



**HAL**  
open science

# Optique non-linéaire à haute intensité : Compression d'impulsions laser Interaction laser-plasma

Arnaud Malvache

► **To cite this version:**

Arnaud Malvache. Optique non-linéaire à haute intensité : Compression d'impulsions laser Interaction laser-plasma. Physique des Hautes Energies - Théorie [hep-th]. Ecole Polytechnique X, 2011. Français. NNT : . pastel-00677295

**HAL Id: pastel-00677295**

**<https://pastel.hal.science/pastel-00677295>**

Submitted on 7 Mar 2012

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Thèse présentée pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE**

Spécialité : Lasers et matière

par

**Arnaud MALVACHE**

**Optique non-linéaire à haute intensité :  
Compression d'impulsions laser  
Interaction laser-plasma**

Soutenue publiquement le 12 décembre 2011 devant le jury composé de :

M. Alfred MAQUET	UPMC, Paris	Président du jury
M. Manuel JOFFRE	LOB, Palaiseau	Examineur
M. Eric CONSTANT	CELIA, Bordeaux	Rapporteur
M. Robin MARJORIBANKS	University of Toronto	Rapporteur
M. Rodrigo LOPEZ-MARTENS	LOA, Palaiseau	Co-directeur de thèse
M. Gérard MOUROU	ILE, Palaiseau	Directeur de thèse

*Thèse préparée au Laboratoire d'Optique Appliquée UMR 7639  
ENSTA ParisTech - Ecole Polytechnique - CNRS*





# Table des matières

Remerciements	7
Introduction générale	9
<b>I Compression d’impulsions laser dans une fibre creuse remplie de gaz</b>	<b>13</b>
Introduction	15
<b>1 Formalisme mathématique des impulsions ultracourtes</b>	<b>19</b>
1.1 Champ électrique d’une impulsion . . . . .	19
1.2 Dispersion d’une impulsion . . . . .	21
1.3 Equation de propagation . . . . .	23
1.4 Modes spatiaux d’une fibre creuse . . . . .	24
1.5 Formalisme mathématique et grandeur physique . . . . .	26
1.5.1 FWHM <i>vs</i> $\sigma$ . . . . .	26
1.5.2 CEP temporelle ou spectrale? . . . . .	27
1.5.3 Longueur d’onde <i>vs</i> fréquence . . . . .	27
<b>2 Principe et mise en équation</b>	<b>29</b>
2.1 Effet Kerr . . . . .	29
2.1.1 Auto-modulation de phase . . . . .	30
2.1.2 Auto-raïdissement . . . . .	33
2.1.3 Auto-focalisation . . . . .	34
2.2 Ionisation . . . . .	34
2.2.1 Décalage plasma vers le bleu . . . . .	38
2.2.2 Le ralentissement plasma . . . . .	39



2.2.3	La défocalisation plasma . . . . .	40
2.3	Modes spatiaux . . . . .	41
2.3.1	Différence de vitesses de phase . . . . .	42
2.3.2	Différence de vitesse de groupe . . . . .	43
2.3.3	Pertes de propagation . . . . .	44
2.4	Couplage des différents effets . . . . .	44
2.4.1	Polarisation non-linéaire . . . . .	45
2.4.2	Equation de propagation . . . . .	46
2.4.3	Pertes d'ionisation . . . . .	47
2.4.4	Polarisation du laser . . . . .	47
2.4.5	Méthode de simulation . . . . .	48
2.5	Compensation de la dispersion . . . . .	50
2.6	Caractérisation de l'impulsion comprimée . . . . .	52
<b>3</b>	<b>Analyse et perspectives</b>	<b>59</b>
3.1	Influence de l'état de polarisation du laser . . . . .	60
3.1.1	Elargissement spectral . . . . .	61
3.1.2	Stabilité spectrale . . . . .	62
3.1.3	Efficacité de compression . . . . .	63
3.2	Dynamique de propagation . . . . .	67
3.2.1	Oscillation périodique de l'intensité lors de la propagation . . . . .	68
3.2.2	Echanges non-linéaires d'énergie . . . . .	69
3.2.3	Equilibre entre focalisation et défocalisation en polarisation circulaire . . . . .	72
3.2.4	Perspectives : compression d'impulsions multi-millijoule . . . . .	74
	<b>Conclusion</b>	<b>81</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>83</b>
<b>II</b>	<b>Interaction laser-plasma sur cible solide</b>	<b>87</b>
	<b>Introduction</b>	<b>89</b>
<b>4</b>	<b>Propriétés des émissions d'un miroir plasma</b>	<b>91</b>
4.1	Emission d'impulsions attosecondes . . . . .	91
4.2	Principe du miroir plasma . . . . .	92

4.3	Génération d'harmoniques sur miroir plasma . . . . .	94
4.3.1	Relativistic Oscillating Mirror (ROM) . . . . .	95
4.3.2	Coherent Wake Emission (CWE) . . . . .	96
4.3.3	Illustration des deux phénomènes . . . . .	97
4.4	Simulations PIC (Particle In Cell) de l'interaction laser-plasma surdense . . . . .	99
4.4.1	Principe . . . . .	99
4.4.2	Simulations de ROM . . . . .	103
4.4.3	Simulations de CWE . . . . .	111
4.4.4	Emission simultanée de CWE et ROM . . . . .	116
4.4.5	Accélération de protons par effet Brunel . . . . .	118
<b>5</b>	<b>Modélisation et propriétés des harmoniques CWE</b>	<b>123</b>
5.1	Modélisation . . . . .	123
5.1.1	Calcul des trajectoires . . . . .	123
5.1.2	Croisement des trajectoires et pics de densité électroniques . . . . .	128
5.1.3	Construction du champ émis . . . . .	129
5.2	Caractéristiques des CWE . . . . .	130
5.2.1	Dérive de fréquence attoseconde . . . . .	130
5.2.2	Chirp femtoseconde . . . . .	132
5.2.3	Courbure de front d'onde et divergence . . . . .	135
<b>6</b>	<b>Etude de l'interaction laser-plasma par spectroscopie CWE</b>	<b>139</b>
6.1	Conditions expérimentales . . . . .	139
6.2	Spectres CWE générés par des impulsions longues ( $30 fs$ ) . . . . .	141
6.2.1	Compensation du chirp femtoseconde . . . . .	142
6.2.2	Caractérisation du plasma . . . . .	147
6.3	Spectres CWE générés par des impulsions courtes ( $5 fs$ ) . . . . .	152
6.3.1	Résultats expérimentaux . . . . .	153
6.3.2	Chirp femtoseconde et CEP . . . . .	154
6.3.3	Analyse spectrale . . . . .	156
6.3.4	Détermination du gradient de densité plasma . . . . .	161
	<b>Conclusion</b>	<b>163</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>165</b>

<b>Conclusion générale</b>	<b>169</b>
<b>A Equation de propagation non-linéaire dans une fibre creuse</b>	<b>173</b>
<b>B Analyse mathématiques des effets non-linéaires</b>	<b>177</b>
<b>C Calcul analytique du mouvement des électrons de Brunel</b>	<b>179</b>
C.1 Expression générale $\tau_e(a_0, d)$ . . . . .	179
C.1.1 Mise en équation . . . . .	179
C.1.2 Approximation . . . . .	180
C.1.3 Résolution . . . . .	181
C.2 Expression du chirp attoseconde . . . . .	182
C.3 Expression du chirp femtoseconde . . . . .	183
C.3.1 Impulsion laser comprimée ( $\xi = 0$ ) . . . . .	183
C.3.2 Impulsion laser chirpée ( $\xi \neq 0$ ) . . . . .	184
C.4 Temps de naissance et vitesse de retour . . . . .	185
<b>D Publications</b>	<b>187</b>
Liste de publications . . . . .	187
Efficient hollow fiber compression scheme for generating multi-mJ, carrier-envelope phase stable, sub-5 fs pulses . . . . .	189
Multi-mJ pulse compression in hollow fibers using circular polarization . . . . .	193
High-harmonic generation from plasma mirrors at kilohertz repetition rate . . . . .	199
Attosecond control of collective electron motion in plasmas . . . . .	203
Probing the density profile of a plasma mirror by coherent wake emission spectroscopy	209

# Remerciements

Je remercie toutes les personnes qui ont participé à la réussite de ce travail :

Gérard Mourou, mon directeur de thèse, pour avoir initié le projet de génération d'harmoniques sur cible solide en impulsions courtes.

Rodrigo Lopez-Martens, chef du groupe PCO, pour m'avoir convaincu, par sa sympathie et son humour, de venir travailler dans son groupe, pour avoir mené à bien cet objectif ambitieux en développant une source laser unique au monde, pour nous avoir confié, à Antonin et moi, les clés du projet de génération d'harmoniques, pour m'avoir permis de participer à de nombreuses conférences, pour m'avoir laissé une liberté d'emploi du temps adapté à mon rythme... Et enfin, pour m'avoir fourni l'opportunité de poursuivre ma carrière de chercheur dans le domaine de la neurobiologie.

Antonin Borot, "co-thésard", pour avoir fait tout le "sale boulot" de mise en place de l'expérience d'interaction laser-plasma au  $kHz$ , pour les soirées et nuits d'expériences jusqu'au bout de notre patience, pour les discussions interminables et constructives sur la physique de l'émission CWE, les méthodes d'analyse de données, la recherche des coulemelles, pour les discussions interminables et destructives sur la valeur de l'expérience face à la théorie... Nos résultats ont été les fruits de ces interactions quotidiennes en particulier grâce à cet esprit de contradiction toujours opportun. Nous avons été le Yin et le Yang des harmoniques, pas toujours en phase mais toujours plein d'intensité!

Xiaowei Chen, post-doctorante du groupe PCO, pour avoir essayé de m'enseigner la patience requise à l'alignement du laser dans la fibre et m'avoir transmis toutes ses intuitions sur la compression dans la fibre creuse.

Charles Durfee, chercheur au Colorado School of Mines, de passage quelques mois dans le groupe PCO au début de ma thèse, pour m'avoir introduit dans le merveilleux monde de la simulation et m'avoir suggéré la projection de la propagation sur les modes de la fibre creuse, idée qui s'est révélée payante.

Aurélien Jullien, chercheuse du groupe PCO, "Miss XPW", pour avoir été une interlocutrice

de référence sur l'optique non-linéaire et pour les discussions intéressantes que nous avons eu notamment lors de nos voyages aux Etats-Unis.

Olivier Albert, enseignant-chercheur du groupe PCO, "Mister XPW", pour sa bonne humeur matinale, pour m'avoir chargé du cours d'Optique Non-Linéaire à l'ENSTA où j'ai pu goûter au plaisir d'enseigner et de partager ma passion pour la science.

Aurélien Ricci, "co-thésard", en charge de l'évolution du laser, pour qui la réussite de l'expérience harmonique a été associée à un retard d'un an de son projet. Année pendant laquelle il s'est occupé du laser avec application et sans rancœur.

Johnathan Wheeler, post-doctorant du groupe PCO à la fin de ma thèse, pour avoir repris le flambeau de l'expérience pendant qu'Antonin et moi rédigeons nos thèses.

Fabien Quéré, chercheur au SPAM (CEA Saclay), père du CWE, pour le temps passé au téléphone à refaire le monde des ROM et des CWE, pour m'avoir donné accès au code PIC CALDER, outil de rêve pour un physicien en herbe, pour cet esprit rigoureux et critique, qui contraint les autres de s'armer d'arguments solides pour convaincre, et pour ces petits éclairs de génie, qui donnent de sérieux coups de pouce.

Henri Vincenti, thésard de Fabien, pour avoir repris, amplifié et achevé avec réussite le travail que j'avais commencé sur la divergence des ROM.

Misha Ivanov, chercheur à l'Imperial College de Londres, pour avoir été un solide et productif interlocuteur lors de la genèse du modèle CWE.

François Sylla, thésard du groupe SPL au LOA, au dynamisme entraînant, nous avons très peu travaillé ensemble mais nos discussions autour du café vont me manquer.

Mina Veltcheva, thésarde du groupe SPL au LOA, "Miss protons", pour avoir amené les "particools" en "Salle Noire" et partagé nos rituels expérimentaux.

Marion Mas, ma compagne de vie et mère de ma fille Nina, pour avoir supporté les soirées interminables d'expériences et les périodes où je ne pensais qu'à ma thèse, et de m'avoir soutenu jusqu'au bout dans la préparation de la soutenance.

# Introduction générale

L'optique non-linéaire est née suite à l'invention du laser en 1960. Auparavant, la lumière disponible pour les expériences était incohérente (les photons sont indépendants les uns des autres), l'ensemble des sources de lumière courantes (soleil, néon, lampe à incandescence) entrent dans cette catégorie. Elles ont tout de même permis aux physiciens d'explorer les propriétés de propagation de la lumière (optique linéaire) : la réflexion (miroir), la réfraction (arc-en-ciel) et la diffraction (source de lumière à travers un rideau). L'invention du laser fut une révolution car c'est une source de lumière cohérente : tous les photons émis sont identiques (même longueur d'onde, direction de propagation et phase). Une telle source est rendue possible par le phénomène d'émission stimulée, qui permet la duplication d'un photon dans un milieu excité. Le mot laser est d'ailleurs l'acronyme de Light Amplified by Stimulated Emission Radiation. Les lasers peuvent être divisés en deux catégories : les lasers continus et les lasers à impulsions. Un laser continu permet une concentration exceptionnelle d'énergie spatiale et spectrale. Un simple pointeur laser a une densité spectrale d'énergie de deux ordres de grandeur supérieur à l'illumination du soleil. Un laser à impulsions permet une concentration d'énergie spatiale et temporelle sans commune mesure avec une source incohérente. Le laser à impulsions ultra-courtes de la "Salle Noire" du Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) que j'ai utilisé pendant ma thèse, fournit des impulsions de  $400 \text{ GW}$  (le pic de consommation électrique en France en 2011 fut de  $100 \text{ GW}$ ) qui, une fois focalisées, atteignent une intensité de  $10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$  (avec une loupe, la lumière du soleil atteint  $10^4 \text{ W.cm}^{-2}$ ). A partir de  $\approx 10^7 \text{ W.cm}^{-2}$ , la lumière se propage en modifiant les propriétés du milieu qui à son tour modifie la lumière. L'étude de cette modification de la lumière à haute intensité dans un milieu constitue l'optique non-linéaire.

La création de nouvelles fréquences est une des applications principales des effets non-linéaires. L'interaction laser-matière à haute intensité permet en effet de générer ou modifier la fréquence du laser. Ce phénomène est omniprésent dans les laboratoires d'optique mais il est aussi largement utilisé dans d'autres domaines. Les lasers OPA (Optical Parametric Amplification) sont des sources laser à longueur d'onde variable qui utilisent un effet non-linéaire dans

un cristal (différence de fréquence), ils sont par exemple très utilisés par la recherche biomédicale et en physique des solides. En optique, les effets non-linéaires permettent de modifier les caractéristiques du laser et d'étudier l'interaction laser-matière. En particulier, un des thèmes de recherche les plus en vogue dans le domaine des lasers de puissance est le développement de source laser à impulsions les plus courtes possibles, car elles permettent de sonder des phénomènes ultra-rapides avec une résolution temporelle inédite, tels que des réactions chimiques (échelle de temps femtoseconde,  $1 fs = 10^{-15} s$ ) ou le mouvement des électrons (échelle de temps attoseconde,  $1 as = 10^{-18} s$ ). Pour ce faire, on distingue deux méthodes : la compression d'impulsions et la génération d'impulsions. La première méthode consiste à élargir le spectre de l'impulsion en utilisant des effets non-linéaires à intensité "modérée" ( $\approx 10^{14} W.cm^{-2}$ ). Pour un laser à  $800 nm$ , on atteint typiquement la centaine de  $nm$  de large. Cela permet de comprimer l'impulsion car la largeur spectrale est inversement proportionnelle à la durée minimale d'une impulsion. Cette technique est cependant limitée par la fréquence moyenne du laser, on ne peut en effet pas comprimer une impulsion sur une durée plus courte que la période laser ( $2.7 fs$  pour un laser à  $800 nm$ ). La seconde méthode utilise l'interaction laser-plasma à très haute intensité (de  $10^{15} W.cm^{-2}$  à  $10^{21} W.cm^{-2}$ , intensité du laser le plus puissant), qui émet de manière cohérente des fréquences beaucoup plus grandes que la fréquence laser (de un à trois ordres de grandeur selon les conditions) et ce, seulement pendant une partie du cycle du champ laser. La durée des impulsions émises est donc par définition inférieure à la période laser, de l'ordre de la centaine d'attosecondes ( $as$ ). A la différence de la compression d'impulsion, cette méthode ne raccourcit pas l'impulsion laser de départ, elle émet une nouvelle impulsion par cycle optique du laser : on obtient alors un train d'impulsions attosecondes. Ces impulsions peuvent être plus courtes que l'impulsion laser car elles sont constituées de fréquences plus grandes. Cette deuxième méthode est aussi appelée génération d'harmoniques d'ordre élevé (High order Harmonic Generation HHG) car dans certaines conditions, le spectre émis est constitué d'harmoniques de la fréquence laser.

La compression d'impulsions et la génération d'impulsions sont souvent utilisées successivement dans les expériences (voir Fig. 1). D'une part, la première méthode augmente la puissance crête des impulsions ce qui permet d'atteindre des intensités plus grandes pour l'interaction laser-plasma, d'autre part, la génération d'impulsions attosecondes à partir d'impulsions laser ultracourtes (quelques cycles optiques) permet de diminuer le nombre d'impulsions dans le train attoseconde, voire idéalement de n'émettre qu'une seule impulsion attoseconde (un train d'impulsion ne constitue pas une source attoseconde proprement dite). Au cours de ma thèse, j'ai travaillé sur le développement d'une source attoseconde qui associe les deux méthodes décrites

précédemment. La première partie de ce manuscrit se concentre sur la compression d'impulsions laser dans une fibre creuse remplie de gaz, qui réduit la durée des impulsions de 10 cycles optiques à 2 cycles optiques (à mi-hauteur). La deuxième partie porte sur l'étude de l'interaction laser-plasma sur cible solide, qui émet des trains d'impulsions attosecondes à partir des impulsions laser de 2 ou 10 cycles optiques.

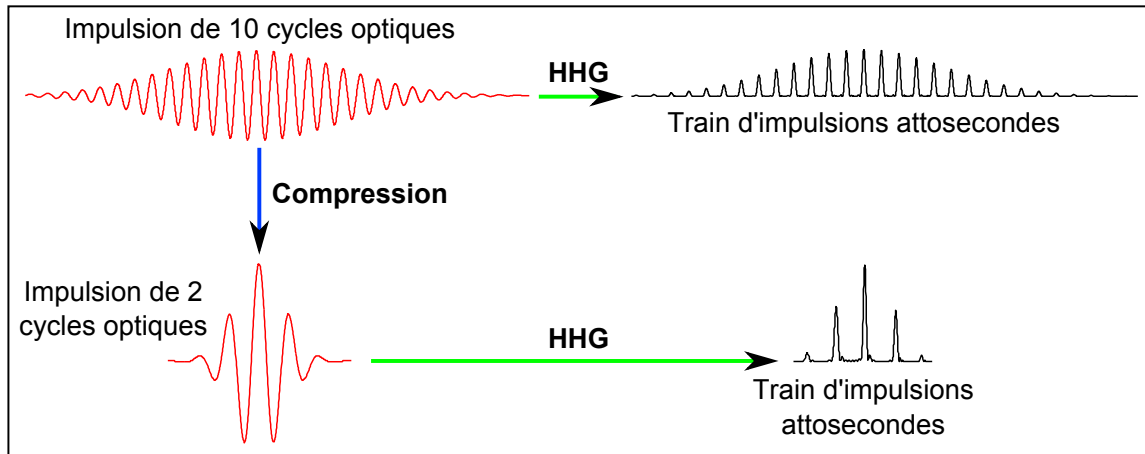


FIGURE 1 – Représentation de la compression d'une impulsion laser de 10 à 2 cycles optiques (à mi-hauteur) et de l'émission d'un train d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG).





## Première partie

# Compression d'impulsions laser dans une fibre creuse remplie de gaz



# Introduction

Les lasers femtosecondes amplifiés par dérive de fréquence (chirped pulse amplification CPA [1]) fournissent typiquement des impulsions de 20 à 60 fs. Cette durée est limitée par la largeur spectrale du gain des cristaux de Ti :Sa (titane-Saphir). Pour raccourcir ces impulsions, leur spectre doit être élargi. Seul un effet non-linéaire dans un milieu peut élargir le spectre d'une impulsion. L'auto-modulation de phase et l'ionisation sont deux effets adaptés pour cela. Ils proviennent de l'interaction entre le champ électrique oscillant du laser et les électrons du milieu et induisent une variation de l'indice optique du milieu si l'intensité laser est suffisante. Dans le cas d'une impulsion laser, l'intensité dépend évidemment du temps, l'indice optique varie alors au cours du temps. Cette variation temporelle implique que les différentes parties de l'impulsion ne se propagent pas avec la même vitesse de phase, ce qui induit l'apparition de nouvelles fréquences dans le spectre de l'impulsion. Pour obtenir de tels effets, il suffit de focaliser l'impulsion dans un milieu afin d'atteindre une intensité suffisante ( $10^{10}W.cm^{-2}$  dans un cristal,  $10^{13}W.cm^{-2}$  dans un gaz).

Cette interaction non-linéaire entre le champ laser et les atomes d'un milieu doit être accumulée sur une certaine distance pour obtenir un élargissement spectral notable. On distingue deux méthodes générales d'élargissement spectral : avec ou sans guidage de l'impulsion. La propagation non-linéaire dans un diélectrique [2] et la génération de polarisation croisée [3] sont des techniques sans guidage. L'auto-guidage non-linéaire en régime d'ionisation (la filamentation [13]), ne nécessite pas l'utilisation d'un guide d'onde car celui-ci est auto-généré par effet non-linéaire. Cette technique permet de comprimer des impulsions très énergétiques (plusieurs dizaines de mJ [4, 5, 6, 7]). Ces méthodes ne sont cependant pas adaptées à la compression d'impulsions à des durées de quelques cycles optiques avec une bonne homogénéité spatiale. Le guidage linéaire de l'impulsion laser avec un guide d'onde est en effet nécessaire pour conserver une intensité suffisante sur une longue distance et obtenir un élargissement spectral homogène spatialement. Différents types de guides d'onde sont utilisés en fonction de l'énergie des impulsions : une fibre optique [8], une fibre creuse [9, 10] ou un cristal photonique [11, 12]. Le

laser kHz de la Salle Noire du Laboratoire d'Optique Appliquée fournit après le dernier étage d'amplification des impulsions de 25fs, 3mJ [14]. L'étage de compression que j'ai étudié a pour objectif de comprimer les impulsions jusqu'à 5fs en conservant des qualités spatiales, temporelles et de stabilité qui permettent de les utiliser dans une expérience au kHz. La technique qui a été choisie pour comprimer de 25fs à 5fs ces impulsions multi-millijoules est l'utilisation d'une fibre creuse remplie de gaz dans un régime de forte intensité. Le fonctionnement de cette technique est schématisé sur la Fig. 2. La propagation dans la fibre creuse crée de nouvelles fréquences dans l'impulsion. Elles sont ensuite mises en phase par compensation de la dispersion : on obtient alors une impulsion plus courte d'intensité plus grande.

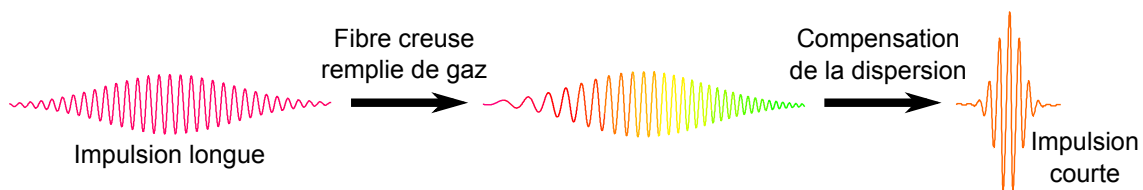


FIGURE 2 – Schéma de l'expérience de compression d'impulsion dans une fibre creuse.

Cette technique de compression est limitée en énergie (max. 1mJ comprimés) par des effets non-linéaires tels que l'auto-focalisation et l'ionisation. Pour repousser cette limite, différentes idées ont été proposées : l'utilisation d'un gradient de pression qui diminue les effets non-linéaires en début de propagation [15, 16, 17, 18], la propagation dans un guide d'onde plan qui permet à l'énergie de s'étaler sur une dimension [19] et le passage en polarisation circulaire qui réduit les effets non-linéaires et le taux d'ionisation [20].

Mon travail dans ce domaine fut principalement de développer un code de simulation de propagation d'impulsions dans une fibre creuse remplie de gaz afin d'optimiser la compression d'impulsions en polarisation circulaire. Dans un régime d'intensité modérée ( $< 10^{14} W.cm^{-2}$  dans du néon), seule la composante temporelle de l'effet Kerr peut a priori être prise en compte, les effets spatiaux et l'ionisation du gaz sont alors négligés. A plus forte intensité ( $> 10^{14} W.cm^{-2}$  dans du néon), le milieu peut être partiellement ionisé et les effets de lentilles Kerr (auto-focalisation) deviennent importants. La littérature ne proposant pas d'équation de propagation prenant en compte tous ces effets dans une fibre creuse, j'ai démontré une nouvelle équation de propagation que j'ai ensuite utilisée pour créer un code de simulation 2D (hypothèse de symétrie radiale).

Après une brève présentation du formalisme mathématique des impulsions courtes (Chapitre 1), je vais décrire l'ensemble des processus physiques inclus dans le code : les effets non-linéaires

temporels et spatiaux qui proviennent de l'effet Kerr (2.1) et de l'ionisation (2.2) et les effets spatiaux dus à la présence de modes dans une fibre creuse (2.3). Ensuite je vais démontrer l'équation de propagation qui contient l'ensemble de ces effets (3.1) et je vais détailler la méthode de simulation (3.2). Je vais enfin montrer la validité du code en le comparant à des résultats expérimentaux (4.1), puis l'utiliser pour comprendre la dynamique de propagation (4.2) et finalement proposer les conditions optimales pour comprimer une impulsion donnée (4.3).



# Chapitre 1

## Formalisme mathématique des impulsions ultracourtes

Ce chapitre présente les bases mathématiques nécessaires à l'étude de la propagation non-linéaire d'une impulsion ultracourte dans une fibre creuse : la définition complexe d'une impulsion ultracourte dans le domaine temporel et spectral, l'effet de dispersion dans un milieu, l'équation de propagation non-linéaire et les modes spatiaux d'une fibre creuse. La dernière section lève les ambiguïtés entre certaines définitions physiques et mathématiques. L'intégralité de la théorie de l'optique non-linéaire est décrite dans le livre de R. W. Boyd [21].

### 1.1 Champ électrique d'une impulsion

Les ondes électromagnétiques usuelles sont représentées temporellement par une oscillation infinie du champ électrique à une fréquence donnée :  $E(t) = A_0 e^{-i\omega_0 t}$ . Cette représentation est correcte pour un laser continu à la fréquence  $\omega_0$ . Dans le cas d'une impulsion laser, on doit ajouter une enveloppe à cette oscillation pour représenter sa localisation dans le temps. On écrit alors  $E(t) = A_0(t) e^{-i\omega_0 t}$ , l'enveloppe réelle  $A_0(t)$  varie dans le temps et  $A_0(\pm\infty) = 0$ . Enfin, pour représenter l'ensemble des impulsions courtes dont les oscillations du champ ne sont pas forcément régulières, on écrit :

$$E(t) = A_0(t) e^{i\phi(t)} \tag{1.1}$$

$A_0(t)$  est l'enveloppe (fonction réelle) et  $\phi(t)$  est la phase temporelle de l'impulsion. La phase temporelle se décompose en trois éléments :  $\phi(t) = \phi_0 - \omega_0 t + \phi_{NL}(t)$  (développement de Taylor en  $t = 0$ , centre de l'impulsion),  $\phi_0 = \phi(0)$  est la phase entre l'enveloppe et la



porteuse (Carrier Envelope Phase CEP),  $\omega_0 = -(\partial\phi/\partial t)_0$  est la pulsation de la porteuse à  $t = 0$  et  $\phi_{NL}(t)$  est la phase non-linéaire temporelle. On définit l'amplitude complexe du champ  $A(t) = A_0(t) e^{i(\phi_0 + \phi_{NL}(t))}$ , le champ s'exprime alors  $E(t) = A(t)e^{-i\omega_0 t}$ . L'amplitude complexe est utile pour l'étude des phénomènes où la pulsation  $\omega_0$  ne varie pas. Dans le domaine spectral, le champ  $E(\omega)$  d'une impulsion courte est la transformée de Fourier de  $E(t)$ . On définit  $A(\omega)$  comme la transformée de Fourier de  $A(t)$ , on a ainsi la relation :

$$E(\omega) = A(\omega - \omega_0) = A_0(\omega) e^{i\Phi(\omega)} \quad (1.2)$$

$A_0(\omega)$  est l'enveloppe (fonction réelle) et  $\Phi(\omega)$  la phase spectrale, on décompose de même  $\Phi(\omega) = \Phi_0 + t_0\omega + \Phi_{NL}(\omega)$ . Une variation de la composante continue  $\Phi_0$  modifie la CEP, une variation de la composante linéaire  $t_0$  déplace temporellement l'impulsion sans la déformer et enfin une variation de la phase spectrale non-linéaire  $\Phi_{NL}$  et/ou de l'enveloppe spectrale  $A_0(\omega)$  modifie l'impulsion.

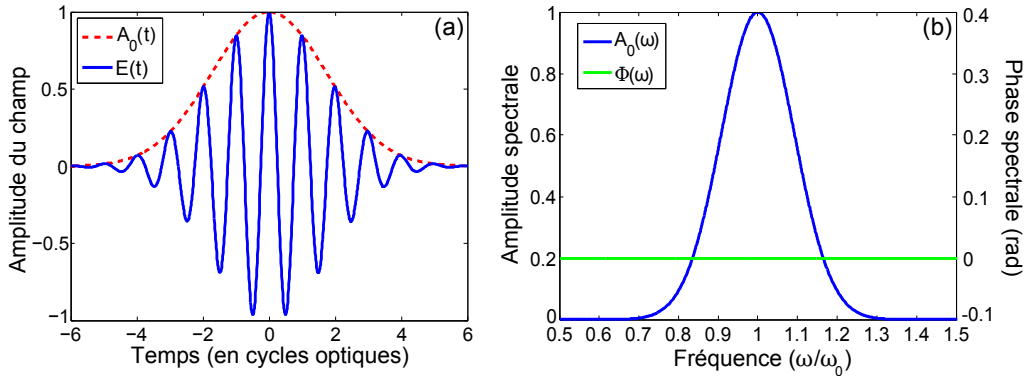


FIGURE 1.1 – Représentation temporelle (a) et spectrale (b) d'une impulsion ultracourte gaussienne ( $\sigma = \sqrt{3}$ ).

Pour une impulsion d'enveloppe gaussienne (de la forme  $A(t) = e^{-t^2/2\sigma^2}$  représentée Fig. 1.1), la largeur temporelle  $\tau$  et la largeur spectrale  $\Delta\nu$  satisfont la relation d'incertitude  $\tau\Delta\nu \geq a$  (Cauchy-Schwarz), où  $a$  dépend de la forme de l'impulsion et de la définition des largeurs. L'égalité est vraie quand  $\phi_{NL}(t) \equiv 0$  ou  $\Phi_{NL}(\omega) \equiv 0$  (ces deux conditions sont équivalentes), c'est le cas de l'impulsion Fig. 1.1. Cela signifie que pour une largeur spectrale donnée, l'ajout d'une phase spectrale non-linéaire augmente la durée de l'impulsion. C'est un des effets de la dispersion d'une impulsion dans un milieu.

## 1.2 Dispersion d'une impulsion

Dans un milieu optique (verre, air, etc.), la vitesse de propagation (vitesse de groupe) dépend de la longueur d'onde, cela provient de la présence d'absorption aux fréquences de résonance du milieu (relation de Kramers-Krönig). Une impulsion ultracourte ayant une distribution de fréquences (voir Fig. 1.1(b)), on assiste à un étalement temporel des différentes fréquences lors de la propagation dans un milieu. Ce phénomène, appelé dispersion de vitesse de groupe, conduit au "chirp" (décalage linéaire de fréquence) de l'impulsion, visible sur la porteuse (Fig. 1.2(a)). Cet effet s'exprime mathématiquement par l'ajout d'un terme quadratique  $\Phi^{(2)}$  dans la phase spectrale. Les termes d'ordre supérieur de la phase spectrale sont définis ainsi :

$$\Phi_{NL}(\omega) = \frac{\Phi^{(2)}}{2}\omega^2 + \frac{\Phi^{(3)}}{6}\omega^3 + \dots \quad (1.3)$$

$$\Phi^{(2)} = \left( \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_0} \quad \text{et} \quad \Phi^{(3)} = \left( \frac{\partial^3 \Phi}{\partial \omega^3} \right)_{\omega_0} \quad (1.4)$$

L'effet de la phase spectrale quadratique sur l'impulsion se décrit analytiquement dans le cas d'une impulsion d'enveloppe gaussienne. On part du champ  $E_0$  d'une impulsion comprimée, dont les expressions temporelle et spectrale sont :

$$E_0(t) = \exp \left\{ -\frac{t^2}{2\sigma_t^{(o)2}} \right\} e^{-i\omega_0 t} \quad (1.5)$$

$$E_0(\omega) = \frac{\sqrt{2\pi}}{\sigma_\omega^{(o)}} \exp \left\{ -\frac{(\omega - \omega_0)^2}{2\sigma_\omega^{(o)2}} \right\} \quad (1.6)$$

On remarque qu'une impulsion comprimée ne possède pas de terme de phase dans le domaine spectral. Pour un spectre donné, la durée minimale d'une impulsion correspond en effet à la transformée de Fourier du spectre sans terme de phase, cette durée est dite limitée par transformée de Fourier. On recherche maintenant l'effet d'un chirp  $\Phi^{(2)}$  sur cette impulsion, on définit d'abord le chirp normalisé  $\xi$  :

$$\xi = \frac{\Phi^{(2)}}{\sigma_t^{(o)2}} \quad (1.7)$$

On note le champ chirpé  $E_1$ , il s'écrit facilement dans le domaine spectral :

$$E_1(\omega) = E_0(\omega) e^{i\Phi^{(2)}(\omega - \omega_0)^2/2} \quad (1.8)$$

En utilisant la formule suivante où  $p$  est un nombre complexe (transformée de Fourier **TF** d'une impulsion gaussienne complexe) :

$$\mathbf{TF} \left\{ e^{-pt^2} \right\} = \sqrt{\frac{\pi}{p}} e^{-t^2/4p}, \quad (1.9)$$

on obtient la description temporelle du champ  $E_1$  :

$$E_1(t) = A_1 \exp \left\{ -\frac{t^2}{2\sigma_t^{(1)2}} \right\} \exp \left\{ \frac{-i\alpha t^2}{2} \right\} e^{-i\omega_0 t} e^{i\phi_1/2} \quad (1.10)$$

où  $A_1$  est le maximum de l'impulsion :

$$A_1 = \left( \frac{1}{1 + \xi^2} \right)^{1/4} \leq 1, \quad (1.11)$$

$\sigma_t^{(1)}$  est la durée de l'impulsion chirpée :

$$\sigma_t^{(1)} = \sigma_t^{(o)} \sqrt{1 + \xi^2} \geq \sigma_t^{(o)}, \quad (1.12)$$

$\alpha$  est la phase quadratique temporelle :

$$\alpha = \frac{1}{\sigma_t^{(o)2}} \frac{\xi}{1 + \xi^2} \quad (1.13)$$

et  $\phi_1$  est un décalage de CEP :

$$\phi_1 = \arctan \xi \quad (1.14)$$

La dispersion d'une impulsion implique ainsi une diminution de son maximum  $A_1 \leq 1$ , un allongement de sa durée  $\sigma_t^{(1)} \geq \sigma_t^{(o)}$ , une phase temporelle quadratique qui correspond à une variation linéaire de fréquence  $-\partial\phi/\partial t = \omega_0 + \alpha t$ , et un changement de CEP. Dans le domaine spectral, seule la phase est changée (voir Fig. 1.2).

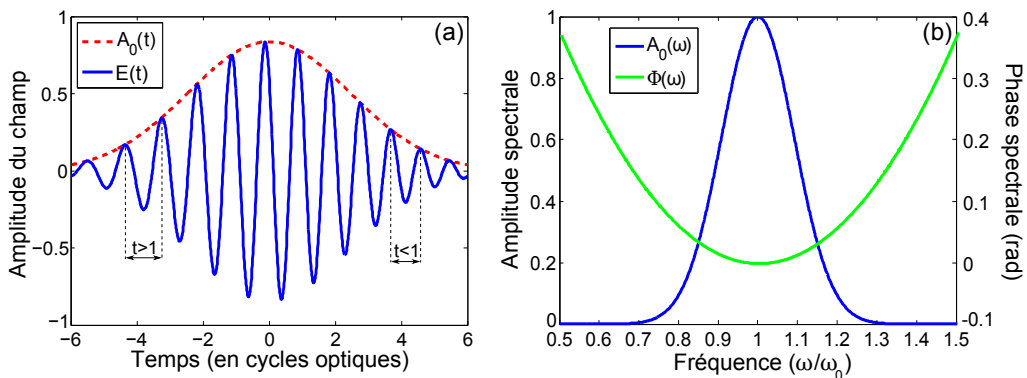


FIGURE 1.2 – Représentation temporelle (a) et spectrale (b) de l'impulsion de la Fig. 1.1 chirpée positivement ( $\sigma_t^{(o)} = \sqrt{3}$  et  $\xi = 1$ ).

Le chirp normalisé  $\xi$  quantifie l'ensemble de ces changements.  $\xi$  étant inversement proportionnel au carré de la durée d'impulsion, la propagation dans un milieu modifie l'impulsion laser d'autant plus fortement que sa durée est courte. Il est important de noter que cet effet est indépendant de l'intensité laser (effet linéaire). Cet effet est donc à différencier des effets non linéaires, dépendants de l'intensité, et amplement décrits dans le chapitre 2.

En réalité, l'ajout d'une phase spectrale quadratique seule correspond à une approximation à l'ordre 1 de la dispersion d'une impulsion dans un milieu. A l'ordre 2, il faut ajouter un terme en  $\omega^3$ , cette phase d'ordre trois agit de manière asymétrique sur l'élargissement de l'impulsion, créant une pré-impulsion ou post-impulsion selon son signe.

### 1.3 Equation de propagation

Pour prendre en compte l'ensemble des effets (linéaires et non-linéaires) lors de la propagation d'une impulsion on doit résoudre l'équation de propagation non-linéaire du champ  $\vec{E}$  qui dérive des équations de Maxwell :

$$\Delta \vec{E} - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2}, \quad (1.15)$$

où  $\vec{P}_{NL}$  est un terme source qui contient l'ensemble des effets non-linéaires. La dispersion de l'impulsion est ici contenue dans la permittivité  $\epsilon$  du milieu qui dépend de la fréquence  $\omega$ . Les solutions de cette équation sont de la forme :

$$\vec{E} = \vec{A}(x, y, z, t) e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \quad (1.16)$$

où  $A$  est l'amplitude complexe du champ,  $\vec{k}$  est le vecteur d'onde et  $\vec{r}$  la direction de propagation. Si on choisit la direction de propagation  $\vec{r} = \vec{z}$  et on étudie une impulsion polarisée linéairement sur  $\vec{x}$  en négligeant les effets de polarisation croisée ( $\vec{P}_{NL} \cdot \vec{y} = 0$ ) on obtient l'équation scalaire :

$$\Delta E - \frac{\epsilon}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (1.17)$$

et la solution scalaire :

$$E = A(x, y, z, t) e^{i(kz - \omega t)} \quad (1.18)$$

Les Chapitres 2, 3 concernent l'étude des effets non-linéaires suivants dans le cadre de la propagation dans une fibre creuse remplie de gaz : l'effet Kerr ( $P_{NL} \propto |E|^2 E$ ) et l'ionisation

( $P_{NL} \propto f(E)E$ , où  $f$  est une fonction non-linéaire en  $E$ ), ces effets sont détaillés dans le Chapitre 2.

Des hypothèses supplémentaires sont nécessaires pour simplifier cette équation afin de pouvoir la résoudre numériquement. On peut notamment faire l'approximation de l'enveloppe lentement variable (Slowly Varying Envelope Approximation SVEA), qui est omniprésente dans la théorie des impulsions courtes. Cette approximation s'écrit mathématiquement :

$$k|A| \gg \frac{\partial|A|}{\partial z} \quad (1.19)$$

Physiquement, cela signifie que l'enveloppe de l'impulsion varie très peu après propagation sur une distance de l'ordre de la longueur d'onde. On pourra ainsi négliger la dérivée seconde en  $z$  devant la dérivée première en  $z$  dans le Laplacien.

La propagation dans un guide d'onde tel que la fibre creuse simplifie aussi l'équation de propagation comme décrit ci-dessous.

## 1.4 Modes spatiaux d'une fibre creuse

Quand une impulsion se propage dans un guide d'onde, elle est spatialement confinée ce qui se traduit par des conditions aux limites sur l'équation de propagation, la variation spatiale (transverse) du champ étant imposée par la forme du guide d'onde. Dans le cas d'un guide d'onde cylindrique (fibre), la dépendance radiale du champ est une somme discrète de fonctions définies par le rayon de la fibre, ce sont les modes de Bessel. Dans une fibre, si on néglige les effets non-linéaires et la dispersion, l'amplitude spatiale  $A(r, \theta)$  doit satisfaire la relation :

$$\nabla_{\perp}^2 A + (k_0^2 - k^2)A = 0, \text{ avec } A(a, \theta) = 0, \quad (1.20)$$

où  $\nabla_{\perp}^2 = \left( \frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial \theta^2}$  est le Laplacien transverse en coordonnées cylindriques,  $k_0 = 2\pi/\lambda$  est le vecteur d'onde de propagation sans guide d'onde,  $k$  le vecteur d'onde dans le guide d'onde et  $a$  est le rayon de la fibre. Avec les conditions aux limites de nullité du champ à l'interface coeur-gaine, cette équation admet comme solutions les modes de Bessel :

$$A_{nm}(r, \theta) = J_n \left( \frac{u_{nm}r}{a} \right) \cos(n\theta) \text{ et } A_{nm}(r, \theta) = J_n \left( \frac{u_{nm}r}{a} \right) \sin(n\theta), \quad n = 0, 1, \dots \text{ et } m = 1, 2, \dots \quad (1.21)$$

$J_n$  est la fonction de Bessel d'ordre  $n$  et  $u_{nm}$  est le  $m$ -ième zéros de  $J_n$ . Pour indication, les valeurs de  $u_{0m}$  des premiers modes sont données dans le tableau 1.1, les  $A_{nm}$  sont dégénérés

pour  $n \geq 1$ . Le vecteur d'onde de propagation prend les valeurs discrètes suivantes :

$$k_{nm} = \sqrt{k_0^2 - \left(\frac{u_{nm}}{a}\right)^2} \quad (1.22)$$

$u_{nm}$	$m = 1$	$m = 2$	$m = 3$
$n = 0$	2.4048	5.5201	8.6537
$n = 1$	3.8317	7.0156	10.1735
$n = 2$	5.1356	8.4172	11.6198

TABLE 1.1 – Valeurs arrondies des premiers zéros des fonctions de Bessel  $J_0$ ,  $J_1$  et  $J_2$ .

Les impulsions se propagent ainsi avec un profil spatial qui est une somme de modes  $A_{nm}$ , les premiers sont représentés sur la Fig. 1.3. Une fois normalisés, les  $A_{nm}$  forment une base orthonormée, i.e.  $\int_{(r,\theta)} A_{ik} A_{jl} r dr d\theta = \delta_{ij} \delta_{kl}$ .

