :296–300, 2008. 11

- [19] J. Amann, W. Berg, V. Blank, F.-J. Decker, Y. Ding, P. Emma, Y. Feng, J. Frisch, D. Fritz, J. Hastings, Z. Huang, J. Krzywinski, R. Lindberg, H. Loos, A. Lutman, H.-D. Nuhn, D. Ratner, J. Rzepiela, D. Shu, Yu. Shvyd'ko, S. Spampinati, S. Stoupin, S. Terentyev, E. Trakhtenberg, D. Walz, J. Welch, J. Wu, A. Zholents, and D. Zhu. Demonstration of self-seeding in a hard-x-ray free-electron laser. *Nature Photonics*, 6(10) :693–698, 2012. 11
- [20] P. Emma, R. Akre, J. Arthur, R. Bionta, C. Bostedt, J. Bozek, A. Brachmann, P. Bucksbaum, R. Coffee, F.-J. Decker, Y. Ding, D. Dowell, S. Edstrom, A. Fisher, J. Frisch, S. Gilevich, J. Hastings, G. Hays, Ph. Hering, Z. Huang, R. Iverson, H. Loos, M. Messerschmidt, A. Miahnahri, S. Moeller, H.-D. Nuhn, G. Pile, D. Ratner, J. Rzepiela, D. Schultz, T. Smith, P. Stefan, H. Tompkins, J. Turner, J. Welch, W. White, J. Wu, G. Yocky, and J. Galayda. First lasing and operation of an ångstrom-wavelength free-electron laser. *Nature Photonics*, 4(9) :641–647, 2010. 12
- [21] Site internet du lcls, section paramters. <https://lcls.slac.stanford.edu/parameters>. 12
- [22] A. Schwarz. The european x-ray free electron laser project at desy. In *Proceedings of the 26th International Free Electron Laser Conference*, volume 10243, 2004. 12
- [23] K. Tiedtke, A. Azima, N. von Bargen, L. Bittner, S. Bonfigt, S. Düsterer, B. Faatz, U. Frühling, M. Gensch, Ch. Gerth, N. Guerassimova, U. Hahn, T. Hans, M. Hesse, K. Honkavaar, U. Jastrow, P. Juranic, S. Kapitzi, B. Keitel, T. Kracht, M. Kuhlmann, W. B. Li, M. Martins, T. Núñez, E. Plönjes, H. Redlin, E. L. Saldin, E. A. Schneidmiller, J. R. Schneider, S. Schreiber, N. Stojanovic, F. Tavella, S. Toleikis, R. Treusch, H. Weigelt, M. Wellhöfer, H. Wabnitz, M. V. Yurkov, and J. Feldhaus. The soft x-ray free-electron laser flash at desy : beamlines, diagnostics and end-stations. *New Journal of Physics*, 11(2) :023029, 2009. 12
- [24] J. Bödewadt, S. Ackermann, R. Aßmann, N. Ekanayake, B. Faatz, G. Feng, I. Hartl, R. Ivanov, T. Laarmann, J. Mueller, T. Tanikawa, Ph. Amstutz, A. Azima, M. Drescher, L. Lazzarino, C. Lechner, Th. Maltezopoulos, V. Miltchev, T. Plath, J. Roßbach, K. Hacker, S. Khan, and R. Molo. Recent results from fel seeding at flash. In *Proc. of International Particle Accelerator Conference*, volume TUBC3, 2015. 12
- [25] Site internet fels of europe. https://www.fels-of-europe.eu/fel_facilities/x_ray_facilities/fermi/. 12
- [26] L. Giannessi. Fermi : the first externally seeded free electron laser in the extreme ultraviolet and soft x-ray spectral regions. In *Proc. of Compact EUV & X-ray Light Sources Conference*, 2018. 12
- [27] Site internet du lcls, section overview. <https://lcls.slac.stanford.edu/overview>. 12
- [28] Site internet de desy. https://photon-science.desy.de/research/technical_groups/undulators/undulators_at_flash/index_eng.html. 12
- [29] J. F. Ward and G. H. C. New. Optical third harmonic generation in gases by a focused laser beam. *Physical Review*, 185(1) :57, 1969. 12
- [30] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Generation of coherent soft x rays at 2.7 nm using high harmonics. *Physical Review Letters*, 79(16) :2967, 1997. 12
- [31] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, and G. D. Enright. Harmonic generation in co2 laser target interaction. *Applied Physics Letters*, 31(3) :172, 1977. 12
- [32] C. Thaury, F. Quéré, J.-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. d'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and Ph. Martin. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nature Physics*, 3(6) :424–429, 2007. 12
- [33] C. Thaury and F. Quéré. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors : basic mechanisms. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 43(21) :213001, 2010. 12
- [34] F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, Ph. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Physical Review Letters*, 96(12) :125004, 2006. 12
- [35] F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Physical Review Letters*, 59(11) :52, 1987. 13
- [36] C. Thaury. *Génération d'harmoniques d'ordres élevés sur miroir plasma*. PhD thesis, 2008. 13
- [37] S. V. Bulanov and N. M. Naumova. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. *Physics of Plasma*, 1(3) :745, 1994. 13
- [38] M. R. Edwards and J. M. Mikhailova. The x-ray emission effectiveness of plasma mirrors : Reexamining power-law scaling for relativistic high-order harmonic generation. *Scientific Reports*, 10(5154), 2020. 14
- [39] R. S. Marjoribanks, C. Thaury, F. Quéré, J.-P. Geindre, P. Audebert, P. Monot, and Ph. Martin. Two mechanisms of high harmonic generation from overdense laser plasmas—relativistic and non-relativistic. In *Proc. Quantum Electronics and Laser Science Conference*, 2007. 14

- [40] S. Haessler, M. Ouillé, J. Kaur, M. Bocoum, F. Böhle, D. Levy, L. Daniault, A. Vernier, J. Faure, and R. Lopez-Martens. High-harmonic generation and correlated electron emission from relativistic plasma mirrors at 1kHz repetition rate. *Ultrafast Science*, 2022 :1–9, 2022. 14
- [41] P. Heissler, A. Barna, J. M. Mikhailova, G. Ma, K. Khrennikov, and S. Kars. Multi- μ j harmonic emission energy from laser-driven plasma. *Applied Physics B*, 118 :195–201, 2015. 14
- [42] C. Lyngå, A. L’Huillier, and C.-G. Wahlström. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors : basic mechanisms. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 29(14) :3293, 1996. 15
- [43] P. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71 :1994, 1993. 16
- [44] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49 :2117, 1993. 16
- [45] Fabrice Sanson. *Génération et optimisation d’harmoniques d’ordres élevés portant un moment angulaire orbital pour l’injection dans un plasma de laser X-UV*. PhD thesis, 2021. 16
- [46] P. Balcou, P. Salières, A. L’Huillier, and M. Lewenstein. Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Physical Review A*, 55 :3204, 1997. 16
- [47] C. G. Durfee, A. R. Rundquist, S. Backus, C. Herne, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Phase matching of high-order harmonics in hollow waveguides. *Physical Review Letters*, 83 :2187, 1999. 16
- [48] C.-G. Wahlström, C. Altucci, M. Bellini, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L’Huillier, C. Lyngå, and R. Zerne. Temporal coherence of high-order harmonics. In *Applications of High Field and Short Wavelength Sources VII Conference*, 1997. 17
- [49] L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux, and D. Phalippou. Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a fresnel-mirror interferometer. *Physical Review A*, 61 :043802, 2000. 17
- [50] J. Gautier, P. Zeitoun, C. Hauri, A.-S. Morlens, G. Rey, C. Valentin, E. Papalarazou, J.-P. Goddet, S. Sebban, F. Burgy, P. Mercère, M. Idir, G. Dovillaire, X. Levecq, S. Bucourt, M. Fajardo, H. Merdji, and J.-P. Caumes. Optimization of the wave front of high order harmonics. *The European Physical Journal D*, 48 :459–463, 2008. 17
- [51] A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, and O. Cohen. Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation. *Nature Photonics*, 8 :543–549, 2014. 17
- [52] A. L’Huillier and Ph. Balcou. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Physical Review Letters*, 70 :774, 1993. 17
- [53] E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa, and K. Midorikawa. Coherent water window x ray by phase-matched high-order harmonic generation in neutral media. *Physical Review Letters*, 101 :253901, 2008. 17
- [54] P. M. Paule, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292, 2001. 17
- [55] P. Jaegle, A. Carillon, P. Dhez, G. Jamelot, A. Sureau, and M. Cukier. Experimental evidence for the possible existence of a stimulated emission in the extreme uv range. *Physical Letters A*, 36 :167–168, 1971. 17
- [56] L. I. Gudzenko and L. A. Shelepin. Radiation enhancement in a recombining plasma. *Soviet Physics Doklady*, 10 :147, 1965. 17
- [57] J.F. Seely, C.M. Brown, U. Feldman, M. Richardson, B. Yaakobi, and W.E. Behring. Evidence for gain on the c vi 182 a° transition in a radiation-cooled selenium/formvar plasma. *Optics Communications*, 54 :289–294, 1985. 17
- [58] G. Jamelot, A. Klisnick, A. Carillon, H. Guennou, A. Sureau, and P. Jaegle. Amplification of soft-x-ray spontaneous emission in aluminium and magnesium plasmas. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 18 :4647, 1985. 17
- [59] V. A. Bhagavatula and B. Yaakobi. Direct observation of population inversion between al+11 levels in a laser-produced plasma. *Optics Communications*, 24 :331–335, 1978. 18
- [60] S. Suckewer, C. H. Skinner, H. Milchberg, C. Keane, and D. Voorhees. Amplification of stimulated soft x-ray emission in a confined plasma column. *Physical Review Letters*, 55 :1753, 1985. 18
- [61] D. Kim, C. H. Skinner, G. Umesh, and S. Suckewer. Gain measurements at 18.22 nm in c vi generated by a nd :glass laser. *Optics Letters*, 14 :665–667, 1989. 18
- [62] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3) :219–221, 1985. 18, 75