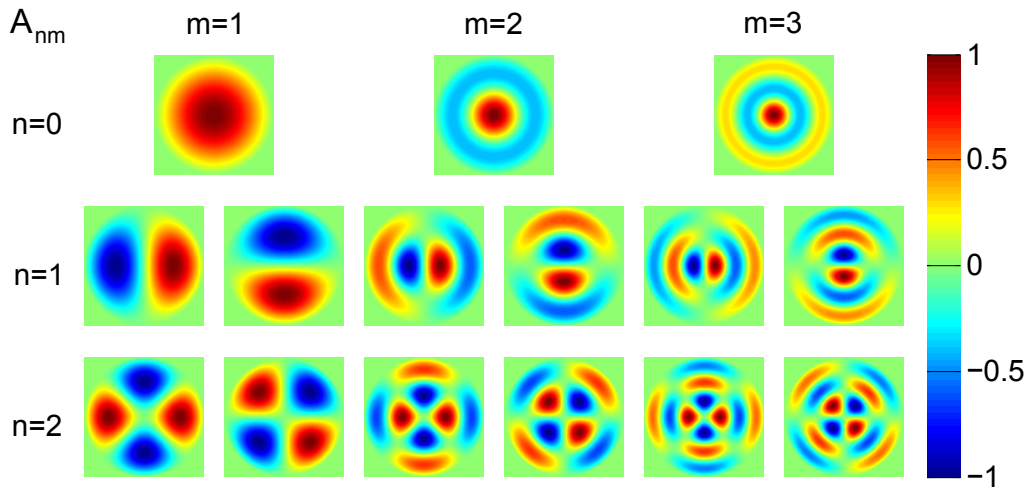


FIGURE 1.3 – Profils d'amplitude des différents modes  $A_{nm}$ .

Dans le cadre de la propagation d'un faisceau à symétrie cylindrique (faisceau gaussien par exemple), seuls les modes ayant cette symétrie (indépendant de  $\theta$ ) sont peuplés. Il s'agit des modes  $A_{0m}(r)$ , les intensités normalisées en énergie des trois premiers ( $m = 1, 2$  et  $3$ ) sont représentées Fig. 1.4. On voit que pour la même énergie, l'intensité pic est plus grande pour les modes d'ordre supérieur que pour le mode fondamental  $A_{01}$ . Dans le cadre de la propagation non-linéaire, la répartition d'énergie sur les différents modes a ainsi une importance cruciale, cela constitue la base de l'étude du Chapitre 3.

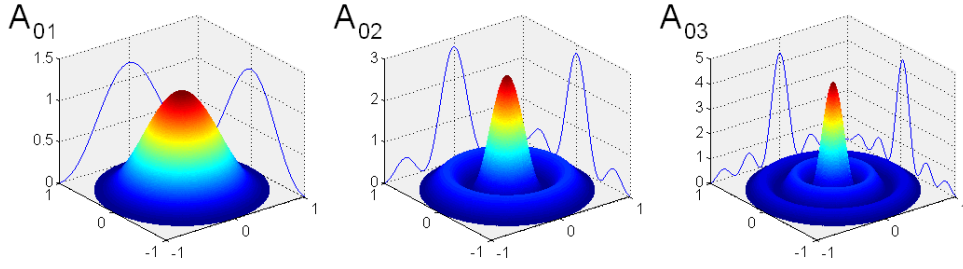


FIGURE 1.4 – Intensité des trois premiers modes spatiaux  $A_{0m}$  normalisés en énergie.

## 1.5 Formalisme mathématique et grandeur physique

Avant de passer à l'étude de la compression d'impulsion par propagation non-linéaire dans une fibre creuse, il convient de définir proprement certaines notions. En effet, mathématiquement, on n'utilise pas les mêmes définitions qu'en physique, ce qui conduit à des confusions voire des erreurs. C'est en particulier le cas de la durée d'impulsion, la CEP et la variable spectrale dont les différentes définitions sont détaillées ci-dessous.

### 1.5.1 FWHM *vs* $\sigma$

A partir du champ électrique  $E$  d'une impulsion, on définit son intensité par la relation :

$$I = \frac{n_0 |E|^2}{2\mu_0 c} \quad (1.23)$$

les physiciens définissent ensuite la durée  $\tau$  d'une impulsion comme la largeur à mi-hauteur (Full Width at Half Maximum FWHM) en intensité. Cependant mathématiquement, c'est la demie largeur à  $1/e$  en intensité,  $\sigma_t$  qui est utilisée pour représenter une impulsion gaussienne. Ces deux grandeurs sont reliées par la relation omniprésente :

$$\tau = 2\sqrt{\ln 2} \sigma_t \quad (1.24)$$

On définit de même la largeur spectrale  $\Delta\nu$  comme la FWHM de l'intensité spectrale :

$$\Delta\nu = 2\sqrt{\ln 2} \sigma_\omega \quad (1.25)$$

Pour une impulsion gaussienne, la relation d'incertitude s'écrit alors selon la définition des largeurs :

$$\sigma_t \sigma_\omega \geq 1/2\pi, \text{ ou } \tau \Delta\nu \geq 2 \ln 2 / \pi \approx 0.44. \quad (1.26)$$

### 1.5.2 CEP temporelle ou spectrale ?

Selon la définition mathématique, la CEP est la phase spectrale continue  $\Phi_0$ . En revanche, en physique, la CEP est liée au délai entre le maximum de l'enveloppe et celui de la porteuse illustré Fig. 1.5 (phase temporelle continue  $\phi_0$ ). Comme c'est le champ électrique qui interagit avec les électrons d'un milieu dans les processus non-linéaires, c'est la CEP physique qui importe. Nous en verrons un exemple dans le chapitre 6. Cependant, la mesure usuelle de la CEP par montage f-2f [22] fournit la CEP spectrale (mathématique) donc celle-ci a aussi son importance dans le laboratoire. La distinction entre ces deux CEP est primordiale car une modification de la CEP temporelle n'est pas toujours équivalente à une variation de la CEP spectrale. Dans le cas de la propagation dans un milieu, la différence entre la vitesse de phase et la vitesse de groupe modifie la CEP spectrale et temporelle de manière identique, mais on a vu précédemment que la présence de phase spectrale non-linéaire modifie la CEP temporelle sans changer la CEP spectrale (le décalage de CEP  $\phi_1$ ).

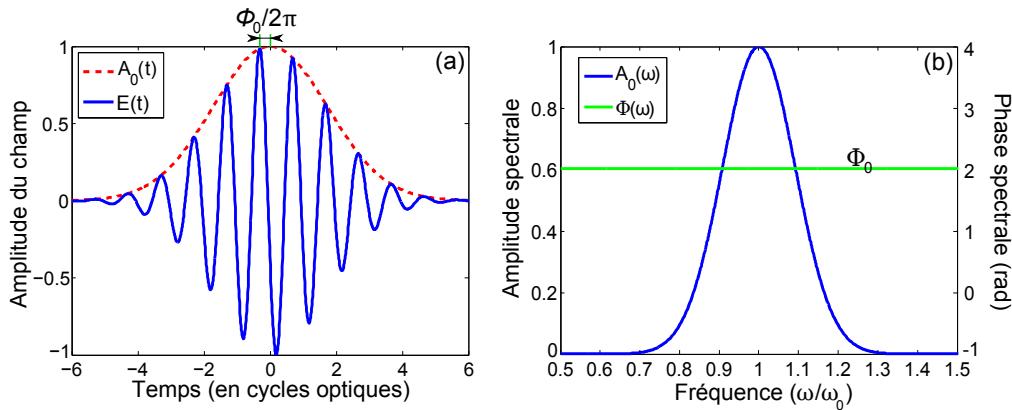


FIGURE 1.5 – Représentation temporelle (a) et spectrale (b) d'une impulsion dont la phase CEP  $\phi_0 = \Phi_0 = 2 \text{ rad}$ .

### 1.5.3 Longueur d'onde vs fréquence

La fréquence  $\nu = \omega/2\pi$  est l'unité spectrale, duale du temps  $t$ . Expérimentalement, les physiciens préfèrent parler de longueur d'onde  $\lambda = c/\nu$  dans le domaine spectral des lasers femtosecondes. On va ainsi parler d'impulsions laser à  $800 \text{ nm}$  et non pas à  $375 \text{ THz}$ . Il faut cependant se méfier de la représentation en longueurs d'onde (qui est utilisée par la plupart des spectromètres) car cela peut donner de fausses impressions. Déjà, la relation d'incertitude temps-longueur d'onde n'est plus triviale, il faut utiliser la longueur d'onde centrale  $\lambda_0$  :



$$\frac{c}{\lambda_0^2} \tau \Delta\lambda \geq 0.44 \quad (1.27)$$

D'autre part un spectre symétrique en fréquence ne l'est plus en longueur d'onde (et réciproquement) comme illustré sur la Fig. 1.6 où le même spectre est représenté selon les deux variables. On verra dans le chapitre suivant l'importance d'avoir un spectre symétrique en fréquence pour comprimer proprement une impulsion (absence de pré ou post-impulsion).

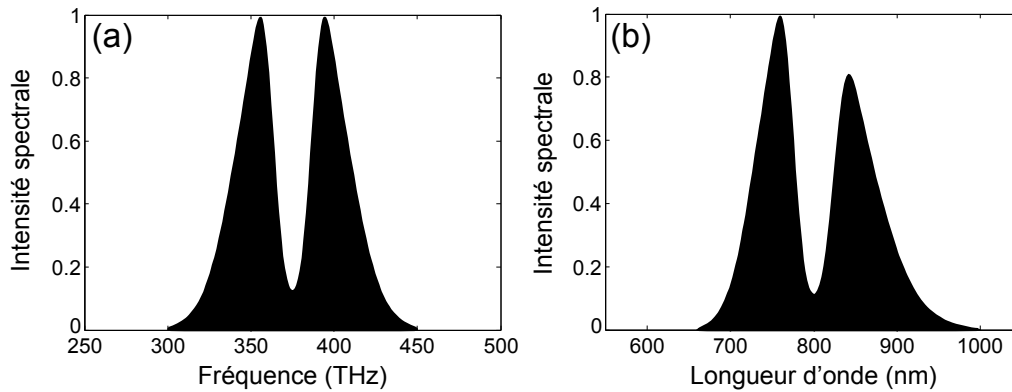


FIGURE 1.6 – Représentation du spectre d'une impulsion ultracourte proche infrarouge en fréquence (a) et en longueur d'onde (b).

# Chapitre 2

## Principe et mise en équation

Dans ce chapitre sont présentés séparément les différents effets à prendre en compte pour décrire la compression d'impulsion dans une fibre creuse. Les premières sections sont consacrées à la propagation non-linéaire d'une impulsion dans une fibre creuse afin d'élargir son spectre : l'effet Kerr optique (2.1), l'ionisation (2.2) et la propagation des modes spatiaux (2.3) ainsi que la prise en compte simultanée de ces trois composantes (2.4). La compensation de la dispersion après le passage dans la fibre creuse est ensuite détaillée (2.5). La dernière section (2.6) présente la signature de ces différents effets dans la méthode de caractérisation de la durée d'impulsion et de la qualité de compression.

### 2.1 Effet Kerr

Lors de la propagation d'une onde électromagnétique dans un milieu, le champ électrique  $E$  impose une oscillation aux électrons du milieu. On dit que le milieu est polarisé par ce déplacement de charges. Quand l'amplitude du champ électrique de l'onde est très faible devant le champ coulombien qui relie les électrons au noyau (faible intensité), l'oscillation des électrons s'effectue proportionnellement au champ laser, appelée alors oscillation harmonique. Ceci constitue la réponse linéaire d'un milieu (polarisation proportionnelle au champ  $P = \chi^{(1)}E$ ) et définit l'indice optique  $n = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} = \sqrt{\epsilon}$ . A haute intensité, le déplacement des électrons devient conséquent et le puits de potentiel créé par la force coulombienne s'y oppose. Le mouvement des électrons de même que la polarisation du milieu n'est plus relié linéairement au champ électrique. En particulier, l'indice optique du milieu va dépendre de l'intensité du champ, cet effet non-linéaire appelé effet Kerr provient du terme de polarisation non-linéaire d'ordre 3,  $P_{NL} = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3$  ( $\chi^{(3)}$  dépend du milieu) dont la composante à la fréquence  $\omega_0$  s'écrit  $P_{Kerr} = \frac{3}{4} \epsilon_0 \chi^{(3)} |E|^2 E$ . L'équation de propagation Eq. 1.15 s'écrit alors dans l'approximation

de l'enveloppe lentement variable :

$$\Delta E - \frac{\epsilon + \frac{3}{4}\chi^{(3)}|E|^2}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = 0 \quad (2.1)$$

L'indice optique devient :

$$n = \sqrt{\epsilon + \frac{3}{4}\chi^{(3)}|E|^2} \approx \sqrt{\epsilon} + \frac{3\chi^{(3)}}{8\sqrt{\epsilon}}|E|^2 \quad (2.2)$$

On définit alors l'indice non-linéaire  $n_2$  :

$$n_2 = \frac{3\mu_0 c}{4n_0^2} \chi^{(3)} \quad (2.3)$$

En utilisant la définition de l'indice optique à faible intensité  $n_0 = \sqrt{\epsilon}$ , il vient  $n = n_0 + n_2 I$ .

Ainsi, plus l'intensité est grande, plus la vitesse de phase sera faible. Pour une impulsion carrée ('top hat') temporellement et spatialement, l'effet Kerr ne change rien d'autre. Dans le cas d'impulsions usuelles (gaussiennes en temps et en espace), l'intensité et donc l'indice optique varient en fonction du temps et de l'espace (voir Fig. 2.1). Le changement d'indice optique reproduit exactement la variation d'intensité spatio-temporelle d'une impulsion<sup>1</sup>. Cela a pour conséquences un élargissement spectral (auto-modulation de phase) et une déformation temporelle (auto-raïdissement) de l'impulsion ainsi que la formation d'une lentille convergente (auto-focalisation). Ces trois effets sont décrits dans les paragraphes suivants.

### 2.1.1 Auto-modulation de phase

L'auto-modulation de phase (Self-phase modulation SPM) est un effet largement utilisé pour élargir le spectre d'impulsions femtosecondes. Il provient de la variation temporelle de la vitesse de phase d'une impulsion se propageant en régime non-linéaire. Cet effet se démontre simplement en calculant la fréquence instantanée d'une impulsion gaussienne. La phase s'écrit alors  $\phi = \frac{n_0 \omega_0}{c} z - \omega_0 t + \phi_{SPM}(t)$ , à partir de l'équation de propagation on obtient :

$$\phi_{SPM}(t) = \frac{z}{L_{SPM}} e^{-t^2/\sigma^2} \quad (2.4)$$

$$L_{SPM} = \frac{2cn_0}{\omega_0 n_2 I_0} \quad (2.5)$$

---

1. Dans le domaine des fréquences optiques non résonantes avec le milieu non-linéaire (gaz rares), l'effet Kerr est un phénomène instantané. En effet, le temps de réponse de la susceptibilité non-linéaire est de l'ordre du temps de retour  $\tau_r$  à l'équilibre des premiers électrons.  $\tau_r = \hbar/\Delta E \leq 0.1 \text{ fs}$  pour un gaz rare (énergie de première ionisation  $\Delta E \geq 10 \text{ eV}$ ).

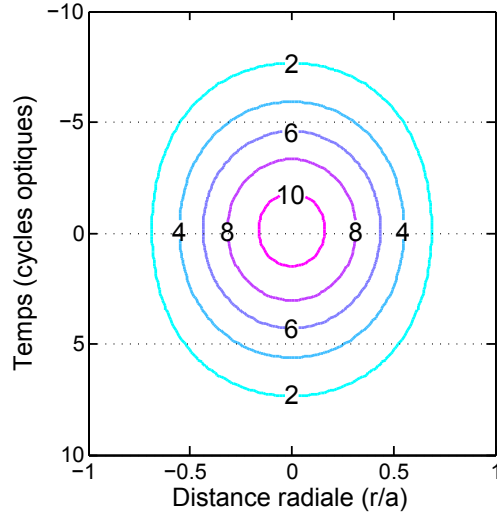


FIGURE 2.1 – Lignes de niveau spatio-temporelles de l'indice optique augmenté par effet Kerr (en  $10^{-6}n_0$ , par pas de 2), pour une impulsion dans le mode spatial  $A_{01}$ , gaussienne en temps.

La fréquence instantanée  $\omega(t) = -\partial\phi/\partial t$  dépend du temps,  $\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t)$  avec :

$$\delta\omega(t) = \frac{z}{L_{SPM}} \frac{2t}{\sigma^2} e^{-t^2/\sigma^2} \quad (2.6)$$

La variation de fréquence instantanée est représentée sur la Fig. 2.2(a). De nouvelles fréquences apparaissent ainsi dans l'impulsion, l'amplitude de l'élargissement spectral est proportionnelle au maximum d'intensité  $I_0$ , à l'indice non-linéaire  $n_2$  et à la distance parcourue  $z$ , et inversement proportionnelle à la durée d'impulsion (plus l'impulsion est courte, plus la variation d'indice est rapide). La longueur caractéristique  $L_{SPM}$  représente la distance au bout de laquelle le déphasage maximum apporté par la SPM est de  $\phi_{SPM} = 1 \text{ rad}$ , ce qui correspond à  $|\delta\omega|/\omega_0 \leq 2.5\%$  pour une impulsion de 10 cycles optiques. A  $800 \text{ nm}$ , avec une intensité de  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  dans  $1 \text{ bar}$  de néon ( $n_2 = 7.5 \times 10^{-25} \text{ m}^2/\text{W}$  [23]) on a  $L_{SPM} = 34 \text{ cm}$ . Dans le domaine spectral, la SPM induit une modulation du spectre simultanément à son élargissement Fig. 2.2(b). Cette modulation provient des interférences spectrales entre les fréquences identiques présentes à différents délais dans l'impulsion.

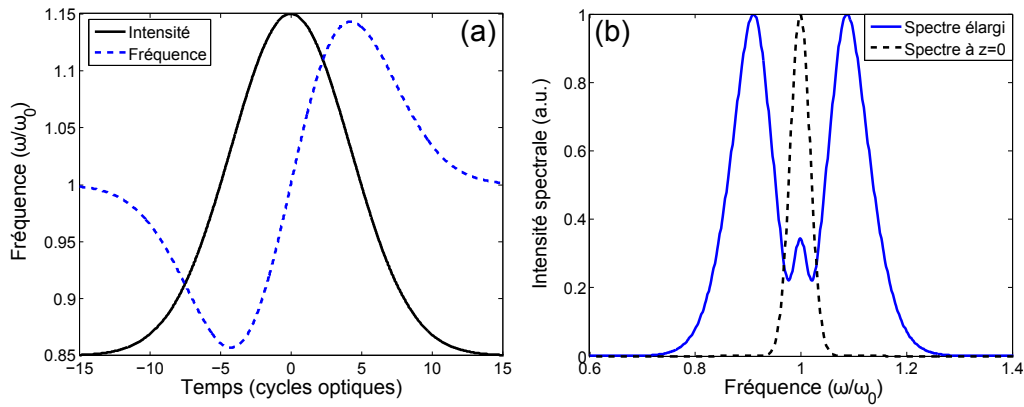


FIGURE 2.2 – Variation de la fréquence instantanée (a) et spectre (b) d'une impulsion gaussienne (10 cycles optiques) induits par SPM sur une distance  $z = 2\pi L_{SPM}$ .

Pour élargir le spectre d'une impulsion, il suffit donc de la focaliser dans un milieu sur une distance suffisante. Il est aussi intéressant de noter que pour un milieu d'indice non-linéaire positif, l'avant de l'impulsion ( $t < 0$ ) est élargi vers le rouge ( $\delta\omega < 0$ , redshift) et l'arrière ( $t > 0$ ) vers le bleu ( $\delta\omega > 0$ , blueshift). Cette répartition des fréquences dans le spectre ressemble à la dispersion normale d'une impulsion dans un milieu. Ainsi, dans le cas d'une impulsion chirpée, le spectre ne va plus s'élargir de la même manière (Fig. 2.3). Pour  $\phi_{SPM} = 2\pi$ , le spectre le plus large est obtenu à la compression ( $\xi = 0$ ) et les modulations du spectre sont plus rapides pour  $\xi \neq 0$ .

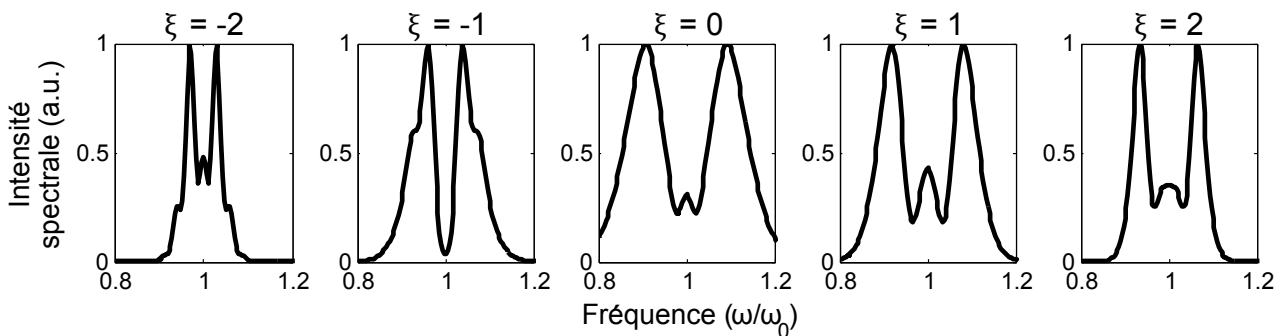


FIGURE 2.3 – Elargissement spectral d'une impulsion gaussienne (durée comprimée de 10 cycles optiques à mi-hauteur) induit par SPM sur une distance  $z = 2\pi L_{SPM}$  pour différents chirps initiaux ( $\xi$ ).

Dans le cadre de la compression d'impulsions où on recherche à élargir le spectre par SPM, il est idéal d'avoir une impulsion comprimée en entrée du dispositif de propagation non-linéaire. L'élargissement spectral est très diminué en chirp négatif, ainsi, s'il est nécessaire d'utiliser une impulsion chirpée (pour diminuer l'intensité par exemple, comme décrit dans le Chapitre 3),

on choisira un chirp positif.

### 2.1.2 Auto-raïdissement

L'auto-raïdissement (Self-steepening SS) provient de la variation de vitesse de groupe entre les pieds de l'impulsion et son maximum (description heuristique). Le centre de l'impulsion est ralenti par l'augmentation de l'indice optique ce qui va déformer l'enveloppe de l'impulsion (Fig. 2.4 (a)). Le front avant de l'impulsion voit sa pente diminuer alors que le front arrière se raidi. Cette déformation va affecter la SPM : l'élargissement spectral sera moins fort à l'avant de l'impulsion et plus fort à l'arrière, en revanche le front montant étant plus étalé que le front descendant, le redshift concerne ainsi une plus grande partie de l'impulsion que de blueshift. Au final, le SS élargit le spectre de manière asymétrique et le barycentre du spectre se déplace vers les fréquences hautes (Fig. 2.4 (b)). La longueur caractéristique d'auto-raïdissement  $L_{SS}$  dépend de  $L_{SPM}$  et de la durée d'impulsion  $\sigma$  :

$$L_{SS} = \frac{L_{SPM}}{s} \quad (2.7)$$

$$s = \frac{3}{\omega_0 \sigma} \quad (2.8)$$

$s$  est proportionnel à l'inverse du nombre de cycles optiques.

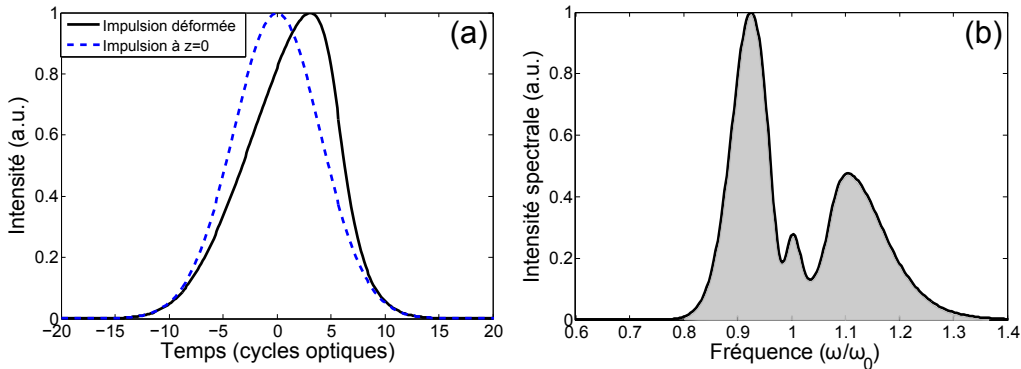


FIGURE 2.4 – Déformation temporelle (a) et spectrale (b) d'une impulsion gaussienne (10 cycles optiques à mi-hauteur,  $s = 0.05$ ) induits par SS et SPM sur une distance  $z = 2\pi L_{SPM} = 0.3 L_{SS}$ .

L'auto-raïdissement est indissociable de l'auto-modulation de phase et a son importance dans le cadre de l'élargissement spectral d'impulsions de quelques dizaines de cycles optiques ( $s > 0.01$ ). Il est en revanche négligeable devant la SPM dans le cas d'impulsions plus longues ( $s < 0.01$ ). Dans le cas de la Fig. 2.4 où  $s = 0.05$ , l'impulsion est propagée sur une distance

$z = 2\pi L_{SPM}$  pour obtenir un élargissement notable, en prenant en compte le SS, on observe une forte différence avec la Fig. 2.2. Pour une impulsion de 10 cycles optiques, à  $800nm$ , d'intensité  $10^{14} W/cm^2$  dans  $1bar$  de néon ( $n_2 = 7.5 \times 10^{-25} m^2/W$ ) on a  $L_{SS} = 680 cm$ . On voit ici qu'une propagation sur  $0.3 L_{SS}$  est suffisante pour avoir un auto-raïdissement conséquent.

### 2.1.3 Auto-focalisation

Dans le domaine spatial, une variation d'indice optique va directement affecter la propagation d'un faisceau. Sur la Fig. 2.1, on constate que l'indice optique varie spatialement ce qui reproduit l'effet d'une lentille convergente (indice plus fort au centre que sur les bords). Si cette lentille compense la diffraction du faisceau, il se propage sans se déformer (auto-guidage). Si la lentille est assez forte pour faire converger le faisceau, l'intensité augmentant, l'effet de focalisation s'accroît jusqu'à la destruction du milieu (ionisation). Ce phénomène est l'auto-focalisation (Self-focusing SF). Dans le cas d'une fibre creuse, il n'y a pas de diffraction mais une propagation dans une base discrète de modes spatiaux (voir paragraphe 1.4). L'auto-focalisation transfère l'énergie vers des modes plus concentrés spatialement. Elle peut être interprétée comme une projection d'un faisceau plus focalisé sur la base des modes de la fibre. Cet effet est illustré Fig. 2.5 : au cours de sa propagation, la taille du faisceau diminue, l'intensité augmente et l'énergie est transférée dans les modes d'ordre supérieur. Sur la Fig. 2.6, on voit la déformation du profil spatio-temporel de l'impulsion : on observe le front arrière très raide de l'impulsion (SS) et la focalisation de l'impulsion. Pour obtenir ces figures, seul l'effet Kerr est pris en compte. En réalité, les modes spatiaux d'une fibre creuse ne se propagent pas de la même manière ce qui conduit à une oscillation de l'énergie entre les modes (voir paragraphe 2.3.1).

L'auto-focalisation peut apparaître comme un effet avantageux dans le cadre de l'élargissement spectral d'une impulsion. Il augmente en effet l'intensité de l'impulsion et donc les effets non-linéaires recherchés (ici la SPM). Cependant, à trop haute intensité le gaz va être ionisé et de nouveaux effets non-linéaires apparaissent, qui peuvent être néfastes à la compression d'impulsion.

## 2.2 Ionisation

En focalisant une impulsion laser dans un gaz, l'intensité peut être telle que le champ électrique arrache les électrons des premières couches du puits de potentiel coulombien de l'atome. Un plasma est alors créé (présence d'ions et d'électrons libres). Les électrons libres

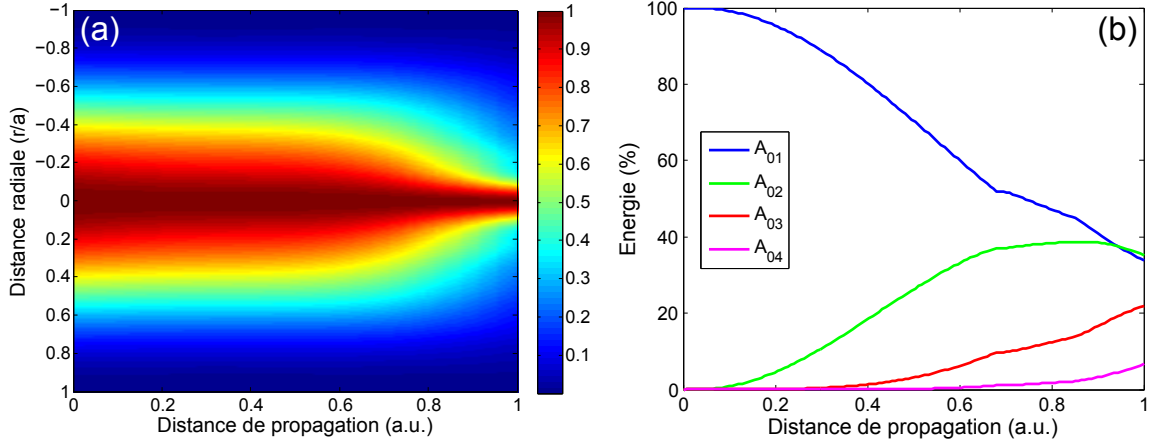


FIGURE 2.5 – Auto-focalisation d’une impulsion couplée dans le mode fondamental d’une fibre creuse de diamètre  $a$ . (a) Evolution du profil spatial (normalisé à 1 sur l’axe vertical) et (b) distribution d’énergie entre les modes en fonction de la distance de propagation.

vont ensuite interagir fortement avec le champ laser. Dans un plasma, l’indice optique varie en fonction de l’intensité et de la fréquence d’oscillation du laser :

$$n \approx n_0 - \omega_p^2 / 2\omega_0^2, \quad (2.9)$$

où  $\omega_p$  est la fréquence plasma qui dépend de la densité électronique  $n_e$  (Eq. 2.10).

$$\omega_p^2 = \frac{e^2 n_e}{m_e \epsilon_0} \quad (2.10)$$

Ainsi plus un milieu est ionisé, plus l’indice optique sera faible : l’ionisation induit donc une propagation non-linéaire de l’impulsion laser. La densité électronique  $n_e$  est calculée à partir du taux d’ionisation  $w$  (Eq. 2.11) qui dépend de l’intensité laser. Dans le régime où l’énergie des photons laser est inférieure au potentiel coulombien des électrons ( $\hbar\omega_0 < I_p$ ), l’ionisation se fait par effet tunnel et par absorption multi-photonique. La théorie ADK (Ammosov-Delone-Krainov) [24] prend en compte ces deux effets, elle fournit le taux d’ionisation en fonction de la valeur absolue du champ laser réel  $E_{abs} = |E_0 \cos \omega_0 t|$  (Eq. 2.12) où  $E_0$  est l’enveloppe du champ électrique.

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = w(t)(n_0 - n_e) \quad (2.11)$$

$$w(t) = \kappa \left( \frac{\mu}{|E_{abs}|} \right)^{2n^*-1} \exp \left( -\frac{\mu}{3|E_{abs}|} \right) \quad (2.12)$$

$\kappa$  et  $\mu$  sont des constantes qui dépendent du potentiel d’ionisation de l’atome  $I_p$ ,  $n^*$  est le nombre quantique principal effectif (qui représente la charge effective d’un électron écranté par



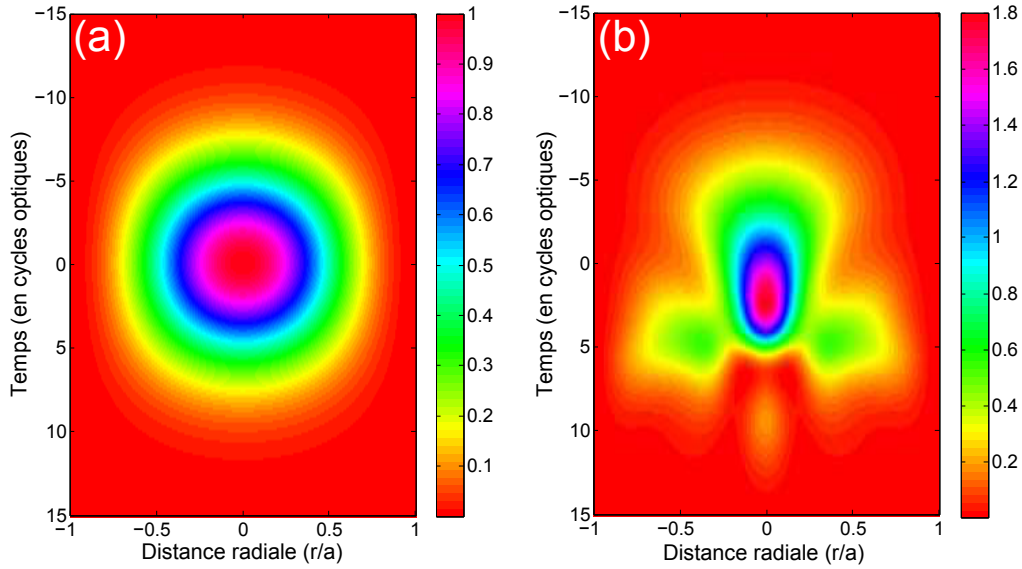


FIGURE 2.6 – Auto-focalisation d’une impulsion couplée dans le mode fondamental d’une fibre creuse de diamètre  $a$ . Profil spatio-temporel à l’entrée de la fibre (a) et après auto-focalisation par effet Kerr (b).

les autres électrons). Ces grandeurs sont calculées à partir des équations ci-dessous, leur valeur pour les gaz rares usuels est donnée dans le Tableau 2.1.

$$\kappa = \Omega_p |C_{n^*}|^2, \quad \frac{\mu}{|E|} = \frac{4\Omega_p}{\omega_t} \quad (2.13)$$

$$\Omega_p = \frac{I_p}{\hbar}, \quad \omega_t = \frac{e|E|}{\sqrt{2m_e I_p}}, \quad n^* = Z \left( \frac{I_{pH}}{I_p} \right)^{1/2}, \quad |C_{n^*}|^2 = \left( \frac{2^{n^*}}{\Gamma(n^* + 1)} \right)^2 \quad (2.14)$$

$Z$  est la charge de l’ion (ici  $Z = 1$ ),  $I_{pH} = 13.6 \text{ eV}$  est le potentiel d’ionisation de l’hydrogène et  $\Gamma(x)$  est la fonction d’Euler.  $\Omega_p$  est la fréquence caractéristique d’un électron dans un puits de potentiel  $I_p$ ,  $\omega_t$  est la fréquence à laquelle un électron soumis au champ laser  $|E|$  acquiert une énergie égale à la barrière de potentiel  $I_p$ .

Gaz	$n_2$ ( $10^{-21} \text{ cm}^2/\text{W}$ ) [23]	$I_p$ (eV)	$n^*$	$\kappa$ ( $\text{s}^{-1}$ )	$\mu$ (TV.m <sup>-1</sup> )	$I_\mu$ W/cm <sup>2</sup>
Argon	98	15.76	0.9289	$9.18 \times 10^{16}$	1.28	$2.18 \times 10^{17}$
Néon	7.5	21.56	0.7942	$1.14 \times 10^{17}$	2.05	$5.58 \times 10^{17}$
Hélium	4.2	24.59	0.7437	$1.24 \times 10^{17}$	2.50	$8.27 \times 10^{17}$

TABLE 2.1 – Indice non-linéaire ( $n_2$ ) et grandeurs caractéristiques pour la première ionisation des différents gaz rares utilisés dans la fibre creuse.  $I_p$  est l’énergie de première ionisation,  $n^*$  le nombre quantique principal effectif,  $\kappa$  et  $\mu$  sont respectivement le taux et le champ électrique caractéristiques d’ionisation,  $I_\mu$  est l’intensité de suppression de barrière de potentiel.

Fig. 2.7 montre les taux d'ionisation de l'Argon, le Néon et l'Hélium en fonction de l'intensité. On constate la très forte non-linéarité de l'ionisation pour des intensités de  $10^{13}$  à  $10^{15} \text{ W/cm}^2$ , puis la saturation du taux d'ionisation vers un maximum qui correspond à la fréquence caractéristique d'ionisation par suppression de la barrière de potentiel ( $w = 0.72\kappa$  quand  $|E| = \mu$ ).

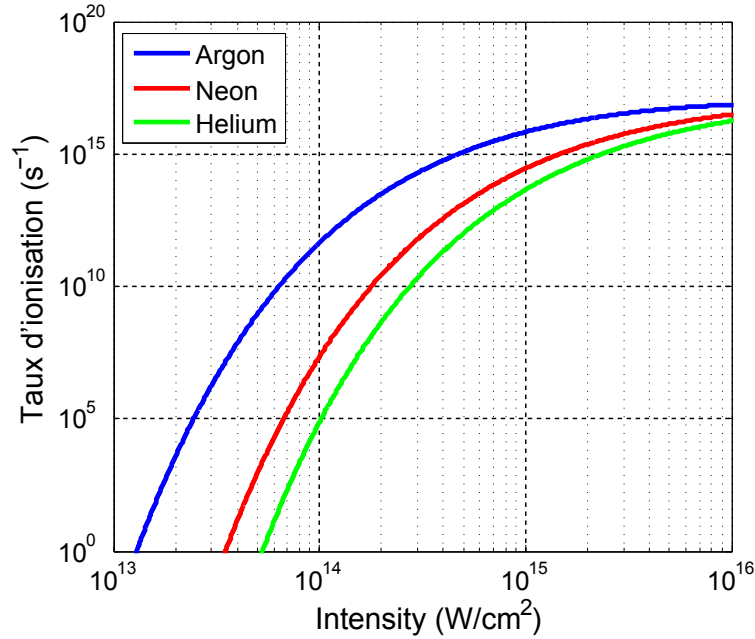


FIGURE 2.7 – Taux d'ionisation en fonction de l'intensité laser pour trois gaz rares, calculés à partir de la théorie ADK [24].

A la différence de l'effet Kerr, l'ionisation s'accumule au cours du temps car le temps de recombinaison d'un plasma est de l'ordre de la *ns*. Pour une impulsion femtoseconde, la variation spatio-temporelle de l'indice optique par ionisation est représentée Fig. 2.8. L'indice optique ne fait que diminuer au cours du temps et ceci de manière très abrupte au niveau du maximum de l'impulsion ( $t = 0, r = 0$ ), cela est dû à la forte non-linéarité de l'ionisation.

De la même manière que pour l'effet Kerr, la variation d'indice optique au cours du temps crée de nouvelles fréquences (décalage plasma vers le bleu), déforme l'impulsion (ralentissement plasma) et forme une lentille divergente (défocalisation plasma). Ces trois effets sont détaillés dans les paragraphes suivants.

D'autre part, l'ionisation d'un milieu requiert de l'énergie. Celle-ci est définitivement perdue pour l'impulsion car elle est diffusée sous forme de lumière incohérente lors de la recombinaison du plasma. Le calcul de cette perte d'énergie est détaillé dans le paragraphe 2.4.

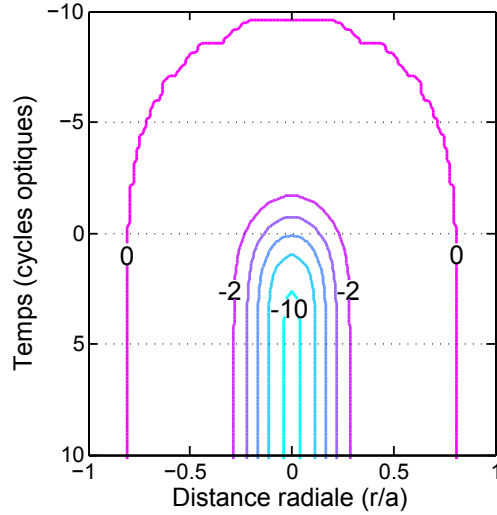


FIGURE 2.8 – Lignes de niveau spatio-temporelles de l'indice optique diminué par ionisation (en  $10^{-6}n_0$ , par pas de 2), pour une impulsion dans le mode spatial  $A_{01}$ , gaussienne en temps.

### 2.2.1 Décalage plasma vers le bleu

Le décalage plasma vers le bleu (plasma blueshift PBS) provient de la diminution de l'indice optique le long d'une impulsion qui ionise un milieu. Comme la SPM, cet effet peut être utilisé pour élargir le spectre d'une impulsion [25]. Dans un milieu ionisé, la phase temporelle d'une impulsion s'écrit  $\phi = \frac{n_0\omega_0}{c}z + \omega_0 t + \phi_{PBS}$ , où  $\phi_{PBS}$  est la phase apportée par la présence d'électrons libres.

$$\phi_{PBS} = -\frac{\omega_0}{2n_0c} \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} z \quad (2.15)$$

Comme la densité électronique ne fait que croître le long de l'impulsion, la variation de fréquence instantanée  $\delta\omega(t) = -\frac{\partial\phi_{PBS}}{\partial t}$  est toujours positive ce qui correspond à la création de nouvelles fréquences plus rapides ('bleues'). Le taux d'ionisation étant le plus fort au maximum de l'impulsion, c'est le centre de l'impulsion qui va être décalé vers le bleu (en l'absence de saturation). La longueur caractéristique du PBS correspond à la distance requise pour ajouter un radiant à la phase au centre de l'impulsion (Voir Annexe B), pour une impulsion de 10 cycles optiques à  $800nm$  de  $2mJ$  dans 1 bar de Néon,  $L_{PBS} = 4.5cm$ . Sur la Fig. 2.9(a), la fréquence instantanée a la même forme que l'impulsion : une gaussienne de largeur à mi-hauteur plus petite, ce qui témoigne de la non-linéarité de l'ionisation. Le spectre voit son barycentre décalé vers les hautes fréquences Fig. 2.9(b). Comme pour la SPM, le spectre est modulé par les interférences spectrales entre les fréquences identiques situées à différents instants dans l'impulsion.

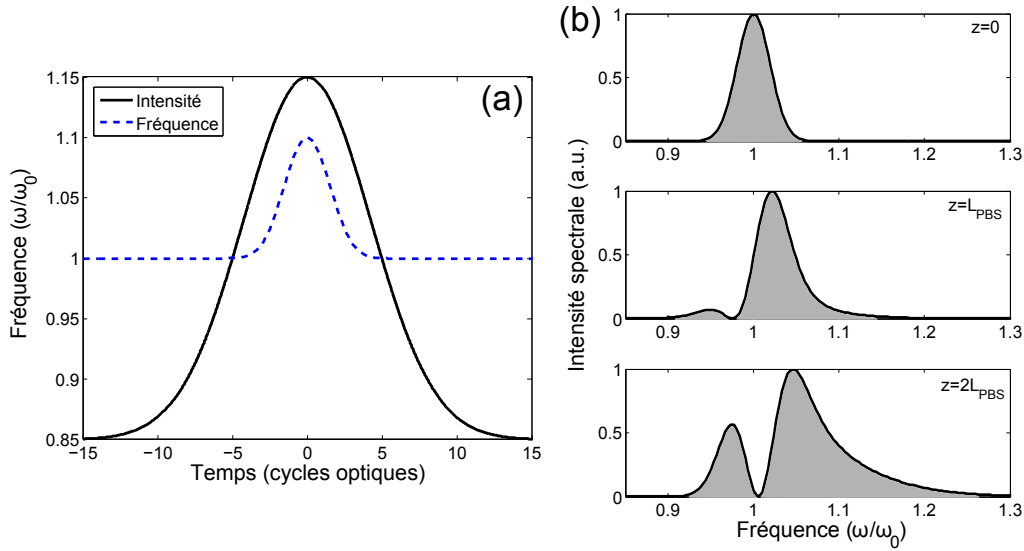


FIGURE 2.9 – Variation de la fréquence instantanée (a) et spectre (b) d’une impulsion gaussienne (10 cycles optiques) induits par décalage plasma vers le bleu.

Le décalage plasma vers le bleu permet ainsi de créer de nouvelles fréquences, cet effet n’est pour autant pas idéal pour comprimer des impulsions car la phase spectrale associée est discontinue (voir paragraphe 2.5 et 2.6).