- [63] Y. Nagata, K. Midorikawa, S. Kubodera, M. Obara, H. Tashiro, and K. Toyoda. Soft-x-ray amplification of the lyman- α transition by optical-field-induced ionization. *Physical Review Letters*, 71 :3774, 1993. 18
- [64] D. V. Korobkin, C. H. Nam, S. Suckewer, and A. Goltsov. Demonstration of soft x-ray lasing to ground state in li iii. *Physical Review Letters*, 77 :5206, 1996. 18
- [65] M. A. Duguay and P. M. Rentzepis. Some approaches to vacuum uv and x-ray lasers. *Applied Physics Letters*, 10 :350, 1967. 19
- [66] Y. Li, H. Schillinger, C. Ziener, and R. Sauerbrey. Reinvestigation of the duguay soft x-ray laser : a new parameter space for high power femtosecond laser pumped systems. *Optics Communications*, 144 :118–124, 1997. 19
- [67] H. C. Kapteyn. Photoionization-pumped x-ray lasers using ultrashort-pulse excitation. *Applied Optics*, 31 :4931–4939, 1992. 19, 138
- [68] N. Rohringer, D. Ryan, R. A. London, M. Purvis, F. Albert, J. Dunn, J. D. Bozek, C. Bostedt, A. Graf, R. Hill, S. P. Hau-Riege, and J. J. Rocca. Atomic inner-shell x-ray laser at 1.46 nanometers pumped by an x-ray free-electron laser. *Nature*, 481 :488–491, 2012. 19
- [69] M. Ribière, S. Jacquemot, S. Sebban, S. Corde, K. Ta Phuoc, C. Valentin, J. Gautier, P. Zeitoun, G. Lambert, F. Tissandier, and A. Rousse. Femtosecond coherent pulses in the keV range from inner-shell transitions pumped by a betatron source. *Applied Physics B*, 101 :753–759, 2010. 19
- [70] R. C. Elton. Extension of 3p - 3s ion lasers into the vacuum ultraviolet region. *Applied Optics*, 14, 1975. 19
- [71] A. Carillon, H. Z. Chen, P. Dhez, L. Dwivedi, J. Jacoby, P. Jaegle, G. Jamelot, Jie Zhang, M. H. Key, A. Kidd, A. Klisnick, R. Kodama, J. Krishnan, C. L. S. Lewis, D. Neely, P. Norreys, D. O’Neill, G. J. Pert, S. A. Ramsden, J. P. Raucourt, G. J. Tallents, and J. Uhm. Saturated and near-diffraction-limited operation of an xuv laser at 23.6 nm. *Physical Review Letters*, 68 :2917, 1992. 19
- [72] H. Daido. Review of soft x-ray laser researches and developments. *Reports on Progress in Physics*, 65 :1513–1576, 2002. 20
- [73] B. J. MacGowan, S. Maxon, P. L. Hagelstein, C. J. Keane, R. A. London, D. L. Matthews, M. D. Rosen, J. H. Scofield, and D. A. Whelan. Demonstration of soft x-ray amplification in nickel-like ions. *Physical Review Letters*, 59 :2157, 1987. 21
- [74] B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. J. Fields, C. J. Keane, J. A. Koch, R. A. London, D. L. Matthews, S. Maxon, S. Mrowka, A. L. Osterheld, J. H. Scofield, G. Shimkaveg, J. E. Trebes, and R. S. Walling. Short wavelength x-ray laser research at the lawrence livermore national laboratory. *Physics of Fluids B : Plasma Physics*, 4 :2326, 1992. 21
- [75] S. Sebban. *Lasers collisionnels X-UV à ions néonoïdes - Étude du milieu amplificateur et optimisation du pompage - Application à la luminescence induite par un laser à 21.2 nm*. PhD thesis, 1997. 21
- [76] J. Zhang, A. G. MacPhee, J. Nilsen, J. Lin, T. W. Barbee Jr., C. Danson, M. H. Key, C. L. S. Lewis, D. Neely, R. M. N. O’Rourke, G. J. Pert, R. Smith, G. J. Tallents, J. S. Wark, and E. Wolfrum. Demonstration of saturation in a ni-like ag x-ray laser at 14 nm. *Physical Review Letters*, 78 :3856, 1997. 21
- [77] D. Ros. *Extension du pompage des lasers x-uv aux ions nickelloïdes. Réalisation d’un laser à 13.9 nm. Modélisation de la cohérence spatiale des lasers x-uv*. PhD thesis, 1999. 21
- [78] B. Rus, A. Carillon, P. Dhez, P. Jaeglé, G. Jamelot, A. Klisnick, M. Nantel, and P. Zeitoun. Efficient, high-brightness soft-x-ray laser at 21.2 nm. *Physical Review A*, 55 :3858, 1997. 21
- [79] J. Nilsen, Y. Li, P. Lu, J. C. Moreno, and E. E. Fill. Relative merits of using curved targets and the prepulse technique to enhance the output of the neon-like germanium x-ray laser. *Optics Communications*, 124 :187–291, 1996. 21
- [80] M. Nantel, A. Klisnick, G. Jamelot, P. B. Holden, P. Jaeglé, Ph. Zeitoun, G. Tallents, A. G. MacPhee, and C. L. S. Lewis. Effect of weak prepulses on collisional x-ray laser plasmas. *Optics Letters*, 20 :2333–2335, 1995. 21
- [81] B. Rus, T. Mocek, A. R. Präg, M. Kozlova, G. Jamelot, A. Carillon, D. Ros, D. Joyeux, and D. Phalippou. Multimillijoule, highly coherent x-ray laser at 21 nm operating in deep saturation through double-pass amplification. *Physical Review A*, 66 :063806, 2002. 21, 22, 30, 138
- [82] B. Rus, M. Kozlova, J. Polan, A. R. Praeg, M. Stupka, and T. Mocek. Development of soft x-ray lasers at pals. In *Proc. SPIE XV International Symposium on Gas Flow, Chemical Lasers, and High-Power Lasers (2004)*, volume 5777, 2005. 21

- [83] M. Kozlova, J. Nejdil, M. Krus, J. Prokupek, J. Dostal, B. Rus, A. Klisnick, L. Meng, F. Tissandier, C. Stehlé, R. Lefevre, U. Chaulagain, N. Champion, P. Barroso, F. Reix, P. Jagourel, J. Larour, F. Delmotte, C. Constancias, F. Suzuki-Vidal, and O. Acef. *X-ray lasers 2012 : Chapter Characterization of Zn X-Ray Laser at PALS Centre, Its Applications in Dense Plasma Probing and Astrophysics*. Springer Proceedings in Physics, 2014. 22
- [84] P. Lu, T. Kawachi, M. Kishimoto, K. Sukegawa, M. Tanaka, N. Hasegawa, M. Suzuki, R. Tai, M. Kado, K. Nagashima, H. Daido, Y. Kato, H. Fiedorowicz, and A. Bartnik. Demonstration of a transient-gain nickel-like xenon-ion x-ray laser. *Optics Letters*, 27 :1911–1913, 2002. 22
- [85] Y. V. Afanasev and V. N. Shlyaptsev. Formation of a population inversion of transitions in ne-like ions in steady-state and transient plasmas. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 19 :1606, 1989. 22
- [86] P. V. Nickles, M. Schnuerer, M. P. Kalachnikov, I. Will, W. Sandner, and V. N. Shlyaptsev. Efficient short-pulse xuv laser on ne-like titanium. In *Proc. SPIE Soft X-Ray Lasers and Applications*, volume 2520, 1995. 22
- [87] P. V. Nickles, V. N. Shlyaptsev, M. Kalachnikov, M. Schnürer, I. Will, and W. Sandner. Short pulse x-ray laser at 32.6 nm based on transient gain in ne-like titanium. *Physical Review Letters*, 78 :2748, 1997. 22
- [88] M. P. Kalachnikov, P. V. Nickles, M. Schnürer, W. Sandner, V. N. Shlyaptsev, C. Danson, D. Neely, E. Wolfrum, J. Zhang, A. Behjat, A. Demir, G. J. Tallents, P. J. Warwick, and C. L. S. Lewis. Saturated operation of a transient collisional x-ray laser. *Physical Review A*, 57 :4778, 1998. 22
- [89] A. Klisnick, J. Kuba, D. Ros, R. Smith, G. Jamelot, C. Chenais-Popovics, R. Keenan, S. J. Topping, C. L. S. Lewis, F. Strati, G. J. Tallents, D. Neely, R. Clarke, J. Collier, A. G. MacPhee, F. Bortolotto, P. V. Nickles, and K. A. Janulewicz. Demonstration of a 2-ps transient x-ray laser. *Physical Review A*, 65 :033810, 2002. 22, 30, 44, 138
- [90] A. Klisnick, P. Zeitoun, D. Ros, A. Carillon, P. Fourcade, S. Hubert, G. Jamelot, C. L. S. Lewis, A. G. MacPhee, R. M. N. O'Rourke, R. Keenan, P. V. Nickles, K. Janulewicz, M. Kalashnikov, J. Warwick, J.-C. Chanteloup, A. Migus, E. Salmon, C. Sauteret, and J. P. Zou. Transient pumping of a ni-like ag x-ray laser with a subpicosecond pump pulse in a traveling-wave irradiation geometry. *Journal of the Optical Society of America B*, 17 :1093–1097, 2000. 22, 148
- [91] R. Keenan, J. Dunn, P. K. Patel, D. F. Price, R. F. Smith, and V. N. Shlyaptsev. High-repetition-rate grazing-incidence pumped x-ray laser operating at 18.9 nm. *Physical Review Letters*, 94(10) :103901, 2005. 22, 121
- [92] K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, F. Plé, G. Jamelot, A. Klisnick, O. Lundh, F. Lindau, A. Persson, C.-G. Wahlström, S. de Rossi, D. Joyeux, B. Zielbauer, D. Ursescu, and T. Kühlu. Optimization toward a high-average-brightness soft-x-ray laser pumped at grazing incidence. *Optics Letters*, 32 :139–141, 2007. 22
- [93] D. Zimmer, B. Zielbauer, M. Pittman, O. Guilbaud, J. Habib, S. Kazamias, D. Ros, V. t Bagnoud, and T. Kuehl. Optimization of a tabletop high-repetition-rate soft x-ray laser pumped in double-pulse single-beam grazing incidence. *Optics Letters*, 35 :450–452, 2010. 22
- [94] B. A. Reagan, M. Berrill, K. A. Wernsing, C. Baumgarten, M. Woolston, and J. J. Rocca. High-average-power, 100-hz-repetition-rate, tabletop soft-x-ray lasers at sub-15-nm wavelengths. *Physical Review A*, 89 :053820, 2014. 23
- [95] B. A. Reagan, C. M. Baumgarten, M. A. Pedicone, H. Bravo, L. Yin, H. Wang, C. S. Menoni, and J. J. Rocca. Development of high repetition rate, high energy diode-pumped short pulse lasers and applications. In *Proc. SPIE Laser Congress 2017*, volume ATh1A.1, 2017. 23
- [96] Y. Wang, M. A. Larotonda, B. M. Luther, D. Alessi, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, and J. J. Rocca. Demonstration of high-repetition-rate tabletop soft-x-ray lasers with saturated output at wavelengths down to 13.9 nm and gain down to 10.9 nm. *Physical Review A*, 72 :053807, 2005. 23
- [97] D. Alessi, Y. Wang, B. M. Luther, L. Yin, D. H. Martz, M. R. Woolston, Y. Liu, M. Berrill, and J. J. Rocca. Efficient excitation of gain-saturated sub-9-nm-wavelength tabletop soft-x-ray lasers and lasing down to 7.36 nm. *Physical Review X*, 1 :021023, 2011. 23
- [98] A. Rockwood, Y. Wang, S. Wang, M. Berrill, V. N. Shlyaptsev, and J. J. Rocca. Compact gain-saturated x-ray lasers down to 6.85 nm and amplification down to 5.85 nm. *Optica*, 5 :257–262, 2018. 23
- [99] O. Guilbaud. *Etudes et applications des propriétés de cohérence des lasers x-uv à pompage transitoire*. PhD thesis, 2005. 23
- [100] Y. Wang, E. Granados, M. A. Larotonda, M. Berrill, B. M. Luther, D. Patel, C. S. Menoni, and J. J. Rocca. High-brightness injection-seeded soft-x-ray-laser amplifier using a solid target. *Physical Review Letters*, 97 :123901, 2006. 23

- [101] B. E. Lemoff, C. P. J. Barty, and S. E. Harris. Femtosecond-pulse-driven, electron-excited xuv lasers in eight-times-ionized noble gases. *Optics Letters*, 19 :569–571, 1994. 24, 25
- [102] S. Sebban, R. Haroutunian, Ph. Balcou, G. Grillon, A. Rousse, S. Kazamias, T. Marin, J. P. Rousseau, L. Notebaert, M. Pittman, J. P. Chambaret, A. Antonetti, D. Hulin, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, P. Jaeglé, G. Jamelot, , and J. F. Wyart. Saturated amplification of a collisionally pumped optical-field-ionization soft x-ray laser at 41.8 nm. *Physical Review Letters*, 86 :3004, 2001. 24
- [103] F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, A. Kabacinski, S. Sebban, J. Nejd, M. Kozlová, and G. Maynard. Two-color soft x-ray lasing in a high-density nickel-like krypton plasma. *Physical Review Letters*, 124(13) :133902, 2020. 25, 92
- [104] F. Tissandier. *Caractérisation spatio-temporelle d'une chaîne laser à 32.8 nm par plasma laser et perspectives vers une source ultrabrève et intense*. PhD thesis, 2011. 25, 28, 29, 30, 93, 95, 96, 99, 102, 105, 172, 175
- [105] J.-P. Goddet. *Etude et développement de sources laser XUV par injection d'harmoniques d'ordre élevé*. PhD thesis, 2009. 25, 59, 60, 99, 172, 175
- [106] O. Maya, Y. Nagata, M. Obara, Y. Aoyagi, and K. Midorikawa. Design of an ultrahigh-gain ni-like kr soft-x-ray laser by use of an optical-field-induced ionization-initiated transient collisional excitation scheme. *Japanese Journal of Applied Physics*, 40 :153–158, 2001. 25
- [107] E. Oliva, M. Cotel, J. C. Escudero, A. González-Fernández, A. Sanchís, J. Vera, S. Vicéns, and P. Velarde. Ultra-high gain ni-like kr soft x-ray laser by optical field ionization-initiated transient collisional excitation scheme. In *Proc. SPIE 3776, Conference on soft X-ray Lasers and Applications*, volume 3776, 2000. 25
- [108] J. J. Rocca, V. Shlyaptsev, F. G. Tomasel, O. D. Cortázar, D. Hartshorn, and J. L. A. Chilla. Demonstration of a discharge pumped table-top soft-x-ray laser. *Physical Review Letters*, 73 :2192, 1994. 25
- [109] S. Heinbuch, M. Grisham, D. Martz, and J.J. Rocca. Demonstration of a desk-top size high repetition rate soft x-ray laser. *Optics Express*, 13 :4050–4055, 2005. 25, 26, 30
- [110] C. D. Macchietto, B. R. Benware, and J. J. Rocca. Generation of millijoule-level soft-x-ray laser pulses at a 4-hz repetition rate in a highly saturated tabletop capillary discharge amplifier. *Optics Letters*, 24 :1115–1117, 1999. 26
- [111] T. Ditmire, M. H. R. Hutchinson, M. H. Key, C. L. S. Lewis, A. MacPhee, I. Mercer, D. Neely, M. D. Perry, R. A. Smith, J. S. Wark, and M. Zepf. Amplification of xuv harmonic radiation in a gallium amplifier. *Physical Review A*, 51 :R4337, 1995. 26
- [112] A. Le Marec, O. Guilbaud, O. Larroche, and A. Klisnick. Evidence of partial temporal coherence effects in the linear autocorrelation of extreme ultraviolet laser pulses. *Optics Letters*, 41 :3387–3390, 2016. 28
- [113] A. Le Marec, O. Larroche, and A. Klisnick. Linear autocorrelation of partially coherent extreme-ultraviolet lasers : a quantitative analysis. *Optics Letters*, 42 :4958–4961, 2017. 28
- [114] A. Le Marec. *Vers les lasers XUV femtosecondes : étude des propriétés spectrales et temporelles de l'amplification de rayonnement XUV dans un plasma*. PhD thesis, 2016. 28
- [115] F. Tissandier, S. Sebban, M. Ribiere, J. Gautier, Ph. Zeitoun, G. Lambert, A. Barszczak Sardinha, J.-Ph. Goddet, F. Burgy, T. Lefrou, C. Valentin, A. Rousse, O. Guilbaud, A. Klisnick, J. Nejd, T. Mocek, and G. Maynard. Observation of spectral gain narrowing in a high-order harmonic seeded soft-x-ray amplifier. *Physical Review A*, 81(063833), 2010. 28, 39
- [116] A. Depresseux, E. Oliva, J. Gautier, F. Tissandier, G. Lambert, B. Vodungbo, J.-P. Goddet, A. Tafzi, J. Nejd, M. Kozlova, G. Maynard, H. T. Kim, K. Ta Phuoc, A. Rousse, P. Zeitoun, and S. Sebban. Demonstration of a circularly polarized plasma-based soft-x-ray laser. *PhysicalReviewLetters*, 115 :083901, 2015. 29
- [117] T. Mocek, S. Sebban, G. Maynard, Ph. Zeitoun, G. Faivre, A. Hallou, M. Fajardo, S. Kazamias, B. Cros, D. Aubert, G. de Lachèze-Murel, J. P. Rousseau, and J. Dubau. Absolute time-resolved x-ray laser gain measurement. *Physical Review Letters*, 95(17) :173902, 2005. 30, 99, 172
- [118] Y. Wang, M. Berrill, F. Pedaci, M. M. Shakya, S. Gilbertson, Z. Chang, E. Granados, B. M. Luther, M. A. Larotonda, and J. J. Rocca. Measurement of 1-ps soft x-ray laser pulses from an injection-seeded plasma amplifier. *Physical Review A*, 79 :023810, 2009. 30, 118, 138
- [119] J. E. Trebes, S. B. Brown, E. M. Campbell, D. L. Matthews, D. G. Nilson, G. F. Stone, and D. A. Whelan. Demonstration of x-ray holography with an x-ray laser. *Science*, 238 :517–519, 1987. 31
- [120] P. W. Wachulak, M. C. Marconi, R. A. Bartels, C. S. Menoni, and J. J. Rocca. Soft x-ray laser holography with wavelength resolution. *Journal of the Optical Society of America B*, 25 :1811–1814, 2008. 31