### 2.2.2 Le ralentissement plasma

Le ralentissement plasma (plasma slowing PS) provient de la diminution de la vitesse de propagation dans un milieu ionisé. Comme l’indice optique est réduit, la vitesse de phase est plus grande. En revanche, la dépendance de la variation d’indice avec la fréquence conduit à une diminution de la vitesse de groupe. On le démontre en calculant la vitesse de groupe d’une impulsion dans un plasma :

$$v_g = \left( \frac{\partial \omega}{\partial k} \right)_{\omega_0} \quad (2.16)$$

Le vecteur d’onde  $k = \frac{n\omega}{c} = \frac{n_0\omega}{c} \left( 1 - \frac{\omega_p^2}{2\omega^2} \right)$ , on a donc :

$$\frac{1}{v_g} = \left( \frac{\partial k}{\partial \omega} \right)_{\omega_0} = \frac{n_0}{c} \left( 1 + \frac{\omega_p^2}{2\omega_0^2} \right) \quad (2.17)$$

Avec  $\omega_0 \gg \omega_p$ , on obtient :

$$v_g \approx v_g^{(0)} \left( 1 - \frac{\omega_p^2}{2\omega_0^2} \right) \quad (2.18)$$

$v_g^{(0)} = c/n_0$  est la vitesse de groupe dans le gaz non ionisé (on néglige ici la dispersion du gaz). Ainsi, plus le milieu est ionisé, plus la fréquence plasma  $\omega_p$  est grande et plus l'impulsion est ralentie. Comme l'ionisation s'accumule le long de l'impulsion laser, le ralentissement plasma a principalement lieu à l'arrière de celle-ci (Fig. 2.10). La longueur caractéristique de PS s'exprime à partir de  $L_{PBS}$  et  $s$  :

$$L_{PS} = \frac{L_{PBS}}{s} \quad (2.19)$$

Ce ralentissement est associé à un effet d'absorption plasma. On peut en effet démontrer qu'à la différence de l'auto-raïdissement, la variation de vitesse de groupe due à la présence d'un plasma induit une absorption d'énergie (Voir Annexe B). Sur une distance  $z = 0.1 L_{PS}$  avec  $s = 0.05$ , cette absorption représente 3% de l'énergie. On observe sur la Fig. 2.10 que cette absorption est située au niveau du centre de l'impulsion ce qui, associé à un léger allongement de la durée d'impulsion, réduit significativement l'intensité maximale (15%).

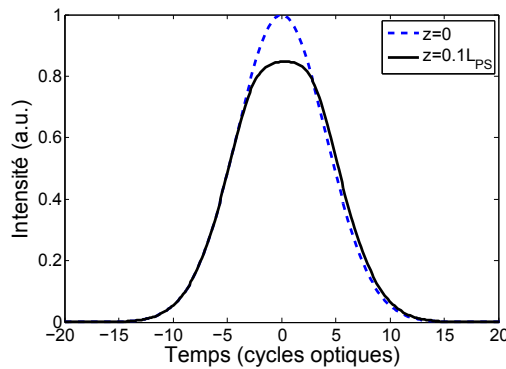


FIGURE 2.10 – Déformation temporelle (a) d'une impulsion gaussienne (10 cycles optiques,  $s = 0.05$ ) induit par PS sur une distance  $z = 2 L_{PBS} = 0.1 L_{PS}$ .

Le ralentissement plasma diminue fortement le taux d'ionisation car l'intensité de l'impulsion est réduite. Il est important de retenir que les pertes par absorption plasma (qui proviennent de l'absorption intrinsèque d'un milieu dispersif) sont différentes des pertes d'ionisation (qui correspondent à l'énergie nécessaire pour créer le plasma).

### 2.2.3 La défocalisation plasma

Comme pour l'effet Kerr, la variation spatiale de l'indice optique affecte la propagation du faisceau. Dans le cas de l'ionisation, l'indice optique diminue avec l'intensité créant ainsi une lentille divergente (Fig. 2.8). Cet effet est appelé défocalisation plasma (plasma defocusing PD). Dans une fibre creuse, la présence d'une lentille divergente ne défocalise pas le faisceau.

Comme l'auto-focalisation, le PD couple de l'énergie entre les modes spatiaux de la fibre, du mode fondamental vers les modes d'ordre plus élevé, (Fig. 2.11). Cependant, à la différence de l'auto-focalisation, l'énergie est couplée en proportion comparable dans tous les modes de la fibre et l'énergie totale couplée est beaucoup plus faible.

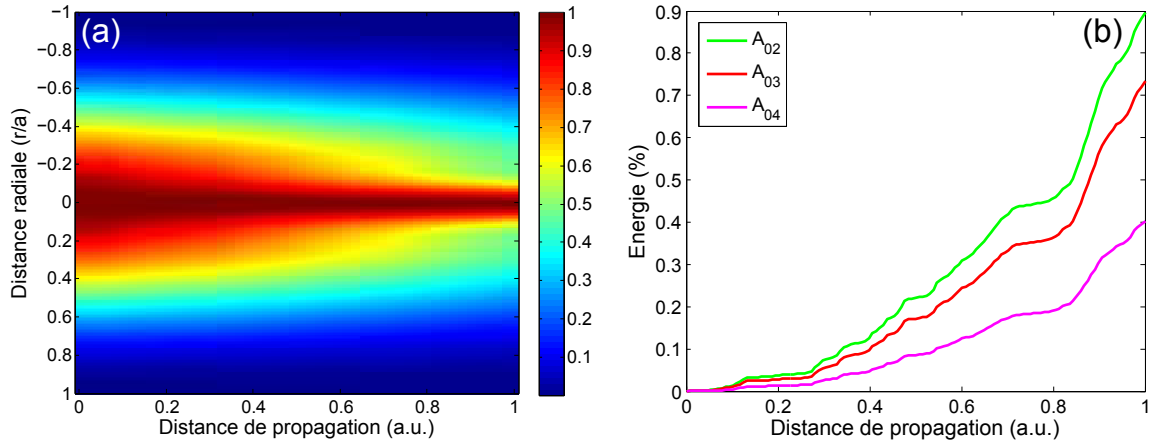


FIGURE 2.11 – Effet de la défocalisation plasma sur une impulsion couplée dans le mode fondamental d'une fibre creuse de diamètre  $a$ . Profil spatial (a) et distribution d'énergie entre les modes (b) en fonction de la distance de propagation.

La Fig. 2.12 montre bien la localisation à l'arrière de l'impulsion des effets spatiaux de l'ionisation. D'une part, cela provient de la création d'une lentille divergente sur la deuxième moitié de l'impulsion par accumulation de l'ionisation (2.8). D'autre part, le ralentissement plasma entraîne une répartition temporelle de l'énergie à l'arrière de l'impulsion.

L'ionisation est un effet très non-linéaire qui a tendance à s'auto-réguler par étalement spatio-temporel de l'impulsion. Cependant, dans une fibre creuse, les modes se propagent de façon différente, la défocalisation plasma conduit alors à des pertes supplémentaires.

## 2.3 Modes spatiaux

Nous avons vu que les effets non-linéaires couplent l'énergie entre les modes de propagation d'une fibre creuse. Pour illustrer l'auto-focalisation et la défocalisation plasma seuls dans une fibre creuse, nous avons négligé les différentes propriétés de ces modes. Nous étudions dans cette section ces différences et leurs conséquences sur la propagation.

Les modes d'une fibre creuse ont une distribution spatiale et un vecteur d'onde associé propre à chacun (voir section 1.4). Ils ont ainsi une vitesse de phase et une vitesse de groupe propre, ainsi que des pertes de propagation différentes.

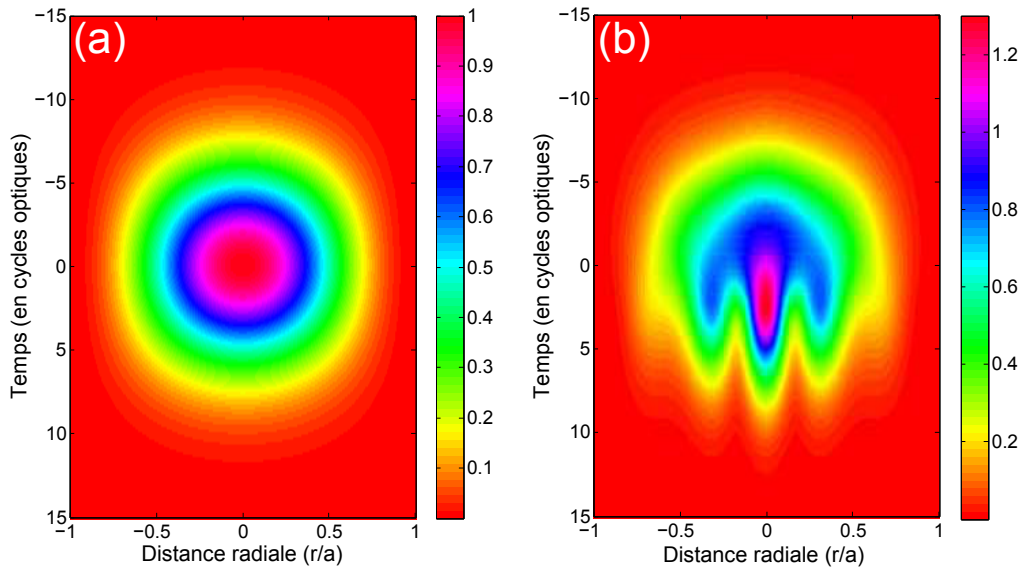


FIGURE 2.12 – Effet de la défocalisation plasma sur une impulsion couplée dans le mode fondamental d’une fibre creuse de diamètre  $a$ . Profil spatio-temporel à l’entrée de la fibre (a) et après défocalisation (b).

### 2.3.1 Différence de vitesses de phase

Le vecteur d’onde du mode  $m$  s’écrit :

$$k^{(m)}(\omega) = \sqrt{k(\omega)^2 - \left(\frac{u_{0m}}{a}\right)^2} \approx k(\omega) \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u_{0m}c}{n\omega a}\right)^2\right) \quad (2.20)$$

La vitesse de phase associée est alors  $\beta_0^{(m)} = k^{(m)}(\omega_0)$ . La différence de vitesse de phase entre le mode  $m$  et le mode fondamental est :

$$\Delta\beta_0^{(m)} = \beta_0^{(m)} - \beta_0^{(1)} = \frac{u_{01}^2 - u_{0m}^2}{2\beta_0 a^2} \quad (2.21)$$

Le champ électrique total dans la fibre (celui vu par les électrons du gaz et ainsi responsable des effets non-linéaires) est la somme des champs électriques des différents modes. Dans le cas de la propagation des deux premiers modes :

$$E_{tot} = E^{(1)} + E^{(2)} = A^{(1)} e^{i(\beta_0^{(1)} z - \omega_0 t)} + A^{(2)} e^{i(\beta_0^{(2)} z - \omega_0 t)} \quad (2.22)$$

$$E_{tot} = \left(A^{(1)} + A^{(2)} e^{-i\Delta\beta_0^{(2)} z}\right) e^{i(\beta_0^{(1)} z - \omega_0 t)} \quad (2.23)$$

On observe une interférence longitudinale qui provient d’un désaccord de phase entre les deux premiers modes de la fibre, de période :

$$Z_{osc} = \frac{2\pi}{|\Delta\beta_0^{(2)}|}. \quad (2.24)$$

Cette période d'oscillation est de  $6.25 \text{ cm}$  dans une fibre de  $250 \mu\text{m}$  de diamètre.

Dans le cadre de la propagation non-linéaire dans une fibre creuse, au delà de l'effet d'interférence, cet accord de phase va déterminer le sens du couplage d'énergie entre le mode 1 et le mode 2 par SF ou PD. En effet, l'énergie du mode 2 provient du mode 1. Quand les deux modes sont en phase, l'énergie provenant du mode 1 s'ajoute à l'énergie présente dans le mode 2 (interférence constructive), quand ils sont en opposition de phase, il n'y a plus ajout mais soustraction d'énergie dans le mode 2 (interférence destructive) qui retourne alors dans le mode 1. Comme pour la génération d'harmonique dans un cristal, on observe une oscillation périodique de l'énergie dans chacun des modes le long de la distance de propagation. De même, comme illustré Fig. 2.13, l'intensité du champ électrique total oscille ce qui induit une oscillation de l'intensité des effets non-linéaires.

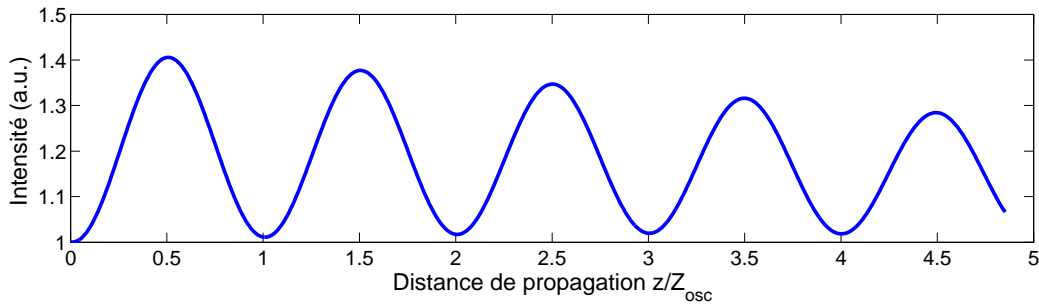


FIGURE 2.13 – Oscillation de l'intensité du champ électrique total le long d'une fibre creuse (simulation avec 2 modes spatiaux, sans pertes). A l'entrée de la fibre, toute l'énergie est dans le mode fondamental, seul le couplage par SF est considéré ici.

La différence de vitesse de phase des modes spatiaux d'une fibre creuse est donc un élément prépondérant de la propagation non-linéaire d'une impulsion dans ce guide d'onde. Nous verrons que cette oscillation est même visible en laboratoire le long de la fibre creuse (voir 3.2).

### 2.3.2 Différence de vitesse de groupe

De la même manière que pour la vitesse de phase, chaque mode spatial d'une fibre creuse a une vitesse de groupe différente. La vitesse de groupe est :

$$\beta_1^{(m)} = \left( \frac{\partial k^{(m)}}{\partial \omega} \right)_{\omega_0} \approx \beta_1 + \frac{u_{0m}^2}{\beta_0 \omega_0 a^2} \quad (2.25)$$

$\beta_1$  est appelé vitesse de groupe par abus de langage, la vitesse de groupe est en effet  $v_g = 1/\beta_1$ ,  $\beta_1$  est alors le "délai de groupe" (en  $s.m^{-1}$ ). La différence de délai de groupe est alors :



$$\Delta\beta_1^{(m)} = \beta_1^{(m)} - \beta_1^{(1)} = -\frac{2\Delta\beta_0^{(m)}}{\omega_0} \quad (2.26)$$

Comme  $\Delta\beta_0^{(m)} < 0$ , on a  $\Delta\beta_1^{(m)} > 0$  : les modes d'ordres supérieurs se propagent plus lentement que le mode fondamental. Pour une fibre de diamètre  $250 \mu m$ , le délai entre les deux premiers modes est de  $85 fs.m^{-1}$ . L'énergie couplée dans les modes d'ordre supérieurs va ainsi se situer à l'arrière de l'impulsion principale après propagation.

### 2.3.3 Pertes de propagation

A la différence d'une fibre optique qui transmet théoriquement une impulsion sans perte d'énergie (l'indice du coeur est plus grand que l'indice de la gaine), une fibre creuse remplie de gaz a des pertes de propagation intrinsèques, une partie de l'impulsion n'étant pas guidée. L'expression des pertes de propagation est la suivante [26] :

$$\alpha^{(m)} = \left(\frac{u_{0m}}{2\pi}\right)^2 \frac{\lambda_0^2}{2a^3} \frac{\nu^2 + 1}{\sqrt{\nu^2 - 1}} \quad (2.27)$$

$\nu > 1$  est le ratio de l'indice optique de la gaine de la fibre creuse et de celui du gaz ( $n \approx 1$ ). Pour une impulsion à  $800 nm$  dans une fibre de  $250 \mu m$  de diamètre, d'indice optique 1.57, on obtient  $\alpha^{(1)} = 0.069 m^{-1}$ ,  $\alpha^{(2)} = 0.36 m^{-1}$  et  $\alpha^{(3)} = 0.89 m^{-1}$ . Ces pertes sont ainsi d'autant plus grandes que l'énergie se situe dans un mode d'ordre élevé. Il faut privilégier la propagation de l'impulsion dans le mode fondamental d'une fibre creuse et donc éviter les effets non-linéaires spatiaux. Malheureusement, les effets non-linéaires temporels sont nécessaires pour élargir le spectre de l'impulsion et ils sont intrinsèquement liés à leur équivalent spatial. L'optimisation de la compression d'impulsion passe donc par l'étude de la propagation en incluant tous les effets.

## 2.4 Couplage des différents effets

J'ai présenté l'ensemble des effets à prendre en compte dans la propagation non-linéaire d'une impulsion dans une fibre creuse remplie de gaz : l'effet Kerr et l'ionisation spatio-temporels et la propagation des modes d'une fibre creuse. Ces effets ont été détaillés indépendamment les uns des autres dans les paragraphes précédents. Pour représenter la réalité, il est nécessaire de développer une équation de propagation qui contient tous ces termes. C'est l'objet de cette section où nous allons reproduire le raisonnement de Brabec [27] qui décrit la propagation non-linéaire d'une impulsion non-guidée sans prise en compte de l'ionisation. Durant ma thèse, j'ai

adapté cette démonstration pour obtenir une équation de la propagation non-linéaire guidée, avec prise en compte de l'effet Kerr et de l'ionisation. Nous allons tout d'abord trouver une expression de la polarisation non-linéaire adéquate, puis nous allons démontrer l'équation non-linéaire qui s'applique à l'enveloppe des modes de la fibre, ensuite nous allons traiter les pertes d'ionisation et la prise en compte de la polarisation du laser, enfin nous verrons la méthode de simulation pour résoudre cette équation.

Le champ électrique total  $E(r, z, t)$  s'écrit comme la somme sur tous les modes :

$$E(r, z, t) = e^{-i\omega_0 t} \sum_m A^{(m)}(z, t) A_{0m}(r) e^{i\beta_0^{(m)} z} + cc., \quad (2.28)$$

La dépendance radiale est contenue dans les fonctions de Bessel  $A_{0m}$  définies paragraphe 1.4,  $A^{(m)}$  est l'enveloppe complexe du mode  $m$ . On définit l'enveloppe complexe du champ  $E$  par :

$$A(r, z, t) = \sum_m A^{(m)}(z, t) J_{0m}(r) e^{i\Delta\beta_0^{(m)} z} + cc., \quad (2.29)$$

$$E = A e^{i(\beta_0^{(1)} z - \omega_0 t)} + cc.. \quad (2.30)$$

### 2.4.1 Polarisation non-linéaire

Pour utiliser le même raisonnement que Brabec, nous avons besoin d'une expression de la polarisation non-linéaire de la forme :

$$P_{nl} = B(r, z, t, A) e^{i(\beta_0^{(1)} z - \omega_0 t)} + cc. \quad (2.31)$$

où  $B(r, z, t)$  est son enveloppe complexe. La polarisation non-linéaire due à l'effet Kerr et à l'ionisation s'écrit :

$$\partial_t^2 P_{nl} = \partial_t^2 \left( \frac{3}{4} \chi^{(3)} E |E|^2 \right) + E \omega_p^2, \quad (2.32)$$

On l'exprime en fonction de  $B$  et de  $A$  :

$$\partial_t^2 (B e^{-i\omega_0 t}) = \partial_t^2 \left( \frac{3}{4} \chi^{(3)} A e^{-i\omega_0 t} |A|^2 \right) + A e^{-i\omega_0 t} \omega_p^2, \quad (2.33)$$

On prend la transformée de Fourier de cette expression qu'on multiplie par  $1/\omega^2$  :

$$\tilde{B} = \left( \frac{3}{4} \chi^{(3)} A \widetilde{|A|^2} \right) - \frac{\widetilde{A} \omega_p^2}{\omega^2}, \quad (2.34)$$

Le tilde  $\sim$  représente la transformée de Fourier centrée en  $\omega_0$ .

On utilise ensuite le développement de Taylor de  $1/\omega^2$  autour de la fréquence centrale  $\omega_0$  :

$$\frac{1}{\omega^2} = \frac{1}{\omega_0^2} - \frac{2}{\omega_0^3}(\omega - \omega_0) + \dots \quad (2.35)$$

L'expression de  $B$  devient alors :

$$\tilde{B} = \left( \frac{3}{4} \chi^{(3)} A |\widetilde{A}|^2 \right) - \frac{\widetilde{A\omega_p^2}}{\omega_0^2} + \frac{2\widetilde{A\omega_p^2}}{\omega_0^3}(\omega - \omega_0), \quad (2.36)$$

En effectuant la transformée de Fourier inverse on obtient alors :

$$B(r, z, t, A) = \frac{3}{4} \chi^{(3)} A |A|^2 - A \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} + \frac{2i}{\omega_0^3} \partial_t (A \omega_p^2). \quad (2.37)$$

Cette méthode permet de faire apparaître le terme de ralentissement plasma (3ème terme) qui provient bien de la dépendance en  $\omega$  de la variation d'indice optique dans un plasma.

## 2.4.2 Equation de propagation

A partir des équations de Maxwell, on obtient l'équation générale (dans le domaine fréquentiel) de propagation d'une impulsion dans un milieu :

$$(\partial_z^2 + \nabla_\perp^2) \tilde{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \tilde{E} = -\frac{\omega^2}{c^2} \tilde{P}_{nl}, \quad (2.38)$$

En utilisant un raisonnement similaire à celui de Brabec, en prenant en compte les modes spatiaux (voir Annexe A), on obtient l'équation suivante pour la propagation de l'amplitude complexe du mode  $m$  :

$$\begin{aligned} \partial_\xi A^{(m)} = & \left( -\frac{\alpha_0 + \alpha^{(m)}}{2} - \Delta\beta_1^{(m)} \partial_\tau + i \frac{\beta_2}{2} \partial_\tau^2 \right) A^{(m)} \\ & + i \frac{\beta_0}{2n_0^2} e^{-i\Delta\beta_0^{(m)} \xi} \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau \right) \int_r B(A) A_{0m}(r) 2\pi r dr, \end{aligned} \quad (2.39)$$

où la variable temporelle  $\tau = t - \beta_1^{(1)} z$  suit le déplacement du mode fondamental et la variable longitudinale est  $\xi = z$ .  $\alpha_0$  est l'absorption du gaz, généralement négligeable au regard des autres pertes de propagation,  $\hat{D}^{(m)}$  contient les termes de dispersion. On retrouve les pertes intrinsèques de chaque mode  $\alpha^{(m)}$ , la différence de vitesses de groupe et de phase  $\Delta\beta_0^{(m)}$  et  $\Delta\beta_1^{(m)}$ . Le dernier terme est une projection de la polarisation non-linéaire (terme source) sur le mode considéré. Comme on a négligé le terme d'ordre 2 dans le développement de  $1/\omega^2$ , on doit négliger les dérivées secondes temporelles. Ainsi on a :

$$\left(1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau\right) B(A) \approx \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau\right) \frac{3}{4} \chi^{(3)} |A|^2 A - \left(1 - \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau\right) \omega_p^2 A, \quad (2.40)$$

La polarisation non-linéaire se réduit ainsi à une somme de quatre termes, l'automodulation de phase et l'auto-raïdissement pour l'effet Kerr, le décalage vers le bleu et le ralentissement plasma pour l'ionisation.

### 2.4.3 Pertes d'ionisation

Les pertes d'ionisation sont calculées séparément car elles agissent sur le champ total  $A$ . L'énergie totale perdue par ionisation se calcule à partir du taux d'ionisation  $W(|E(r, \xi, \tau)|)$ , de la densité électronique  $\rho_0$  et du potentiel d'ionisation  $I_p$  :

$$\mathbf{E}_{ion} = - \int \int \int_{(r, \xi, \tau)} W(|E(r, \xi, \tau)|) \rho_0 I_p 2\pi r dr d\xi d\tau \quad (2.41)$$

L'énergie totale contenue dans l'impulsion à une distance  $\xi$  donnée est :

$$\mathbf{E}_{tot}(\xi) = \int \int_{(r, \tau)} \frac{n_0 |A(r, \xi, \tau)|^2}{2\mu_0 c} 2\pi r dr d\tau \quad (2.42)$$

La perte d'énergie de l'impulsion due à l'ionisation s'écrit :

$$\partial_\xi \mathbf{E}_{tot} = (\partial_\xi \mathbf{E}_{ion})_\xi \quad (2.43)$$

soit :

$$\partial_\xi |A| = - \frac{\mu_0 c}{n_0} \frac{W(|A|)}{|A|} \rho_0 I_p \quad (2.44)$$

### 2.4.4 Polarisation du laser

Toute cette théorie a été développée dans l'hypothèse d'une impulsion polarisée linéairement. Dans le cas d'une polarisation circulaire, le taux d'ionisation et le  $\chi^{(3)}$  sont différents. Le champ électrique en polarisation circulaire est diminué d'un facteur  $\sqrt{2}$  pour une même énergie et ne s'annule jamais (voir Fig. 2.14). Le calcul du taux d'ionisation doit prendre en compte ce champ diminué et constant : en polarisation linéaire, on utilise le champ  $E_{abs} = |E_0 \cos \omega_0 t|$  alors qu'en polarisation circulaire, on utilise  $E_{abs} = |\sqrt{(2)} E_0|$  dans l'équation 2.12. D'autre part, si on néglige les effets non-linéaires qui couplent les polarisations entre elles (termes non-diagonaux du  $\chi^{(3)}$ ), la propagation en polarisation circulaire diminue simplement l'effet Kerr

d'un facteur  $2/3$  ([21] p.221). Les mêmes équations sont donc utilisées pour une impulsion polarisée linéairement et circulairement.

L'utilisation de la polarisation circulaire permet de diminuer l'ionisation du gaz mais diminue parallèlement l'effet Kerr. Comme l'ionisation est très non-linéaire dans le régime de compression (intensité comprise entre  $10^{14}$  et  $10^{15} W.cm^{-2}$ ), le changement de polarisation permet de diminuer d'un ordre de grandeur le taux d'ionisation et de seulement  $2/3$  l'effet Kerr. Nous verrons dans le chapitre suivant dans quelle mesure le passage en polarisation circulaire permet d'améliorer la compression.

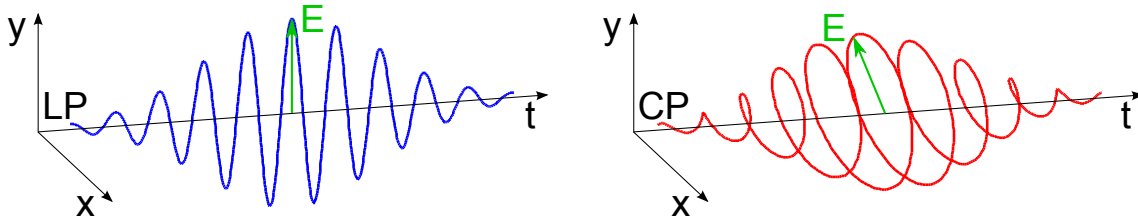


FIGURE 2.14 – Evolution temporelle du champ électrique en polarisation linéaire (LP) et polarisation circulaire (CP).

### 2.4.5 Méthode de simulation

Pour résoudre numériquement l'équation de propagation, on utilise une méthode de pas divisés ('split-step method'). Si le pas est assez petit, on peut résoudre séparément les effets linéaires et non-linéaires. Cette technique est spécialement adaptée à la propagation non-linéaire d'une impulsion dans un guide d'onde car les composantes linéaires agissent indépendamment sur les modes et les composantes non-linéaires couplent les modes entre eux. La méthode de simulation que j'ai développée est décrite dans le schéma ci-dessous.

Au sein d'un pas  $d\xi$ , le code effectue les opérations suivantes pour calculer les  $A_{0,\xi+d\xi}^{(m)}(t)$  en fonction des  $A_{0,\xi}^{(m)}(t)$  :

- (1) Transformée de Fourier pour passer dans le domaine spectral

$$A_1^{(m)}(\omega) = \int_{\tau} A_{0,\xi}^{(m)}(\tau, \xi) e^{i\omega\tau} d\tau \quad (2.45)$$

- (2) Prise en compte des effets linéaires (pertes, dispersion et différence de vitesse de groupe)

$$A_2^{(m)}(\omega) = A_1^{(m)}(\omega) e^{-\alpha_0^{(m)} d\xi} e^{-i(\omega-\omega_0)\Delta\beta_1^{(m)} d\xi} e^{-i(\omega-\omega_0)^2 \frac{\beta_2}{2} d\xi} \quad (2.46)$$

- (3) Transformée de Fourier inverse pour repasser dans le domaine temporel

$$A_3^{(m)}(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int_{\omega} A_2^{(m)}(\omega) e^{-i\omega\tau} d\omega \quad (2.47)$$

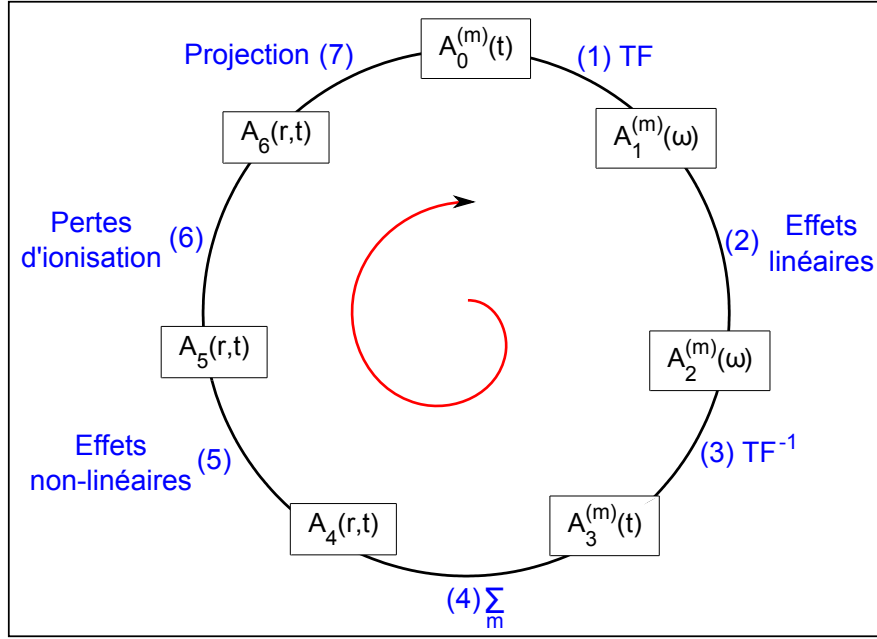


FIGURE 2.15 – Schéma du code de calcul à pas divisé.

- (4) Somme sur tous les modes en incluant la différence de vitesse de phase pour obtenir le champ total spatio-temporel

$$A_4(r, \tau) = \sum_m A_3^{(m)}(\tau) A_{0m}(r) e^{i\Delta\beta_0^{(m)} d\xi} \quad (2.48)$$

- (5) Résolution de l'équation de propagation non-linéaire sur l'enveloppe du champ total

$$\partial_\xi A_5(r, \tau) = i \frac{\beta_0}{2n_0^2} \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_t \right) B(A_4(r, \tau)) \quad (2.49)$$

- (6) Prise en compte des pertes d'ionisation

$$|A_6(r, \tau)| = |A_5(r, \tau)| - \frac{\mu_0 c W(|A_4(r, \tau)|)}{n_0 |A_4(r, \tau)|} \rho_0 I_p d\xi \quad (2.50)$$

- (7) Projection sur les modes

$$A_{0,\xi+d\xi}^{(m)}(\tau) = \int_r A_6(r, \tau) A_{0m}(r) 2\pi r dr \quad (2.51)$$

Chaque composante de la propagation est ainsi traitée séparément, toutes les étapes sont facilement résolues numériquement. Pour optimiser l'étape (5) – la plus sensible à la taille du pas  $d\xi$  – j'utilise la méthode de résolution Runge-Kutta à pas variable. Le pas de toute la boucle est ainsi déterminé par l'erreur relative dans la résolution de l'étape (5).

Cette méthode de simulation prend en compte tous les effets de la propagation non-linéaire dans une fibre creuse avec la seule hypothèse de symétrie cylindrique. Les paramètres d'entrée sont les conditions laser (énergie, durée, chirp, polarisation), les conditions de compression

(diamètre et longueur de fibre creuse, type de gaz et pression) et enfin le couplage en entrée de fibre (pourcentage d'énergie dans chaque mode). Après le calcul, on obtient une description complète de l'impulsion en sortie de fibre ainsi que l'évolution de celle-ci le long de la fibre. Ce dernier point est très important car on n'y a pas accès expérimentalement. Nous verrons que cela permet d'étudier la dynamique de propagation et de comprendre les conséquences du couplage des effets spatio-temporels et optimiser la compression (voir paragraphe 3.2). Auparavant, on doit prendre en compte la dernière étape de la compression : la compensation de la dispersion linéaire et non-linéaire accumulée lors de la propagation dans la fibre.

## 2.5 Compensation de la dispersion

En ajustant de manière optimale le poids des différents effets non-linéaires (cf Chapitre 3), on obtient en sortie de fibre un spectre élargi, mais l'impulsion a toujours la même durée, voire une durée plus longue. Les effets non-linéaires créent de nouvelles fréquences localement dans le domaine temporel, mais ils ne compriment pas temporellement l'impulsion. Dans le cas de la SPM par exemple, les nouvelles fréquences rouges précèdent les nouvelles fréquences bleues, ce qui correspond dans le domaine spectral à une phase quasi quadratique, semblable à celle provenant de la dispersion. Sur la Fig. 2.16(a), on voit que la phase spectrale due à la SPM peut être approchée par une parabole (traits pointillés). La compensation de cette phase spectrale d'ordre 2 est alors suffisante pour comprimer l'impulsion. En revanche, dans le cas de l'ionisation (Fig. 2.16(b)), la phase spectrale présente des sauts de  $\pi$ .

La compensation de la dispersion (phase spectrale d'ordre 2) est très répandue dans le domaine des lasers femtoseconde car une impulsion brève se disperse de manière intrinsèque dans la plupart des milieux. En particulier, la méthode d'amplification CPA [1] (omniprésente dans les lasers ultracourts) consiste en l'ajout de dispersion pour étaler l'impulsion dans le temps avant amplification puis la compensation de la dispersion pour la recomprimer. Comme la dispersion est un retard entre les différentes fréquences comprises dans le spectre (les fréquences bleues sont en retard par rapport aux fréquences rouges dans le cas usuel d'une dispersion positive  $\phi^{(2)} > 0$ ), il suffit pour la compenser d'utiliser un milieu ou un montage expérimental qui inverse ce retard. Certains milieux ont en effet une dispersion négative (certaines fibres optiques, les milieux ionisés) et le passage par deux réseaux de diffraction identiques ou par deux prismes identiques permet de faire parcourir un trajet plus long aux fréquences les plus longues, ce qui revient à compenser la dispersion. Dans le cas de la compression d'une impulsion de spectre très large et peu dispersée comme en sortie de fibre creuse, on ne peut pas utiliser

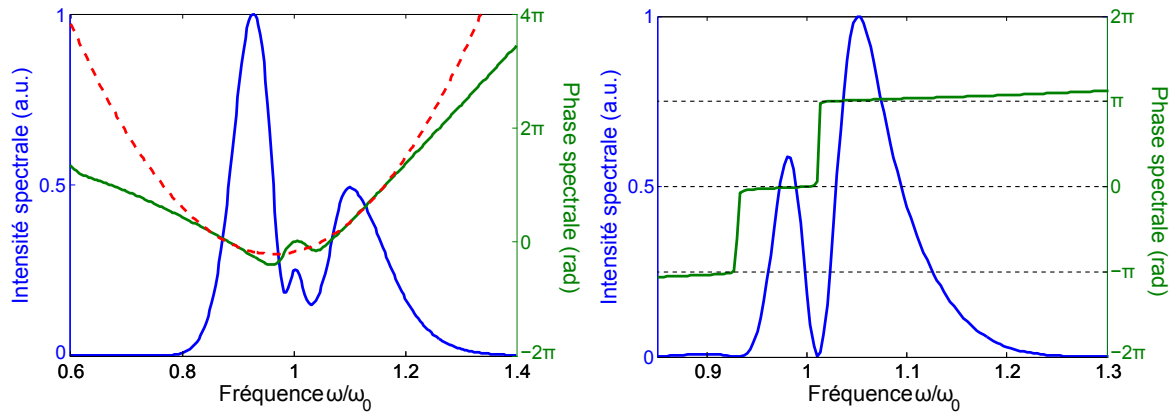


FIGURE 2.16 – (a) Intensité (courbe bleue) et phase spectrale (courbe verte) créées par la SPM après une propagation sur une distance  $z = 2\pi L_{SPM}$ ; la courbe en pointillés rouges représente la phase spectrale d'ordre 2 contenue dans l'impulsion, ici  $\phi^{(2)} = 34 \text{ fs}^2$  à  $800 \text{ nm}$ . (b) Intensité (courbe bleue) et phase spectrale (courbe verte) créées par l'ionisation après une propagation sur une distance  $z = 7L_{PBS}$ .

de réseaux ni de prismes car leur dispersion négative est trop élevée et ils ajoutent beaucoup de phase spectrale d'ordre 3 ( $\phi^{(3)}$ ) sur une bande spectrale si large. La solution est alors d'utiliser des miroirs "chirpés" sur lesquels les différentes fréquences sont réfléchies à des profondeurs différentes [28]. Ce sont des miroirs multicouches dont la composition détermine la phase  $\phi^{(2)}$  (ou GDD, Group Delay Dispersion), la bande spectrale et la réflectivité. Comme il n'est pas possible d'obtenir une GDD identique sur tout le spectre avec un seul miroir, on associe des miroirs complémentaires pour compenser la phase de manière homogène. En Salle Noire, nous avons utilisé de nombreux sets différents de miroirs chirpés au fur et à mesure que la technologie évoluait. La figure 2.17 indique la GDD typique de deux miroirs chirpés complémentaires M1 et M2 (a) et du set complet de trois M1 et deux M2 (b). La GDD totale est d'environ  $-300 \text{ fs}^2$  mais elle n'est pas parfaitement constante spectralement. C'est une des limites supplémentaires de la compression, même si l'impulsion présente une phase spectrale quadratique en sortie de fibre, celle-ci ne sera pas parfaitement compensée par les miroirs chirpés.

Les miroirs chirpés compensent ainsi la dispersion qui provient de la SPM et de la propagation de l'impulsion sur la gamme spectrale  $600 - 900 \text{ nm}$ . En revanche, ils ne compensent pas la phase discontinue de l'ionisation. A partir d'un élargissement spectral donné en sortie de fibre, on n'obtient pas simplement après les miroirs chirpés la durée d'impulsion minimale (limitée par transformée de Fourier). La phase spectrale d'ordre supérieur à 2 n'est pas compensée voire même amplifiée par les miroirs chirpés. On ne peut alors pas se limiter à la mesure du spectre pour estimer la qualité de la compression, il faut caractériser totalement l'impulsion.



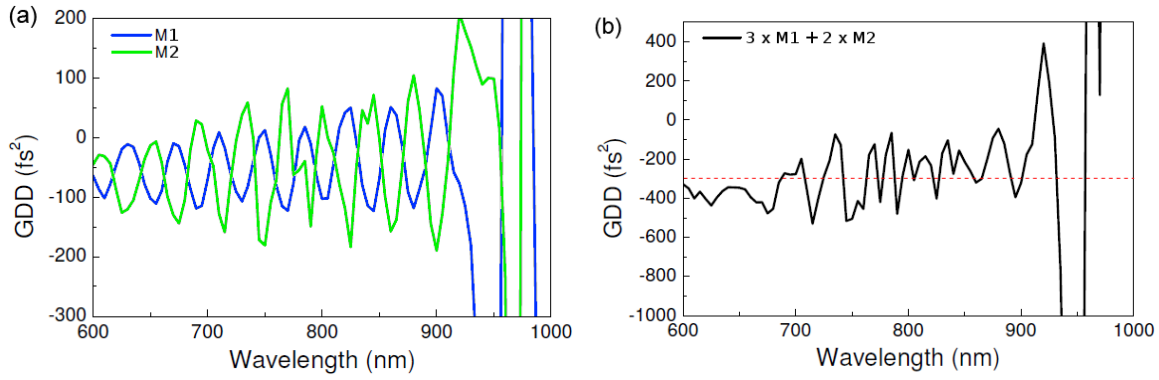


FIGURE 2.17 – Phase spectrale quadratique (GDD) ajoutée par réflexion sur un miroir chirpé M1 ou M2 (a) et par réflexions sur trois M1 et deux M2 (b).

## 2.6 Caractérisation de l'impulsion comprimée

Les durées d'impulsions dans le domaine femtoseconde sont trop courtes pour pouvoir utiliser des systèmes électroniques, dont le temps de réponse est de l'ordre de la  $ns$  (GHz). Avec une photodiode rapide par exemple, on ne peut mesurer que l'énergie d'une impulsion femtoseconde (intégrale temporelle de l'impulsion) et non pas sa structure temporelle. Ainsi pour mesurer une impulsion femtoseconde, il faut avoir recours à des méthodes optiques dont le temps de réponse est bien inférieur à la  $fs$ , et utiliser l'impulsion laser comme vecteur d'information. L'optique non-linéaire (par exemple le doublage de fréquence) permet de faire interagir une impulsion de référence avec l'impulsion à caractériser. En faisant varier le délai entre les deux impulsions, on obtient alors des informations temporelles à l'échelle de la femtoseconde. La méthode la plus simple est l'auto-corrélation en intensité, qui permet d'avoir une estimation de la durée d'impulsion. On utilise un cristal doubleur comme milieu non-linéaire et l'impulsion à caractériser comme impulsion de référence. On mesure l'énergie de seconde harmonique  $S_{2\omega}$  en fonction du délai  $\tau$  entre les deux impulsions (voir schéma Fig. 2.18). Comme l'efficacité de doublage est proportionnelle au carré de l'intensité dans le cristal, on observe une variation de l'énergie mesurée en fonction du délai :

$$S_{2\omega}(\tau) \propto \int_t |E_{2\omega}(t, \tau)|^2 dt \propto \int_t |E_\omega(t) + E_\omega(t - \tau)|^4 dt \quad (2.52)$$

Si les deux impulsions ne se recouvrent pas temporellement ( $\tau \rightarrow \infty$ ), on a :

$$S_{2\omega}(\infty) \propto 2 \int_t |E_\omega(t)|^4 dt \quad (2.53)$$

Si les deux impulsions sont parfaitement superposées ( $\tau = 0$ ), on a :

$$S_{2\omega}(0) \propto 16 \int_t |E_\omega(t)|^4 dt \quad (2.54)$$

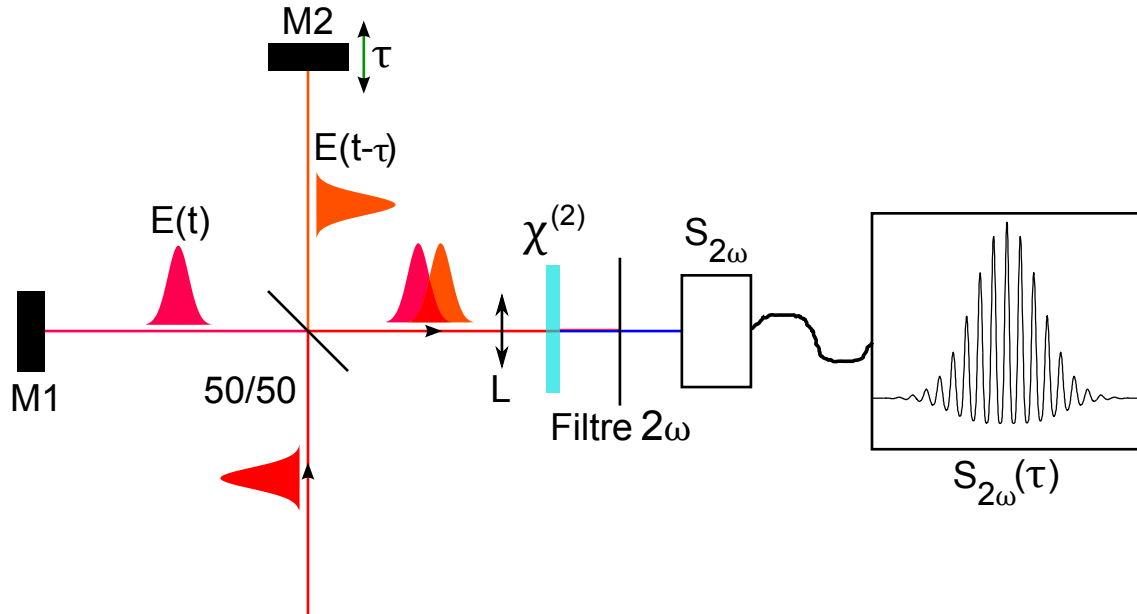


FIGURE 2.18 – Schéma de la mesure d'auto-corrélation en intensité.