- [121] G. Vaschenko, F. Brizuela, C. Brewer, M. Grisham, H. Mancini, C. S. Menoni, M. C. Marconi, J. J. Rocca, W. Chao, J. A. Liddle, E. H. Anderson, D. T. Attwood, A. V. Vinogradov, I. A. Artioukov, Y. P. Pershyn, and V. V. Kondratenko. Nanoimaging with a compact extreme-ultraviolet laser. *Optics Letters*, 30 :2095–2097, 2005. 31
- [122] C. A. Brewer, F. Brizuela, P. Wachulak, D. H. Martz, W. Chao, E. H. Anderson, D. T. Attwood, A. V. Vinogradov, I. A. Artyukov, A. G. Ponomareko, V. V. Kondratenko, M. C. Marconi, J. J. Rocca, and C. S. Menoni. Single-shot extreme ultraviolet laser imaging of nanostructures with wavelength resolution. *Optics Letters*, 33 :518–520, 2008. 31
- [123] F. Brizuela, Y. Wang, C. A. Brewer, F. Pedaci, W. Chao, E. H. Anderson, Y. Liu, K. A. Goldberg, P. Naulleau, P. Wachulak, M. C. Marconi, D. T. Attwood, J. J. Rocca, and C. S. Menoni. Microscopy of extreme ultraviolet lithography masks with 13.2 nm tabletop laser illumination. *Optics Letters*, 34 :271–273, 2009. 31
- [124] S. Carbajo, I. D. Howlett, F. Brizuela, K. S. Buchanan, M. C. Marconi, W. Chao, E. H. Anderson, I. Artioukov, A. Vinogradov, J. J. Rocca, and C. S. Menoni. Sequential single-shot imaging of nanoscale dynamic interactions with a table-top soft x-ray laser. *Optics Letters*, 37 :2994–2996, 2012. 31
- [125] D. Ress, L. B. Da Silva, R. A. London, J. E. Trebes, S. Mrowka, R. J. Procassini, T. W. Barbee Jr., and D. E. Lehr. Measurement of laser-plasma electron density with a soft x-ray laser deflectometer. *Science*, 265 :514–517, 1994. 31
- [126] D. H. Kalantar, M. H. Key, L. B. DaSilva, S. G. Glendinning, J. P. Knauer, B. A. Remington, F. Weber, and S. V. Weber. Measurement of 0.35 μm laser imprint in a thin si foil using an x-ray laser backlighter. *Physical Review Letters*, 76 :3574, 1996. 31
- [127] D. H. Kalantar, M. H. Key, L. B. Da Silva, S. G. Glendinning, B. A. Remington, J. E. Rothenberg, F. Weber, and S. V. Weber. Measurements of direct drive laser imprint in thin foils by radiography using an x-ray laser backlighter. *Physics of Plasmas*, 4 :1985, 1998. 31
- [128] L. B. Da Silva, T. W. Barbee Jr., R. Cauble, P. Celliers, D. Ciarlo, S. Libby, R. A. London, D. Matthews, S. Mrowka, J. C. Moreno, D. Ress, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber. Electron density measurements of high density plasmas using soft x-ray laser interferometry. *Physical Review Letters*, 74 :3991, 1995. 31
- [129] R. Cauble, L. B. Da Silva, T. W. Barbee Jr., P. Celliers, C. Decker, R. A. London, J. C. Moreno, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber. Simultaneous measurement of local gain and electron density in x-ray lasers. *Science*, 273 :1093–1096, 1996. 31
- [130] R. F. Smith, J. Dunn, J. Nilsen, V. N. Shlyaptsev, S. Moon, J. Filevich, J. J. Rocca, M. C. Marconi, J. R. Hunter, and Jr. T. W. Barbee. Picosecond x-ray laser interferometry of dense plasmas. *Physical Review Letters*, 89 :065004, 2002. 31
- [131] J. Filevich, J. J. Rocca, E. Jankowska, E. C. Hammarsten, K. Kanizay, M. C. Marconi, S. J. Moon, and V. N. Shlyaptsev. Two-dimensional effects in laser-created plasmas measured with soft-x-ray laser interferometry. *Physical Review E*, 67 :056409, 2003. 31
- [132] J. Grava, M. A. Purvis, J. Filevich, M. C. Marconi, J. J. Rocca, J. Dunn, S. J. Moon, and V. N. Shlyaptsev. Dynamics of a dense laboratory plasma jet investigated using soft x-ray laser interferometry. *Physical Review E*, 78 :016403, 2008. 31, 32
- [133] G. Vaschenko, A. Garcia Etxarri, C. S. Menoni, J. J. Rocca, O. Hemberg, S. Bloom, W. Chao, E. H. Anderson, D. T. Attwood, Y. Lu, and B. Parkinson. Nanometer-scale ablation with a table-top soft x-ray laser. *Optics Letters*, 31 :3615–3617, 2006. 32
- [134] I. Kuznetsov, J. Filevich, F. Dong, M. Woolston, W. Chao, E. H. Anderson, E. R. Bernstein, D. C. Crick, J. J. Rocca, and C. S. Menoni. Three-dimensional nanoscale molecular imaging by extreme ultraviolet laser ablation mass spectrometry. *Nature Communications*, 6, 2015. 32
- [135] L. Urbanski, A. Isoyan, A. Stein, J. J. Rocca, C. S. Menoni, and M. C. Marconi. Defect-tolerant extreme ultraviolet nanoscale printing. *Optics Letters*, 37 :3633–3635, 2012. 32
- [136] A. H. Chin, R. W. Schoenlein, T. E. Glover, P. Balling, W. P. Leemans, and C. V. Shank. Ultrafast structural dynamics in insb probed by time-resolved x-ray diffraction. *Physical Review Letters*, 83 :336, 1999. 32
- [137] A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Förster, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier, and D. Hulin. Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution. *Nature*, 410 :65–68, 2001. 32
- [138] K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, J. Blums, A. Cavalleri, C. Dietrich, A. Tarasevitch, I. Uschmann, E. Förster, M. Kammler, M. Horn von Hoegen, and D. von der Linde. Femtosecond x-ray measurement of coherent lattice vibrations near the lindemann stability limit. *Nature*, 422(6929) :287–289, 2003. 32, 138

- [139] K. Ta Phuoc, A. Rousse, M. Pittman, J. P. Rousseau, V. Malka, S. Fritzler, D. Umstadter, and D. Hulin. X-ray radiation from nonlinear thomson scattering of an intense femtosecond laser on relativistic electrons in a helium plasma. *Physical Review Letters*, 91 :195001, 2003. 32
- [140] A. Rousse, K. T. Phuoc, R. Shah, A. Pukhov, E. Lefebvre, V. Malka, S. Kiselev, F. Burgy, J.-P. Rousseau, D. Umstadter, and D. Hulin. Production of a keV x-ray beam from synchrotron radiation in relativistic laser-plasma interaction. *Physical Review Letters*, 93 :135005, 2004. 32
- [141] B. Vodungbo, J. Gautier, G. Lambert, A. B. Sardinha, M. Lozano, S. Sebban, M. Ducouso, W. Boutu, K. Li, B. Tudu, M. Tortarolo, R. Hawaldar, R. Delaunay, V. López-Flores, J. Arabski, C. Boeglin, H. Merdji, P. Zeitoun, and J. Lüning. Laser-induced ultrafast demagnetization in the presence of a nanoscale magnetic domain network. *Nature Communications*, 3, 2012. 32
- [142] E. Gagnon, P. Ranitovic, X.-M. Tong, C. L. Cocke, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and A. S. Sandhu. Soft x-ray-driven femtosecond molecular dynamics. *Science*, 317(5843) :1374–1378, 2007. 32, 138
- [143] H. N. Chapman, S. P. Hau-Riege, M. J. Bogan, S. Bajt, A. Barty, S. Boutet, S. Marchesini, M. Frank, B. W. Woods, W. Henry Benner, R. A. London, U. Rohner, A. Szöke, E. Spiller, T. Möller, C. Bostedt, D. A. Shapiro, M. Kuhlmann, R. Treusch, E. Plönjes, F. Burmeister, M. Bergh, C. Caleman, G. Hultdt, M. M. Seibert, and J. Hajdu. Femtosecond time-delay x-ray holography. *Nature*, 448 :676–678, 2007. 32, 138
- [144] I. Orfanos, I. Makos, I. Lontos, E. Skantzakis, B. Major, A. Nayak, M. Dumergue, S. Kühn, S. Kahaly, K. Varju, G. Sansone, B. Witzel, C. Kalpouzos, L. A. A. Nikolopoulos, P. Tzallas, and D. Charalambidis. Non-linear processes in the extreme ultraviolet. *Journal of Physics Photonics*, 2 :042003, 2020. 32
- [145] S. Shwartz, M. Fuchs, J. B. Hastings, Y. Inubushi, T. Ishikawa, T. Katayama, D. A. Reis, T. Sato, K. Tono, M. Yabashi, S. Yudovich, and S. E. Harris. X-ray second harmonic generation. *Physical Review Letters*, 112 :163901, 2014. 32, 193
- [146] R. K. Lam, S. L. Raj, T. A. Pascal, C. D. Pemmaraju, L. Foglia, A. Simoncig, N. Fabris, P. Miotti, C. J. Hull, A. M. Rizzuto, J. W. Smith, R. Mincigrucci, C. Masciovecchio, A. Gessini, E. Allaria, G. De Ninno, B. Diviacco, E. Roussel, S. Spampinati, G. Penco, S. Di Mitri, M. Trovò, M. Danailov, S. T. Christensen, D. Sokaras, T.-C. Weng, M. Coreno, L. Poletto, W. S. Drisdell, D. Prendergast, L. Giannessi, E. Principi, D. Nordlund, R. J. Saykally, and C. P. Schwartz. Soft x-ray second harmonic generation as an interfacial probe. *Physical Review Letters*, 120 :023901, 2018. 32, 193
- [147] T. Helk, E. Berger, S. Jamnuch, L. Hoffmann, A. Kabacinski, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, H.-T. Chang, J. Oh, C. Das Pemmaraju, T. A. Pascal, S. Sebban, C. Spielmann, and M. Zuerch. Table-top extreme ultraviolet second harmonic generation. *Science Advances*, 7(21), 2021. 32, 180, 196
- [148] H. R. Griem. Line profiles of soft-x-ray laser gain coefficients. *Physical Review A*, 33(5) :3580, 1986. 39
- [149] A. Calisti, S. Ferri, C. Mossé, B. Talin, A. Klisnick, L. Meng, D. Benredjem, and O. Guilbaud. Line profiles of ni-like collisional xuv laser amplifiers : Particle correlation effects. *High Energy Density Physics*, 9(3) :516–522, 2013. 39
- [150] J. A. Koch, B. J. MacGowan, L. B. Da Silva, D. L. Matthews, J. H. Underwood, P. J. Batson, R. W. Lee, R. A. London, and S. Mrowka. Experimental and theoretical investigation of neonlike selenium x-ray laser spectral linewidths and their variation with amplification. *Physical Review A*, 50(2) :1877, 1994. 39
- [151] G. J. Linford, E. R. Peressini, W. R. Sooy, and M. L. Spaeth. Very long lasers. *Applied Optics*, 13(2) :379–390, 1974. 41
- [152] R. Tommasini and E. E. Fill. Generalized linford formula. *Journal of the Optical Society of America B*, 17(10) :1665–1670, 2000. 41
- [153] J. L. Hall, E. J. Robinson, and L. M. Branscomb. Laser double-quantum photodetachment of i⁻. *Physical Review Letters*, 14(25) :1013, 1965. 45
- [154] P. Agostini, G. Barjot, J. F. Bonnal, G. Mainfray, C. Manus, and J. Morellec. Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases. *Journal of Quantum Electronics*, 4(10) :667–669, 1968. 45
- [155] S. L. Chin, F. Yergeau, and P. Lavigne. Tunnel ionisation of Xe in an ultra-intense CO₂ laser field with multiple charge creation. *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics*, 18(8) :L213, 1985. 46
- [156] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 20(5) :1307–1314, 1965. 46
- [157] S. Augst, D. D. Meyerhofer, D. Strickland, and S. L. Chin. Laser ionization of noble gases by coulomb-barrier suppression. *Journal of the Optical Society of America B*, 8(4) :858–867, 1991. 47
- [158] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 64(6) :1191–1194, 1986. 48, 181

- [159] N. B. Delone and V. P. Krainov. Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. *Physics-Uspekhi*, 41(5) :469–485, 1998. 49
- [160] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and F. Brunel. Above-threshold ionization in the long-wavelength limit. *Physical Review Letters*, 62(11) :1259, 1989. 49
- [161] G. J. Pert. Inverse bremsstrahlung in strong radiation fields at low temperatures. *Physical Review E*, 51(5) :4778, 1995. 50
- [162] S. Sebban, Lee M. Upcraft, P. Balcou, M. Pittman, R. Haroutunian, G. Grillon, C. Valentin, A. Rousse, J.-P. Rousseau, L. Notebaert, D. Hulin, T. Mocek, B. Rus, D. Ros, A. Klisnick, A. Carillon, and G. Jamelot. Investigations of collisionally pumped optical field ionization soft-x-ray lasers. *Journal of the Optical Society of America B*, 20(1) :195–202, 2003. 50, 96
- [163] M. B. Smirnov and V. P. Krainov. Hot electrons in the tunnelling ionization of atoms. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 31(11) :L519, 1998. 51
- [164] V. P. Krainov. Energy and angular distribution of relativistic electrons in the tunnelling ionization of atoms by circularly polarized light. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 32(6) :1607, 1999. 51
- [165] G. Maynard, N. Andreev F. Lambert, B. Robillart, A. Boudaa, J. Clerouin, B. Cros, A. Lenglet, T. Mocek, and S. Sebban. Determination of the ion temperature in a plasma created by optical field ionization. *Contributions to Plasma Physics*, 47(4-5) :352–359, 2007. 52, 55, 56
- [166] Jean-Marcel Rax. *Physique des plasmas : Cours et applications*. Dunod, 2005. 53
- [167] L. Spitzer Jr. *Physics of Fully Ionized Gases*. Interscience Publishers, 1967. 53
- [168] M. N. Rosenbluth, W. M. MacDonald, and D. L. Judd. Fokker-planck equation for an inverse-square force. *Physical Review Journals Archive*, 107(1) :1, 1957. 54
- [169] G. J. Pert. The calculation of the electron distribution function following tunnelling ionization using a fokker-planck method. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 34(5) :881, 2001. 54
- [170] R. Rankin, C. E. Capjack, N. H. Burnett, and P. B. Corkum. Refraction effects associated with multiphoton ionization and ultrashort-pulse laser propagation in plasma waveguides. *Optics Letters*, 16(11) :835–837, 1991. 59
- [171] C. Ellen Max, J. Arons, and A. Bruce Langdon. Self-modulation and self-focusing of electromagnetic waves in plasmas. *Physical Review Letters*, 33(4) :209, 1974. 60
- [172] P. Sprangle, C.-M. Tang, and E. Esarey. Relativistic self-focusing of short-pulse radiation beams in plasmas. *IEEE Transactions on Plasma Science*, 15(2) :145–153, 1987. 60
- [173] D. J. Spence and S. M. Hooker. Investigation of a hydrogen plasma waveguide. *Physical Review E*, 63(1) :015401, 2001. 61
- [174] D. J. Spence, A. Butler, and S. M. Hooker. First demonstration of guiding of high-intensity laser pulses in a hydrogen-filled capillary discharge waveguide. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 34(21) :4103, 2001. 61
- [175] A. Butler, D. J. Spence, and S. M. Hooker. Guiding of high-intensity laser pulses with a hydrogen-filled capillary discharge waveguide. *Physical Review Letters*, 89(18) :185003, 2002. 61
- [176] W.P. Leemans, A.J. Gonsalves, H.-S. Mao, K. Nakamura, C. Benedetti, C.B. Schroeder, Cs. Tóth, J. Daniels, D.E. Mittelberger, S.S. Bulanov, J.-L. Vay, C.G.R. Geddes, and E. Esarey. Multi-gev electron beams from capillary-discharge-guided subpetawatt laser pulses in the self-trapping regime. *Physical Review Letters*, 113(24) :245002, 2014. 61
- [177] S. Jackel, R. Burris, J. Grun, A. Ting, C. Manka, K. Evans, and J. Kosakowski. Channeling of terawatt laser pulses by use of hollow waveguides. *Optics Letters*, 20(10) :1086–1088, 1995. 61
- [178] F. Dorchies, J. R. Marquès, B. Cros, G. Matthieussent, C. Courtois, T. Vélikorousov, P. Audebert, J. P. Geindre, S. Rebibo, G. Hamoniaux, and F. Amiranoff. Monomode guiding of 10^{16} w/cm² laser pulses over 100 rayleigh lengths in hollow capillary dielectric tubes. *Physical Review Letters*, 82(23) :4655, 1999. 61
- [179] T. Mocek, C. M. McKenna, B. Cros, S. Sebban, D. J. Spence, G. Maynard, I. Bettaibi, V. Vorontsov, A. J. Gonsalves, and S. M. Hooker. Dramatic enhancement of xuv laser output using a multimode gas-filled capillary waveguide. *Physical Review A*, 71(1) :013804, 2005. 61
- [180] B. Cros, T. Mocek, I. Bettaibi, G. Vieux, M. Farinet, J. Dubau, S. Sebban, and G. Maynard. Characterization of the collisionally pumped optical-field-ionized soft-x-ray laser at 41.8nm driven in capillary tubes. *Physical Review A*, 73(3) :033801, 2006. 61, 181