Le signal  $S_{2\omega}(\tau)$  contient donc de l'information sur la durée d'impulsion. A partir de sa largeur à mi-hauteur, on obtient la durée de l'impulsion à condition de connaître sa forme au préalable. On n'a d'autre part aucune information sur la phase temporelle. Pour effectuer une mesure complète (intensité et phase temporelle ou leurs équivalents spectraux), il est nécessaire d'utiliser une technique plus complexe.

En Salle Noire, nous utilisons le dispositif expérimental FROG (Frequency Resolved Optical Gating) qui fait la spectroscopie de l'auto-corrélation en intensité de l'impulsion [29]. Pour pouvoir mesurer une impulsion à très large bande spectrale ( $> 200 \text{ nm}$ ), on utilise de plus un cristal doubleur de  $5 \mu\text{m}$  d'épaisseur ce qui permet d'avoir une efficacité de doublage comparable sur toute la bande. Le montage permet d'autre part d'avoir l'ensemble de l'information à partir d'une seule mesure (absence de ligne à délai : single-shot FROG [30, 31]). Pour cela, l'impulsion est divisée en deux par deux miroirs légèrement inclinés l'un par rapport à l'autre. Les deux impulsions sont focalisées dans une seule direction par un miroir cylindrique et superposées dans le cristal doubleur (Fig. 2.19). On récupère le signal de seconde harmonique généré par le terme croisé  $E_1(t)E_2(t)$  qui est ensuite diffracté dans la direction orthogonale par un réseau en transmission. On obtient sur la caméra un signal à deux dimensions, sur un axe le délai  $\tau$  et sur l'autre la fréquence  $\omega$  :

$$S(\tau, \omega) = \left| \int_t E(t) E(t - \tau) e^{i\omega t} dt \right|^2 \quad (2.55)$$

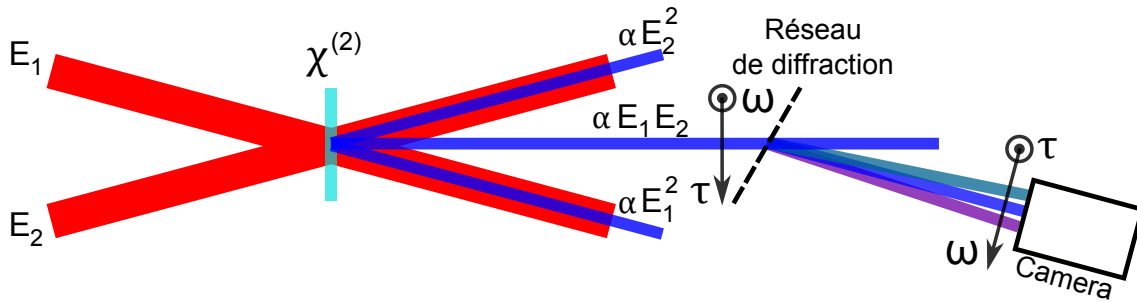


FIGURE 2.19 – Schéma simplifié de la mesure FROG (sans le système d'imagerie).

Cette mesure fournit l'auto-corrélation en intensité pour chaque partie du spectre. On peut montrer qu'elle contient toute l'information nécessaire pour caractériser une impulsion. Ainsi, à partir de la mesure FROG, un algorithme de déconvolution [29, 30] permet d'accéder à la mesure complète de l'impulsion. Dans le cas du FROG présenté ci-dessus, le signal  $S(\tau, \omega)$  est symétrique en  $\tau$ , cela signifie que cette mesure ne fournit pas la direction temporelle : sur le profil temporel mesuré par le FROG, on ne sait pas quel côté constitue l'avant de l'impulsion. La présence de cette symétrie a l'avantage expérimental de confirmer la qualité de la mesure.

D'autre part, il est intéressant de regarder le spectrogramme FROG en lui-même car elle prend une forme caractéristique dans le cadre de la compression d'impulsions. Nous allons explorer théoriquement quelques les formes des spectrogrammes FROG dans les cas particuliers suivant : présence de phase spectrale d'ordre 2 et 3, élargissement spectral par effet Kerr et élargissement spectral par ionisation.

Le spectrogramme FROG d'une impulsion gaussienne de fréquence  $\omega$ , de durée  $\tau$  et de largeur spectrale  $\Delta\omega$  comprimée (phase spectrale constante) est une gaussienne à deux dimensions centrée en  $t = 0$  et  $\omega = 2\omega_0$  de largeur  $\sqrt{2}\tau$  en temporel et  $\sqrt{2}\Delta\omega$  en spectral (Fig. 2.20(a)). Pour une impulsion chirpée (Fig. 2.20 (b)), seule la largeur temporelle du spectrogramme est augmentée. Pour une impulsion avec une phase spectrale d'ordre 3 (Fig. 2.20 (c)), le spectrogramme est allongé temporellement sur les bords du spectre. Les effets des premiers ordres de phase spectrale sont ainsi facilement identifiables.

Si on regarde désormais le spectrogramme d'auto-corrélation en sortie de fibre, on voit apparaître des formes plus complexes. Dans le cas de l'impulsion Fig. 2.16 (a) dont le spectre est élargi par effet Kerr uniquement, on obtient en sortie de fibre le spectrogramme Fig. 2.21 (a). Le profil spectral est modulé mais n'est pas une copie du spectre de l'impulsion car c'est

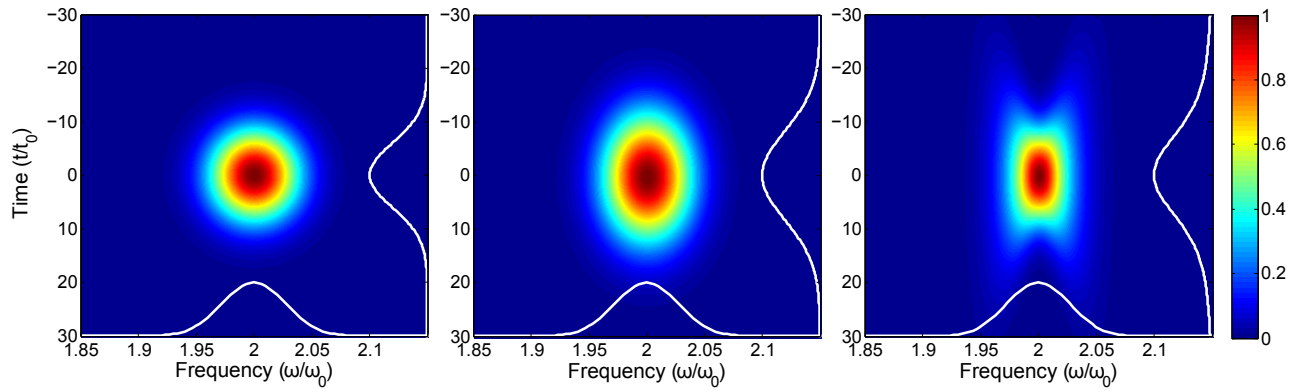


FIGURE 2.20 – Spectrogrammes d’auto-corrélation FROG calculés pour une impulsion gaussienne de 10 cycles optiques avec différentes phases spectrales, (a) impulsion comprimée ; (b) impulsion chirpée ( $\xi = 2$ ) ; (c) impulsion avec une phase  $\phi^{(3)} = 10\sigma^3$ .

le spectre de l’auto-corrélation de l’impulsion, le profil temporel est celui de l’auto-corrélation d’une impulsion de 10 cycles optiques. Si on applique une phase spectrale quadratique négative pour reproduire l’effet des miroirs chirpés, on peut trouver la valeur optimale de  $\phi^{(2)}$  pour comprimer l’impulsion (déterminée par la puissance crête la plus grande). Dans ce cas, la phase optimale est  $\phi^{(2)} = -26 fs^2$ , le spectrogramme FROG se rapproche d’une ligne et le profil temporel est beaucoup plus court (Fig. 2.21 (c) et (d), impulsion de 2 cycles optiques). Si on applique une phase trop grande (chirp négatif), on obtient la spectrogramme de la Fig. 2.21 (b), le profil temporel est à nouveau plus long. Ces trois spectrogrammes FROG sont caractéristiques de ce qu’on observe quand on ajuste la compression avec les coins de verre (wedges). Les pré/post impulsions dans le cas comprimé proviennent de la phase non linéaire d’ordre supérieur de la SPM qui n’est pas compensée par les miroirs chirpés.

Dans le cas de l’impulsion Fig. 2.16 (b) dont le spectre est élargi par ionisation uniquement, on obtient en sortie de fibre le spectrogramme Fig. 2.22 (a). En appliquant une phase quadratique négative, on voit que la compression est beaucoup moins efficace que dans le cas de l’effet Kerr. Les deux parties du spectre Fig. 2.16 (à droite) ayant une phase spectrale séparée de  $\pi$ , il est en effet impossible de la compenser correctement en utilisant des miroirs chirpés. Quand une partie est comprimée, l’autre ne l’est pas. Dans le cas optimal ( $\phi^{(2)} = -38 fs^2$ , 2.22 (c) et (d)), l’impulsion présente un post-pulse conséquent et a une durée de 3.7 cycles optiques. Un régime d’ionisation pur n’est donc pas idéal pour comprimer une impulsion.

La propagation d’impulsions multi-mJ dans une fibre creuse est un mélange d’effet Kerr et d’ionisation. On a vu que du point de vue de la compression, le premier effet est souhaitable et le second ne l’est pas. Comme ces deux effets apparaissent dans la même gamme d’intensité, il est

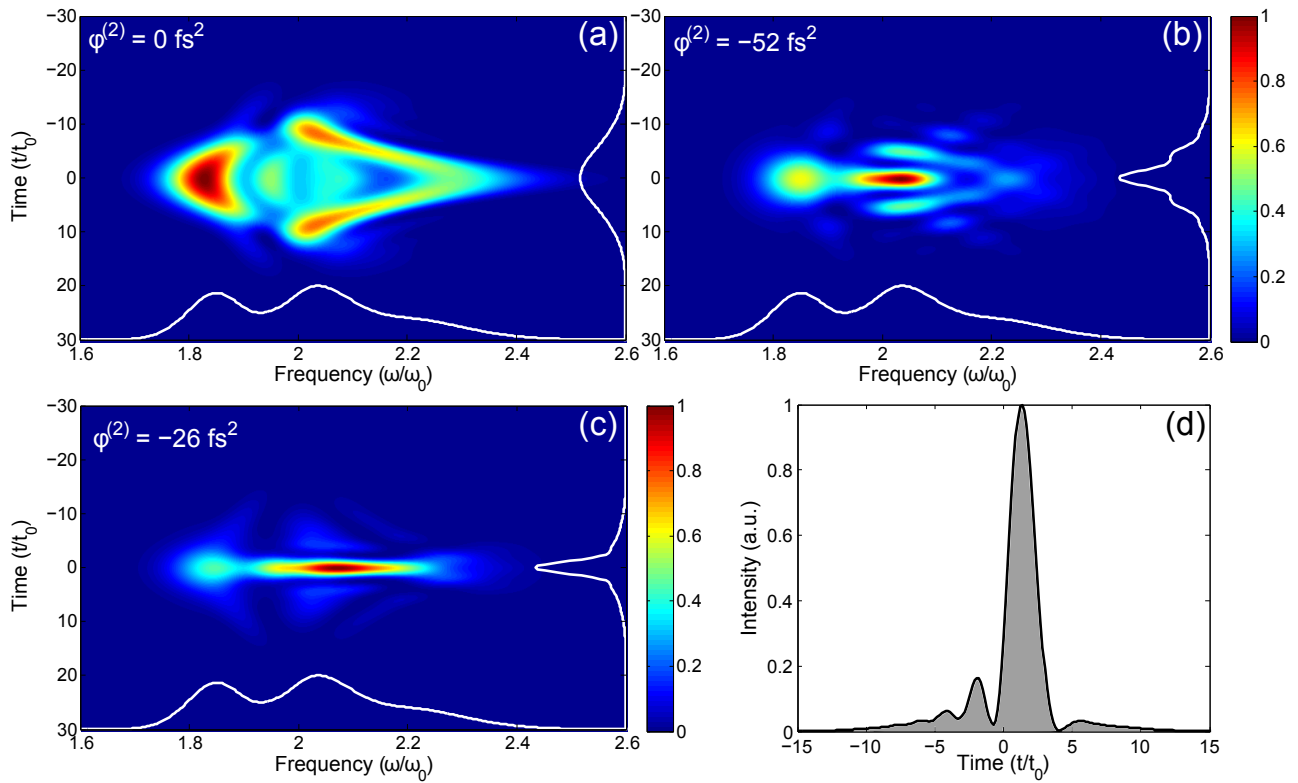


FIGURE 2.21 – Spectrogrammes d’auto-corrélation FROG calculés pour l’impulsion de la Fig. 2.16 (a) dont le spectre a été élargi par effet Kerr, à laquelle on applique une phase spectrale quadratique négative. (a) impulsion en sortie de fibre ; (c) impulsion comprimée avec une compensation optimale  $\phi^{(2)} = -26 \text{ fs}^2$  et (d) son profil temporel ; (b) impulsion avec une compensation trop forte  $\phi^{(2)} = -52 \text{ fs}^2$ .

difficile d’avoir l’un sans l’autre. Dans le chapitre suivant, nous allons voir comment obtenir une compression convenable (2 cycles optiques avec peu de pertes et une bonne qualité temporelle) en changeant les conditions expérimentales pour limiter l’ionisation.

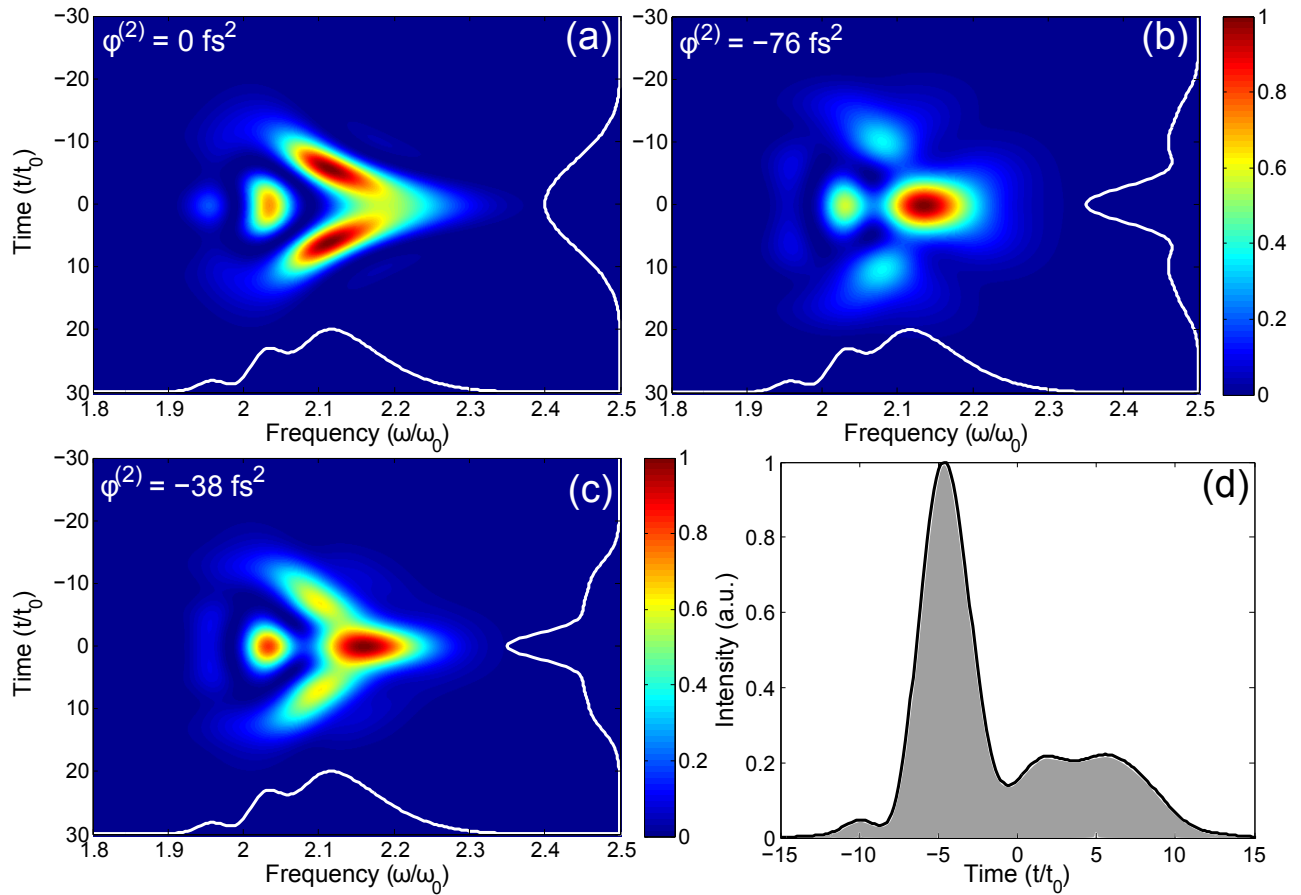


FIGURE 2.22 – Spectrogrammes d'auto-corrélation FROG calculés pour l'impulsion de la Fig. 2.16 (à droite) dont le spectre a été élargi par ionisation, à laquelle on applique une phase spectrale quadratique négative. (a) impulsion en sortie de fibre ; (c) impulsion comprimée avec une compensation optimale  $\phi^{(2)} = -38 \text{ fs}^2$  et (d) son profil temporel ; (b) impulsion avec une compensation trop forte  $\phi^{(2)} = -76 \text{ fs}^2$ .



# Chapitre 3

## Analyse et perspectives

Ce chapitre expose l'ensemble des résultats que j'ai obtenu pendant ma thèse sur l'étude de la compression d'impulsions avec la technique de la fibre creuse. La problématique principale de mon travail fut l'optimisation de la compression d'impulsions multi-mJ. Durant ma première année de thèse, le laser de la Salle Noire fournissait des impulsions de  $25\text{ fs}$  et  $2.1\text{ mJ}$ , son énergie fut ensuite augmentée à  $3\text{ mJ}$  durant ma deuxième année de thèse. J'ai ainsi participé à l'optimisation de la compression dans ces deux conditions expérimentales différentes. Face à la multitude de paramètres expérimentaux disponibles, l'étude théorique de la propagation fut nécessaire pour améliorer notre compréhension et expliquer les résultats expérimentaux. Cela a motivé le développement du code de simulation présenté précédemment (section 2.4).

Le schéma de l'expérience est dessiné sur la Fig. 3.1. Les impulsions de  $25\text{ fs}$  sont focalisées à l'entrée d'une fibre creuse située à l'intérieur d'un tube rempli d'un gaz rare (Néon ou Hélium), dont la pression peut être finement ajustée. La fibre fait de  $1\text{ m}$  de long et a un diamètre de  $250\mu\text{m}$ . En sortie, le faisceau est collimaté et réfléchi sur des miroirs chirpés large bande (voir paragraphe 2.5) qui remettent en phase les nouvelles fréquences, la translation de deux wedges (coins de verre) permet d'ajuster finement la remise en phase pour obtenir une impulsion optimalement comprimée. Les impulsions sont caractérisées dans un FROG (décrit précédemment au paragraphe 2.6) et leur CEP est mesurée dans un montage f-2f [22]. La polarisation du laser peut être modifiée (de linéaire à circulaire) en utilisant une lame quart d'onde ( $\lambda/4$ ) avant la fibre. Dans ce cas, une lame quart d'onde large bande est utilisée après la fibre retourner en polarisation linéaire. Malgré l'utilisation de deux lames quart d'onde, l'état de polarisation du laser est suffisamment bon (dépolariation de quelques pourcents) pour ensuite effectuer des expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG).



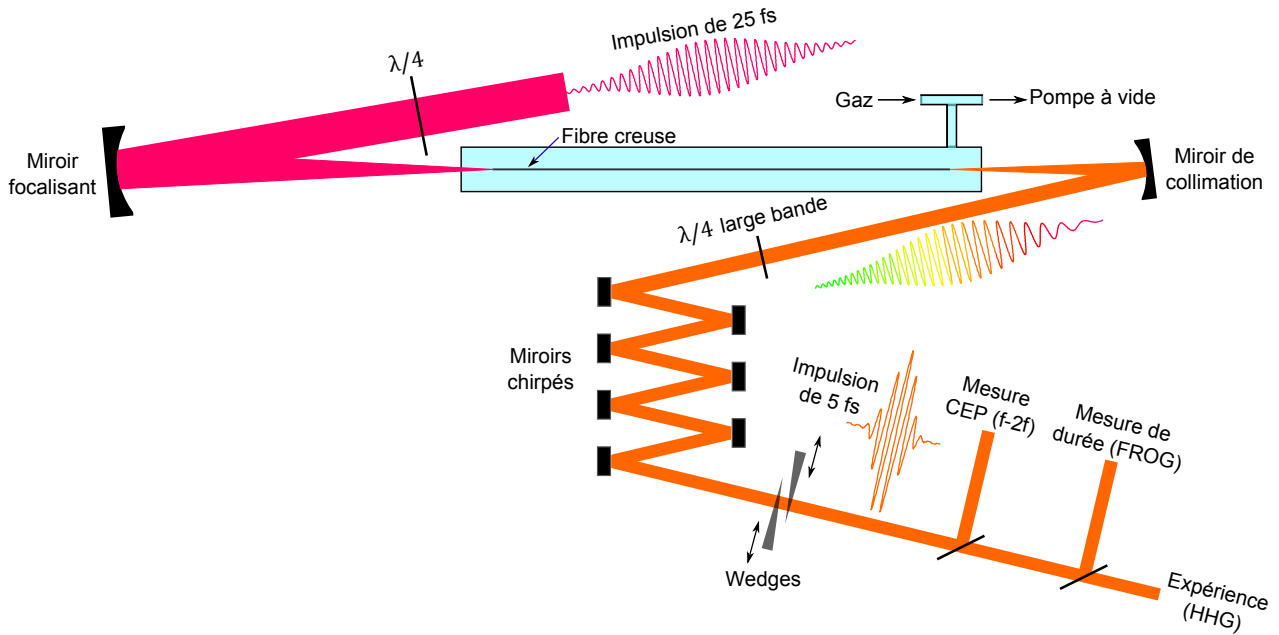


FIGURE 3.1 – Schéma de l'expérience de compression d'impulsion dans une fibre creuse.

Nous avons tout d'abord constaté expérimentalement une nette amélioration de la compression en propageant les impulsions en polarisation circulaire (CP) plutôt qu'en polarisation linéaire (LP) [32] – la polarisation naturelle d'un laser. La comparaison théorique et expérimentale des résultats en CP et en LP constitue la première section de ce chapitre (3.1). Dans la seconde partie (3.2), j'explique la dynamique de propagation dans la fibre creuse à partir de résultats de simulation puis je fournis les conditions optimales de compression pour différentes énergies multi-mJ.

### 3.1 Influence de l'état de polarisation du laser

Pour comprimer efficacement une impulsion multi-mJ, on cherche à éviter une ionisation trop forte du gaz tout en conservant un élargissement spectral suffisant. La pression de gaz est le premier paramètre expérimental qu'on modifie pour obtenir un spectre assez large, l'indice non linéaire du gaz  $n_2$  augmentant linéairement avec la pression. En présence d'ionisation, une pression plus forte augmente aussi la densité électronique du plasma. A faible intensité, l'amplitude des effets non-linéaires varie linéairement avec la pression. A haute intensité, les effets spatiaux doivent être pris en compte et le comportement n'est plus linéaire avec la pression. On peut alors retourner dans un régime linéaire en pression en changeant un autre paramètre. Nous étudions ici l'impact de la polarisation du laser sur la compression. Nous allons ainsi effectuer une comparaison expérimentale et théorique de la propagation d'impulsions de 2.1 mJ polari-

sées linéairement (LP) et circulairement (CP) dans une fibre creuse en étudiant l'élargissement spectral (3.1.1), la stabilité spectrale (3.1.2) et l'efficacité de compression (3.1.3).

Le passage en polarisation circulaire diminue l'indice  $n_2$  de 33% et réduit le taux d'ionisation. La Fig. 3.2 montre le taux d'ionisation du néon en LP et CP sur la gamme d'intensité  $10^{14} - 10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$ . En particulier, le taux d'ionisation est réduit de deux ordres de grandeur pour une intensité de  $5 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ , ce qui correspond à l'intensité en entrée de la fibre.

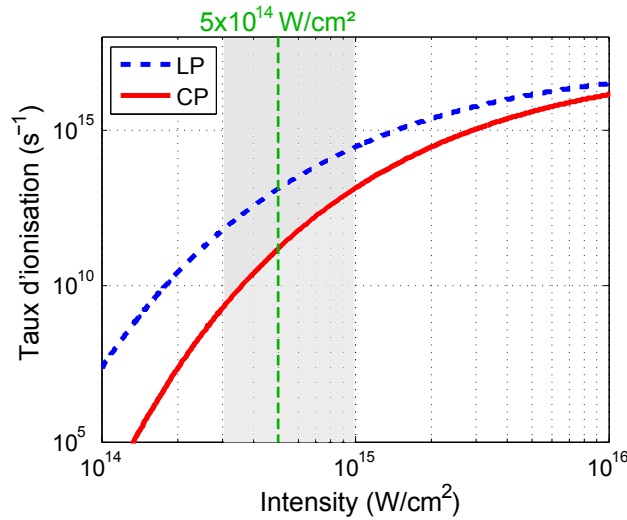


FIGURE 3.2 – Taux d'ionisation du Néon en polarisation linéaire (pointillés) et circulaire (trait plein) en fonction de l'intensité. La zone grisée représente la gamme d'intensité atteinte dans la fibre creuse.

### 3.1.1 Élargissement spectral

La Fig. 3.3 montre les spectres expérimentaux et théoriques obtenus après propagation dans la fibre creuse à différentes pressions de gaz en LP et CP. Premièrement, on observe que l'élargissement spectral augmente avec la pression de manière linéaire : en CP on a  $220 \text{ nm}$  à mi-hauteur avec une pression de  $1 \text{ bar}$  et  $300 \text{ nm}$  à  $1.4 \text{ bar}$ . La pression étant un paramètre facilement ajustable, cela montre la souplesse expérimentale de la compression dans une fibre creuse. Deuxièmement, on obtient le même élargissement spectral pour les deux polarisations en utilisant une pression supérieure en polarisation circulaire (de  $200 \text{ mbar}$  en expérience et de  $400 \text{ mbar}$  en théorie). Ainsi il suffit d'augmenter légèrement la pression de gaz pour compenser la diminution de l'effet Kerr et obtenir des élargissements spectraux comparables. Troisièmement, on remarque que la partie rouge du spectre ( $\lambda > 800 \text{ nm}$ ) est plus intense en CP qu'en LP, on voit apparaître l'effet du décalage plasma vers le bleu en polarisation linéaire ce qui témoigne de la présence d'ionisation. Le passage en polarisation circulaire permet ainsi de diminuer

l'ionisation tout en conservant un élargissement spectral équivalent. Nous allons voir dans les paragraphes suivants l'importance de minimiser l'ionisation.

D'autre part, les résultats de la Fig. 3.3 valident le code de simulation. En effet, mise à part les oscillations rapides autour de la longueur d'onde centrale des spectres expérimentaux, le modèle numérique reproduit de manière satisfaisante les mesures expérimentales.

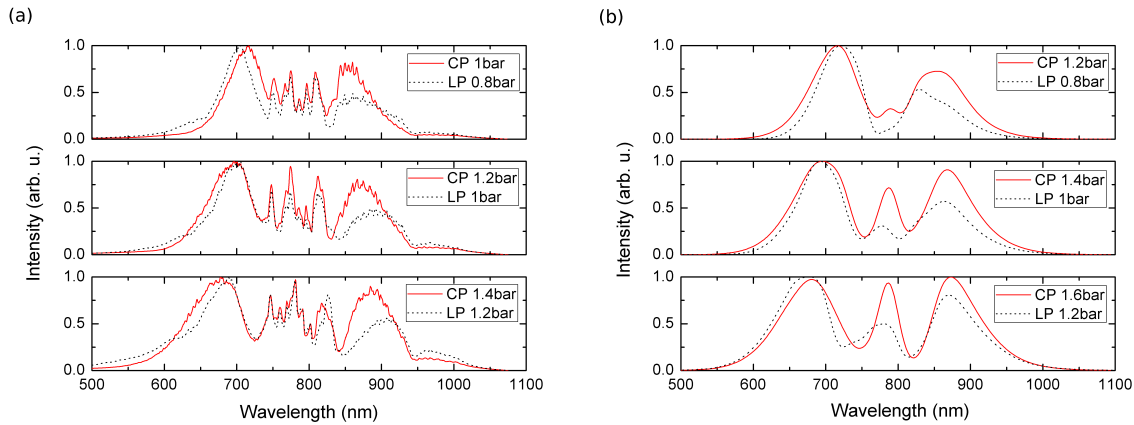


FIGURE 3.3 – Comparaison des spectres en sortie de fibre en polarisation circulaire (CP) et linéaire (LP) pour différentes pressions de gaz. (a) Mesures expérimentales ; (b) Simulations.

### 3.1.2 Stabilité spectrale

Pour une énergie et une polarisation données, on observe expérimentalement l'apparition d'instabilités quand on augmente la pression : le spectre s'élargit mais cet élargissement varie au cours du temps. Nous avons mesuré cette instabilité en effectuant 1000 mesures de spectre sur une durée de 10 s, puis nous la quantifions en calculant la valeur moyenne RMS du spectre. Les résultats sont représentés sur la Fig. 3.4(a), la valeur à vide correspond à l'instabilité spectrale du laser (3%) – à ne pas confondre avec l'instabilité en intensité qui est moindre (1.5%). Les largeurs spectrales des spectres en sortie de fibre dans chaque condition sont aussi indiqués sur cette figure. Dans l'optique de l'utilisation des impulsions comprimées dans des expériences au  $kHz$ , on définit une instabilité inférieure à 5% comme condition de compression acceptable. La valeur moyenne RMS dépasse les 5% à partir de 1 bar en LP et 1.6 bar en CP. La pression maximale acceptable est ainsi 0.9 bar en LP et 1.5 bar en CP, on peut donc avoir recours à des pressions plus hautes en CP qu'en LP. De plus, la stabilité en CP reste très proche de celle du laser pour des pressions inférieures à 1.5 bar.

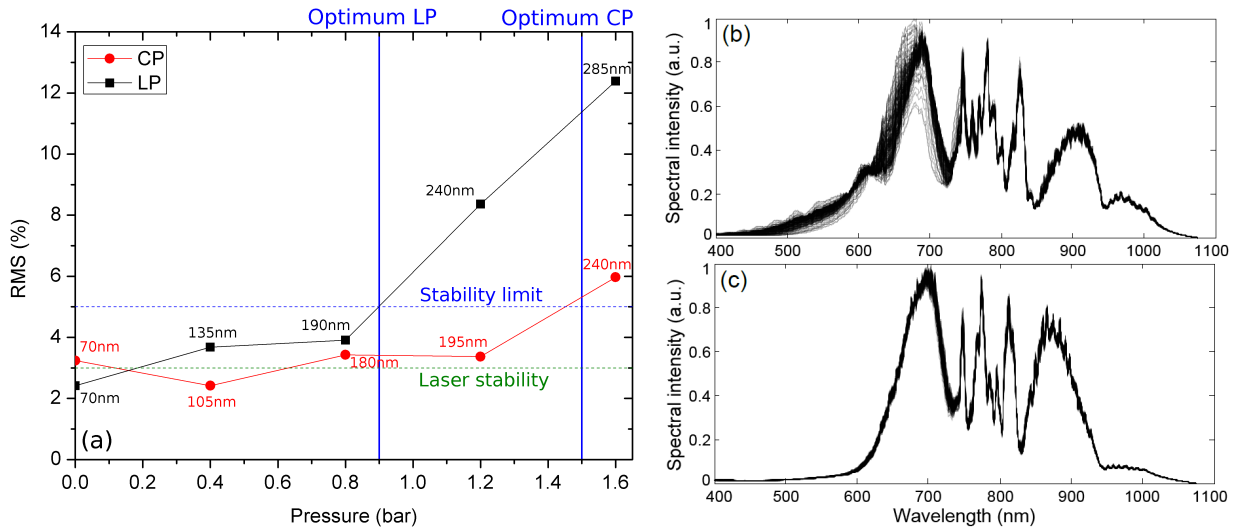


FIGURE 3.4 – (a) Stabilité et largeur spectrale en sortie de fibre en fonction de la pression en LP et CP, calculée à partir d’une mesure de 1000 spectres sur 10 s. La valeur RMS correspond à la moyenne de l’écart type  $\sigma_I$  à chaque longueur d’onde  $\langle RMS \rangle = \frac{\int_{\lambda} \sigma_I(\lambda) d\lambda}{\int_{\lambda} I(\lambda) d\lambda}$ . (b,c) Superposition des spectres mesurés toutes les 5 ms sur 10 s avec 1.2 bar de pression de néon en LP (b) et en CP (c).

Sur les Fig. 3.4(b), on observe que cette instabilité se situe principalement dans la partie bleue du spectre, c’est donc le décalage plasma vers le bleu qui varie en intensité (l’effet Kerr agit symétriquement sur le spectre). Cela indique que l’instabilité provient de l’ionisation du gaz. Comme le taux d’ionisation varie très non-linéairement avec l’intensité, il est très sensible aux instabilités initiales. Ainsi en présence d’ionisation, une faible variation de l’énergie couplée dans la fibre (variation d’énergie et/ou de pointé du laser) induit un changement notable dans le spectre en sortie de fibre. Evidemment, quand on augmente l’énergie de l’impulsion en entrée, cette instabilité apparaît à des pressions plus basses. Cela constitue une des principales limitations de la technique de compression dans une fibre creuse.

L’utilisation de la polarisation circulaire permet d’avoir une propagation stable à plus haute pression, mais comme la pression doit être augmentée en CP pour conserver l’élargissement spectral (cf largeurs spectrales de la Fig. 3.4(a)), le gain en stabilité entre LP et CP n’est pas conséquent. En revanche, nous allons voir que la réduction d’ionisation en CP améliore significativement l’efficacité de compression.

### 3.1.3 Efficacité de compression

L’efficacité de compression prend en compte l’énergie contenue dans l’impulsion comprimée et sa qualité temporelle. En effet, la forme du spectre et surtout la phase spectrale vont dé-

terminer la durée mais aussi la forme temporelle de l'impulsion après les miroirs chirpés. Dans certains cas l'impulsion va être suivie et/ou précédée d'une impulsion plus faible, l'énergie comprise dans ces impulsions satellites est considérée comme perdue.

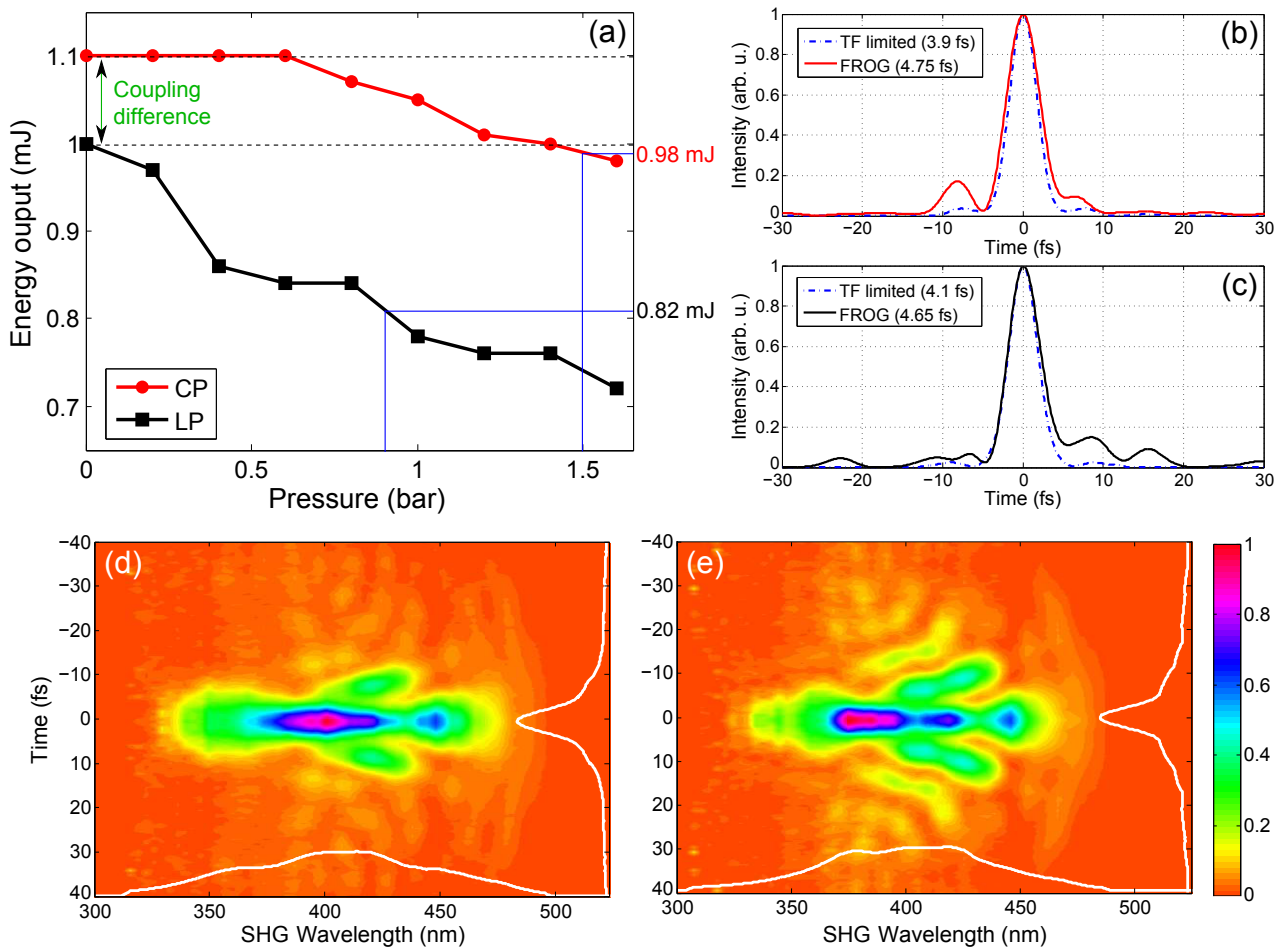


FIGURE 3.5 – (a) Énergie mesurée en sortie de fibre en fonction de la pression en polarisation linéaire (LP) et circulaire (CP). Les lignes en pointillés indiquent l'énergie en sortie sous vide. Les traits pleins montrent la pression optimale et l'énergie correspondante pour chaque polarisation. (b,c) Mesures du profil temporel (trait plein) dans les conditions optimales :  $P = 1.5\text{bar}$  en CP (b) et  $P = 0.9\text{bar}$  en LP (c), les traits en pointillés indiquent le meilleur profil possible (limité par transformée de Fourier) calculé à partir de leur spectre respectif. Ces profils sont obtenus à partir des mesures FROG (d) en CP et (e) en LP.

La mesure de l'énergie en sortie de fibre en fonction de la pression de néon est représentée sur la Fig. 3.5 (a), l'énergie en entrée de fibre est de  $2.1\text{ mJ}$ . Pour les deux polarisations, l'énergie en sortie diminue avec la pression de gaz. Cependant, la décroissance est beaucoup plus rapide en polarisation linéaire, en particulier pour des pressions supérieures à  $1\text{ bar}$ , la différence en énergie dépasse les 25%. On remarque que sous vide, il y a déjà une différence en énergie de

sortie entre LP et CP qui provient des effets non-linéaires dans l'air et dans la fenêtre d'entrée, qui modifient la tâche focale en entrée de fibre.

D'autre part, si on regarde la qualité temporelle des impulsions pour les deux polarisations dans les conditions optimales (Fig. 3.5 (b) et (c)), on voit que l'impulsion en CP est plus proche de la transformée de Fourier de son spectre que l'impulsion en LP. Cela signifie qu'à largeur spectrale équivalente, l'impulsion en LP possède de la phase spectrale d'ordre supérieur qui n'est pas compensée. En regardant directement les spectrogrammes FROG de ces impulsions (Fig. 3.5 (d) et (e)), on retrouve qu'en LP, la partie infrarouge de l'impulsion n'est pas comprimée et va créer un piedestal de durée proche de l'impulsion initiale, ce qui est caractéristique de la présence d'ionisation (voir section 2.6). Il en résulte une perte d'énergie dans des pré/post impulsions. On quantifie cette perte d'énergie en comparant la puissance crête de l'impulsion mesurée avec la puissance crête obtenue pour une impulsion parfaite (gaussienne) de même durée :

$$T = \frac{\int_t e^{-t^2/\sigma^2}}{\int_t I(t)} \quad (3.1)$$

Où  $\sigma = \tau/2\sqrt{\ln(2)}$ ,  $\tau$  est la largeur à mi-hauteur et  $I(t)$  est l'intensité normalisée ( $I_{max} = 1$ ) de l'impulsion mesurée. On trouve alors une qualité temporelle  $T = 0.75$  en CP et  $T = 0.69$  en LP.

Dans les conditions optimales, nous avons mesuré des énergies transmises de  $1\text{ mJ}$  en CP et  $0.8\text{ mJ}$  en LP. Si on ajoute la différence en puissance crête, on voit que l'utilisation de la polarisation circulaire correspond à une amélioration de plus de 30% de l'efficacité de compression. Ajouter deux lames quart d'onde avant et après la fibre est ainsi un moyen très simple pour obtenir une meilleure compression. Pour comprendre l'origine de ces différences importantes en terme d'efficacité, nous allons regarder les résultats de simulations et identifier les différents processus.

A partir de simulations à différentes pressions, on obtient la variation d'énergie en sortie de fibre et le détail des différentes pertes d'énergie. Les résultats sont présentés sur la Fig. 3.6. On remarque que l'efficacité de transmission est plus grande dans les simulations que dans l'expérience, cela provient des défauts de la fibre et des pertes sur la fenêtre de sortie qui ne sont pas pris en compte dans le code. En revanche, on a observé expérimentalement une différence d'énergie couplée en CP et LP (voir Fig. 3.5), pour reproduire cet effet numériquement, on considère que 90% de l'énergie entre effectivement dans la fibre en CP et 85% en LP. D'autre part, sur la Fig. 3.6, le poids des différentes pertes de propagation sont mis en valeur :

1. Les pertes intrinsèques dues à la propagation du mode fondamental d'une fibre creuse ( $\alpha^{(1)}$ ).
2. Les pertes d'ionisation (énergie requise pour ioniser le gaz).
3. Les pertes d'ordre supérieur qui contiennent les pertes intrinsèques de propagation des modes d'ordre supérieur ( $\alpha^{(m)}$ ,  $m > 1$ ) et l'énergie restante dans ces modes à la fin de la fibre. Les modes ayant en effet un profil spatial différent, il ne vont pas se propager de la même manière et seule l'énergie comprise dans le fondamental est effectivement récupérée et collimatée après la fibre. Ces pertes témoignent de la présence d'effets spatiaux non-linéaires (auto-focalisation et défocalisation plasma) qui couplent de l'énergie dans les modes d'ordre supérieur.