- [181] C. G. Durfee and H. M. Milchberg. Light pipe for high intensity laser pulses. *Physical Review Letters*, 71(15) :2409, 1993. 63, 80
- [182] C. G. Durfee, J. Lynch, and H. M. Milchberg. Mode properties of a plasma waveguide for intense laser pulses. *Optics Letters*, 19(23) :1937–1939, 1994. 63
- [183] P. Volfbeyn, E. Esarey, and W. P. Leemans. Guiding of laser pulses in plasma channels created by the ignitor-heater technique. *Physics of Plasma*, 6(5) :2269, 1999. 63
- [184] A. Butler, A. J. Gonsalves, C. M. McKenna, D. J. Spence, S. M. Hooker, S. Sebban, T. Mocek, I. Betttaibi, and B. Cros. 41.8 nm xe⁸⁺ laser driven in a plasma waveguide. *Physical Review A*, 70(2) :023821, 2004. 63
- [185] M. C. Chou, P. H. Lin, C. A. Lin, J. Y. Lin, J. Wang, and S. Y. Chen. Dramatic enhancement of optical-field-ionization collisional-excitation x-ray lasing by an optically preformed plasma waveguide. *Physical Review Letters*, 99, August 2007. 63
- [186] John F. Seely and Edward G. Harris. Heating of a plasma by multiphoton inverse bremsstrahlung. *Physical Review A*, 7(3) :1064, 1973. 63
- [187] E. Oliva, M. Coteló, J. C. Escudero, A. González-Fernández, A. Sanchís, J. Vera, S. Vicéns, and P. Velarde. Dagon : a 3d maxwell-bloch code. In *Proc. SPIE 10243, X-ray Lasers and Coherent X-ray Sources : Development and Applications*, volume 10243, 2017. 66
- [188] E. Oliva, E. V. Fernandez-Tello, M. Coteló, P. M. Gil, J. A. Moreno, and P. Velarde. 3d multi-scale modelling of plasma-based seeded soft x-ray lasers. *The European Physical Journal D*, 75(290), 2021. 66
- [189] F. Ogando and P. Velarde. Development of a radiation transport fluid dynamic code under amr scheme. *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 71 :541, 2001. 66
- [190] M. Coteló, P. Velarde, A.G. de la Varga, D. Portillo, C. Stehlé, U. Chaulagain, M. Kozlova, J. Larour, and F. Suzuki-Vidal. Simulation of radiative shock waves in xe of last pals experiments. *High Energy Density Physics*, 17 :68 – 73, 2015. 10th International Conference on High Energy Density Laboratory Astrophysics. 66
- [191] R. Lehe, M. Kirchen, I. A. Andriyash, B. B. Godfrey, and J.-L. Vay. A spectral, quasi-cylindrical and dispersion-free particle-in-cell algorithm. *Computer Physics Communications*, 203 :66–82, 2016. 66
- [192] F. Tuitje, P. M. Gil, T. Helk, J. Gautier, F. Tissandier, J.-P. Goddet, A. Guggenmos, U. Kleineberg, S. Sebban, E. Oliva, C. Spielmann, and M. Zürch. Nonlinear ionization dynamics of hot dense plasma observed in a laser-plasma amplifier. *Light : Science & Applications*, 9(187), 2020. 67, 101, 169
- [193] F. Verluise, V. Laude, Z. Cheng, Ch. Spielmann, and P. Tournois. Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter : pulse compression and shaping. *Optics Letters*, 25(8) :575–577, 2000. 75, 151
- [194] S. Semushin and V. Malka. High density gas jet nozzle design for laser target production. *Review of Scientific Instruments*, 72(7) :2961–2965, 2001. 78
- [195] J. H. McLeod. The axicon : A new type of optical element. *Journal of the Optical Society of America*, 44(8), 1954. 80
- [196] D. G. Lee, J.-H. Kim, K.-H. Hong, and C. H. Nam. Coherent control of high-order harmonics with chirped femtosecond laser pulses. *Physical Review Letters*, 87(24) :243902, 2001. 81
- [197] D. H. Reitze, S. Kazamias, F. Weihe, G. Mullot, D. Douillet, F. Augé, O. Albert, V. Ramanathan, J. P. Chambaret, D. Hulin, and P. Balcou. Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control. *Physical Review Letters*, 29(1) :86–88, 2004. 81
- [198] F. R. Powell, P. W. Vedder, J. F. Lindblom, and S. F. Powell. Thin film filter performance for extreme ultraviolet and x-ray applications. *Optical Engineering*, 29(6) :614–624, 1990. 85
- [199] E. Spiller. Characterization of multilayer coatings by x-ray reflection. *Revue Phys. Appl.*, 23 :1687–1700, 1988. 87
- [200] X-ray data booklet. Center for X-ray Optics and Advanced Light Source : <http://www.cxro.lbl.gov>, 2009. 87
- [201] A. Kabacinski, F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, A. Tafzi, and S. Sebban. Monitoring shot-to-shot variations of soft x-ray sources using aluminum foils. *Review of Scientific Instruments*, 91(10) :103001, 2020. 87
- [202] J. L. A. Chilla, J. J. Rocca, O. E. Martinez, and M. C. Marconi. Soft-x-ray interferometer for single-shot laser linewidth measurements. *Optics Letters*, 21(13) :955–957, 1996. 87