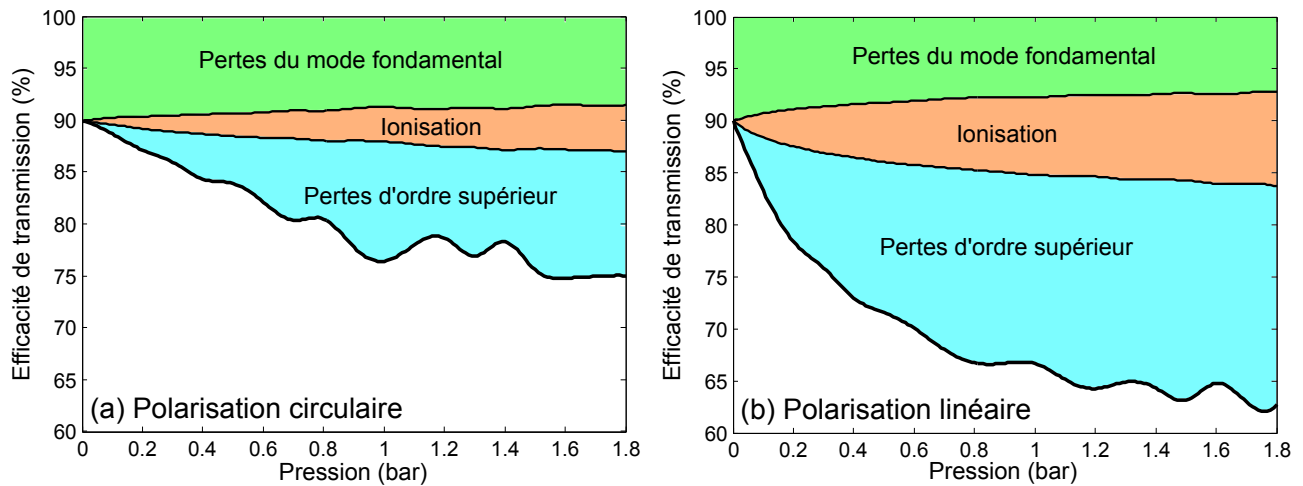


FIGURE 3.6 – Efficacité de transmission de la fibre creuse en fonction de la pression de gaz (trait épais) en CP (a) et en LP (b). Les contributions des différentes pertes sont détaillées par les aires colorées.

A haute pression, on observe l'apparition des pertes non-linéaires (d'ionisation et d'ordre supérieur). En polarisation circulaire, l'ionisation et les effets spatiaux sont réduits ce qui permet d'augmenter la pression tout en modérant les pertes de propagation. Ce résultat confirme les observations expérimentales du paragraphe précédent et met en valeur l'importance des pertes dues aux effets spatiaux. On voit de plus que ces pertes d'ordre supérieur ne diminuent pas de manière monotone (oscillations) quand on augmente la pression, il apparaît plus avantageux d'accroître un petit peu la pression dans certaines conditions. Ces oscillations sont peu visibles dans les mesures expérimentales. Elles proviennent de l'échange d'énergie entre le mode fondamental de la fibre et le second mode. Pour comprendre ce phénomène il faut regarder la dynamique de propagation le long de la fibre (chapitre suivant).

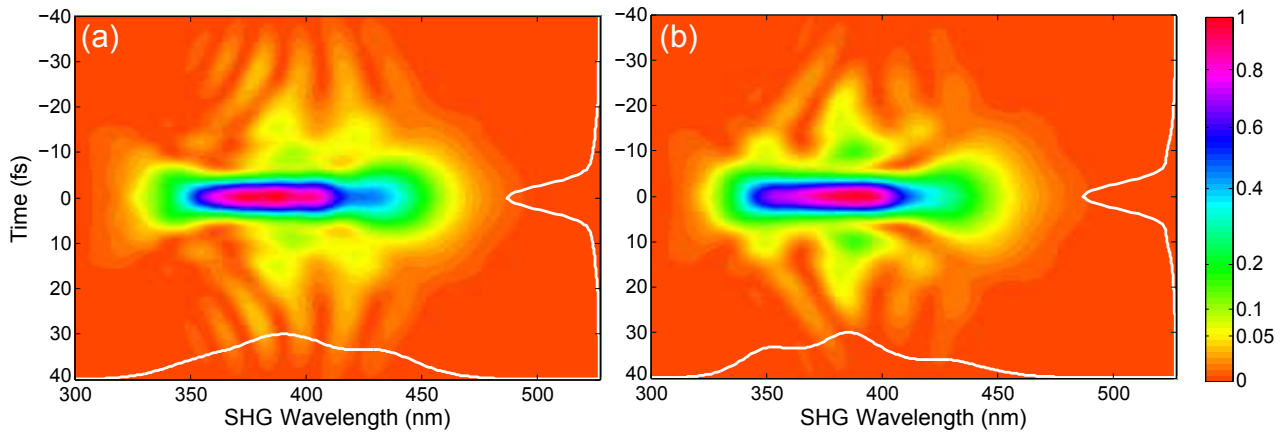


FIGURE 3.7 – Spectrogrammes FROG d’impulsions de  $5\text{ fs}$  obtenus par simulation à partir d’impulsions de  $25\text{ fs}$   $2.1\text{ mJ}$  après propagation dans la fibre creuse et compensation de la dispersion. (a) en polarisation circulaire dans  $1.5\text{ bar}$  de néon, (b) en polarisation linéaire dans  $1\text{ bar}$  de néon. Pour mettre en valeur les singularités, l’échelle de couleur choisie est non-linéaire.

Si on regarde les spectrogrammes FROG des impulsions dans les conditions optimales (Fig. 3.7), on retrouve les caractéristiques observées expérimentalement pour chaque polarisation : une partie du spectre n’est pas bien comprimée en LP ce qui conduit à la présence de pré/post impulsions.

En conclusion, l’utilisation d’impulsion polarisées circulairement permet une meilleure efficacité de compression des impulsions multi-mJ dans une fibre creuse. Par une analyse numérique, nous avons vu que cette amélioration de la compression provient de la diminution du taux d’ionisation, d’une part la qualité temporelle après les miroirs chirpés est augmentée, d’autre part les pertes de propagation non-linéaires sont diminuées, notamment celles qui proviennent des effets spatiaux non-linéaires.

## 3.2 Dynamique de propagation

La description complète de la propagation d’une impulsion à haute énergie dans une fibre creuse requiert l’étude de l’évolution spatio-temporelle de l’impulsion le long de la fibre. Dans le chapitre précédent, nous nous sommes restreints à l’analyse de l’impulsion en sortie de fibre. Cela nous a permis tout de même de constater le poids des différents effets non-linéaires. Pour comprendre la dynamique de ces effets, nous allons désormais utiliser les simulations pour explorer l’évolution longitudinale de l’impulsion. Cette étude a tout d’abord été motivée par l’observation d’oscillations périodiques d’intensité lumineuse le long de la fibre au cours des expériences (3.2.1). Les simulations ont ensuite mis en valeur les échanges non-linéaires



d'énergie (3.2.2) et un équilibre possible des effets spatiaux (3.2.3). Enfin, la compréhension de la dynamique de propagation et la fiabilité du code permet une optimisation de la compression pour différentes énergies multi-mJ (3.2.4). L'ensemble de ces résultats fait l'objet de l'article [33] inclus dans l'annexe D.

### 3.2.1 Oscillation périodique de l'intensité lors de la propagation

En observant directement la fibre creuse, on constate l'émission isotrope de lumière rouge-orange le long de celle-ci. Dans certaines conditions, l'intensité de cette émission varie périodiquement le long de la fibre : la Fig. 3.8(a) montre une photographie de la fibre creuse lors de la compression d'impulsions multi-mJ en CP dans du néon. Comme cette émission provient principalement de la recombinaison des électrons ionisés, une mesure de l'intensité lumineuse de la fibre permet d'avoir accès au degré d'ionisation (relatif) le long de la fibre. De plus, l'ionisation étant directement liée à l'intensité laser, la variation d'intensité lumineuse reproduit la variation d'intensité laser dans la fibre. Le lien entre l'intensité laser et l'intensité lumineuse n'est bien entendu pas linéaire, en revanche on peut affirmer qu'elles ont les mêmes extrema. En étudiant la variation de la position de ces extrema en fonction des conditions de propagation, nous pouvons accéder expérimentalement à la dynamique de la propagation.

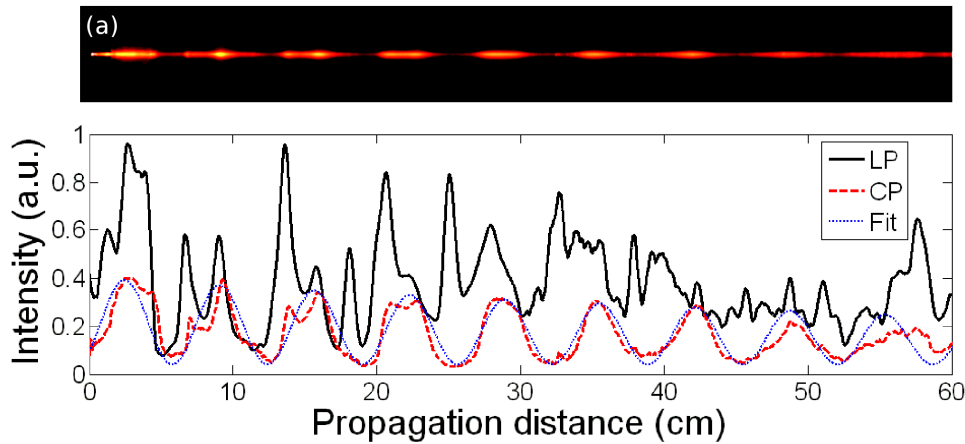


FIGURE 3.8 – (a) Photographie de la fibre creuse dans le cas de la compression d'une impulsion de  $25\text{ fs}$ ,  $2.1\text{ mJ}$  dans  $1\text{ bar}$  de néon en CP. (b) Profil d'intensité lumineuse le long de la fibre en LP (trait plein noir) et CP (tirets rouges). Les pointillés bleus représentent une oscillation sinusoïdale de période  $6.6\text{ cm}$  dont l'amplitude décroît exponentiellement.

Ces oscillations proviennent du désaccord de phase entre les modes  $A_{01}$  et  $A_{02}$  qui induit une interférence longitudinale entre les deux champs (voir paragraphe 2.3.1). Cet effet est prédit dans [34, 35], théoriquement la période d'oscillation est  $2\pi/\Delta\beta = 6.25\text{ cm}$  et dépend du diamètre

de la fibre. En l'absence d'effets non-linéaires, ces deux modes se propagent indépendamment, sans échange d'énergie. L'énergie présente dans le second mode provient dans ce cas du couplage imparfait de l'énergie en entrée de fibre : on choisit le diamètre de la tâche focale pour coupler le maximum d'énergie dans le mode fondamental, mais les défauts de la tâche et/ou de la fibre empêche un couplage parfait. Il y a ainsi toujours un peu d'énergie couplée dans les modes d'ordre supérieur et notamment dans  $A_{02}$ . C'est pour cette raison que même à très faible pression, ce mode contient de l'énergie et interfère avec le mode fondamental.

En présence de gaz, comme le taux d'ionisation dépend du champ électrique total vu par les électrons, l'ionisation va faire apparaître cette interférence. Nous avons mesuré cette oscillation en CP et LP à partir de photographies de la fibre creuse (Fig. 3.8 (b)). En polarisation circulaire, les oscillations sont proches d'une sinusoïde décroissante de période  $6.6\text{ cm}$  (pointillés bleus), elles correspondent bien au désaccord de phase entre les deux premiers modes. En polarisation linéaire, la propagation est bien plus chaotique : l'énergie est couplée dans des modes spatiaux d'ordre supérieur par auto-focalisation et défocalisation plasma. Les échanges d'énergie ne sont plus uniquement rythmés par le désaccord de phase entre les modes spatiaux. Cette variation d'intensité lumineuse irrégulière en LP témoigne de la présence d'effets spatiaux non négligeables qui couplent de l'énergie dans les modes d'ordre supérieur. Elle est logiquement associée à une propagation moins efficace comme nous avons observé dans le chapitre précédent.

A haute énergie, la dynamique de propagation est bien plus complexe qu'un simple échange d'énergie entre les modes. Les effets spatiaux modifient localement l'indice optique : les vitesses de phase et de groupe varient temporellement et radialement. Nous allons voir d'une part que cela conduit à un ralentissement de la propagation des modes d'ordre supérieur, et d'autre part, que l'auto-focalisation et la défocalisation plasma ne se recouvrent pas temporellement : ces deux effets ne se compensent pas de manière triviale. Ces deux phénomènes internes à la propagation influencent la stabilité et l'efficacité de la transmission. Nous les étudions dans les prochains paragraphes en regardant l'évolution de l'enveloppe spatio-temporelle de l'impulsion le long de la fibre.

### 3.2.2 Echanges non-linéaires d'énergie

Le code de simulation propage le champ d'enveloppe  $A(r, \tau)$  dans la direction longitudinale  $z$  avec l'hypothèse de symétrie cylindrique. La valeur maximum de  $|A(r, \tau)|^2$  est l'intensité pic de l'impulsion. La représentation graphique de  $A(r, \tau)$  donne un aperçu complet de la répartition spatio-temporelle d'énergie dans la fibre. A partir de simulations dans les conditions similaires

à celles de la Fig. 3.8 – 1 bar de néon, impulsions de  $2.1 \text{ mJ}$ ,  $25 \text{ fs}$  – on obtient l'évolution de l'intensité pic et du profil spatio-temporel illustrés sur la Fig. 3.9 en CP et LP. Les simulations ont été effectuées en prenant en compte les 5 premiers modes spatiaux et en injectant 0.25% d'énergie dans le mode 2.

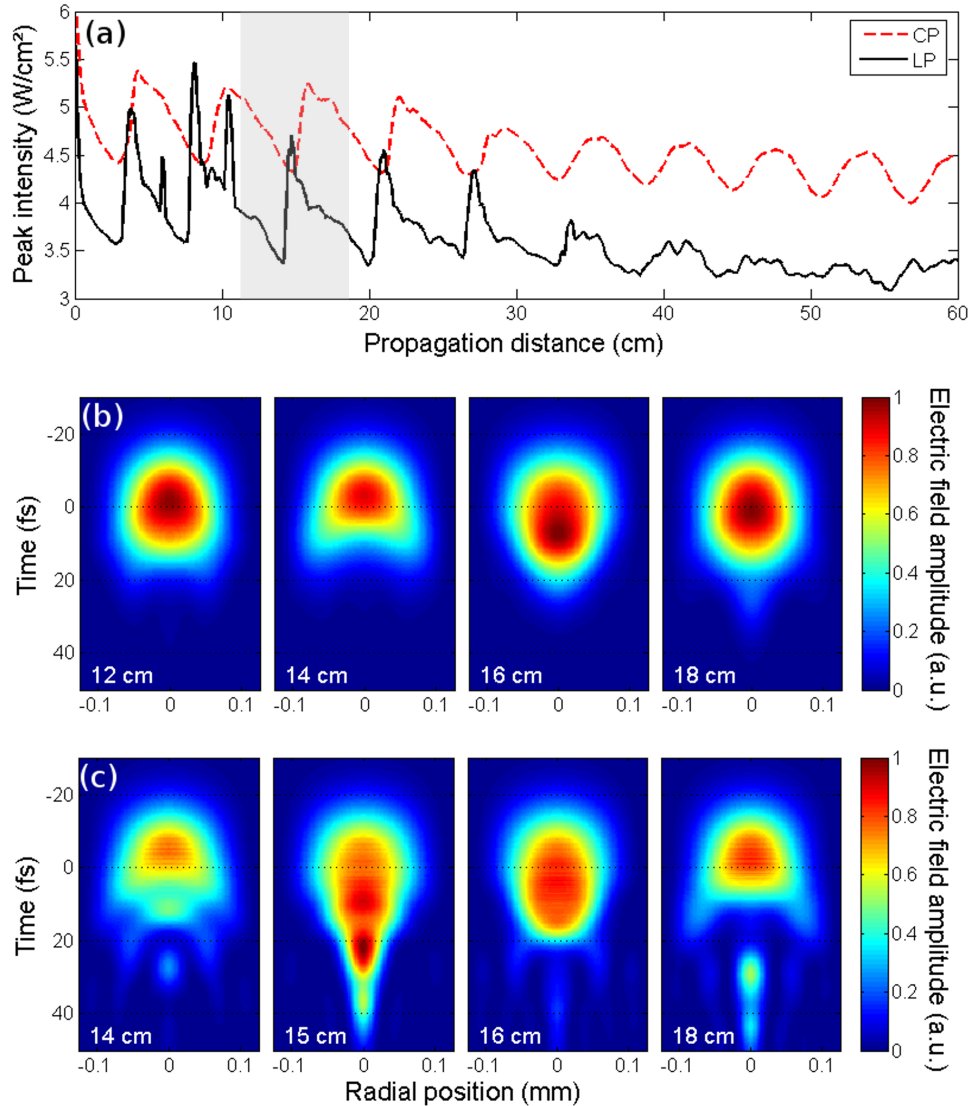


FIGURE 3.9 – Résultats de simulation de la propagation d'impulsions de  $2.1 \text{ mJ}$ ,  $25 \text{ fs}$  dans une fibre creuse de  $1 \text{ m}$  remplie avec  $1 \text{ bar}$  de néon. (a) Comparaison de l'évolution longitudinale de l'intensité pic de l'impulsion en CP (tirets rouges) et LP (ligne noire). (b,c) Profils spatio-temporels à différentes positions (zone grisée dans (a)) au sein d'un cycle d'échange d'énergie en CP (b) et LP (c).

Ces résultats de simulation montrent tout d'abord que le passage en CP permet une propagation à plus haute intensité. Le modèle confirme les tendances expérimentales de la Fig. 3.8 : en CP, on observe des oscillations régulières de l'intensité pic dues à l'échange d'énergie

entre les modes 1 et 2. En LP, l'intensité pic oscille plus fortement et plus rapidement : les échanges d'énergie entre les modes proviennent de l'ensemble des effets non linéaires. Cette dynamique de propagation peut être expliquée en considérant les désaccords de phase et de vitesse de groupe entre les deux premiers modes qui sont couplés par les deux non-linéarités spatiales, l'auto-focalisation (SF) et la défocalisation plasma (PD). Fig. 3.9(b,c) montre l'évolution spatio-temporelle de l'amplitude du champ électrique sur un cycle complet d'échange d'énergie pour les deux polarisations. En CP, au début du cycle ( $z = 12 \text{ cm}$ ), le SF couple de l'énergie dans le mode 2. Après une certaine distance de propagation ( $z = 14 \text{ cm}$ ), les deux modes interfèrent destructivement à cause de leur désaccord de phase et l'intensité globale est réduite. Cette différence de phase induit enfin un retour de l'énergie dans le mode 1 ( $z = 16$  à  $18 \text{ cm}$ ). Sur l'ensemble du cycle en CP, l'évolution du profil spatio-temporel est relativement faible. En LP, au début du cycle ( $z = 14 \text{ cm}$ ), SF transfère aussi l'énergie dans le mode 2 mais comme l'effet Kerr est plus fort qu'en CP, l'intensité atteint une valeur pour laquelle l'ionisation est prépondérante ( $z = 15 \text{ cm}$ ), le PD ramène alors l'énergie dans le mode 1 ( $16 \text{ cm}$ ). C'est donc la succession SF/PD sur une distance très courte qui fait apparaître ces variations rapides d'intensité en LP. L'intensité est alors réduite, le SF reprend le pas sur le PD, cependant le désaccord de phase accumulé entre les deux modes implique que le SF ramène l'énergie dans le mode 1 ( $z = 18 \text{ cm}$ ). Sur l'ensemble du cycle en LP, l'évolution est rapide et chahutée. Comme en CP, on observe les caractéristiques de l'effet Kerr mais de manière plus marquée. Mais la propagation en LP diffère car il reste de l'énergie dans les modes d'ordre supérieur à l'arrière de l'impulsion. Ceux-ci sont en effet plus peuplés par les effets non-linéaires. Ils se situent à l'arrière de l'impulsion car ils se propagent plus lentement et l'ionisation y amplifie cette différence en ralentissant la propagation (Plasma slowing).

Cette dynamique explique pourquoi la qualité de la compression est fortement diminuée en LP. Premièrement l'effet Kerr accru transfère plus d'énergie dans les modes d'ordre supérieur qui se propagent avec plus de pertes (voir Fig. 3.6). Deuxièmement, une partie de l'énergie est perdue à l'arrière de l'impulsion dans les modes d'ordre supérieur. Troisièmement, les pertes d'ionisation sont plus grandes pour deux raisons : la différence intrinsèque du taux d'ionisation en LP et l'intensité accrue par SF, la phase spectrale a alors une composante plus difficilement comprimable ce qui réduit la qualité temporelle des impulsions, comme observé expérimentalement (paragraphe 3.1.3). Enfin, la dynamique de propagation en LP est très sensible aux variations d'intensité car on assiste à une prépondérance d'effets très non-linéaires, cela explique les mesures de stabilité spectrales du paragraphe 3.1.2.

La dynamique de propagation permet ainsi d'expliquer les différentes pertes de propagation

de la Fig. 3.6 et confirme l'importance de minimiser les effets non-linéaires spatiaux. Pour aller plus loin dans ce sens, nous allons étudier l'éventualité d'un équilibre entre la focalisation par effet Kerr et la défocalisation plasma. Nous considérons le cas le plus stable pour une compression à haute énergie : CP.

### 3.2.3 Equilibre entre focalisation et défocalisation en polarisation circulaire

Intuitivement, dans certaines conditions, l'auto-focalisation et la défocalisation devraient se compenser. Dans de telles conditions, les effets d'ordre supérieur sont réduits, ce qui permet une propagation plus stable et efficace. Nous allons étudier dans ce paragraphe les conditions requises pour l'apparition d'un tel équilibre dans la fibre creuse en polarisation circulaire.

Avant tout, il est important de se souvenir que la défocalisation dans une fibre couple de l'énergie dans les modes d'ordre supérieurs, ce qui revient en réalité à une focalisation de l'énergie. Cependant, la défocalisation plasma diffère de l'auto-focalisation car l'énergie est couplée avec une phase opposée. Ainsi, ces deux effets interfèrent destructivement, les effets simultanés de l'auto-focalisation et défocalisation diminuent la concentration en énergie. Malheureusement, ces deux effets n'ont pas la même localisation spatio-temporelle : le premier se produit symétriquement autour du centre de l'impulsion (réponse instantanée de l'effet Kerr) alors que le second apparaît principalement à l'arrière de l'impulsion (accumulation de l'ionisation). Ce phénomène est bien visible quand on regarde la variation spatio-temporelle de l'indice optique. La Fig. 3.10 illustre cette variation d'indice optique dans le cas d'une simulation où l'ionisation et l'effet Kerr induisent des variations d'indice d'amplitude comparable.

On retrouve les deux formes caractéristiques présentées dans le chapitre précédent : cercles concentriques pour l'effet Kerr, vallée profonde pour l'ionisation.

On constate alors que les deux effets spatiaux se recouvrent à l'arrière de l'impulsion, si leur amplitude est comparable, ils vont se compenser localement. La variation d'indice dû à l'effet Kerr et l'ionisation est calculée en utilisant les équations 3.2 et 3.3.

$$\Delta n_{SPM}(t) = n_2 I(t), \quad n_2 = n_{2(P=1bar)} P \quad (3.2)$$

$$\Delta n_{Ion}(t) = -\frac{N_e(t)}{2N_c}, \quad N_e(t) = r(t)N_0, \quad N_0 = \frac{P}{k_b T} \quad (3.3)$$

où  $r(t)$  est le taux d'ionisation intégré en temps de 0 à  $t$ .

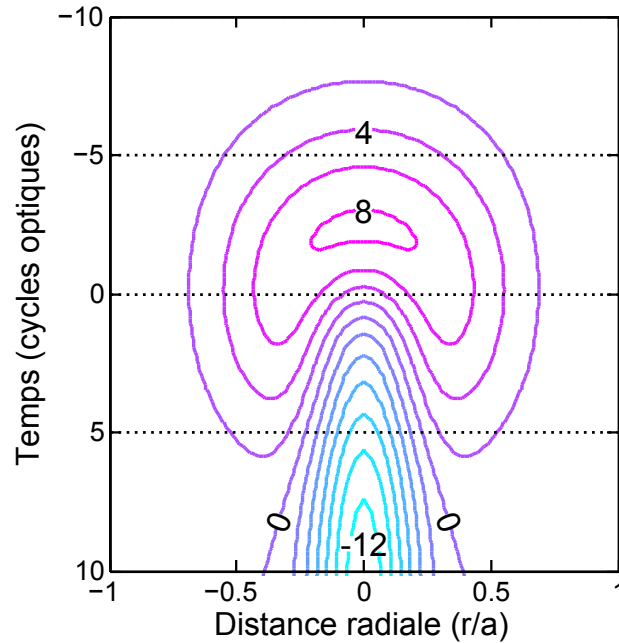


FIGURE 3.10 – Exemple de variation spatio-temporelle d'indice optique à l'intérieur de la fibre creuse due à l'effet Kerr et l'ionisation (lignes de niveau par pas de  $2 \times 10^{-6} n_0$ ).

Un équilibre se produit quand ces deux variations sont opposées. Comme elles augmentent linéairement avec la pression, l'apparition d'un équilibre ne dépend pas de la pression mais plutôt de l'intensité. Ainsi, trois régimes différents peuvent être identifiés, ils sont illustrés sur la Fig. 3.11 sur laquelle est représentée l'intensité et la phase du second mode spatial de la fibre, calculés après  $3\text{ cm}$  de propagation dans  $1\text{ bar}$  de néon pour une impulsion polarisée circulairement. A faible intensité ( $1.5\text{ mJ}$ ), le deuxième mode est alimenté uniquement par l'auto-focalisation (Fig. 3.11(a)), la forme temporelle du deuxième mode est la même que le fondamental, sa phase temporelle est constante ( $0\text{ rad}$ ). A haute intensité ( $2.5\text{ mJ}$ ), la défocalisation est prédominante (Fig. 3.11(c)), l'énergie couplée dans le deuxième mode par le gaz ionisé est principalement située à l'arrière de l'impulsion, la phase temporelle est constante ( $-\pi\text{ rad}$ ). Enfin, on observe un équilibre des effets spatiaux pour une intensité intermédiaire ( $2.1\text{ mJ}$ , Fig. 3.11(b)), la forme temporelle du second mode est la somme cohérente des deux régimes précédents. L'interférence destructive crée un trou au niveau du centre de l'impulsion ( $t = 0$ ). Cela est confirmé par le saut de  $\pi$  de la phase temporelle de  $t = -10\text{ fs}$  à  $t = 20\text{ fs}$ . L'énergie totale couplée dans le second mode est plus faible que si l'on considère le SF et le PD séparément. Il est important de noter que l'énergie de l'impulsion diminuant le long de la propagation, l'équilibre des effets spatiaux ne peut pas avoir lieu tout au long de la propagation. Les conditions optimales correspondent a priori à un passage par les trois régimes : régime d'ionisation en début de fibre puis équilibre

et enfin régime Kerr.

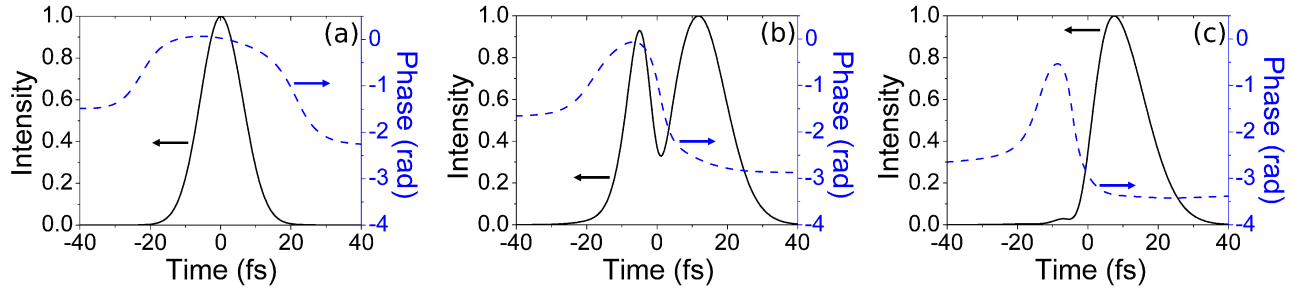


FIGURE 3.11 – Profil d’intensité et phase temporelle du mode  $A_{02}$  après 3 cm de propagation dans une fibre creuse pour différentes énergies d’impulsion en entrée de fibre : (a) 1.5 mJ, (b) 2.1 mJ et (c) 2.5 mJ.

Ainsi, en regardant uniquement le mode  $A_{02}$ , on constate que les deux effets spatiaux peuvent s’annuler localement et conduire à une diminution de l’énergie couplée dans les modes d’ordre supérieur. Dans le cas de la compression d’impulsions multi-mJ, il paraît alors avantageux de chercher de telles conditions qui permettent de tirer profit de l’ionisation. Selon l’énergie d’impulsion à comprimer, il faut ajuster les conditions expérimentales pour se propager dans le régime d’équilibre. Le paragraphe suivant présente les conditions optimales théoriques pour différentes énergies multi-mJ.

### 3.2.4 Perspectives : compression d’impulsions multi-millijoule

L’utilisation de la technique de compression dans une fibre creuse requiert l’optimisation de nombreux paramètres. Nous avons étudié jusqu’ici l’influence de la pression de gaz et de l’énergie. Pour une énergie d’impulsion donnée, la pression de gaz est déterminée par l’élargissement spectral recherché. Nous avons vu l’avantage de passer en polarisation circulaire, mais ce n’est pas suffisant pour des énergies supérieures à 2 mJ. Nous utilisons ici d’autres paramètres jusqu’alors inchangés : diamètre et longueur de la fibre, type de gaz et chirp de l’impulsion. Un plus grand diamètre de fibre diminue l’intensité, une fibre plus longue augmente la durée d’interaction, un changement de gaz permet de diminuer les effets non-linéaires (voir Table 2.1) et enfin, le chirp de l’impulsion diminue l’intensité.

Le modèle de simulation permet d’optimiser chacun de ces paramètres pour atteindre un facteur de compression donné dans les meilleures conditions possibles (énergie, qualité temporelle, stabilité). On va considérer ici le cas particulier de la compression de 25 fs à 5 fs dans les mêmes conditions que dans les expériences [32, 36]. Les critères pour l’optimisation de la compression sont l’efficacité de transmission  $\eta$  et la qualité temporelle  $T$  (définie paragraphe

3.1.3), le cas optimal étant celui qui minimise les pertes de puissance  $P = 1 - \eta \times T$ . On procède à l'analyse pour des impulsions en entrée de  $1 \text{ mJ}$  à  $6.5 \text{ mJ}$ . L'augmentation de l'énergie doit être associée à un changement de conditions expérimentales afin de minimiser les effets spatiaux et l'ionisation. On définit alors six conditions différentes (A–F) décrites dans le tableau 3.1 en jouant sur l'ensemble des paramètres disponibles. Le code est ensuite utilisé pour trouver la pression de gaz nécessaire et suffisante pour obtenir une impulsion comprimée de  $5 \pm 0.05 \text{ fs}$  pour différentes énergies dans chacune des conditions A–F. Pour calculer la durée de l'impulsion comprimée, on applique la phase spectrale non-linéaire quadratique négative appropriée. Cela simule ainsi la compensation de cette phase par des miroirs chirpés. Cette méthode est plus réaliste que l'utilisation de la durée d'impulsion obtenue par la transformée de Fourier du spectre avec une phase spectrale nulle. Les ordres supérieurs de la phase spectrale ne sont en effet pas bien compensés par les miroirs chirpés (voir paragraphe 2.5).

Cas	Longueur	Diamètre	Gaz	Polar.	$\xi_{opt}$	$E_{opt}$
A	1 m	250 $\mu\text{m}$	Ne	LP	Non	1 – 1.5 $\text{mJ}$
B	1 m	250 $\mu\text{m}$	Ne	CP	Non	1.5 – 2 $\text{mJ}$
C	1 m	250 $\mu\text{m}$	Ne	CP	0.45 – 1.1	2 – 2.5 $\text{mJ}$
D	1 m	250 $\mu\text{m}$	He	CP	Non	2.5 – 3 $\text{mJ}$
E	1 m	250 $\mu\text{m}$	He	CP	0.45 – 0.9	3 – 3.5 $\text{mJ}$
F	1.5 m	300 $\mu\text{m}$	He	CP	0 – 0.9	3.5 – 5 $\text{mJ}$

TABLE 3.1 – Conditions de simulation de la Fig. 3.12 : longueur et diamètre de la fibre, polarisation (Pol.) et chirp ( $\xi_{opt}$ ) de l'impulsion laser, gamme d'énergie optimale ( $E_{opt}$ ). Les gammes de chirp indiqués correspondent aux chirps utilisés dans la gamme optimale d'énergie.

La Fig. 3.12 montre les pertes de puissance en fonction de l'énergie d'impulsion dans les différentes conditions du tableau 3.1, la pression requise est indiquée en échelle de couleur. On observe que dans les conditions où l'impulsion est comprimée en entrée de fibre (pas de chirp optimal  $\xi_{opt}$  : A, B et D), la pression doit être diminuée quand on augmente l'énergie. En revanche, quand une valeur optimale de chirp est appliquée (C, E et F), la pression requise est plus grande à haute énergie, cela provient de la nécessité d'augmenter le chirp quand on augmente l'énergie. Il est intéressant de noter que quelles que soient les conditions, les courbes de la figure 3.12 ont la même forme et présentent un minimum en fonction de l'énergie (dans la gamme  $E_{opt}$  du tableau 3.1). Ces minima correspondent aux conditions optimales d'utilisation de la fibre creuse. Non seulement les pertes de propagation et de compression sont minimisées,



mais encore, la stabilité de la propagation est maximisée, car dans ces conditions on a un minimum d'effets spatiaux.

Expérimentalement à  $2\text{ mJ}$ , nous avons observé ces améliorations en qualité de compression en changeant la polarisation (de A à B) puis en allongeant l'impulsion (chirp positif de B à C), le cas C était notre configuration optimale à  $2\text{ mJ}$  [32]. A  $3\text{ mJ}$ , nous avons d'abord utilisé un gaz à seuil d'ionisation plus haut et effet Kerr plus faible, avec une impulsion comprimée (passage du néon à l'hélium de C à D), puis nous avons allongé l'impulsion (de D à E), le cas E étant notre configuration optimale à  $3\text{ mJ}$  [36].

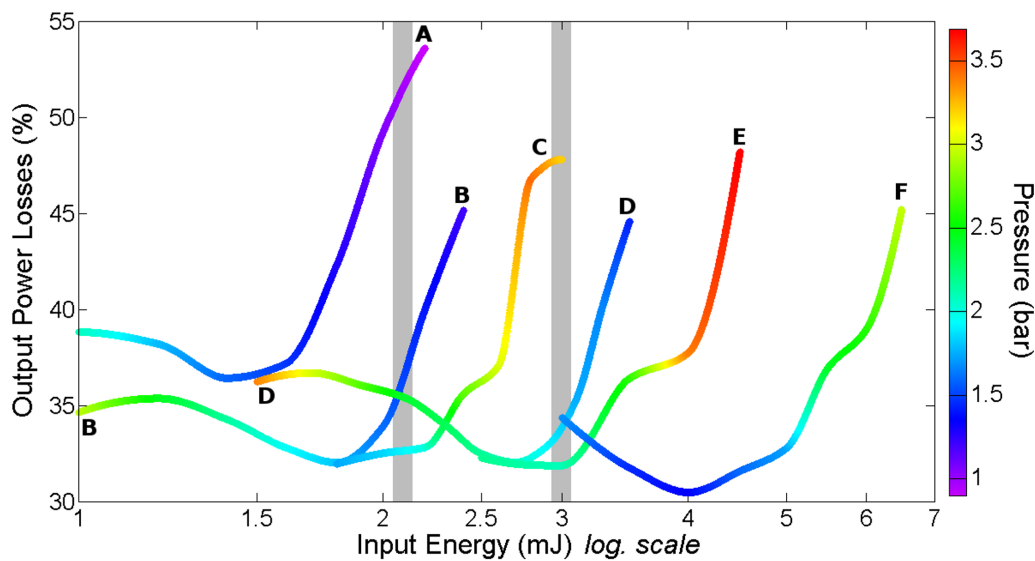


FIGURE 3.12 – Evolutions des pertes de puissance pic lors de la compression d'impulsions de  $25\text{ fs}$  sur la gamme  $1\text{--}6.5\text{ mJ}$  dans les différentes conditions expérimentales A–F du tableau 3.1. La pression utilisée par le code pour obtenir une impulsion comprimée de  $5\text{ fs}$  est indiquée par l'échelle de couleur. Les zones grisées correspondent aux énergies disponibles expérimentalement en Salle Noire [32, 36].

Le chirp apparaît comme le paramètre idéal pour diminuer l'intensité en entrée de fibre et ainsi obtenir une propagation plus efficace, cela est confirmé par la comparaison de l'énergie en sortie de fibre dans les cas D et E illustrée sur la Fig. 3.13(a). En revanche, on voit sur la Fig. 3.13(b) que l'utilisation d'une impulsion chirpée en entrée de fibre diminue la qualité temporelle. Cette perte d'énergie dans des pré/post impulsions est tout de même compensée par le gain en transmission, comme on le voit sur la Fig. 3.12. Cependant, si la qualité temporelle est un critère prépondérant, il faut éviter de chirper l'impulsion en entrée.

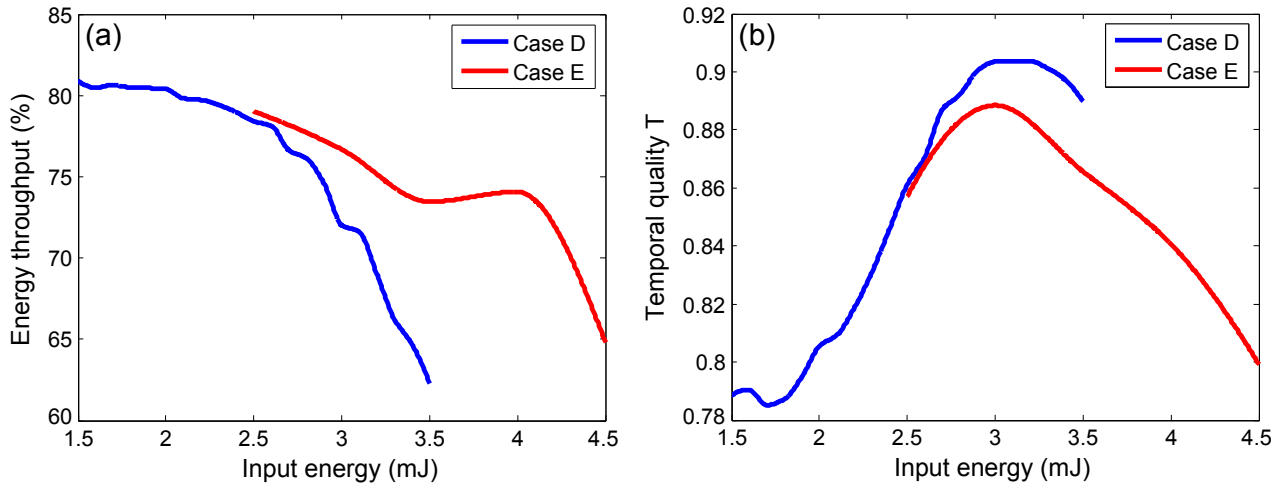


FIGURE 3.13 – (a) Energie transmise et (b) qualité temporelle  $T$  des impulsions comprimées dans les conditions D (pas de chirp) et E (chirp optimal) sur la gamme  $1.5 - 4.5 mJ$ .

Le modèle est aussi utilisé pour étudier la compression dans la fibre creuse à plus haute énergie. Dans le cas E, on a utilisé toutes les méthodes disponibles pour propager une impulsion à haute énergie dans une fibre standard ( $1 m$  de long et  $250 \mu m$  de diamètre) : utilisation de l'Hélium, le gaz rare avec le plus haut seuil d'ionisation, diminution des effets non-linéaires en passant en polarisation circulaire et en allongeant temporellement l'impulsion. L'énergie optimale dans ces conditions se situe aux alentours de  $3 mJ$  et on peut s'attendre à des résultats acceptables jusqu'à  $4 mJ$ . Au-delà de  $4 mJ$ , il est toujours possible d'utiliser une fibre standard mais avec un très faible rendement [37]. Si on veut éviter l'utilisation d'un gradient de pression, dispositif beaucoup plus lourd à mettre en place expérimentalement, on peut effectuer la compression dans une fibre plus grosse et plus longue (cas F). Dans ce cas, on étudie l'effet de l'utilisation d'une fibre de  $300 \mu m$  au lieu de  $250 \mu m$ . On ne peut pas augmenter beaucoup plus le diamètre car la période d'échange d'énergie entre les deux premiers modes de la fibre augmente aussi. Pour une longueur de fibre donnée, le nombre de cycles diminue si on utilise un coeur plus gros. Avec moins de cycles, l'énergie va s'accumuler plus longtemps dans le mode  $A_{02}$  avant de retourner dans  $A_{01}$ , cela va augmenter irrémédiablement les pertes d'ordres supérieurs. Cette perte d'énergie peut être diminuée en utilisant une fibre plus longue, car on peut alors diminuer la pression et ainsi réduire l'énergie couplée dans les modes d'ordre supérieur. C'est pour cette raison qu'on a associé un plus gros diamètre ( $300 \mu m$ ) à une fibre plus longue ( $1.5 m$ ) dans le cas F. Il est optimal pour comprimer des impulsions de  $4 mJ$  mais on peut raisonnablement monter jusqu'à  $6 mJ$ . On obtiendrait alors des impulsions de  $5 fs$  de plus de  $3 mJ$  assez stables en énergie, avec un montage compact.

En dehors de la gamme optimale d'énergie, la qualité de compression est diminuée symétriquement car on s'éloigne de l'équilibre entre les effets spatiaux. Cet effet est illustré sur la Fig. 3.14 qui montre la forme de l'élargissement spectral simulé pour différentes énergies autour de l'optimum  $4\text{ mJ}$  dans le cas F. Quand l'énergie est trop faible ( $3\text{ mJ}$ ), les pertes en énergies sont relativement faibles mais la forte pression de gaz requise pour obtenir un élargissement spectral suffisant augmente les non-linéarités Kerr. Dans ce cas, l'auto-raïdissement est conséquent et implique un élargissement spectral asymétrique, la qualité temporelle est alors diminuée. A l'optimum ( $4\text{ mJ}$ ), le décalage plasma vers le bleu compense l'asymétrie, la compression est alors de meilleure qualité. On voit qu'un bon équilibre entre ionisation et effet Kerr permet non seulement de diminuer les effets spatiaux, mais encore d'obtenir un élargissement symétrique. Quand l'énergie est trop haute ( $6\text{ mJ}$ ), les pertes et les instabilités augmentent à cause de l'ionisation qui est cependant limitée par le chirp de l'impulsion. On reconnaît la forme spectrale due à la SPM d'une impulsion chirpée, qui indique qu'on ne peut pas chirper indéfiniment une impulsion pour réduire l'intensité dans la fibre car cela conduit à une mauvaise qualité temporelle. En effet, si le spectre présente de nombreuses modulations et un fort écart-type, l'impulsion comprimée possède des ailes qui contiennent une quantité non-négligeable d'énergie.

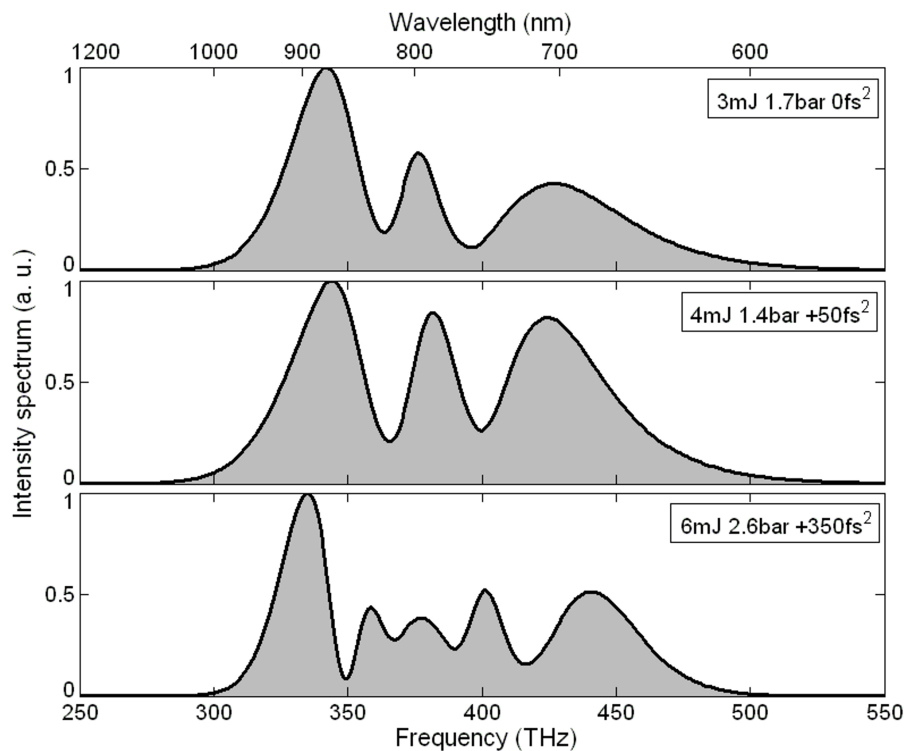


FIGURE 3.14 – Spectres en sortie de fibre après propagation dans les conditions F à trois énergies différentes. La pression et le chirp utilisés pour obtenir la compression optimale à  $5\text{ fs}$  sont indiqués.