- [203] L. B. Da Silva, T. W. Barbee, R. Cauble, P. Celliers, D. Ciarlo, S. Libby, R. A. London, D. Matthew, S. Mrowka, J. C. Moreno, D. Ress, J. E. Trebes, A. S. Wan, and F. Weber. Electron density measurements of high density plasmas using soft x-ray laser interferometry. *Physical Review Letters*, 74(20), May 1995. 87
- [204] O. Guilbaud, A. Klisnick, K. Cassou, S. Kazamias, D. Ros, G. Jamelot, D. Joyeux, and D. Phalippou. Origin of microstructures in picosecond x-ray laser beams. *Europhysics Letters*, 74(5) :823–829, 2006. 93
- [205] I. Andriyash, R. Lehe, and A. Lifschitz. Laser-plasma interactions with a fourier-bessel particle-in-cell method. *Physics of Plasmas*, 23(3) :033110, 2016. 97
- [206] M. M. Shakya and Z. Chang. Achieving 280fs resolution with a streak camera by reducing the deflection dispersion. *Applied Physics Letters*, 87(4) :041103, 2005. 118
- [207] J. Feng, H. J. Shin, J. R. Nasiatka, W. Wan, A. T. Young, G. Huang, A. Comin, J. Byrd, and H. A. Padmore. An x-ray streak camera with high spatio-temporal resolution. *Applied Physics Letters*, 91(13) :134102, 2007. 118
- [208] Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe. 27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics. *Optics Letters*, 23 :64–66, 1998. 118, 119
- [209] T. Sekikawa, T. Katsura, S. Miura, and S. Watanabe. Measurement of the intensity-dependent atomic dipole phase of a high harmonic by frequency-resolved optical gating. *Physical Review Letters*, 88 :193902, 2002. 118
- [210] 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*, 414 :509–513, 2001. 119
- [211] R. Ivanov, I. J. Bermúdez Macias, J. Liu, G. Brenner, J. Roensch-Schulenburg, G. Kurdi, U. Frühling, K. Wenig, S. Walther, A. Dimitriou, M. Drescher, I. P. Sazhina, A. K. Kazansky, N. M. Kabachnik, and S. Düsterer. Single-shot temporal characterization of xuv pulses with duration from 10 fs to 350 fs at flash. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 53 :184004, 2020. 119
- [212] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz. Observation of laser-assisted auger decay in argon. *Physical Review Letters*, 73 :2180–2183, 1994. 119
- [213] A. Bouhal, R. Evans, G. Grillon, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, and D. von der Linde. Cross-correlation measurement of femtosecond noncollinear high-order harmonics. *Journal of the Optical Society of America B*, 14 :950–956, 1997. 119
- [214] L. Dakroub, T. Sinyakova, D. Cubaynes, A. K. Pandey, M. Pittman, E. Baynard, C. Bourassin-Bouchet, O. Guilbaud, and A. Klisnick. Temporal characterization of a plasma-based seeded xuv laser using a laser-dressed photoionization technique. In *Proc. SPIE 11886, International Conference on X-Ray Lasers 2020*, volume 11886, 2021. 119
- [215] L. Dakroub. *Métrie temporelle des lasers XUV ultra-brefs générés par plasma*. PhD thesis, 2023. 119
- [216] L. Dakroub, T. Sinyakova, D. Cubaynes, C. Bomme, L. Chopineau, G. Garcia, O. Peyrusse, F. Quéré, C. Bourassin-Bouchet, and A. Klisnick. Laser-dressed photoionization for the temporal characterization of attosecond pulses generated from plasma mirrors. *Submitted at European Physical Journal Special Topics*, 2023. 119
- [217] Y. Kobayashi, O. Yoshihara, Y. Nabekawa, K. Kondo, and S. Watanabe. Femtosecond measurement of high-order harmonic pulse width and electron recombination time by field ionization. *Optics Letters*, 21 :417–419, 1996. 120
- [218] K. Oguri, H. Nakano, T. Nishikawa, and N. Uesugi. Cross-correlation measurement of ultrashort soft x-ray pulse emitted from femtosecond laser-produced plasma using optical field-induced ionization. *Applied Physics Letters*, 79 :4506–4508, 2001. 120
- [219] K. Oguri, T. Ozaki, T. Nishikawa, and H. Nakano. Femtosecond-resolution measurement of soft-x-ray pulse duration using ultra-fast population increase of singly charged ions induced by optical-field ionization. *Applied Physics B*, 78 :157, 2004. 120
- [220] K. Oguri, T. Nishikawa, T. Ozaki, and H. Nakano. Sampling measurement of soft-x-ray-pulse shapes by femtosecond sequential ionization of kr^+ in an intense laser field. *Optics Letters*, 29 :1279–1281, 2004. 120
- [221] T. Maltezopoulos, S. Cunovic, M. Wieland, M. Beye, A. Azima, H. Redlin, M. Krikunova, R. Kalms, U. Frühling, F. Budzyn, W. Wurth, A. Föhlich, and M. Drescher. Single-shot timing measurement of extreme-ultraviolet free-electron laser pulses. *New Journal of Physics*, 10(3) :033026, 2008. 120
- [222] O. Krupin, M. Trigo, W. F. Schlotter, M. Beye, F. Sorgenfrei, J. J. Turner, D. A. Reis, N. Gerken, S. Lee, W. S. Lee, G. Hays, Y. Acremann, B. Abbey, R. Coffee, M. Messerschmidt, S. P. Hau-Riege, G. Lapertot, J. Lüning, P. Heimann, R. Soufli, M. Fernandez-Perea, M. Rowen, M. Holmes, S. L. Molodtsov, A. Föhlich,

- and W. Wurth. Temporal cross-correlation of x-ray free electron and optical lasers using soft x-ray pulse induced transient reflectivity. *Optics Express*, 20(10) :11396–11406, 2012. 120
- [223] R. Riedel, A. Al-Shemmary, M. Gensch, T. Golz, M. Harmand, N. Medvedev, M.J. Prandolini, K. Sokolowski-Tinten, S. Toleikis, U. Wegner, B. Ziaja, N. Stojanovic, and F. Tavella. Single-shot pulse duration monitor for extreme ultraviolet and x-ray free-electron lasers. *Nature Communications*, 4(1731), 2012. 120
- [224] U. Teubner, U. Wagner, and E. Förster. Sub-10 fs gating of optical pulses. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 34(15) :2993–3002, 2001. 121
- [225] H. O.Jeschke, M. E.Garcia, M. Lenzner, J. Bonse, J. Krüger, and W. Kautek. Laser ablation threshold of silicon for different pulse durations : theory and experiment. *Applied Surface Science*, 197-198 :839–844, 2002. 121
- [226] M. Grunig, C. Imesch, F. Staub, and J.E. Balmer. Saturated x-ray lasing in ni-like sn at 11.9 nm using the grip scheme. *Optics Communications*, 282(2) :267–271, 2009. 121
- [227] S. Handa, T. Kimura, H. Mimura, H. Yumoto, S. Matsuyama, Y. Sano, K. Tamasaku, Y. Nishino, M. Yabashi, T. Ishikawa, and K. Yamauchi. Extended knife-edge method for characterizing sub-10-nm x-ray beams. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 616(2-3) :246–250, 2010. 122
- [228] P. Amendt, D. C. Eder, and S. C. Wilks. X-ray lasing by optical-field-induced ionization. *Physical Review Letters*, 66 :2589–2592, 1991. 138
- [229] E. Oliva, M. Fajardo, L. Li, M. Pittman, T. T. T. Le, J. Gautier, G. Lambert, P. Velarde, D. Ros, S. Sebban, and P. Zeitoun. A proposal for multi-tens of gw fully coherent femtosecond soft x-ray lasers. *Nature Photonics*, 6 :764–767, 2012. 138
- [230] A. Kabacinski, F. Tissandier, J. Gautier, J.-P. Goddet, I. Andriyash, P. Zeitoun, S. Sebban, E. Oliva, and M. Kozlova. Femtosecond soft x-ray lasing in dense collisionally-pumped plasma. *Physical Review Research*, 4(3) :L032009, 2022. 143
- [231] I.A. Andriyash, Ph. Balcou, and V.T. Tikhonchuk. Collective properties of a relativistic electron beam injected into a high intensity optical lattice. *The European Physical Journal D*, 65 :533–540, 2011. 148
- [232] A. Debus, R. Pausch, A. Huebl, K. Steiniger, R. Widera, T. E. Cowan, U. Schramm, and M. Bussmann. Circumventing the dephasing and depletion limits of laser-wakefield acceleration. *Physical Review X*, 9(031044), 2019. 148
- [233] S. Smartsev, C. Caizergues, K. Oubrierie, J. Gautier, J.P. Goddet, K. T. Phuoc, V. Malka, and C. Thaury. Axiparabola : a long-focal-depth, high-resolution mirror for broadband high-intensity lasers. *Optics Letters*, 44(14) :3414–3417, 2019. 148
- [234] K. Oubrierie. *Amélioration de l'efficacité des accélérateurs laser-plasma*. PhD thesis, 2022. 148
- [235] J. P. Palastro, J. L. Shaw, P. Franke, D. Ramsey, T. T. Simpson, and D. H. Froula. Dephasingless laser wakefield acceleration. *Physical Review Letters*, 124(134802), 2020. 148
- [236] C. Caizergues, S. Smartsev, V. Malka, and C. Thaury. Phase-locked laser-wakefield electron acceleration. *Nature Photonics*, 14 :475–479, 2020. 148
- [237] A. Sainte-Marie, O. Gobert, and F. Quéré. Controlling the velocity of ultrashort light pulses in vacuum through spatio-temporal couplings. *Optica*, 4(10) :1298–1304, 2017. 149, 153
- [238] D. H. Froula, D. Turnbull, A. S. Davies, T. J. Kessler, D. Haberberger, J. P. Palastro, S.-W. Bahk, I. A. Begishev, R. Boni, S. Bucht, J. Katz, and J. L. Shaw. Spatiotemporal control of laser intensity. *Nature Photonics*, 12 :262–265, 2018. 149, 153
- [239] S. W. Jolly, O. Gobert, and F. Quéré. Spatio-temporal characterization of ultrashort laser beams : a tutorial. *Journal of Optics*, 22(10) :103501, 2020. 149, 150
- [240] V. Gallet. *Dispositifs expérimentaux pour la caractérisation spatio-temporelle de chaînes laser femtosecondes haute-puissance*. PhD thesis, 2014. 150, 186
- [241] A. Jeandet. *Spatio-temporal characterization of femtosecond laser pulses using self-referenced Fourier transform spectroscopy*. PhD thesis, 2020. 150, 186
- [242] A. Kabacinski, K. Oubrierie, J.-P. Goddet, J. Gautier, F. Tissandier, O. Kononenko, A. Tafzi, A. Leblanc, S. Sebban, and C. Thaury. Measurement and control of main spatio-temporal couplings in a cpa laser chain. *Journal of Optics*, 23(6) :06LT01, 2021. 150, 151, 186
- [243] C. Iaconis and I. A. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Optics Letters*, 23(10) :792–794, 1998. 152
- [244] S. W. Jolly, O. Gobert, A. Jeandet, and F. Quéré. Controlling the velocity of a femtosecond laser pulse using refractive lenses. *Optics Express*, 18(4) :4888–4897, 2020. 178