Nous avons ainsi vu que la technique de compression d'impulsions par propagation non-linéaire dans une fibre creuse peut être utilisée pour des impulsions multi-mJ. En utilisant le code de simulation, nous avons défini les conditions expérimentales adaptées aux différentes gammes d'énergie afin d'obtenir un élargissement spectral suffisant, en minimisant les pertes de propagation et maximisant la qualité temporelle, tout en conservant un système compact.



# Conclusion

Mon travail de thèse sur la compression d'impulsions dans une fibre creuse a été principalement orienté par la simulation de la propagation non-linéaire. Cela a permis l'identification des différents effets et en particulier la mise en valeur des effets spatiaux. Nous avons ainsi pu démontrer expérimentalement et théoriquement l'avantage de l'utilisation de la polarisation circulaire [33, 32] et l'intérêt de chirper l'impulsion en entrée de fibre [33, 36]. Cette approche a d'ailleurs été reprise commercialement par l'entreprise Femtolaser pour comprimer des impulsions de  $4\text{ mJ}$  [37]. D'autre part, nous avons vu que l'optimisation de la compression dans la fibre creuse passe aussi par la prise en compte de la qualité temporelle de l'impulsion comprimée, et que l'efficacité de compression peut être augmentée en cherchant un équilibre spatial et spectral entre l'effet Kerr et l'ionisation. Cette compréhension permet d'envisager l'utilisation de cette technique de compression à plus haute énergie en utilisant une fibre plus grosse et plus longue.

Il n'a pas été évoqué ici la notion de stabilisation de la CEP. Le laser en entrée de fibre est en effet stabilisé en CEP, ce qui signifie que la CEP ne change pas d'une impulsion à l'autre. La conservation de cette stabilité après compression dans la fibre creuse a été démontrée par notre groupe [14]. Le laser de la Salle Noire du LOA est ainsi un des rares lasers à impulsions multi-mJ ultracourtes (quelques cycles optiques,  $0.4\text{ TW}$  de puissance crête) stabilisées en CEP ( $200\text{ mrad}$  RMS). Cela nous a permis d'effectuer des expériences pionnières de génération d'harmoniques sur cible solide. Ce sujet est traité dans la seconde partie de ma thèse.



# Bibliographie

- [1] *Compression of amplified chirped optical pulses*, D. Strickland and G. Mourou, Opt. Comm. **56**, 219–221 (1985).
- [2] *Compression of high power optical pulses*, C. Rolland and P.B. Corkum, JOSA B **5**, 641–647 (1988).
- [3] *Highly-efficient nonlinear filter for femtosecond pulse contrast enhancement and pulse shortening*, A. Jullien, J.-P. Rousseau, B. Mercier, L. Antonucci, O. Albert, G. Chériaux, S. Kourtev, N. Minkovski and S. S. Saltiel, Opt. Lett. **33**, 2353 (2008).
- [4] *Generation of intense few-cycle laser pulses through filamentation - parameter dependence*, C. P. Hauri, A. Guandalini, P. Eckle, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, Opt. Express **13**, 7541–7547 (2005).
- [5] *Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament*, Gero Stibenz, Nickolai Zhavoronkov and Günter Steinmeyer, Opt. Lett., **31**, 274–276 (2006).
- [6] *Generation of 5 fs, 0.7 mJ pulses at 1 kHz through cascade filamentation*, X. Chen, X. Li, J. Liu, P. Wei, X. Ge, R. Li, and Z. Xu, Opt. Lett. **32**, 2402–2404 (2007).
- [7] *Post-compression of high-energy femtosecond pulses using gas ionization*, C. Fourcade Dutin, A. Dubrouil, S. Petit, E. Mével, E. Constant and D. Descamps Opt. Lett. **35**, 253–255 (2010).
- [8] *Compression of femtosecond optical pulses*, C. V. Shank, R. L. Fork, R. Yen, R. H. Stolen and W. J. Tomlinson, Appl. Phys. Lett. **40**, 761 (1982).
- [9] *Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique*, M. Nisoli, S. De Silvestri and O. Svelto, Appl. Phys. Lett. **68**, 2793 (1996).
- [10] *A novel-high energy pulse compression system : generation of multigigawatt sub-5-fs pulses*, M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, O. Svelto, S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, C. Spielmann and F. Krausz, Appl. Phys. B **65**, 189-196 (1997).
- [11] *Optimization of supercontinuum generation in photonic crystal fibers for pulse compression*, Guoqing Chang, Theodore B. Norris and Herbert G. Winful Opt. Lett. **28**, 546–548 (2003).



- [12] *Nonlinear femtosecond pulse compression at high average power levels by use of a largemode-area holey fiber*, T. Sudmeyer, F. Brunner, E. Innerhofer, R. Paschotta, U. Keller, K. Furusawa, J. Bagget, T. Monro, D. Richardson, *Opt. Lett.* **28**, 1951-1953 (2003).
- [13] *Comparison of the filamentation and the hollow-core fiber characteristics for pulse compression into the few-cycle regime*, L. Gallmann, T. Pfeifer, P.M. Nagel, M.J. Abel, D.M. Neumark and S.R. Leone, *Appl. Phys. B* **86**, 561-566 (2007).
- [14] *1-mJ, sub-5-fs carrier-envelope phase-locked pulses*, X. Chen, L. Canova, A. Malvache, A. Jullien, R. Lopez-Martens, C. Durfee, D. Papadopoulos, F. Druon, *Appl. Phys. B* **99**, 149-157 (2010).
- [15] *Propagation dynamics of femtosecond laser pulses in a hollow fiber filled with argon : constant gas pressure vs differential gas pressure*, M. Nurhuda, A. Suda, K. Midorikawa, M. Hatayama and K. Nagasaka, *JOSA B* **20**, 2002-2011 (2003).
- [16] *The generation of intense, transform-limited laser pulses with tunable duration from 6 to 30 fs in a differentially pumped hollow fibre*, JS. Robinson, CA. Haworth, H. Teng, RA. Smith, JP. Marangos, JWG. Tisch, *Appl. Phys. B* **85**, 525-529 (2006).
- [17] *Generation of 0.2-TW 5.5-fs optical pulses at 1 kHz using a differentially pumped hollow-fiber chirped-mirror compressor*, J. H. Sung, J. Y. Park, T. Imran, Y. S. Lee, and C. H. Nam, *Appl. Phys. B* **82**, 5-8 (2006).
- [18] *Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1kHz using hollow-fiber pulse compression*, S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi and K. Midorikawa, *Opt. Lett.*, **35**, 1887-1889 (2010).
- [19] *High-energy ultrashort laser pulse compression in hollow planar waveguides*, S. Akturk, C.L. Arnold, B. Zhou and A. Mysyrowicz, *Optics Letters* **34**, 1462-1464 (2009).
- [20] *High-energy 6.2-fs pulses for attosecond pulse generation*, S. Ghimire, B. S. C. Wang and Z. Chang, *Las. Phys.* **15**, 838-842 (2005).
- [21] *Nonlinear Optics, 3rd Ed.*, R. W. Boyd, Academic Press (2008).
- [22] *Single-shot measurement of carrier-envelope phase changes by spectral interferometry*, M. Kakehata, H. Takada, Y. Kobayashi, K. Torizuka, Y. Fujihira, T. Homma and H. Takahashi, *Opt. Lett.* **26**, 1436-1438 (2001).
- [23] *Nonresonant third order hyperpolarizability of rare gases and N<sub>2</sub> determined by third harmonic generation*, HJ Lehmeier, W. Leupacher and A. Penzkofer, *Opt. Comm.* **56**, 67 (1985).
- [24] *Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions by an alternating electromagnetic field*, M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov, *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191-1194 (1986).

- [25] *Nonlinear source for the generation of high-energy few-cycle optical pulses*, G. Tempea and T. Brabec, *Opt. Lett.* **23**, 1286–1288 (1998).
- [26] *Hollow Metallic and Dielectric Waveguides for Long Distance Optical Transmission and Lasers*, E.A.J. Marcatili, R.A. Schmelzter, *Bell Syst. Tech. J.* **43**, 1783 (1964).
- [27] *Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime*, T. Brabec and F. Krausz, *PRL* **78**, 3282–3285 (1997).
- [28] *Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers*, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann and F. Krausz, *Opt. Lett.* **19**, 201–203 (1994).
- [29] *Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating*, D. J. Kane and R. Trebino, *IEEE J. Quantum Electron.* **29**, 571 (1993).
- [30] *Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating*, D. J. Kane and R. Trebino, *Opt. Lett.* **18**, 823 (1993).
- [31] *Measuring ultrashort pulses in the single-cycle regime using frequency-resolved optical gating*, S. Akturk, C. D’Amico and A. Mysyrowicz, *JOSAB* **25**, A63 (2008).
- [32] *Generation of 4.3fs, 1mJ laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber*, X. Chen, A. Jullien, A. Malvache, L. Canova, A. Borot, A. Trisorio, C.G. Durfee and R. Lopez-Martens, *Opt. Lett.* **34**, 1588 (2009).
- [33] *Multi-mJ pulse compression in hollow fibers using circular polarization*, A. Malvache, X. Chen, C.G. Durfee, A. Jullien and R. Lopez-Martens, *Appl. Phys. B* **104**, 5–9 (2011).
- [34] *Optical Pulse compression : bulk media versus hollow waveguides*, N. Milosevic, G. Tempea and T. Brabec, *Opt. Lett.* **25**, 672–674 (2000).
- [35] *Nonlinear propagation dynamics of an ultrashort pulse in a hollow waveguide*, D. Homoelle and A. Gaeta, *Opt. Lett.* **25**, 761–763 (2000).
- [36] *Efficient hollow fiber compression scheme for generating multi-mJ, carrier-envelope phase stable, sub-5fs pulses*, X. Chen, A. Malvache, A. Ricci, A. Jullien, and R. Lopez-Martens, *Laser Phys.* **21**, 198–201 (2011).
- [37] *Multi-mJ carrier envelope phase stabilized few-cycle pulses generated by a tabletop laser system*, A. Anderson, F. Lücking, T. Prikoszovits, M. Hofer, Z. Cheng, C.C. Neacsu, M. Scharrer, S. Rammler, P.St.J. Russel, G. Tempea and A. Assion, *Appl. Phys. B* **103**, 531–536 (2011).



## Deuxième partie

### Interaction laser-plasma sur cible solide



# Introduction

La conception du premier laser en 1960 fut suivie un an plus tard par la première expérience de génération de seconde harmonique (doublage de fréquence)[1], rendue possible par l'extrême concentration d'énergie ( $I = 10^7 \text{ W.cm}^{-2}$ ) fournie par le laser. L'efficacité de la génération d'harmoniques augmentant de manière non-linéaire avec l'intensité laser, cette expérience marque historiquement le début de l'optique non-linéaire. Ainsi, au fur et à mesure que les lasers montaient en puissance, les expériences de génération d'harmoniques dans les cristaux se sont multipliées, pour atteindre des rendements de 80% en génération de seconde harmonique mais aussi générer la troisième voire quatrième harmonique. Au-delà de  $10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ , l'intensité est telle qu'il n'est plus possible d'utiliser des cristaux non-linéaires car ils sont ionisés : des électrons sont arrachés aux atomes, les liaisons chimiques se cassent et la structure cristalline propice à la génération d'harmonique est détruite. Pour obtenir des effets non-linéaires à haute intensité et générer des harmoniques d'ordre élevé (high-order harmonic generation HHG), il est alors indispensable d'utiliser des milieux ionisés (qui par essence résistent aux fortes intensités).

La génération d'harmoniques dans les gaz partiellement ionisés supporte des intensités jusqu'à  $10^{16} \text{ W.cm}^{-2}$  et a permis d'atteindre jusqu'à l'ordre 1000 [2, 3]. Cette technique est actuellement la plus répandue pour générer des harmoniques d'ordre élevé. Elle est cependant limitée en intensité car le gaz ne doit pas être entièrement ionisé. L'utilisation de la réflexion sur un plasma dense (généré à partir d'une cible solide) permet de repousser la limite en intensité car le solide peut être entièrement ionisé. Cette technique, associée aux lasers les plus puissants ( $I=10^{21} \text{ W.cm}^{-2}$ ), a permis de générer des harmoniques d'ordre élevé à 100 très efficacement [4].

Ces deux techniques de génération d'harmoniques d'ordre élevé dans un milieu ionisé (gaz ou solide) ont d'autre part l'avantage de générer les nouvelles fréquences sous forme d'impulsions de durées inférieures à la femtoseconde ( $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$ ) alors que l'impulsion laser initiale a une durée femtoseconde ( $\tau > 100 \text{ fs}$  pour les lasers les plus puissants et  $\tau > 2 \text{ fs}$  pour les lasers les plus courts). La génération d'impulsions attosecondes a ouvert la voie à la physique attoseconde :

l'étude de la dynamique des électrons dans les atomes, les molécules et les nanostructures [5]. Cela explique l'engouement des quinze dernières années pour la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Les premières expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé avec des impulsions ultracourtes ont été effectuées dans des gaz [6] car l'intensité laser requise est plus faible que sur les cibles solides  $I = 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ . C'est cette technique, désormais bien comprise et optimisée, qui est utilisée comme source d'impulsions attosecondes pour effectuer des mesures à cette échelle de temps [7, 8]. Avec l'augmentation de la puissance des lasers, la génération d'harmoniques sur cible solide a vu le jour [9]. La recherche actuelle dans ce domaine se concentre sur la caractérisation des phénomènes de génération.

Pendant ma thèse j'ai étudié la génération d'harmoniques sur cible solide dans le cadre d'expériences avec le laser de la Salle Noire du Laboratoire d'Optique Appliquée. Mon travail fut principalement théorique (simulations, modélisations, interprétations physiques des mesures) mais j'ai aussi participé activement aux expériences de spectroscopie de la génération d'harmoniques au kHz. Dans le premier chapitre, je vais présenter l'émission d'impulsions attosecondes et le principe du miroir plasma, puis je vais introduire les émissions CWE [10, 11] et ROM [12, 13], les deux processus de génération d'harmoniques sur cible solide, je vais enfin utiliser les simulations PIC pour donner un aperçu quantitatif des harmoniques et des particules émises par un miroir plasma. Dans le deuxième chapitre, je vais détailler la modélisation du processus CWE et utiliser ce modèle pour démontrer les propriétés intrinsèques de cette émission. Je vais enfin présenter une étude de l'interaction laser-plasma à partir de résultats expérimentaux en impulsions longues (30 fs) et impulsions courtes (5 fs stabilisées en CEP), à travers la spectroscopie des CWE, en m'appuyant sur les résultats de simulation.

# Chapitre 4

## Propriétés des émissions d'un miroir plasma

### 4.1 Emission d'impulsions attosecondes

La génération d'harmoniques dans les cristaux provient de la réponse des électrons à l'oscillation imposée par le champ laser. L'oscillation des électrons est la somme d'une oscillation à la fréquence du laser  $\omega_0$  (majoritaire) et d'oscillations aux fréquences harmoniques  $n\omega_0$ ,  $n \geq 2$  :

$$x(t) = \alpha_1 E_0 \cos(\omega_0 t) + \alpha_2 E_0^2 \cos(2\omega_0 t) + \alpha_3 E_0^3 \cos(3\omega_0 t) + \dots \quad (4.1)$$

où  $x(t)$  est la position de l'électron,  $E_0$  est l'amplitude du champ laser et  $\alpha_i$  les constantes de réponse du milieu. Les électrons émettent alors un nouveau champ électromagnétique aux différentes fréquences harmoniques. Pour des raisons de non-linéarité, le champ est émis sous la forme d'une impulsion plus courte que l'impulsion laser de départ, le rapport entre les deux durées d'impulsion est  $\sqrt{n}$ , où  $n$  est l'ordre harmonique émis.

Dans le cas de génération d'harmoniques dans les milieux ionisés (gaz, solides), les nouvelles fréquences ne sont pas émises continument<sup>1</sup> mais localement au sein du cycle optique du laser : les électrons sont arrachés du milieu par le champ électrique, puis retournent dans le milieu quand le champ électrique s'inverse (Fig. 4.1). C'est l'interaction entre les électrons et le milieu ionisé en milieu de cycle (cas des harmoniques gaz et CWE, Fig. 4.1 (a) et (c)) ou le mouvement des électrons en début de cycle (cas des ROM, Fig. 4.1 (b)) qui conduit à l'émission de nouvelles

---

1. Il n'est pas strictement rigoureux de parler d'émission de fréquences à un instant donné car la définition même de fréquence nécessite une durée minimale, cela ne respecte pas l'inégalité d'Heisenberg. Cependant, il est plus aisé de décrire qualitativement les phénomènes étudiés ici en effectuant cet abus de langage.



fréquences. Cette émission a ainsi lieu durant une fraction du cycle optique du laser : ce sont des impulsions attosecondes.

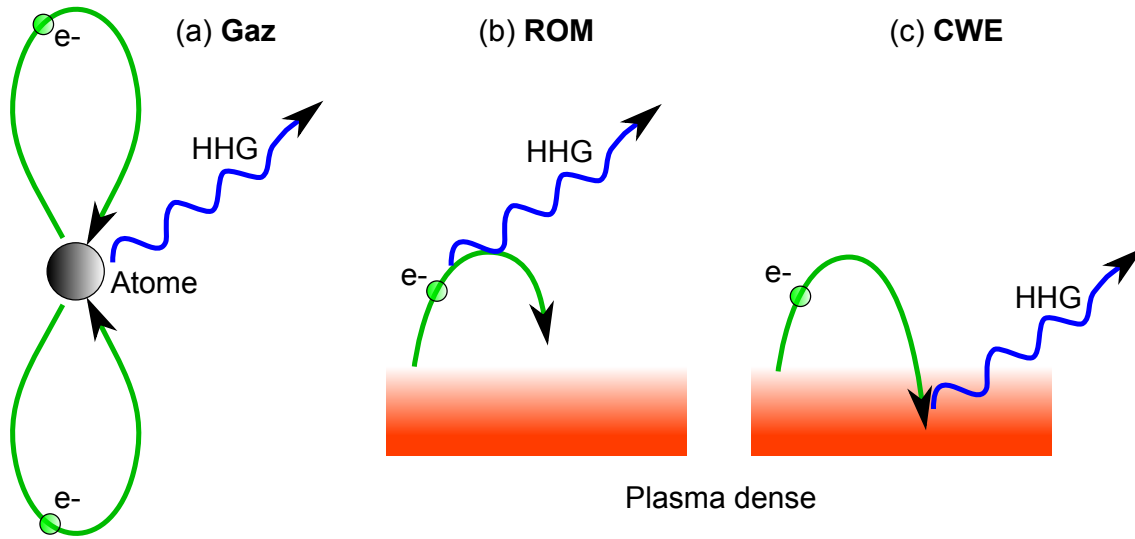


FIGURE 4.1 – Les différents mécanismes de génération d’harmoniques d’ordre élevé (HHG) dans un milieu ionisé, les mouvements des électrons sous l’effet du champ laser oscillant est représenté en vert.

Le spectre de ces impulsions attosecondes est continu. Cependant, le phénomène d’émission d’une impulsion attoseconde a lieu une fois (HHG plasma dense) ou deux fois (HHG gaz) pour chaque cycle optique. Dans le cas d’une impulsion laser de plusieurs cycles optiques (cas général), cela conduit à l’émission d’un train d’impulsions attosecondes (voir Fig. 4.2). Si on regarde désormais le spectre de ce train (ce qu’on observe expérimentalement) – il s’agit de la somme cohérente des spectres de chacune des impulsions attosecondes – on obtient un peigne de fréquence dont les pics sont centrés sur les fréquences harmoniques du laser (HHG plasma dense) ou seulement sur les fréquences harmoniques impaires (HHG gaz). C’est pour cette raison qu’on parle de génération d’harmoniques d’ordre élevé bien que chaque impulsion corresponde à un continuum dans le domaine spectral.

Nous allons étudier ici uniquement la génération d’harmoniques par réflexion sur un plasma surdense, appelé aussi miroir plasma.

## 4.2 Principe du miroir plasma

Quand une impulsion laser est focalisée sur une cible solide à une intensité supérieure à  $\approx 10^{13} \text{ W.cm}^{-2}$ , le solide est ionisé, un plasma se forme à sa surface (voir Fig. 4.3). Un plasma réfléchit les ondes électromagnétiques à la manière d’une surface métallique, car il contient des

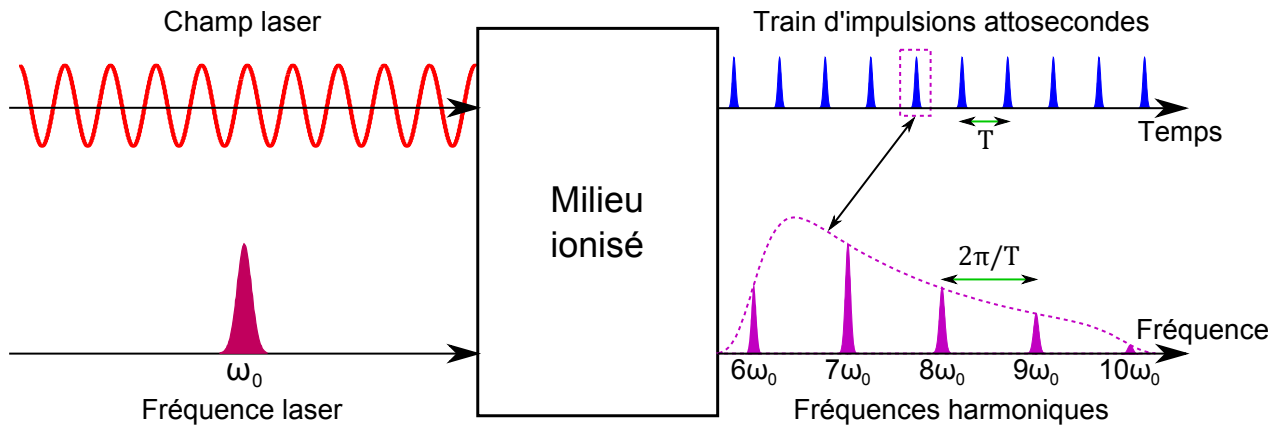


FIGURE 4.2 – Illustration temporelle (en haut) et spectrale (en bas) de la génération d'harmoniques d'ordre élevé. A chaque oscillation du champ laser correspond une impulsion attoseconde (deux impulsions dans les gaz) dont le spectre est représenté en pointillés. Le spectre du train attoseconde est lui constitué d'harmoniques.

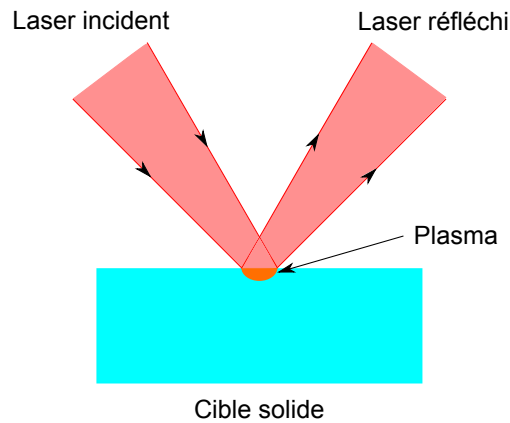


FIGURE 4.3 – Schéma de principe d'un miroir plasma

charges libres, c'est pour cette raison qu'on parle de miroir plasma [14, 15]. Ainsi, l'impulsion laser est réfléchi au niveau de la surface du plasma.

Il faut une densité électronique suffisante – appelée densité critique  $N_c$  – pour que l'impulsion laser soit effectivement réfléchi. Cette densité critique dépend de la fréquence du laser  $\omega_0$ . En effet, un plasma possède une fréquence propre d'oscillation électronique  $\omega_p$  [16] :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m_e \epsilon_0}} \quad (4.2)$$

où  $N$  est la densité électronique,  $m_e$  et  $e$  la masse et la charge de l'électron,  $\epsilon_0$  est la permittivité diélectrique du vide. La réflexion du laser a lieu quand  $\omega_p = \omega_0$  (en incidence normale) : le laser est résonant avec le plasma. Pour un laser à  $800 \text{ nm}$ , la densité critique est  $N_c = 1.75 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ . Un plasma dont la fréquence d'oscillation est supérieure à la fréquence

laser est un plasma sur-dense ou sur-critique à la fréquence  $\omega_0$ . La densité plasma maximale  $N_{max}$  d'un solide est égale à sa densité électronique (le solide est alors entièrement ionisé) :

$$N_{max} = \frac{Z}{M_a} \rho N_A \quad (4.3)$$

où  $Z$  est le numéro atomique,  $M_a$  la masse atomique,  $\rho$  la masse volumique du solide et  $N_A$  le nombre d'Avogadro. Pour les cibles solides usuelles (plastique, verre, métal),  $N_{max}$  est de l'ordre de quelques centaines de  $N_c$ . On a ainsi toujours formation d'un miroir plasma si le solide est beaucoup ionisé.

Dans le cas d'une interaction laser-plasma à très haute intensité, l'ionisation de la cible solide a lieu avant le maximum de l'impulsion. En effet, une impulsion laser usuelle possède un piédestal (voir Fig. 4.4) dont l'intensité, relativement faible, peut être suffisante pour ioniser la cible. L'instant de création du plasma dépend ainsi du contraste du laser (ratio entre le maximum de l'impulsion et le maximum du piédestal,  $10^7$  sur la Fig. 4.4).

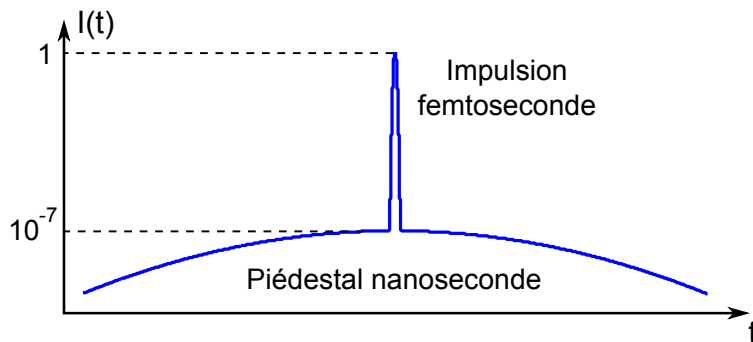


FIGURE 4.4 – Exemple de profil temporel d'une impulsion laser ultracourte à l'échelle nanoseconde.

### 4.3 Génération d'harmoniques sur miroir plasma

Dans les expériences de génération d'harmoniques sur miroir plasma, les intensités requises sont telles que le plasma se forme avant l'arrivée du pic principal de l'impulsion. C'est le front montant de l'impulsion laser qui crée le plasma, l'interaction en elle-même a lieu plus tard, au voisinage du maximum d'intensité. Nous verrons que le délai entre la création du plasma et l'interaction laser-plasma proprement dite est un élément crucial dans la génération d'harmoniques. Deux mécanismes de génération d'harmoniques d'ordre élevé sur miroir plasma ont été identifiés. Il s'agit du miroir oscillant relativiste (Relativistic Oscillating Mirror, ROM) [12] et de l'émission cohérente de sillage (Coherent Wake Emission, CWE) [10]. Le premier a

lieu pour des intensités supérieures à  $10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$ , le second à partir de  $10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ . Ces deux mécanismes ne sont pas en concurrence, les émissions ROM et CWE n'ont pas lieu au même endroit et peuvent être observés simultanément dans des conditions bien précises. Cependant, il proviennent du même phénomène : à la surface du plasma dense, des électrons sont arrachés vers le vide puis renvoyés vers le plasma par le champ laser oscillant (voir Fig. 4.1(b) et (c)). Ce phénomène a été décrit pour la première fois par Brunel [17] pour expliquer l'absorption non résonante d'énergie dans l'interaction laser-plasma avec un laser en incidence oblique polarisé P. Les électrons arrachés par la composante normale du laser sont ainsi appelés électrons de Brunel. En incidence normale ou en polarisation S, il n'y a pas de champ électrique normal à la surface et donc pas d'électrons de Brunel.

### 4.3.1 Relativistic Oscillating Mirror (ROM)

L'émission ROM a lieu à la surface du plasma, elle provient de l'interaction entre le champ laser et les électrons de Brunel dans le vide. Le déplacement des électrons de Brunel sous l'effet du champ laser oscillant entraîne un mouvement périodique de la surface électronique du plasma. Le laser est alors réfléchi sur un miroir oscillant, il subit un effet Doppler d'autant plus fort que le déplacement du miroir est rapide. Cet effet se calcule facilement dans le cas d'un miroir se déplaçant à vitesse constante  $v$  (Fig. 4.5). Les champs électriques incident  $E_i$  et réfléchi  $E_r$  (de fréquences  $\omega_i$  et  $\omega_r$ ) s'écrivent :

$$E_i(x, t) \propto \cos \omega_i \left( t + \frac{x}{c} \right) \quad (4.4)$$

$$E_r(x, t) \propto \cos \omega_r \left( t - \frac{x}{c} \right) \quad (4.5)$$

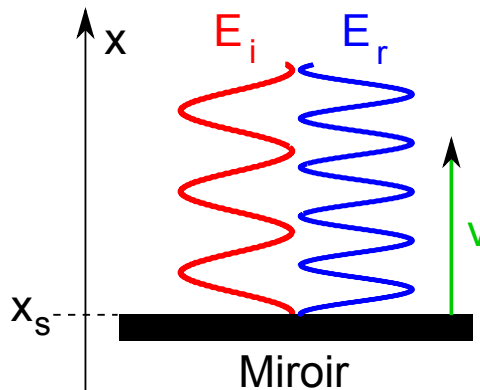


FIGURE 4.5 – Effet Doppler électromagnétique créé par un miroir en mouvement, le champ réfléchi  $E_r$  a une fréquence plus élevée que le champ incident  $E_i$ .

A la surface du miroir on a  $E_i(x_s, t) = -E_r(x_s, t)$ . Avec  $x_s = vt$ , donc :

$$\frac{\omega_r}{\omega_i} = \frac{1 + \beta}{1 - \beta} = (1 + \beta)^2 \gamma^2 \quad (4.6)$$

où  $\beta = v/c$  et  $\gamma = 1/\sqrt{1 - \beta^2}$ . Pour une vitesse relativiste ( $\gamma > \sqrt{2}$ ), le champ réfléchi a une fréquence  $\omega_r > 5\omega_i$ . Comme sa vitesse varie dans le temps sous l'effet du champ laser, le miroir oscillant relativiste (ROM) émet une distribution continue de nouvelles fréquences. Ces nouvelles fréquences sont générées par double effet Doppler usuel (cas de l'ambulance) : un déplacement vers la source à la vitesse  $v$  implique la réception de la fréquence  $\omega' = \omega_0(1 + \beta)$ , un déplacement de la source vers l'observateur à la vitesse  $v$  implique la réception de la fréquence  $\omega' = \omega_0/(1 - \beta)$ .

Pour relier l'effet Doppler à l'intensité laser, on calcule la vitesse maximale d'un électron soumis à un champ oscillant  $E_0 \cos \omega t$  :

$$v_{osc} = \frac{eE_0}{m_e \omega_0} \quad (4.7)$$

où  $e$  et  $m_e$  sont la charge et la masse électronique. Pour atteindre une vitesse  $v_{osc} = c$  dans le modèle classique, l'intensité  $I$  du champ doit être supérieure à l'intensité relativiste  $I_0$  définie par  $I_0 \lambda^2 = 1.37 \times 10^{18} \text{ W.cm}^{-2} \cdot \mu\text{m}^2$ , où  $\lambda$  est la longueur d'onde du champ laser. On définit le champ électrique normalisé  $a_0 = \sqrt{I/I_0}$ , on parle alors d'intensité relativiste si  $a_0 > 1$ .

Le miroir ayant un mouvement oscillant, l'émission de nouvelles fréquences a lieu quand les électrons ont une grande vitesse, c'est-à-dire seulement pendant une fraction du cycle laser, ce qui correspond à l'émission d'une impulsion attoseconde. Le mécanisme ROM permet donc de générer des impulsions attosecondes a priori sans limite d'intensité à des fréquences d'autant plus hautes que le laser est intense. Il n'apparaît cependant que pour des intensités relativistes.

### 4.3.2 Coherent Wake Emission (CWE)

L'émission CWE a lieu à l'intérieur du plasma qui est excité par les électrons de Brunel. Après leur excursion dans le vide, il sont renvoyés dans le plasma quand le champ électrique du laser s'inverse (voir Fig. 4.6(a) et (b)). Au sein d'un cycle optique, au fur et à mesure que le champ laser augmente, les électrons de Brunel sont arrachés du plasma. L'électron  $e_1$  arraché au début du cycle laser va retourner dans le plasma plus tard, et avec une vitesse plus grande, que l'électron  $e_2$  arraché plus tard dans le cycle laser (Fig. 4.6(b)). Leurs trajectoires vont donc se croiser à l'intérieur du plasma créant localement un pic de densité électronique. La variation de densité électronique suite à ce croisement d'électrons est représentée sur la Fig. 4.6(c). Ce pic

excite le plasma et déclenche une oscillation des électrons du plasma à la fréquence  $\omega_p$  (Eq. 4.2). Le plasma émet alors à la fréquence  $\omega_p$  par conversion de mode linéaire [18, 19] pendant une durée très courte (pour des raisons de cohérence temporelle [10]), dans la direction spéculaire (cela provient de la cohérence spatiale similaire à la réflexion sur un miroir).

En appliquant ce raisonnement à l'ensemble des électrons de Brunel, on constate qu'ils vont se croiser à différentes profondeurs dans le plasma. Un pic de densité électronique se déplace dans le plasma le long de la courbe en pointillés rouges sur la Fig. 4.6(d). Dans son sillage, le pic de densité excite le plasma à une fréquence qui dépend de la profondeur (les oscillations de densité électronique sont représentées en échelle de couleur). En effet, le plasma ayant été créé avant l'arrivée du pic principal de l'impulsion laser, il s'est détendu dans le vide et présente un gradient exponentiel de densité. Il possède donc une distribution de densité de  $N_c$  à  $N_{max}$  (les électrons de la région  $N < N_c$  sont des électrons de Brunel), les oscillations plasmas sont ainsi de plus en plus rapides quand on s'enfonce dans le plasma (voir Fig. 4.6(d)). Celui-ci émet sur une distribution de fréquences de  $\omega_0$  à  $\omega_{pmax}$  [11] :

$$\omega_{pmax} = \sqrt{\frac{N_{max}}{N_c}} \omega_0. \quad (4.8)$$

L'émission cohérente de sillage (CWE) se caractérise ainsi par une impulsion attoseconde dont le spectre est limité par la fréquence de coupure  $\omega_{pmax}$ . Cette fréquence de coupure dépend du type de matériau utilisé,  $\omega_{pmax} \approx 20 \omega_0$  sur de l'aluminium et sur du verre,  $\omega_{pmax} \approx 15 \omega_0$  sur du plastique.

### 4.3.3 Illustration des deux phénomènes

La Fig. 4.7 présente de manière concrète l'émission d'impulsions attosecondes, c'est une photographie du plasma et du champ électromagnétique. Cette image a été obtenue à la suite d'une simulation de plusieurs milliers d'heures en utilisant un code PIC, dont le fonctionnement est décrit dans le chapitre suivant. C'est une carte à deux dimensions (spatiales) de la densité électronique et des impulsions CWE et ROM (impulsions attosecondes) au cours de l'interaction. Le champ laser n'est pas représenté, il arrive de la gauche avec une incidence oblique, sa tache focale s'étale sur l'ensemble de l'image, son intensité au centre est  $a_0 = 1.6$ . Le plasma se situe en bas de l'image, les fronts d'intensité des impulsions attosecondes sont en échelle de couleur violette, les impulsions se propagent dans la direction orthogonale à leur front d'intensité. Les gerbes d'électrons de Brunel sont présentes périodiquement à la surface du plasma. Les émissions ROM naissent au niveau de ces jets d'électrons et n'apparaissent qu'au centre

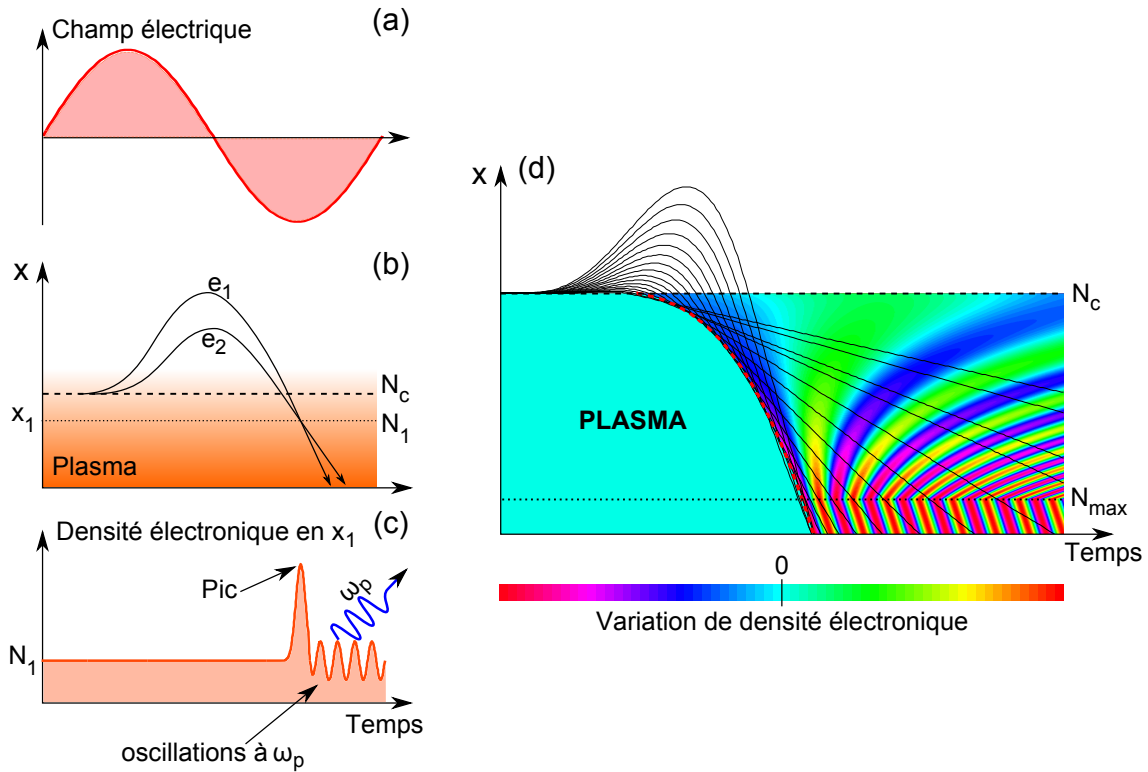


FIGURE 4.6 – Mécanisme d'émission cohérente de sillage (CWE). (a) Champ laser initial. (b) Trajectoires de deux électrons de Brunel à la surface du plasma. (c) Evolution temporelle de la densité électronique du plasma à la profondeur  $x_1$ . (d) Carte de variation de densité électronique du plasma sous l'effet du croisement de l'ensemble des électrons de Brunel : leurs trajectoires (lignes noires) forment une caustique (pointillés rouges) sur laquelle apparaît un pic électronique qui déclenche les oscillations plasma. Le plasma étant plus dense en profondeur, les oscillations y sont plus rapides.

de la tache focale ( $a_0 > 1$ ). Les émissions CWE proviennent de l'intérieur du plasma, avec un retard sur les ROM, elles ont lieu même en bord de tache focale ( $a_0 < 1$ ).

C'est avec ce type de diagnostic que l'on peut identifier l'origine (en termes de mécanismes ROM ou CWE) des impulsions attosecondes dans les simulations PIC. Ces simulations permettent donc d'étudier l'interaction laser-plasma, c'est d'ailleurs en utilisant de telles simulations que furent découvertes les émissions CWE. Dans le chapitre suivant, nous allons utiliser les résultats de simulations PIC pour décrire qualitativement les caractéristiques spectrales, temporelles et spatiales des émissions ROM et CWE. Nous verrons aussi des résultats préliminaires sur l'émission de particules.

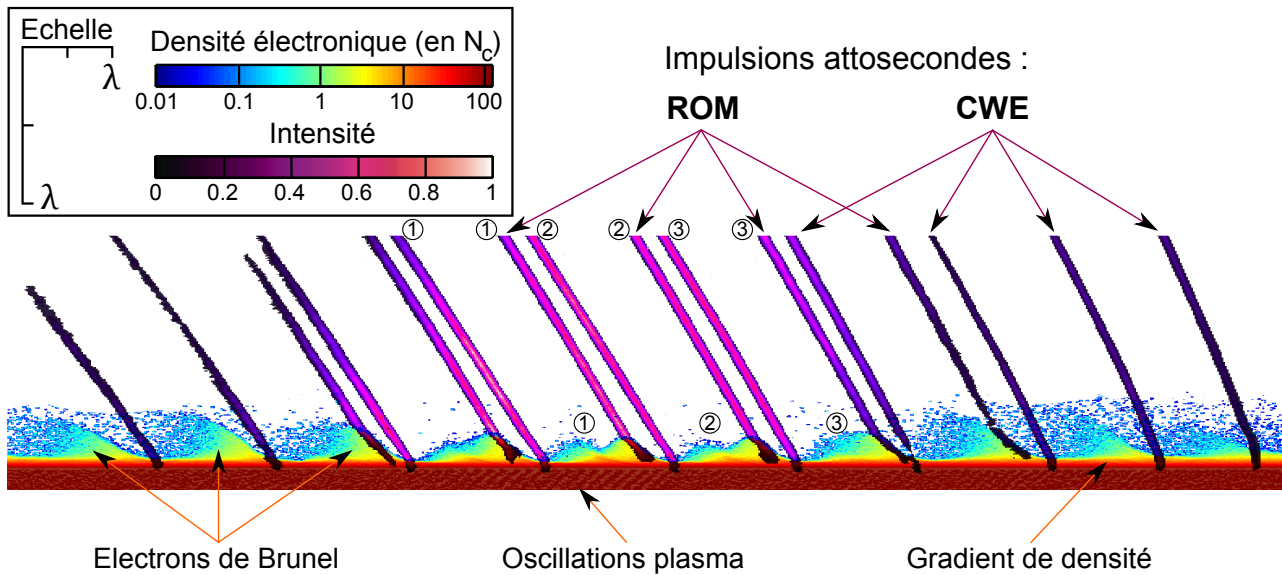


FIGURE 4.7 – Résultat de simulation PIC de l'interaction laser-plasma incidence oblique, polarisation p et  $a_0 = 1.6$  : superposition du champ attoseconde (harmoniques 5 à 10) et de la densité électronique. La dimension verticale est dilatée pour mettre en valeur les gerbes d'électrons de Brunel et le gradient de plasma. Les numéros indiquent les deux impulsions créées par chaque gerbe d'électrons.

## 4.4 Simulations PIC (Particle In Cell) de l'interaction laser-plasma surdense

### 4.4.1 Principe

Une simulation PIC (Particle In Cell) est une méthode de résolution numérique d'équations différentielles partielles, particulièrement adaptée à l'interaction laser-plasma. Cette méthode repose sur le calcul des trajectoires de nombreuses particules chargées sous l'effet de la force de Lorentz et en déduit les modifications du champ électromagnétique à partir des équations de Maxwell [20]. L'idée de base est de suivre le mouvement des particules dans un référentiel Lagrangien et de calculer les densités et les courants dans un maillage spatial Eulérien (fixe). Comme un plasma contient un nombre extrêmement grand de particules, les codes PIC utilisent des macro-particules afin de rendre possible la simulation. Une macro-particule est une particule virtuelle qui représente de nombreuses particules (jusqu'à plusieurs millions d'électrons ou d'ions). L'utilisation de telles particules est possible car la force de Lorentz dépend seulement du ratio charge/masse ( $Z/m$ ). Ainsi une macro-particule va suivre la même trajectoire qu'une vraie particule. La simulation PIC est ainsi une manière d'étudier un phénomène macroscopique



en prenant en compte toutes les interactions microscopiques. En choisissant un maillage assez fin et des macro-particules assez petites, faire une simulation PIC revient à faire une expérience virtuelle avec des conditions initiales parfaitement définies (ce qui n'est pas forcément le cas expérimentalement).

A chaque pas de temps  $t$  le code PIC suit la procédure suivante :

1. Résolution de l'équation du mouvement des particules.
2. Interpolation de la nouvelle distribution de densité et de courant sur le maillage.
3. Calcul du champ électromagnétique sur le maillage.
4. Interpolation du champ électromagnétique à la position des particules.

La simulation s'effectue dans un domaine fini divisé en deux parties à l'état initial : le plasma en bas de la boîte de simulation et du vide dans le reste de la boîte (Fig. 4.8). Pour des raisons de conservation de charge et de respect des équations de Maxwell, la boîte possède des conditions aux limites définies en début de simulation :

- Conditions périodiques : quand une particule atteint un bord, sa trajectoire est prolongée à partir du bord opposé, le champ électromagnétique s'additionne de la même manière.
- Conditions absorbantes : quand une particule atteint un bord, elle est absorbée puis réinjectée avec une vitesse thermique, le champ électromagnétique est absorbé.

En pratique, les conditions à gauche et à droite sont périodiques et en haut et en bas sont absorbantes.

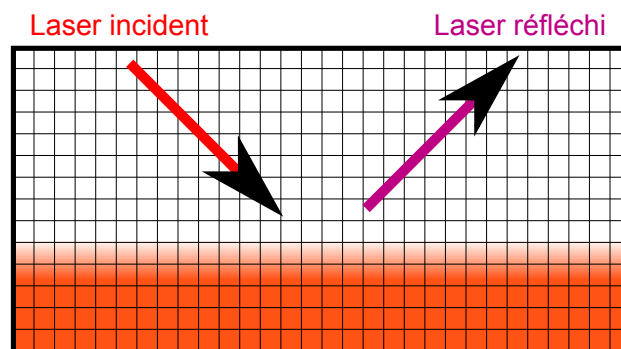


FIGURE 4.8 – Boîte de simulation PIC 2D d'une interaction laser-plasma en incidence oblique, le plasma est en orange.

Pour effectuer des simulations de génération d'harmoniques sur cible solide, j'ai utilisé le code PIC 2D CALDER conçu par Erik Lefebvre du CEA/DAM [21]. Les calculs ont été réalisés par les calculateurs du CCRT, du CINES et de l'IDRIS. Les conditions de simulation (maillage spatial et temporel, nombre de particules par maille) sont optimisées pour minimiser le temps

de calcul tout en conservant une précision suffisante. Pour donner quelques ordres de grandeurs, les simulations 2D de génération d'harmoniques sur cible solide nécessitent plusieurs millions de mailles ( $N_x N_y > 10^6$ ), avec de 10 à 100 particules par maille, et s'effectuent sur quelques dizaines de milliers de pas temporels ( $N_t > 10^4$ ). Comme ces simulations requièrent plusieurs milliers d'heures de calcul, ceux-ci sont parallélisés sur des centaines de processeurs dans les supercalculateurs.

Dans le code CALDER, le plasma est déjà présent en début de simulation car on n'étudie pas avec ce code PIC l'ionisation de la cible solide mais l'interaction laser-plasma seule. La densité de charge ionique est égale à la densité de charge électronique (neutralité du plasma) et on considère que les ions sont constitués d'un nombre égal de protons et de neutrons. Le plasma contient ainsi deux types de macro-particules : les macro-électrons  $Z/m = -e/m_e$  et les macro-ions  $Z/m = e/(m_p + m_n)$ , ces derniers ayant une dynamique beaucoup plus lente que les électrons. Selon les conditions de simulation, on peut fixer les ions pour réduire le bruit, on parle alors de simulations en ions fixes.

Les conditions initiales de la simulation définissent le laser incident (intensité, polarisation, durée, extension spatiale, chirp et CEP) et le plasma (température et distribution de densité). On donne au plasma un gradient exponentiel de densité en direction du vide pour prendre en compte son expansion avant l'arrivée de l'impulsion principale. Dans toutes les simulations présentées ici, le laser a une incidence oblique de  $45^\circ$  et il est polarisé P (le champ électrique du laser incident possède une composante normale à la surface), la température du plasma est de  $T_e = 500 \text{ eV}$  pour les électrons et  $T_i = 100 \text{ eV}$  pour les ions (modèle à deux températures [16]). Les températures du plasma sont de l'ordre de grandeur de ce qui est prédit par les modèles hydrodynamiques de chauffage du plasma par le champ laser à nos intensités [22].

En sortie, le code CALDER peut fournir toutes les informations sur les particules (vitesse, densité, courant) et sur le champ électromagnétique en fonction du temps et de l'espace. La quantité d'information étant colossale ( $N_x N_y N_t > 10^9$ ), on définit des diagnostics partiels avant de lancer la simulation (par exemple, la densité électronique tous les 100 pas temporels et 10 pas spatiaux). Des cartes 2D ( $x, y$ ) à un instant donné sont représentées sur la Fig. 4.9.

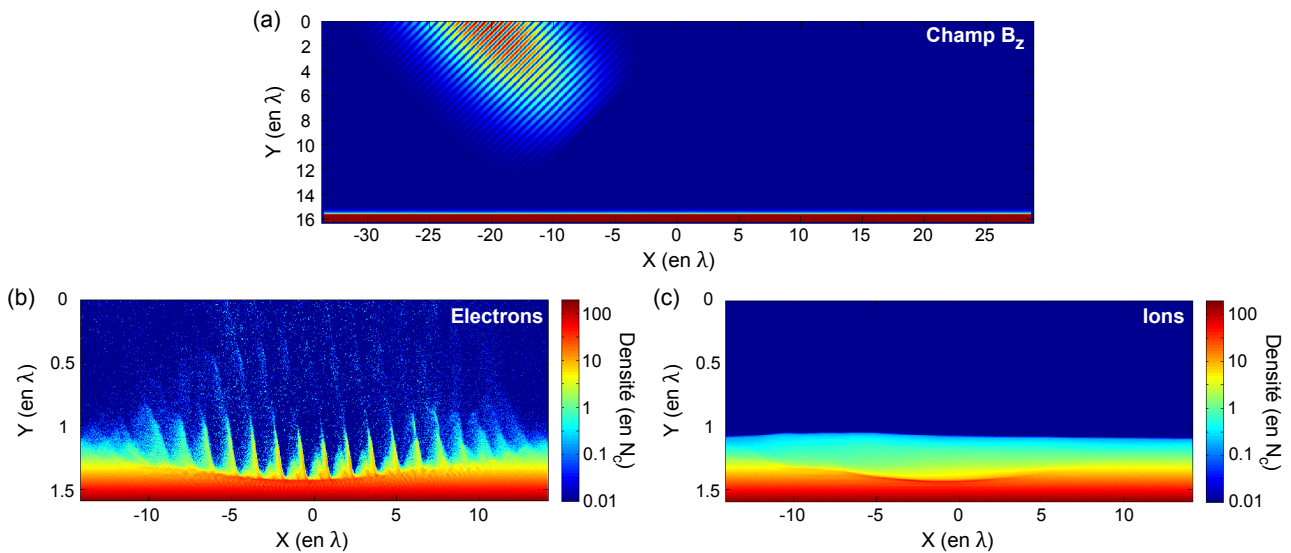


FIGURE 4.9 – (a) Carte de champ  $|B_z|$  en début de simulation. Cartes de densité électronique (b) et ionique (c) en milieu de simulation (le maximum du laser est au niveau du plasma).

On applique ensuite des traitements mathématiques sur ces données pour remonter aux informations qui nous intéressent. La Fig. 4.10 montre un exemple de traitement : la carte de champ  $|B_z|$  fournie par CALDER est constituée des champs lasers incident et réfléchi qui interfèrent au voisinage du point focal (a). En appliquant un filtre passe-bande sur les fréquences harmoniques, le champ incident disparaît et le champ réfléchi présente un train d'impulsions attosecondes (b). On regarde préférentiellement le champ magnétique normal au plan de simulation  $B_z$  car il contient toutes les informations sur le champ électromagnétique P (le champ électrique est décomposé en  $E_x$  et  $E_y$ ).

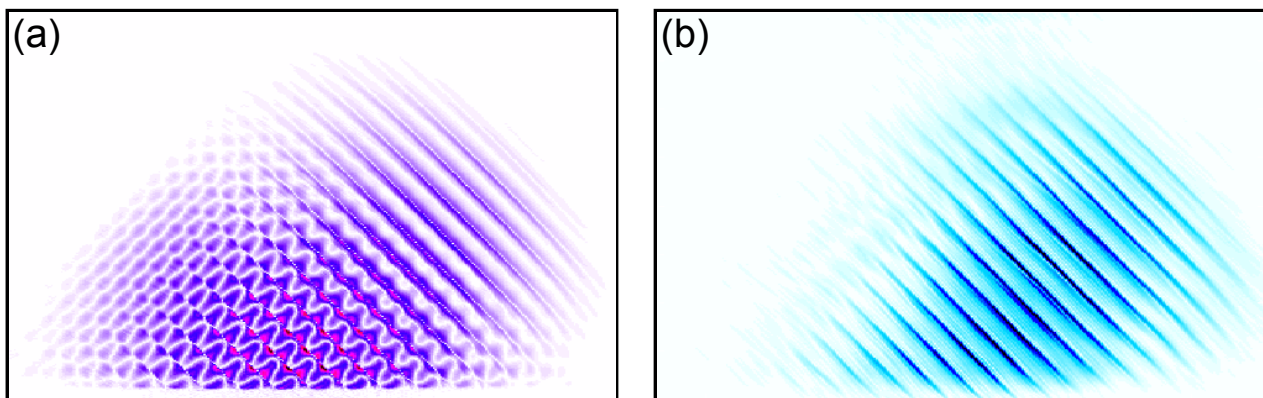


FIGURE 4.10 – (a) Carte de champ  $|B_z|$  en milieu de simulation : on observe des interférences spatiales au niveau du plasma entre les champs incidents et réfléchis. (b) Carte de champ  $|B_z|$  après un filtrage sur les fréquences harmoniques du laser : on observe le train d'impulsions attosecondes émis par le plasma.

Durant ma thèse, j'ai effectué des simulations 2D avec le code CALDER pour étudier spécifiquement les processus ROM et CWE, et l'accélération de protons. Jusqu'alors, les simulations PIC de génération d'harmoniques sur miroir plasma étaient principalement à une dimension ce qui ne permettait pas d'accéder aux propriétés spatiales des émissions. Le passage à deux dimensions a nécessité un gros travail sur l'optimisation des conditions de simulation, sur le choix des diagnostics et sur le traitement des données de sortie. Les résultats de ces simulations sont présentés dans les paragraphes suivants.

#### 4.4.2 Simulations de ROM

Pour étudier exclusivement l'émission ROM, on choisit des conditions de simulations ultra-relativistes ( $a_0 > 1$ ).

##### Conditions de simulation

Nous allons comparer ici les résultats de simulations à des intensités relativistes  $a_0 = 3$  (cas ROMa03L8) et  $a_0 = 10$  (cas ROMa010L20). Les principaux paramètres de simulation sont donnés dans le tableau 4.1, la tache focale du laser est gaussienne et l'enveloppe temporelle en  $\cos^2$ , les simulations sont effectuées en deux dimensions et les ions sont mobiles. La taille de la boîte de simulation est  $16 \times 60 \lambda^2$ .

Nom	Laser			Plasma		Paramètres			Temps de calcul
	$a_0$	$\tau$	Diam.	Grad.	$N_{max}$	$\delta x, \delta y$	$\delta t$	ppm	
ROMa03L8	3	$12 T_0$	$5\lambda$	$\lambda/8$	$200 N_c$	$\lambda/340$	$T_0/500$	20	$\approx 6000 h$
ROMa010L20	10	$11 T_0$	$4\lambda$	$\lambda/20$	$110 N_c$	$\lambda/340$	$T_0/500$	20	$\approx 6000 h$

TABLE 4.1 – Conditions de simulation du code PIC pour l'émission de ROM. Intensité ( $a_0$ ), durée ( $\tau$ ) et diamètre (Diam.) du laser ; gradient (Grad.) et densité maximale ( $N_{max}$ ) du plasma ; maillage spatial ( $\delta x, \delta y$ ), pas temporel ( $\delta t$ ) et nombre de particules par maille (ppm) ; temps de calcul.

La minimisation du bruit dû à la présence d'électrons dans toute la boîte de simulation est la principale difficulté des simulations PIC de ROM. C'est pour cette raison que la longueur de gradient de densité plasma n'est pas la même dans les deux simulations. Pour générer des impulsions ROM de manière optimale, le gradient doit être de l'ordre de  $\lambda/10$  [11]. Un gradient long  $\lambda/8$  permet d'augmenter le signal à faible intensité car plus le gradient est long, plus il y a

d'électrons dans la partie sous-dense du plasma et donc plus il y a d'effet Doppler. Un gradient court  $\lambda/20$  diminue le signal mais a l'avantage de réduire le nombre d'électrons dans le vide (là où on regarde le champ électromagnétique) à forte intensité.

## Spectres

Les spectres d'émission ROM simulés dans les deux conditions du tableau 4.1 sont représentés sur la Fig. 4.11 en échelle logarithmique. Ils sont constitués d'harmoniques du laser et dans les deux cas ils dépassent la fréquence plasma ( $\omega_p = \sqrt{N_{max}/N_c}$ ). On remarque que le signal devient bruité aux hautes fréquences, notamment dans le cas ROMa03L8. Cela est dû au bruit numérique et à la présence d'électrons dans le vide qui perturbe diagnostique du champ. Le bruit est moins marqué dans le cas ROMa010L20 car l'efficacité de génération (et donc le signal harmonique) est plus grande. Il n'est pas raisonnable de comparer quantitativement ces spectres car les conditions diffèrent. On trouve cependant une caractéristique attendue de l'émission ROM : plus l'intensité est forte, plus les électrons sont rapides et l'effet Doppler est fort, donc plus le signal à une fréquence donnée est grand. On va désormais se concentrer sur les propriétés temporelles et spatiales des harmoniques 5 à 20 car ils sont peu bruités.

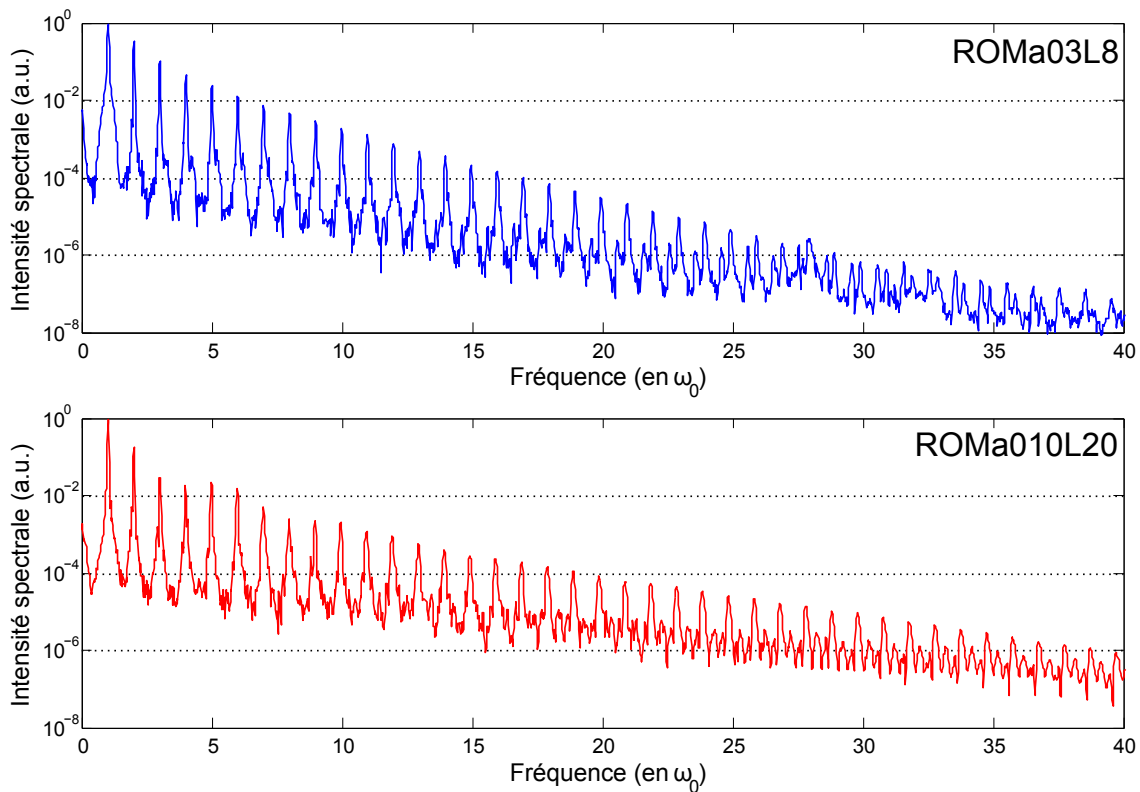


FIGURE 4.11 – Spectres d'émission ROM calculés en intégrant spatialement le module du spectre réfléchi issu de la simulation PIC.

### Train attoseconde

Pour discriminer le champ attoseconde émis du champ laser, on applique un filtre dans le domaine spectral qui sélectionne les fréquences supérieures à  $\omega_0$  puis on effectue une transformée de Fourier inverse. En filtrant de  $10\omega_0$  à  $20\omega_0$ , on obtient les trains attosecondes de la Fig. 4.12. L'enveloppe du champ laser est dessinée en vert, l'enveloppe du champ attoseconde est en rouge. Pour une enveloppe laser d'environ 16 cycles optiques à mi-hauteur, on compte 12 impulsions attosecondes à mi-hauteur. Cela reflète bien la non-linéarité du phénomène, (ici le signal harmonique est proportionnel à  $I^{1.8}$ ). A forte intensité, on observe d'une part une asymétrie de l'émission et d'autre part, on remarque la présence de doubles impulsions au voisinage du maximum du laser. Une étude de l'évolution de la densité électronique permet d'expliquer ces deux phénomènes.

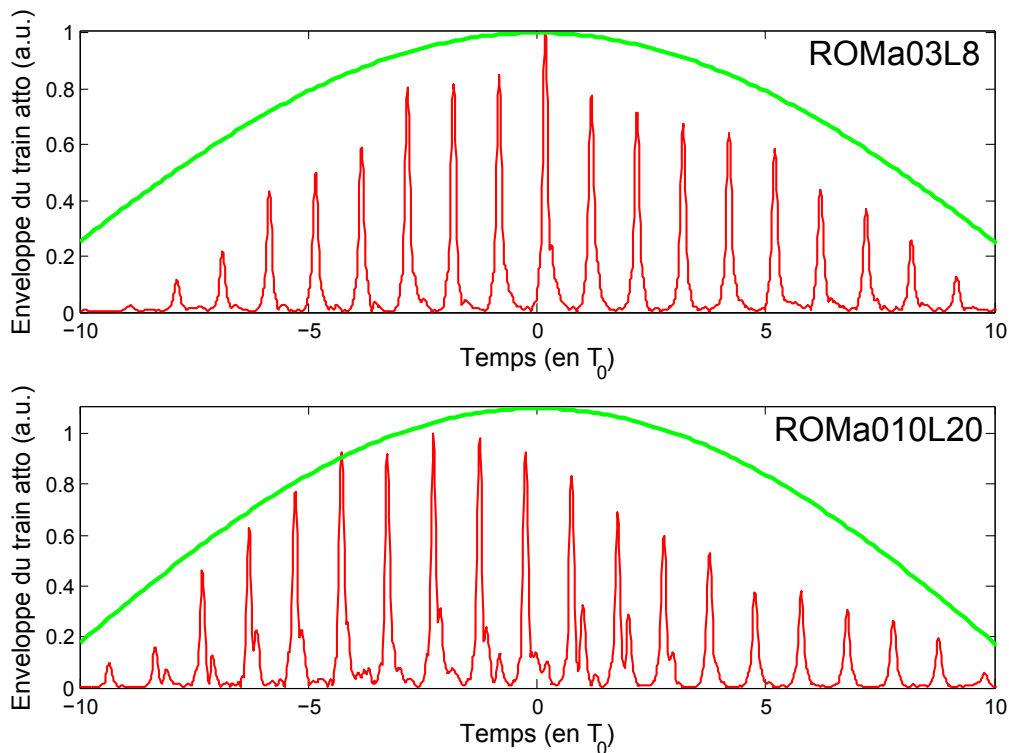


FIGURE 4.12 – Emission ROM d'un train d'impulsions attosecondes : enveloppe du champ électrique des harmoniques 10 à 20 (en rouge) et enveloppe du champ laser incident (en vert).

## Champ électrique

En zoomant sur le train attoseconde, on observe le champ électrique de chaque impulsion (Fig. 4.13). Il est intéressant de remarquer que les impulsions sont identiques et ne présentent pas de dérive de fréquence notable (chirp). En effet, l'émission ROM a lieu au moment où les électrons sont les plus rapides, toutes les fréquences sont émises autour de cet instant. La durée des impulsions correspond pratiquement à la limite de Fourier, c'est une caractéristique importante de l'émission ROM qui permet ainsi de générer des impulsions attoseconde comprimées. De plus, quand on augmente l'intensité, les impulsions sont plus courtes :  $\tau = 0.1 T_0$  pour  $a_0 = 3$  et  $\tau = 0.08 T_0$  pour  $a_0 = 10$  (soit respectivement  $270 \text{ as}$  et  $210 \text{ as}$ ). On voit sur la Fig. 4.11 que le rapport d'intensité entre les harmoniques 10 et 20 est de deux décades pour  $a_0 = 3$  et une décade pour  $a_0 = 10$ . La décroissance d'efficacité spectrale est plus faible à haute intensité, la largeur spectrale est donc plus grande et la durée limitée par transformée de Fourier est plus petite.

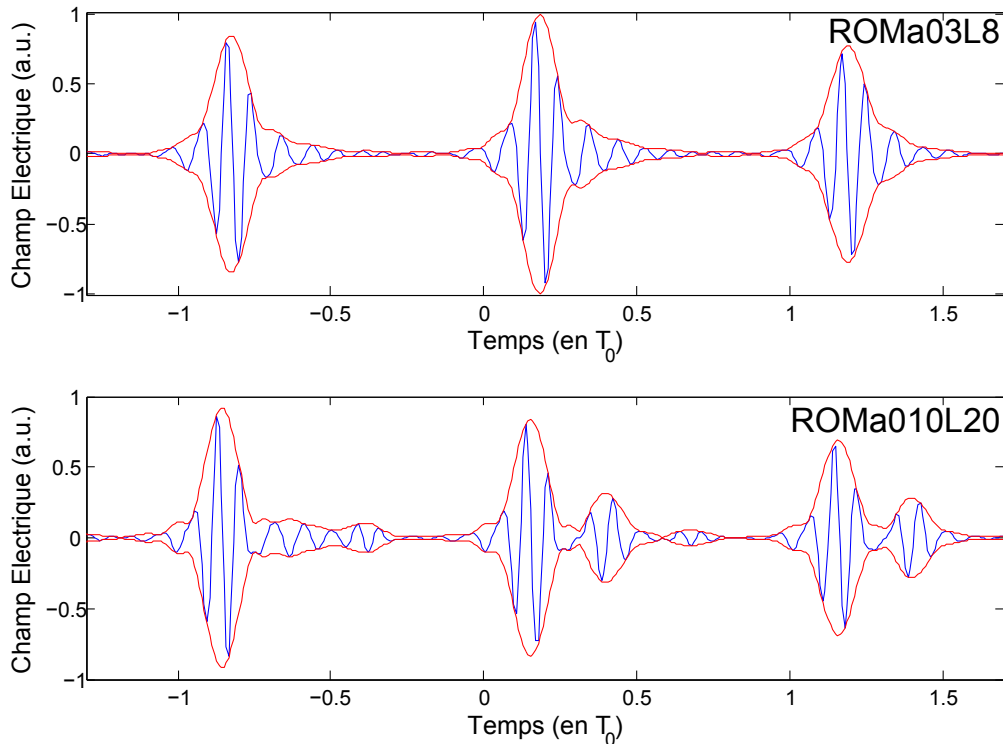


FIGURE 4.13 – Profil temporel des impulsions attosecondes ROM (harmoniques 10 à 20) : enveloppe (en rouge) et champ électrique (en bleu).

## Profil spatial

On effectue désormais un filtrage des harmoniques 5 à 15 sans intégrer spatialement, on obtient alors le profil spatio-temporel du train attoseconde (Fig. 4.14). On constate que les fronts d'intensité sont parfaitement plans ce qui montre que l'émission ROM a lieu au même instant quelque soit la position dans la tache focale : le temps d'émission de ROM ne dépend pas de l'intensité laser. Cette caractéristique est aussi visible dans le profil temporel du train attoseconde Fig. 4.12 : les impulsions attosecondes sont régulièrement espacées, séparées exactement d'un cycle optique. D'autre part, on retrouve les doubles impulsions dans le cas ROMa010L20, leur dimension spatiale est plus petite que les impulsions principales ce qui montre qu'elles apparaissent uniquement à très forte intensité (au voisinage du maximum spatio-temporel).

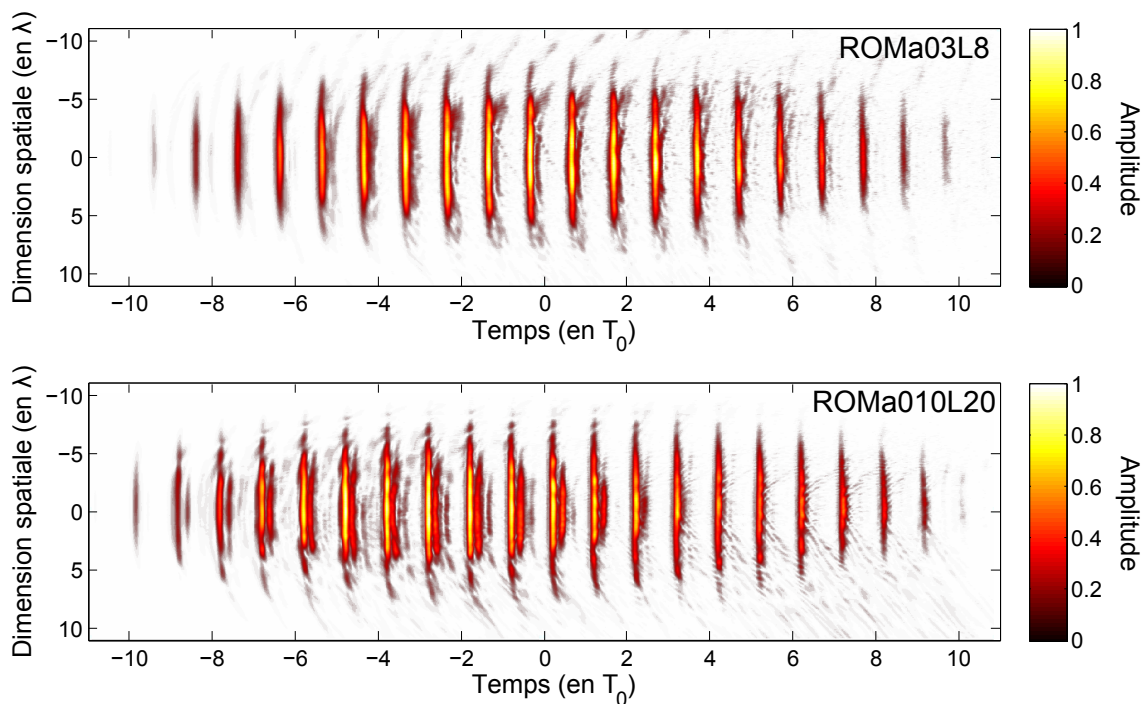


FIGURE 4.14 – Profil spatio-temporel du train attoseconde (enveloppe du champ) obtenu en filtrant les harmoniques 5 à 15.



## Cartes de densité

Comme l'émission ROM provient du mouvement des électrons à la surface de la cible, il est intéressant de regarder la distribution de densité plasma au cours de la simulation. Les figures 4.15 (a), (c) et (d) sont des cartes de densité 2D à la surface du plasma en échelle de couleur logarithmique dans le cas ROMa03L8, la largeur correspond à  $30\lambda$  et la hauteur  $1.6\lambda$ . La carte (a) montre le plasma (les distributions d'ions et d'électrons sont identiques) en début de simulation, son profil de densité est représenté en échelle linéaire sur la figure (b). Les cartes (c) et (d) montrent respectivement les électrons et les ions en milieu de simulation, au voisinage du maximum du laser. Les jets régulièrement espacés sur la carte (c) correspondent aux électrons de Brunel arrachés puis renvoyés dans le plasma au cours de chaque cycle optique, on les observe sur toute la tache focale. Au-dessus de certains pics, quelques électrons sont piégés par le laser et suivent ses fronts d'onde : ils forment des lignes parallèles. Ces électrons sont accélérés par le laser et peuvent constituer une source de particules [23]. La carte de densité ionique (d) montre la dynamique plus lente des ions : beaucoup plus lourds que les électrons, ils ne sont pas affectés par les oscillations du laser mais subissent une force moyenne qui déplace la surface du plasma (la force pondéromotrice). Cet enfoncement de la surface est aussi visible sur la carte de densité électronique. L'expansion de la partie à faible densité provient d'un processus d'accélération des ions par les électrons de Brunel qui est présenté dans la dernière partie de ce chapitre.

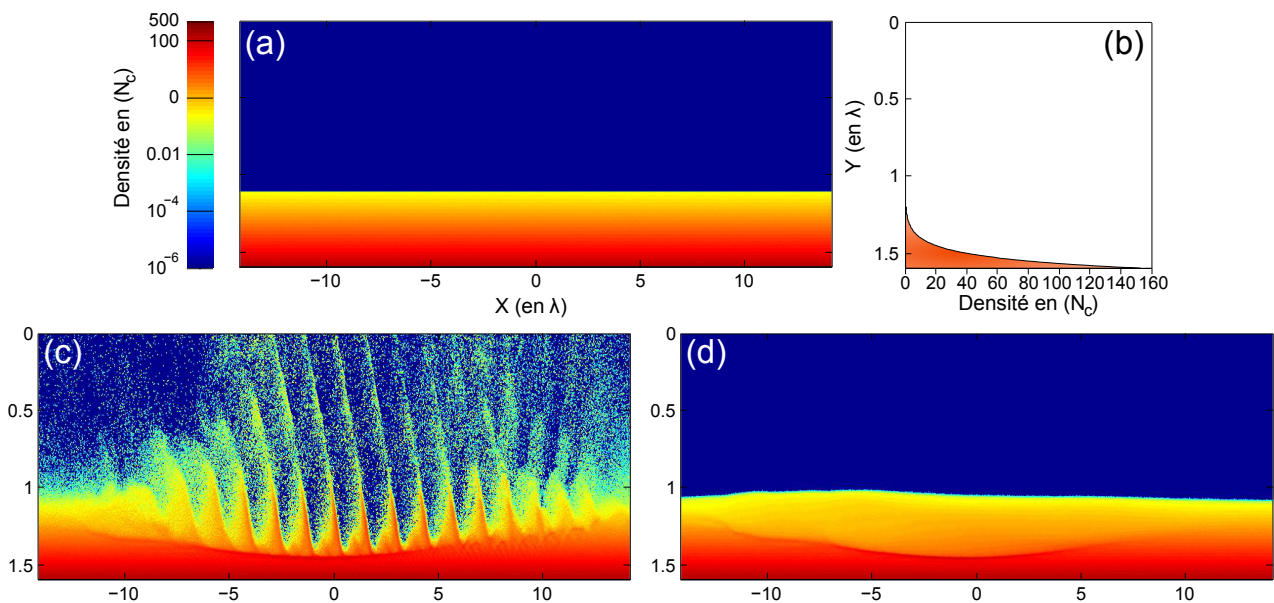


FIGURE 4.15 – Cas ROMa03L8 (incidence oblique  $45^\circ$ ). Gradient de plasma en début de simulation, (a) carte 2D et (b) profil exponentiel en Y ; Cartes de densité 2D d'électrons (c) et d'ions (d) durant la simulation.

Les cartes de densité à plus forte intensité (cas ROMa010L20 Fig. 4.16) et avec un gradient plus court ressemblent aux précédentes mais présentent quelques différences. Premièrement, il n'y a pas de processus d'accélération d'électrons (pas de jets qui suivent le laser réfléchi) car le gradient est trop court. Deuxièmement, on observe la présence de doubles jets d'électrons de Brunel à la surface du plasma au sein d'un même cycle optique. Cela explique les doubles impulsions observées dans le train attoseconde (Figs. 4.12 et 4.14). C'est le champ magnétique  $B$  qui provoque ces deuxièmes jets [24] : négligeable tant que les électrons sont peu rapides (force proportionnelle à  $|v \times B| = |vE|/c$ ), l'effet du champ  $B$  est équivalent à celui du champ  $E$  quand les électrons ont des vitesses relativistes. Les premiers électrons sont ramenés vers le plasma avant l'inversion du champ électrique sous l'effet de la force  $v \times B$  (premier jet), le champ laser continu alors de tirer des électrons qui forment un deuxième jet. Troisièmement, l'enfoncement de la surface entraîne un gradient localement très raide (pic de densité à  $500 N_c$ ) qui explique la baisse d'efficacité de génération dans la deuxième partie de l'impulsion observée sur l'enveloppe du train d'impulsions (Fig. 4.12).

Comme à plus faible intensité, on observe un enfoncement des jets d'électrons de Brunel, la source de ROM n'est plus parfaitement plane spatialement. Les distances sont faibles ( $< \lambda/10$ ) mais cela peut avoir de fortes conséquences sur la divergence des harmoniques comme prédit dans [27]. Nous allons voir dans le paragraphe suivant que l'enfoncement a aussi un effet sur le spectre des ROM.

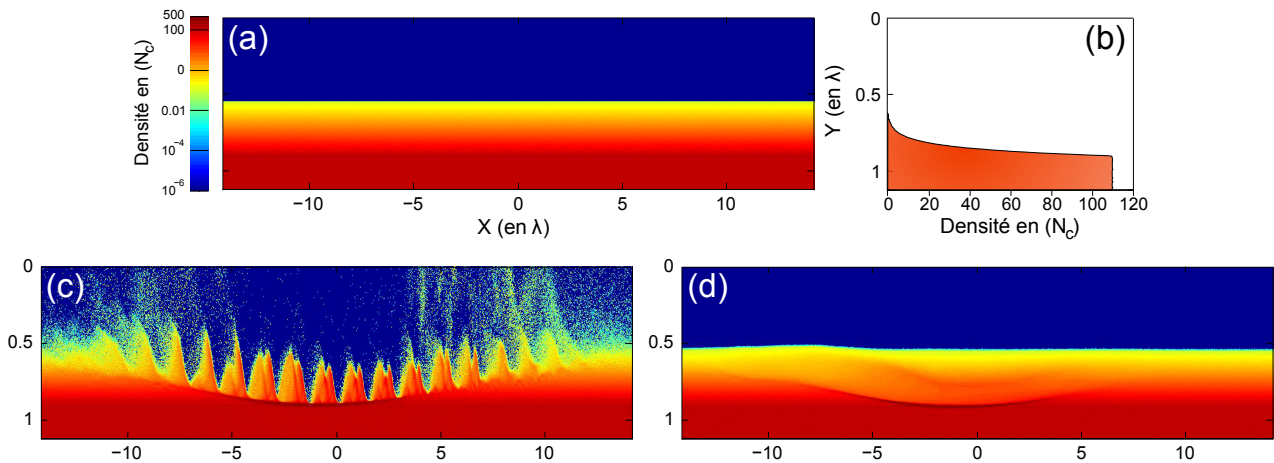


FIGURE 4.16 – Cas ROMa010L20 (incidence oblique  $45^\circ$ ). Gradient de plasma en début de simulation, (a) carte 2D et (b) profil exponentiel en Y ; Cartes de densité 2D d'électrons (c) et d'ions (d) durant la simulation.

## Enfoncement de la surface et effet Doppler

En effectuant une transformée de Fourier dans la direction temporelle sur la carte de champ 2D, on obtient le spectre ROM en fonction de l'espace, c'est-à-dire en fonction de la position sur la tache focale. Le résultat pour le cas ROMa010L20 est représenté sur la Fig. 4.17 pour les harmoniques 25 à 35. On observe un décalage des maxima du spectre par rapport aux fréquences harmoniques, et ce décalage est plus fort au centre de la tache focale (centrée en 0). Cet effet est plus marqué pour les fréquences les plus hautes, il correspond à un effet Doppler dû à l'enfoncement de la surface du plasma. Cet effet non-relativiste agit à l'inverse du processus ROM, les fréquences sont légèrement diminuées, on observe les harmoniques d'une fréquence  $\omega_1$  inférieure à  $\omega_0$ . Pour l'harmonique 30, on mesure un décalage de 25% au centre de la tache et de 15% à  $5\lambda$  du bord. On a ainsi  $\omega_1(0) = 0.9917\omega_0$  et  $\omega_1(5\lambda) = 0.995\omega_0$ . En utilisant la formule de l'effet Doppler inversée (ici la surface s'éloigne du laser) :  $\omega_1/\omega_0 = (1 - \beta)/(1 + \beta)$ , on trouve une vitesse moyenne d'enfoncement de la zone d'émission de  $1.25 \text{ nm/fs}$  au centre et de  $0.75 \text{ nm/fs}$  sur les bords. Sur toute la durée de l'interaction, la zone d'émission s'enfonce ainsi de quelques dizaines de  $\text{nm}$ , de manière plus marquée au centre. Expérimentalement, on peut évaluer la vitesse d'enfoncement moyenne sur toute la tache en mesurant le décalage des pics dans le spectre par rapport aux harmoniques du laser. La mesure sera d'autant plus précise que l'on regarde des harmoniques hautes.

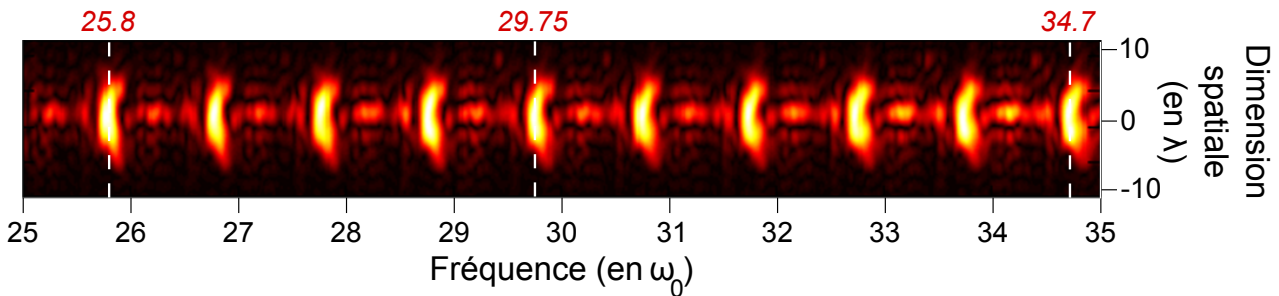


FIGURE 4.17 – Intensité spectrale en fonction de la position sur la tache focale (cas ROMa010L20).

Une étude plus approfondie de l'enfoncement de la surface a été effectuée [25] et sera détaillée dans la thèse de H. Vincenti, doctorant au SPAM (CEA Saclay). Nous avons étudié notamment l'effet de la courbure du plasma sur la divergence des impulsions attosecondes. Bien que les fronts d'intensité soient plans à haute intensité (Fig. 4.14), la phase spatiale des impulsions est courbée ce qui affecte leur divergence.

Les simulations PIC à des intensités relativistes nous ont permis de caractériser les propriétés

de l'émission ROM. Spectralement, elle dépend fortement de l'intensité en termes d'efficacité et de fréquence émise. Dans le domaine spatial, les fronts d'intensité des impulsions attosecondes sont plans. Enfin à très haute intensité, nous avons vu l'apparition de doubles impulsions et de l'enfoncement de la surface.

### 4.4.3 Simulations de CWE

#### Conditions de simulation

Il est plus facile d'étudier les CWE que les ROM dans les simulations PIC car les intensités sont plus faibles ( $a_0 < 1$ ), les gradients plus courts ( $\delta < \lambda/20$  [11]) et les fréquences émises plus petites ( $\omega < \omega_{pmax}$ ). Comme les excursions des électrons dans le vide s'effectuent sur une petite fraction de  $\lambda$ , la taille de la boîte de simulation est considérablement réduite ( $4 \times 30 \lambda^2$ ), ce qui permet d'augmenter la précision de la simulation (maillage spatial et temporel, nombre de particules par mailles) tout en réduisant la durée de simulation par rapport aux ROM. Les intensités étant faibles, la force pondéromotrice du laser sur les ions est négligeable ce qui justifie d'effectuer les simulations en ions fixes. Nous allons comparer l'émission CWE à des intensités différentes ( $a_0 = 0.2$  et  $a_0 = 0.4$ ) avec des paramètres de simulation et des conditions physiques identiques.

Nom	Laser			Plasma		Paramètres			Temps de calcul
	$a_0$	$\tau$	Diam.	Grad.	$N_{max}$	$\delta x, \delta y$	$\delta t$	ppm	
CWEa0p2long	0.2	$11.5 T_0$	$4\lambda$	$\lambda/100$	$200 N_c$	$\lambda/420$	$T_0/630$	100	$\approx 2500 h$
CWEa0p4long	0.4	$11.5 T_0$	$4\lambda$	$\lambda/100$	$200 N_c$	$\lambda/420$	$T_0/630$	100	$\approx 2500 h$

TABLE 4.2 – Conditions de simulation du code PIC pour l'émission de CWE. Intensité ( $a_0$ ), durée ( $\tau$ ) et diamètre (Diam.) du laser ; gradient (Grad.) et densité maximale ( $N_{max}$ ) du plasma ; maillage spatial ( $\delta x, \delta y$ ), pas temporel ( $\delta t$ ) et nombre de particules par maille (ppm) ; temps de calcul.

#### Spectres

La Fig. 4.18 montre le spectre du faisceau réfléchi dans les conditions décrites ci-dessus. Le mécanisme ROM ne pouvant pas avoir lieu, on observe un spectre harmonique de CWE. Les caractéristiques spectrales sont très différentes des ROM : l'émission harmonique présente un 'cut-off' ( $14\omega_0$ ), l'efficacité de génération est beaucoup plus faible pour les harmoniques basses et décroît moins vite vers les harmoniques hautes que pour les ROM, les pics harmoniques

sont plus larges et leur largeur augmente avec l'ordre harmonique, et enfin, l'allure générale du spectre ne varie pas quand on change l'intensité. La limite spectrale provient de la fréquence plasma maximale  $\omega_{pmax} = \sqrt{N_{max}/N_c} \approx 14\omega_0$ , elle dépend du maximum de densité  $N_{max}$  (voir equation 4.8). L'efficacité de génération est plus faible pour les CWE que pour les ROM car de manière qualitative, le processus ROM est un transfert d'énergie du laser aux électrons de Brunel qui émettent directement les impulsions attosecondes, le processus CWE possède une étape supplémentaire peu efficace : seule une partie de l'énergie des électrons de Brunel est transférée dans les oscillations plasma qui émettent les impulsions attosecondes (le processus CWE est d'ailleurs beaucoup plus long que le processus ROM, ce qui explique la forte dépendance des temps d'émission aux conditions de l'interaction laser-plasma, idée centrale des Chapitres 5 et 6). Enfin, le signal harmonique est peu dépendant de la fréquence (un ordre de grandeur entre l'harmonique 3 et l'harmonique 10) car tout le gradient de densité plasma est excité par le croisement des électrons de Brunel.