- [245] D. Turnbull, P. Franke, J. Katz, J. P. Palastro, I. A. Begishev, R. Boni, J. Bromage, A. L. Milder, J. L. Shaw, and D. H. Froula. Ionization waves of arbitrary velocity. *Physical Review Letters*, 120 :225001, 2018. 178
- [246] P. Franke, D. Turnbull, J. Katz, J. P. Palastro, I. A. Begishev, J. Bromage, J. L. Shaw, R. Boni, and D. H. Froula. Measurement and control of large diameter ionization waves of arbitrary velocity. *Optics Express*, 27, 2019. 178
- [247] A. Kabacinski, E. Oliva, F. Tissandier, J. Gautier, M. Kozlova, J.-P. Goddet, I. Andriyash, C. Thaury, P. Zeitoun, and S. Sebban. Harnessing spatio-temporal couplings to control group velocity in a seeded longitudinally pumped soft x-ray laser. 178
- [248] E. Esarey, C. B. Schroeder, and W. P. Leemans. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators. *Reviews of Modern Physics*, 81 :1229–1285, 2009. 178
- [249] J. T. Mendonca. *Theory of Photon Acceleration*. Series in Plasma Physics, 2000. 178
- [250] W. Lotz. Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium. *Zeitschrift für Physik*, 216 :241–247, 1968. 181
- [251] X. Gu, S. Akturk, and R. Trebino. Spatial chirp in ultrafast optics. *Optics Communications*, 242(4-6) :599–604, 2004. 186
- [252] A. M. Weiner, J. P. Heritage, and E. M. Kirschner. High-resolution femtosecond pulse shaping. *Journal of the Optical Society of America B*, 5(8) :1563–1572, 1988. 186
- [253] A. Popp, J. Vieira, J. Osterhoff, Zs. Major, R. Hörlein, M. Fuchs, R. Weingartner, T. P. Rowlands-Rees, M. Marti, R. A. Fonseca, S. F. Martins, L. O. Silva, S. M. Hooker, F. Krausz, F. Grüner, and S. Karsch. All-optical steering of laser-wakefield-accelerated electron beams. *Physical Review Letters*, 105(21) :215001, 2010. 186, 188
- [254] K. Tamasaku, E. Shigemasa, Y. Inubushi, I. Inoue, T. Osaka, T. Katayama, M. Yabashi, A. Koide, T. Yokoyama, and T. Ishikawa. Nonlinear spectroscopy with x-ray two-photon absorption in metallic copper. *Physical Review Letters*, 121 :083901, 2018. 193
- [255] Y. Kayser, C. Milne, P. Juranić, L. Sala, J. Czapla-Masztafiak, R. Follath, M. Kavčič, G. Knopp, J. Rehaneck, W. Błachucki, M. G. Delcey, M. Lundberg, K. Tyrała, D. Zhu, R. Alonso-Mori, R. Abela, J. Sá, and J. Szlachetko. Core-level nonlinear spectroscopy triggered by stochastic x-ray pulses. *Nature Communications*, 10, 2019. 193
- [256] R. Alonso-Mori, D. Sokaras, M. Cammarata, Y. Ding, Y. Feng, D. Fritz, K. J. Gaffney, J. Hastings, C.-C. Kao, H. T. Lemke, T. Maxwell, A. Robert, A. Schropp, F. Seiboth, M. Sikorski, S. Song, T.-C. Weng, W. Zhang, S. Glenzer, U. Bergmann, and D. Zhu. Femtosecond electronic structure response to high intensity xfel pulses probed by iron x-ray emission spectroscopy. *Scientific reports*, 10, 2020. 193
- [257] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Physical Review Letters*, 7(4) :118, 1961. 193
- [258] M. Thévenet, A. Leblanc, S. Kahaly, H. Vincenti, A. Vernier, F. Quéré, and J. Faure. Vacuum laser acceleration of relativistic electrons using plasma mirror injectors. *Nature Physics*, 12 :355–360, 2015. 13
- [259] M. Thévenet, H. Vincenti, and J. Faure. On the physics of electron ejection from laser-irradiated overdense plasmas. *Nature Physics*, 23(6) :063119, 2016. 13

Titre : Physique et application d'une source cohérente femtoseconde à 32,8 nm par interaction laser-plasma

Mots clés : Interaction laser-plasma, Rayonnement XUV, Laser intense, Couplages spatio-temporels, Optique

Résumé : Les lasers XUV collisionnels en régime d'ionisation par le champ sont obtenus en focalisant une impulsion laser pompe infrarouge ultra-intense dans une cible gazeuse, ce qui génère une colonne de plasma en situation d'inversion de population. Dans cette thèse, on s'intéresse à l'émission de la transition $3d^9 4d \rightarrow 3d^9 4p$ du krypton IX nickelloïde à 32,8 nm. L'injection de ce plasma amplificateur par une source harmonique externe améliore considérablement les propriétés spatiales du rayonnement tout en tirant profit des qualités énergétiques de l'amplificateur.

Grâce à l'implémentation d'un canal plasma permettant le guidage de l'impulsion pompe, de récentes recherches ont permis de travailler à des densités électroniques proches de 10^{20} cm^{-3} . Ces conditions sont extrêmement favorables puisque les plus fréquentes collisions électrons-ions favorisent l'inversion de population, ce qui mène à des gains accrus. Dans le même temps, ces collisions provoquent une surionisation de l'ion lasant et donc une interruption anticipée du gain. Des simulations ont montré que cette diminution consécutive de la durée de vie du gain se répercutait sur la durée d'impulsion à 32,8 nm.

Dans le cadre de cette thèse, le développement d'un diagnostic mono-tir de mesure du profil temporel de l'impulsion a permis de démontrer expérimentalement ce résultat : limitées à la picoseconde à basses densités, des durées de 640 fs RMS, en accord avec des simulations Maxwell-Bloch, ont ainsi pu être mesurées à $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

Cette thèse a également permis de dépasser une autre limite : la dispersion naturelle du plasma qui provoque intrinsèquement une désynchronisation entre l'harmonique XUV injectée et la zone de gain. La compensation de ce phénomène, indispensable à haute densité, a été réalisée grâce à l'introduction de couplages spatio-temporels dans le faisceau pompe et a permis une amélioration significative des performances de la source avec notamment une meilleure extraction de l'énergie. Il a également été démontré que la durée d'impulsion pouvait être maintenue constante au cours de la propagation à des valeurs aussi faibles que 350 fs RMS.

L'ensemble de ce travail offre des perspectives pour bon nombre d'applications, telle que la génération de seconde harmonique dans l'XUV.

Title : Physics and application of a femtosecond coherent source at 32,8 nm by laser-plasma interaction

Keywords : Laser-plasma interaction, XUV radiation, Intense laser, Spatio-temporal couplings, Optics

Abstract : Collisionally-pumped plasma-based soft X-ray lasers in optical field ionization regime are obtained by focusing an ultra-intense infrared laser pump pulse into a gas target. The interaction generates a plasma column in population inversion. In this thesis, we are interested in the $3d^9 4d \rightarrow 3d^9 4p$ transition of nickel-like krypton ion at 32,8 nm. The seeding of this amplifying medium by an external harmonic source considerably improves the spatial properties of the radiation while taking advantage of the energetic qualities of the amplifier.

Thanks to the implementation of a plasma channel to guide the pump beam, recent research has made it possible to operate at electron densities close to 10^{20} cm^{-3} . These conditions are extremely beneficial since the more frequent collisions favor population inversion and lead to increased gains. At the same time, these collisions cause an overionization of the lasing ion and thus an early interruption of the gain. Simulations have shown a consequent decrease of the soft X-ray laser pulse duration at high densities. Within the

framework of this thesis, the development of a single-shot diagnostic to measure the temporal profile of the pulse allowed to demonstrate this result experimentally : limited to the picosecond at low densities, durations of 640 fs RMS, in agreement with Maxwell-Bloch simulations, have been measured at $8 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$.

This thesis also enabled to overcome the natural dispersion of the plasma which intrinsically causes a desynchronization between the harmonics and the gain region. The compensation of plasma dispersion, essential at high densities, has been achieved by harnessing spatio-temporal couplings and has allowed a significant improvement of the source performance with notably a better energy extraction. It was also demonstrated that the pulse duration could be kept constant along propagation at values as low as 350 fs RMS.

All these improvements offer perspectives for many applications such as second harmonic generation in the soft X-rays.