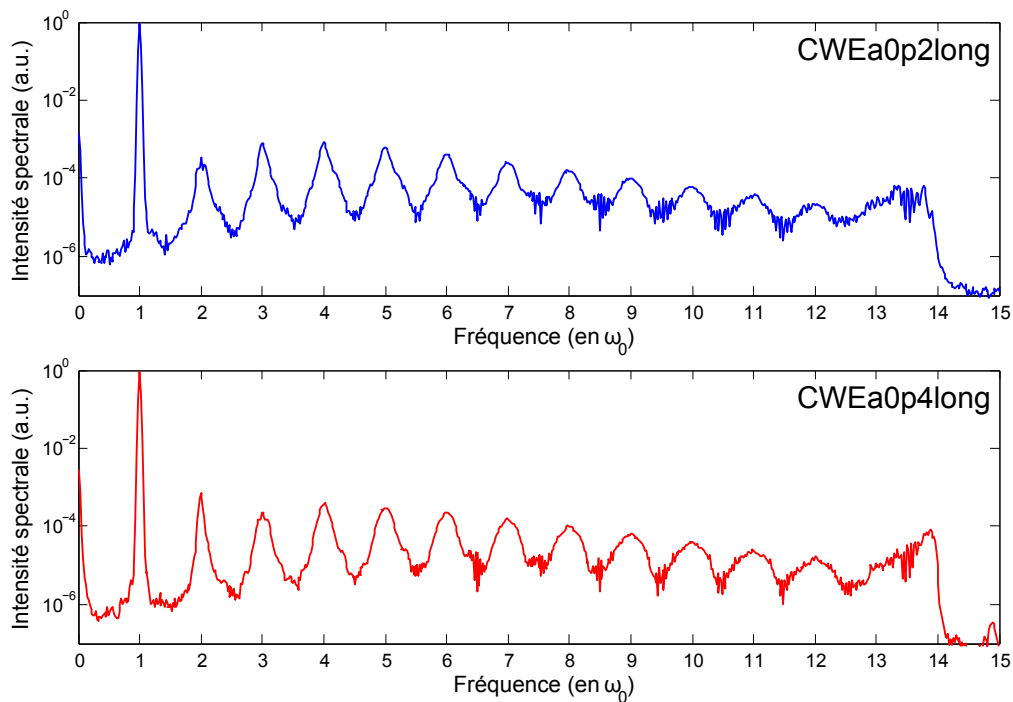


FIGURE 4.18 – Spectres d'émission CWE calculés en intégrant spatialement le module du spectre réfléchi issu de la simulation PIC.

Dans les simulations de ROM précédentes, les harmoniques 5 et 10 ont une largeur de  $0.04\omega_0$ , dans le cas des CWE, on mesure des largeurs de  $0.2\omega_0$  pour l'harmonique 5 et de  $0.4\omega_0$  pour l'harmonique 10. Comme la durée du laser incident dans les simulations ROM et CWE est comparable, une explication possible de ces différences de largeur d'harmonique pourrait être que le nombre d'impulsions attosecondes émises est plus faible pour les CWE que pour les

ROM. En effet, en l'absence de phase spectrale non-linéaire (chirp), la largeur des harmoniques est simplement inversement proportionnelle à l'enveloppe globale du train. Nous allons regarder le nombre d'impulsions CWE à partir des trains d'impulsions correspondants à ces spectres.

### Train attoseconde

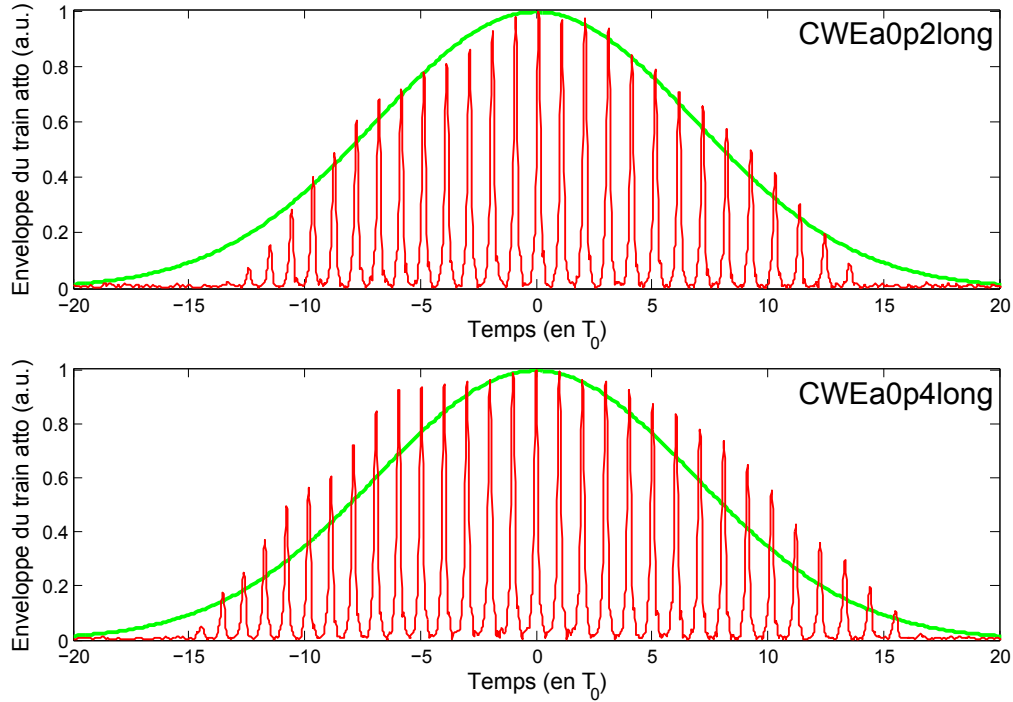


FIGURE 4.19 – Emission CWE d'un train d'impulsions attosecondes : enveloppe du champ électrique des harmoniques 6 à 12 (en rouge) et enveloppe du champ laser incident (en vert).

En filtrant de  $6\omega_0$  à  $12\omega_0$  les spectres CWE, on obtient les trains attosecondes de la Fig. 4.19 où l'enveloppe du champ harmonique est tracée en rouge et celle du champ laser incident est en vert. On compte 18 impulsions à mi-hauteur à faible intensité et 21 à plus forte intensité, alors que le laser incident a une largeur à mi-hauteur en champ de 16 cycles optiques. L'émission CWE est sous-linéaire dans les simulations PIC (l'efficacité de génération diminue à plus haute intensité). Cependant, nous verrons dans le dernier chapitre à partir de résultats expérimentaux que c'est bien un effet non-linéaire. Nous n'avons pas encore trouvé d'explication au fait que ces simulations PIC ne reproduisent pas cette non-linéarité. Néanmoins, on peut toujours se servir des résultats de simulation pour étudier de manière qualitative les caractéristiques des CWE. On observe notamment que le nombre d'impulsions attosecondes émises est bien supérieur aux cas ROM, les variations de largeur d'harmonique ne proviennent donc pas du nombre d'impulsions, qui aurait plutôt tendance à affiner les harmoniques. Comme les harmoniques sont plus larges,

le spectre CWE doit posséder une phase spectrale non-linéaire. Nous verrons dans le chapitre suivant que cette phase provient de la non régularité du train d'impulsion (chirp femtoseconde). Enfin, le nombre d'impulsions émises est supérieur à plus forte intensité ce qui prouve que l'effet CWE est un effet à seuil. Si l'intensité n'est pas suffisante, les électrons de Brunel ne se croisent pas assez profondément dans le gradient. Ce seuil correspond ici à  $a_0 = 0.04$  soit une intensité  $I = 3 \times 10^{15} \text{ W.cm}^{-2}$ , comme observé dans [10].

### Champ électrique

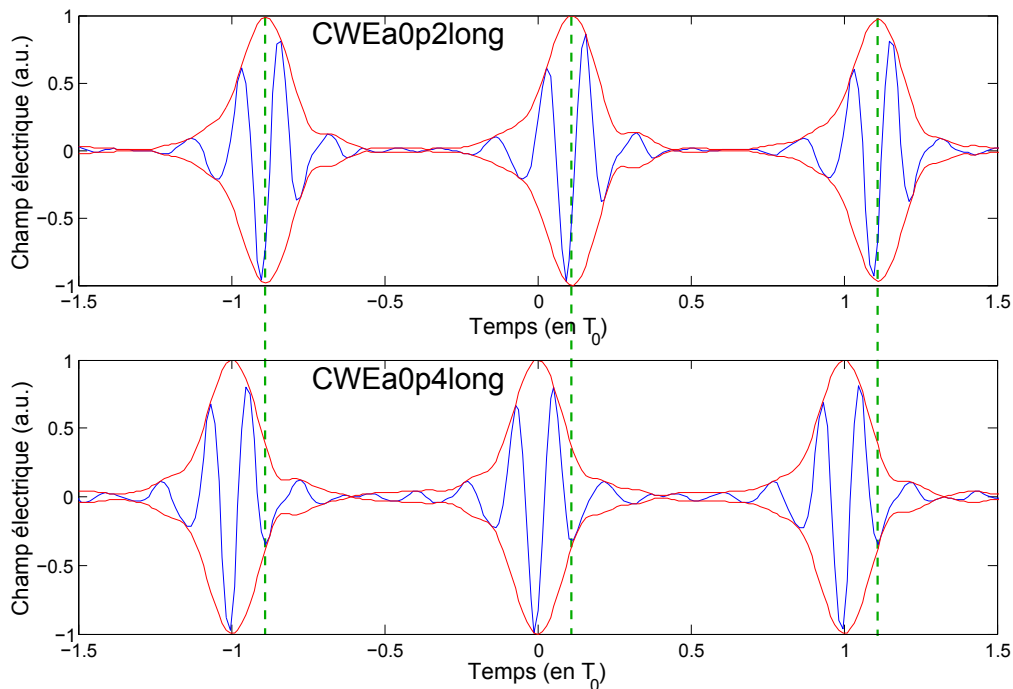


FIGURE 4.20 – Profil temporel des impulsions attosecondes CWE : enveloppe (en rouge) et champ électrique (en bleu).

Le champ électrique des trois impulsions les plus intenses est représenté sur la Fig. 4.20. On voit que sa forme varie peu quand on augmente l'intensité, cela signifie que l'émission d'une impulsion CWE est – au premier ordre – indépendante de l'intensité. Les durées d'impulsion (largeur à mi-hauteur en intensité) sont de  $0.131 T_0$  pour  $a_0 = 0.2$  et  $0.118 T_0$  pour  $a_0 = 0.4$  (respectivement  $350 \text{ as}$  et  $315 \text{ as}$ ). Nous verrons dans le chapitre suivant que les impulsions CWE présentent une dérive de fréquence (chirp attoseconde) et que celle-ci diminue quand on augmente l'intensité. Cela explique la différence de durée entre les deux cas CWE présentés ici. Comme l'intensité est le seul paramètre qui change entre ces deux simulations, on peut comparer les temps absolus d'émission d'impulsion. Sur la Fig. 4.20, les impulsions à  $a_0 = 0.2$



ont un retard de  $0.12T_0$  (environ  $300\text{ as}$ ) par rapport aux impulsions à  $a_0 = 0.4$  (le train est translaté). On constate ainsi que le délai d'émission dépend de l'intensité : plus l'intensité est forte, plus les croisements des électrons de Brunel dans le plasma ont lieu tôt dans le cycle optique, ceci crée un chirp femtoseconde, détaillé dans le chapitre suivant.

### Profil spatial

Quand on regarde le profil spatio-temporel des CWE (Fig. 4.21), la différence avec l'émission de ROM est flagrante car les fronts d'intensité sont courbés. On retrouve ici une conséquence du délai d'émission CWE qui dépend de l'intensité : en bord de tache focale, l'intensité est plus faible, l'impulsion est émise plus tard. Les fronts courbés indiquent aussi que les impulsions ont une divergence plus grande que la limite de diffraction (divergence due à la taille de la source).

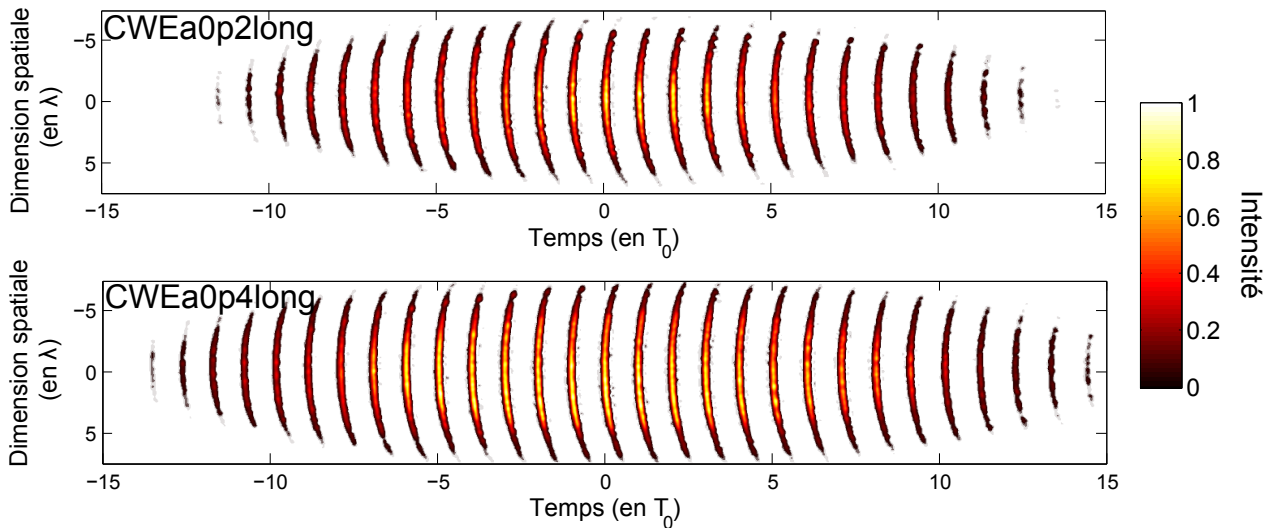


FIGURE 4.21 – Profil spatio-temporel du train attoseconde (intensité) obtenu en filtrant les harmoniques 6 à 12, le front avant du train attoseconde est dans les temps négatifs (l'impulsion se propage vers la gauche).

Les simulations PIC des CWE nous ont permis de voir les caractéristiques spectrales de cette émission : la limite maximale en fréquence, la présence d'une phase spectrale non-linéaire et la faible dépendance en intensité de la forme du spectre. D'autre part, l'analyse temporelle a mis en valeur des effets qui dépendent de l'intensité : le chirp attoseconde et le chirp femtoseconde, nous verrons dans le chapitre suivant que ces deux effets temporels sont les conséquences de la variation du délai d'émission des CWE. Enfin, nous avons vu que les CWE divergent plus que les ROM. Nous allons utiliser dans le chapitre suivant un modèle simplifié du processus CWE pour étudier de manière plus précise ses caractéristiques. Il est important de noter que



l'émission CWE peut avoir lieu à des intensité relativistes ( $a_0 > 1$ ) mais elle est beaucoup moins efficace que les ROM et donc difficilement visible. Le paragraphe suivant présente les résultats d'une simulation où les deux processus ont une efficacité comparable.

#### 4.4.4 Emission simultanée de CWE et ROM

##### Conditions

Une intensité  $a_0 = 1.6$  et un gradient  $\delta = \lambda/50$  sont des conditions également favorables aux deux processus de génération d'harmoniques. On obtient ainsi une simulation dans laquelle on peut observer l'émission simultanée d'impulsions CWE et ROM. La carte de densité électronique et de champ attoseconde a été présentée précédemment (Fig. 4.7). Les conditions de simulations sont similaires aux cas ROM avec une boîte de taille  $16 \times 60 \lambda^2$ .

Nom	Laser			Plasma		Paramètres			Temps de calcul
	$a_0$	$\tau$	Diam.	Grad.	$N_{max}$	$\delta x, \delta y$	$\delta t$	ppm	
CWEROMa01p6	1.6	$11 T_0$	$4\lambda$	$\lambda/50$	$110 N_c$	$\lambda/340$	$T_0/500$	20	$\approx 6000 h$

TABLE 4.3 – Conditions de simulation du code PIC pour l'émission de CWE et ROM. Intensité ( $a_0$ ), durée ( $\tau$ ) et diamètre (Diam.) du laser ; gradient (Grad.) et densité maximum ( $N_{max}$ ) du plasma ; maillage spatial ( $\delta x, \delta y$ ), pas temporel ( $\delta t$ ) et nombre de particules par maille (ppm) ; temps de calcul.

##### Spectre

Le spectre obtenu lors de cette simulation (Fig. 4.22(a)) est la somme d'un spectre CWE avec un 'cut-off' à  $\sqrt{110}\omega_0 \approx 10.5\omega_0$  et d'un spectre ROM. Les différences d'efficacité et de décroissance spectrale sont bien visibles, tout comme les différences de largeurs spectrales entre les deux types d'émission. Expérimentalement, il suffit de regarder au-delà du 'cut-off' pour obtenir uniquement des ROM. Si on veut étudier exclusivement les CWE, on ne peut pas utiliser de discrimination spectrale. La Fig. 4.22(b) montre un spectre expérimental obtenu par Thaury *et al* [26] dans des conditions similaires. Dans le spectre sur du plastique (CH) à haute intensité ( $I = 8 \times 10^{18} W.cm^{-2}$  soit  $a_0 = 1.9$ ), les différences spectrales des deux processus sont flagrantes : pour  $\omega < 15.5\omega_0$ , l'émission CWE est prépondérante (harmoniques larges), pour  $\omega > 15.5\omega_0$ , seule demeure l'émission ROM (harmoniques fines).

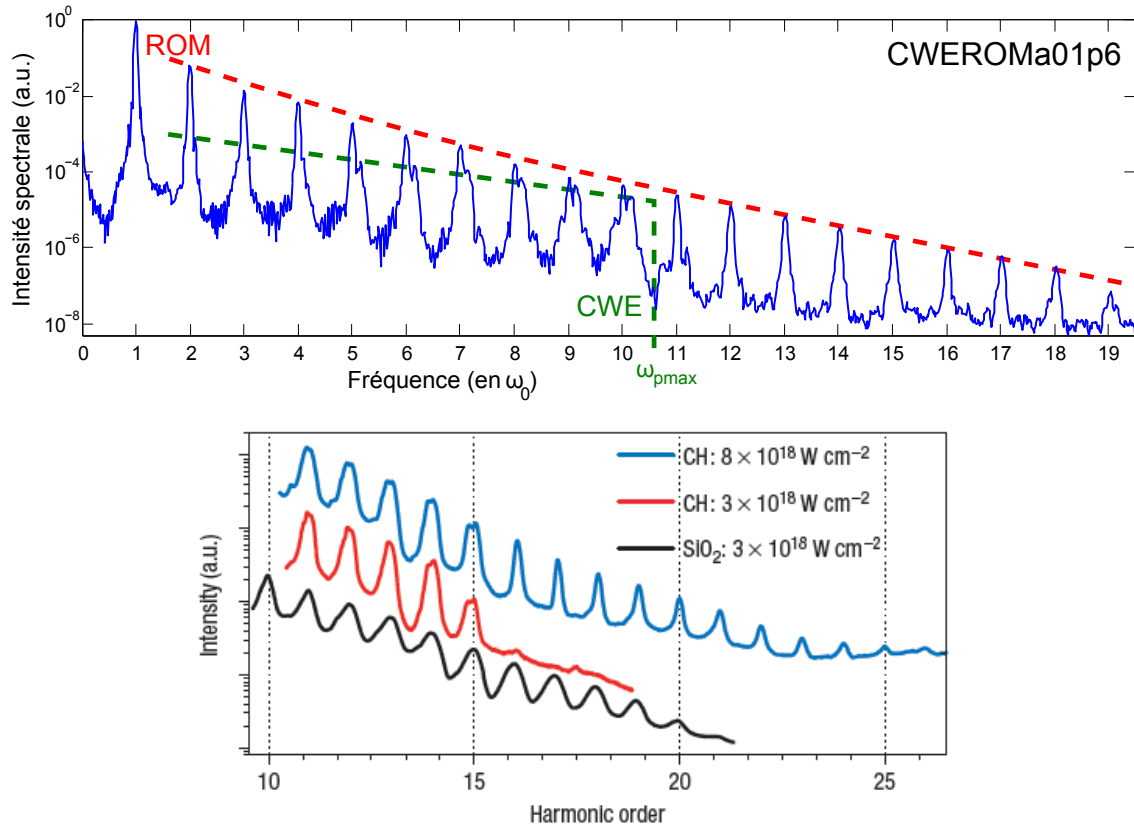


FIGURE 4.22 – (a) Spectre d'émission CWE et ROM issu de simulation PIC, calculés en intégrant spatialement le module du spectre réfléchi. (b) Spectres expérimentaux obtenus au CEA Saclay [26] avec des impulsions de  $60 \text{ fs}$  à différentes intensités ( $a_0 = 1.9$  et  $a_0 = 1.2$ ) sur du plastique (CH) et du verre (SiO<sub>2</sub>). La position relative des courbes est arbitraire.

### Profil spatial

La Fig. 4.23 montre le profil spatio-temporel du train d'impulsions attosecondes composé de ROM et de CWE. Les impulsions CWE sont facilement identifiables par leur front d'intensité courbé, l'émission CWE possède une efficacité moindre par rapport aux ROM. Les impulsions ROM sont situées au centre spatio-temporel de l'impulsion (intensité maximale). En fin d'interaction, ( $t > 7T_0$ ), on n'observe plus d'émission : l'intensité est trop faible pour les ROM et le gradient de densité du plasma est trop perturbé pour pouvoir émettre des CWE. La différence de divergence et d'efficacité permet de séparer expérimentalement les émissions CWE des émissions ROM, cette méthode expérimentale a été démontrée par Dromey *et al* [27]. On retrouve ici les différents délais d'émission des deux processus, le délai entre les impulsions ROM et CWE provenant du même cycle optique est représenté sur la Fig. 4.23.

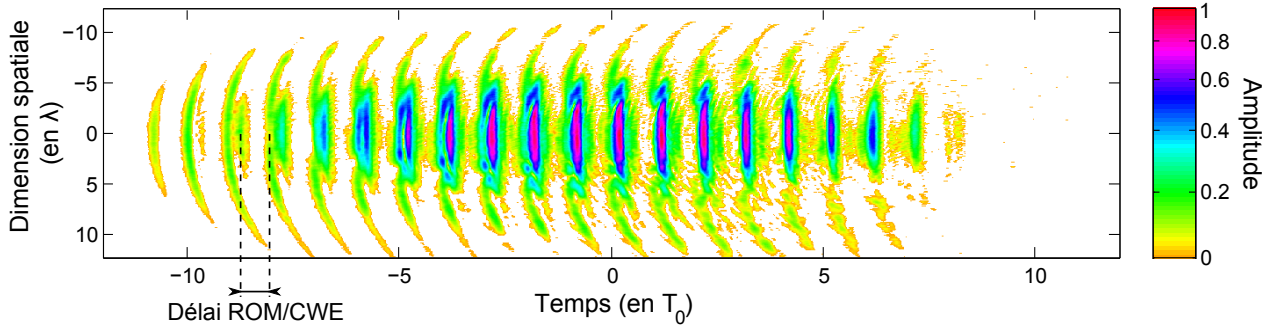


FIGURE 4.23 – Cas CWEROMa01p6 : Profil spatio-temporel du train attoseconde (amplitude) obtenu en filtrant les harmoniques 5 à 10, le front avant du train attoseconde est dans les temps négatifs (l'impulsion se propage vers la gauche).

#### 4.4.5 Accélération de protons par effet Brunel

Avant d'achever ce chapitre, je présente ici un exemple de l'utilisation des simulations PIC pour étudier l'accélération de particules. Lors de l'interaction laser-plasma, les particules chargées sont accélérées par le champ électrique. On a vu précédemment qu'aux intensités relativistes, des électrons peuvent être piégés par le champ laser et accélérés dans la direction spéculaire. Nous allons ici utiliser les simulations PIC pour comprendre le mécanisme d'accélération de protons à des intensités sous-relativistes. Nous avons en effet observé des protons énergétiques émis dans la direction normale à la cible durant les expériences en "Salle Noire" [28].

#### Conditions de simulation

La simulation présentée ici a été réalisée dans les mêmes conditions que pour l'émission de CWE, à la différence que les ions sont mobiles et le nombre de particules est un peu plus faible (on n'a pas de problème de bruit au niveau du diagnostic des particules dans le code PIC).

Nom	Laser			Plasma		Paramètres			Temps de calcul
	$a_0$	$\tau$	Diam.	Grad.	$N_{max}$	$\delta x, \delta y$	$\delta t$	ppm	
IONa0p4L100	0.4	$11.5 T_0$	$4\lambda$	$\lambda/100$	$200 N_c$	$\lambda/420$	$T_0/630$	50	$\approx 1000 h$

TABLE 4.4 – Conditions de simulation du code PIC pour l'accélération d'ions. Intensité ( $a_0$ ), durée ( $\tau$ ) et diamètre (Diam.) du laser ; gradient (Grad.) et densité maximum ( $N_{max}$ ) du plasma ; maillage spatial ( $\delta x, \delta y$ ), pas temporel ( $\delta t$ ) et nombre de particules par maille (ppm) ; temps de calcul.

## Ions

Nous avons vu précédemment l'enfoncement du plasma sous l'effet de la force pondéromotrice du laser, mais on observe aussi dans les simulations PIC un mouvement d'ions en direction du vide. Cet effet est bien visible après quelques dizaines de cycles optiques laser (Fig. 4.24). La dynamique des ions est plus lente que celles des électrons car ils sont plus lourds. Cependant, ils accumulent une accélération au cours de l'interaction laser-plasma. On voit sur la Fig. 4.24 que l'accélération des ions dépend de l'intensité laser : l'excursion des ions vers le vide reproduit la forme gaussienne de l'impulsion sur la tache focale.

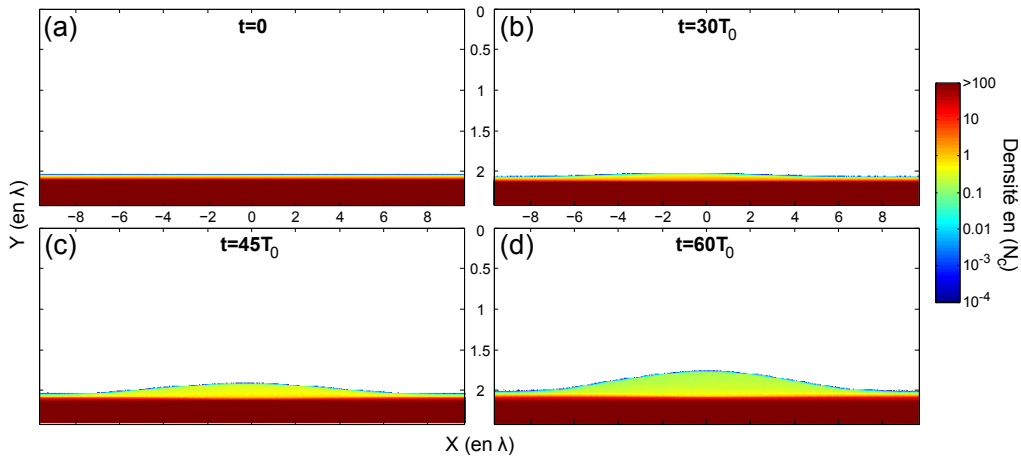


FIGURE 4.24 – Carte de densité ionique à différents instants de l'interaction laser-plasma.

Pour quantifier l'accélération des ions, on utilise comme diagnostique la densité ionique en fonction de la vitesse à différents pas de temps  $\rho(p_x, p_y, t)$  (Fig. 4.25(a)). On distingue deux populations d'ions : les ions thermiques du plasma qui ont une distribution de vitesse isotrope ( $T_i = 100 \text{ eV}$  soit  $|p| < 1$ ) et les ions accélérés vers le vide ( $p_y < -1$ ). On voit que l'accélération est normale à la surface, que le faisceau de protons est peu divergent ( $\Delta p_x \ll p_y$ ) et laminaire. La Fig. 4.25(b) montre la densité ionique en fonction de la vitesse normale à la cible et en fonction du temps, elle montre l'évolution de l'accélération des ions au cours de la simulation. On remarque que l'accélération a lieu uniquement en présence de champ laser et qu'elle s'effectue de manière périodique à la fréquence du laser. Cela ne correspond pas au modèle usuel d'accélération de protons sur feuilles mince (Target Normal Sheath Acceleration TNSA) [29], qui est continu et ne s'arrête pas à la fin du laser. Le processus TNSA provient d'un transfert de l'énergie laser aux électrons du plasma qui à leur tour accélèrent les ions, sur une échelle de temps de plusieurs cycles optiques, il n'est a priori pas valable pour une cible épaisse. Pour expliquer le processus d'accélération dans nos conditions, nous avons tout d'abord

étudié les propriétés du champ électrique à la surface du plasma.

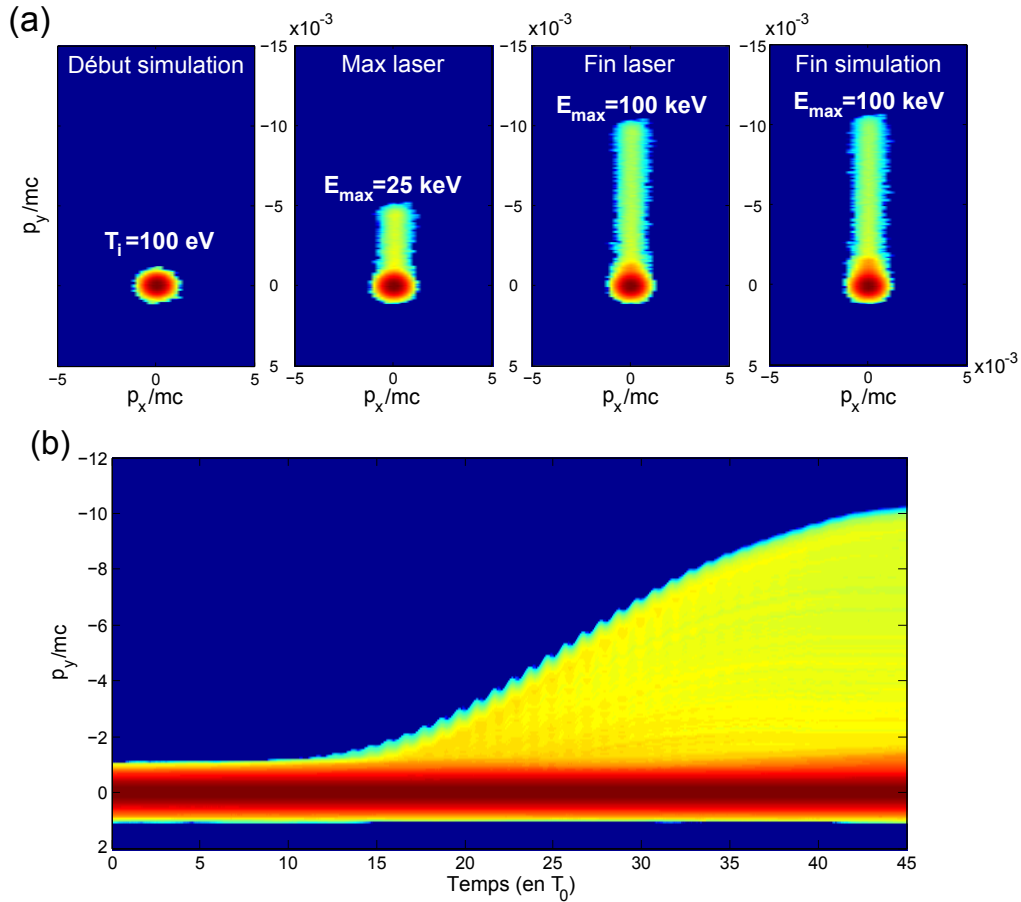


FIGURE 4.25 – (a) Carte de vitesse ionique  $\rho(p_x, p_y)$  (somme spatiale en  $Y$  sur la ligne  $X = 0$ ) et énergie maximale des ions à différents instants de la simulation. (b) Carte de densité ionique  $\rho(t, p_y)$  en  $p_x = 0$  qui montre l'évolution de la distribution de vitesse sur  $p_y$  des ions au cours de la simulation.

### Champ électrique

Le champ électrique  $E_x$  (dans la direction normale à la cible) dans la boîte de simulation est représenté sur la Fig. 4.26, on observe des noeuds et des ventres résultant de l'interférence entre les champs laser incident et réfléchi. L'amplitude est normalisée au maximum du champ laser, cependant, on observe que le champ négatif (qui tire les ions vers le vide) dépasse 1 en valeur absolue au voisinage de la surface. Il y a donc une asymétrie dans l'oscillation du champ électrique au niveau de la surface. Ceci est confirmé par l'évolution temporelle du champ électrique local (Fig. 4.27) : dans le vide (a), l'oscillation est parfaitement symétrique, à la surface (b), l'asymétrie est flagrante : en moyenne, le champ électrique accélère les ions vers le vide. Cette asymétrie provient de la charge d'espace créée par les électrons de Brunel. Ainsi l'énergie laser est d'abord transférée aux électrons de Brunel qui à leur tour cèdent de l'énergie

aux ions.

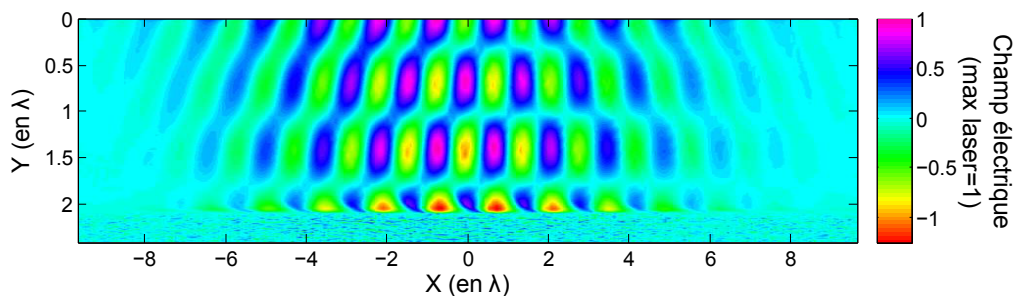


FIGURE 4.26 – Carte de champ électrique

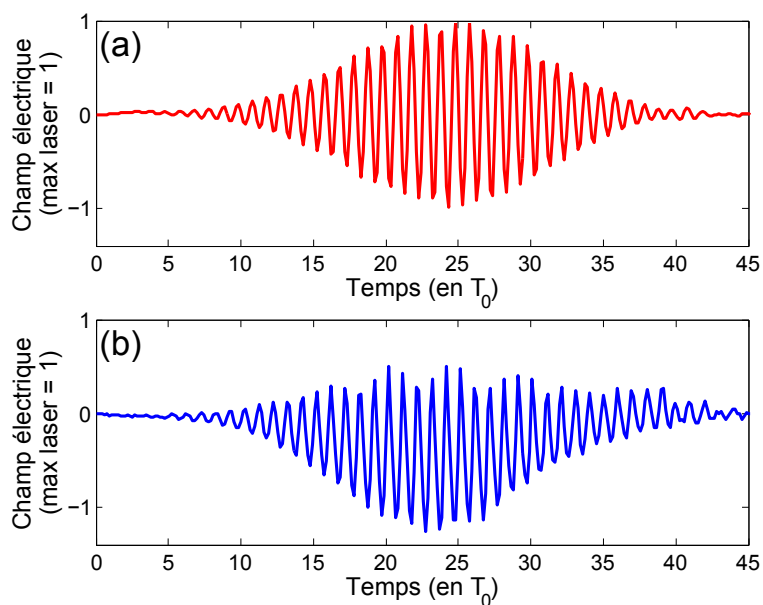


FIGURE 4.27 – Champ électrique à une période de distance du plasma (a) et à la surface du plasma (b).

A partir des simulations PIC, mon travail a permis d'identifier ce nouveau mécanisme d'accélération sans équivoque. Cela a permis l'élaboration d'un modèle semi-analytique qui reproduit les études paramétriques que nous avons effectuées expérimentalement [28].

Nous avons vu dans ce chapitre les différents mécanismes de génération d'harmoniques sur cible solide (ROM et CWE) et nous avons étudié leurs différences en utilisant les résultats de simulations PIC. Ces simulations permettent en réalité de simuler l'intégralité de l'interaction laser-plasma, c'est pourquoi nous les avons aussi utilisées pour analyser les émissions de protons. Cependant, les simulations PIC sont très lourdes à réaliser (temps de calcul, analyse des données), elles ne sont pas bien adaptées pour une analyse paramétrique systématique. Il est d'autre part difficile d'isoler un phénomène physique particulier. Les expériences de la salle noire nous ont permis d'effectuer des études paramétriques du spectre d'émission CWE. C'est dans ce contexte que j'ai développé un modèle de calcul qui prédit les caractéristiques spectrales de l'émission CWE en fonction des paramètres laser.

# Chapitre 5

## Modélisation et propriétés des harmoniques CWE

Pour étudier de manière simplifiée les émissions CWE, j'ai développé un modèle de simulation à une dimension qui calcule les trajectoires des électrons de Brunel et en déduit les temps d'émission des impulsions attosecondes. D'une part, les résultats du modèle nous ont permis de prédire et d'interpréter les résultats expérimentaux en impulsion courte ( $5\text{ fs}$ ) et impulsion longue ( $25\text{ fs}$ ). Cette étude fait l'objet du chapitre 6. D'autre part, le modèle quantifie précisément les caractéristiques intrinsèques de l'émission CWE, notamment la dépendance du délai d'émission aux paramètres de l'interaction et les conséquences spectrales associées. Dans ce chapitre, nous allons voir le détail de la méthode de modélisation puis nous allons utiliser le modèle pour décrire les propriétés temporelles et spatiales de l'émission CWE.

### 5.1 Modélisation

Le modèle se décompose en trois étapes distinctes : premièrement, le calcul des trajectoires des électrons de Brunel, deuxièmement, la détermination du temps d'excitation du plasma et troisièmement, la construction du champ attoseconde émis.

#### 5.1.1 Calcul des trajectoires

Le calcul des trajectoires se base sur le modèle de Brunel [17], qui est modifié pour prendre en compte les caractéristiques laser (enveloppe, chirp et CEP) et le caractère relativiste du mouvement des électrons.



## Modèle de Brunel

Le modèle de Brunel [17] fournit les équations à une dimension du mouvement des électrons à la surface d'un plasma dense sans gradient de densité (gradient infiniment raide) sous l'effet d'un champ électrique oscillant. Dans l'espace  $x \geq 0$ , on considère un plasma homogène dont la résistivité est supposée nulle : il constitue une réserve infinie d'électrons et le champ électrique au sein du plasma est nul. Dans l'espace  $x \leq 0$ , on définit un champ électrique extérieur uniforme (champ laser) dont la direction est sur l'axe des  $x$  :  $E_L = E_0 \sin \omega t$ . Le laser est en incidence oblique (angle d'incidence  $\theta$ ) en polarisation p, le champ à la surface est la somme des champs incident  $E_i$  et réfléchi  $E_r$  projetés sur la normale :  $E_L = 2 \sin \theta |E_i|$  car  $|E_i| = |E_r|$ . Pour  $0 < t < \pi/\omega$ , le champ électrique extérieur tire des électrons vers le vide. Ceux-ci écrantent le champ laser au niveau de la surface du plasma en créant une charge d'espace : un champ électrostatique  $E_S(x, t)$  apparaît entre le plasma chargé positivement et les électrons de Brunel situés dans le vide. Le champ vu par l'électron  $i$  à la position  $x_i$  au temps  $t$  est alors :

$$E^{(i)}(t) = E_L(t) + E_S(x_i, t) \quad (5.1)$$

Comme on considère que le plasma est un conducteur parfait, le champ doit être nul à sa surface : la densité d'électrons arrachés par le laser est telle que le champ électrostatique annule le champ laser au niveau de la surface du plasma. On a ainsi pour l'électron  $i$  :

$$E_L(t) + E_S(0, t) = 0, \text{ soit } E_S(0, t) = -E_L(t) \quad (5.2)$$

L'évolution du champ électrique et des électrons de Brunel est schématisé sur la Fig. 5.1. Au fur et à mesure que le champ laser augmente, d'autres électrons sont arrachés et les premiers électrons sont accélérés dans le vide. En faisant l'hypothèse que les électrons ne se doublent pas dans le vide, le champ électrostatique ne varie pas au cours du temps :  $E_S(x_i, t) = -E_L(t_i)$ , où  $t_i$  est le temps auquel l'électron  $i$  est arraché du plasma ("temps de naissance"). Il est maximal à la surface du plasma et décroît vers le vide. Ensuite, quand le champ laser décroît, les derniers électrons arrachés sont attirés par le plasma alors que les premiers électrons sont toujours accélérés par le laser. Enfin, le champ laser s'inverse et tous les électrons sont accélérés vers le plasma.

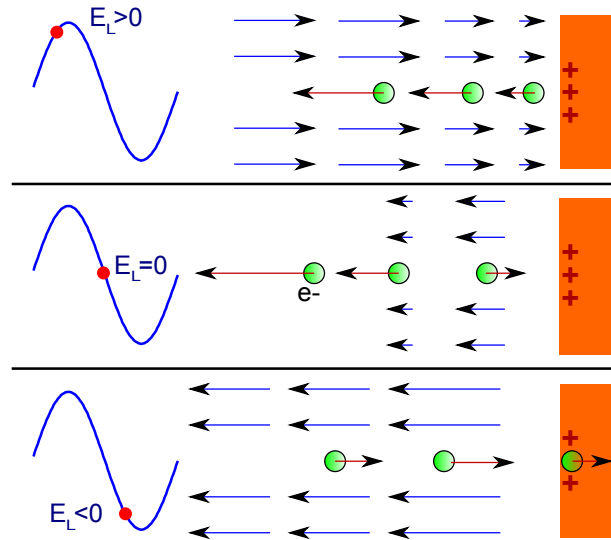


FIGURE 5.1 – Schéma du mouvement électrons de Brunel (en vert), de leur vitesse (flèches rouges) et du champ électrique  $E$  dans le vide (flèches bleues) pour un champ laser  $E_L$  positif, nul et négatif. Le plasma (en orange) est chargé positivement. Quand le champ est nul, il ne reste que le champ électrostatique qui décroît vers le vide.

A partir de l'intégration de l'équation du mouvement  $dv_i/dt = -eE(x_i)/m_e$  (cas non relativiste) on obtient la vitesse et la position de chaque électron  $i$  :

$$v_i = v_{osc} (\cos \omega t - \cos \omega t_i) + \omega v_{osc} (t - t_i) \sin \omega t_i, \quad (5.3)$$

$$x_i = \frac{v_{osc}}{\omega} (\sin \omega t - \sin \omega t_i) - v_{osc} (t - t_i) \cos \omega t_i + \frac{1}{2} \omega v_{osc} (t - t_i)^2 \sin \omega t_i \quad (5.4)$$

où  $v_{osc} = eE_0/m_e\omega$  est la vitesse maximale d'oscillation d'un électron sous l'effet du seul champ laser. Ces équations sont valables uniquement dans le vide ( $x \leq 0$ ) : dès que l'électron pénètre dans le plasma, il ne subit plus d'accélération car le champ électrique est nul, sa vitesse est constante.

Dans le cadre de l'étude de l'émission CWE par des impulsions laser ultracourtes (quelques cycles optiques) à des intensité  $a_0$  proches de 1, on doit prendre en compte d'une part l'évolution du champ électrique d'un cycle à l'autre (enveloppe, chirp et CEP) et d'autre part la relativité restreinte.

### Equations relativistes

On ajoute la relativité à partir de l'équation relativiste du mouvement qui s'écrit  $\partial p_i/\partial t = -eE(x_i)$  avec  $p_i = \gamma m_e v_i^{rel}$ . On a alors :

$$p_i/m_e = v_{osc} (\cos \omega t - \cos \omega t_i) + \omega v_{osc} (t - t_i) \sin \omega t_i, \quad (5.5)$$

$$v_i^{rel} = \frac{p_i/m_e}{\sqrt{1 + \left(\frac{p_i}{m_e c}\right)^2}} \quad (5.6)$$

On ne peut plus résoudre analytiquement l'équation du mouvement, il faut intégrer numériquement la vitesse  $v_i^{rel}$  pour obtenir la position  $x_i^{rel}$ . Le résultat de la simulation pour des électrons arrachés à différents instants est présenté sur la Fig. 5.2 (a) et (b). Pour calculer les trajectoires dans le plasma, on considère que les électrons conservent leur vitesse de retour  $v_{ri} = v_i(x_i = 0)$ . Les Fig. 5.2 (c) et (d) montrent le temps de retour  $t_{ri} = t(x_i = 0)$  et la vitesse de retour dans le plasma en fonction du temps de départ du plasma. On voit que les premiers électrons arrachés ( $t_i < 0.04 T_0$ ) ne reviennent pas dans le plasma sur l'échelle de temps considérée ( $2T_0$ ). Pour  $t_i > 0.07 T_0$ , les électrons arrachés le plus tôt reviennent le plus tard et le plus vite. Les trajectoires électroniques vont donc se croiser à l'intérieur du plasma.

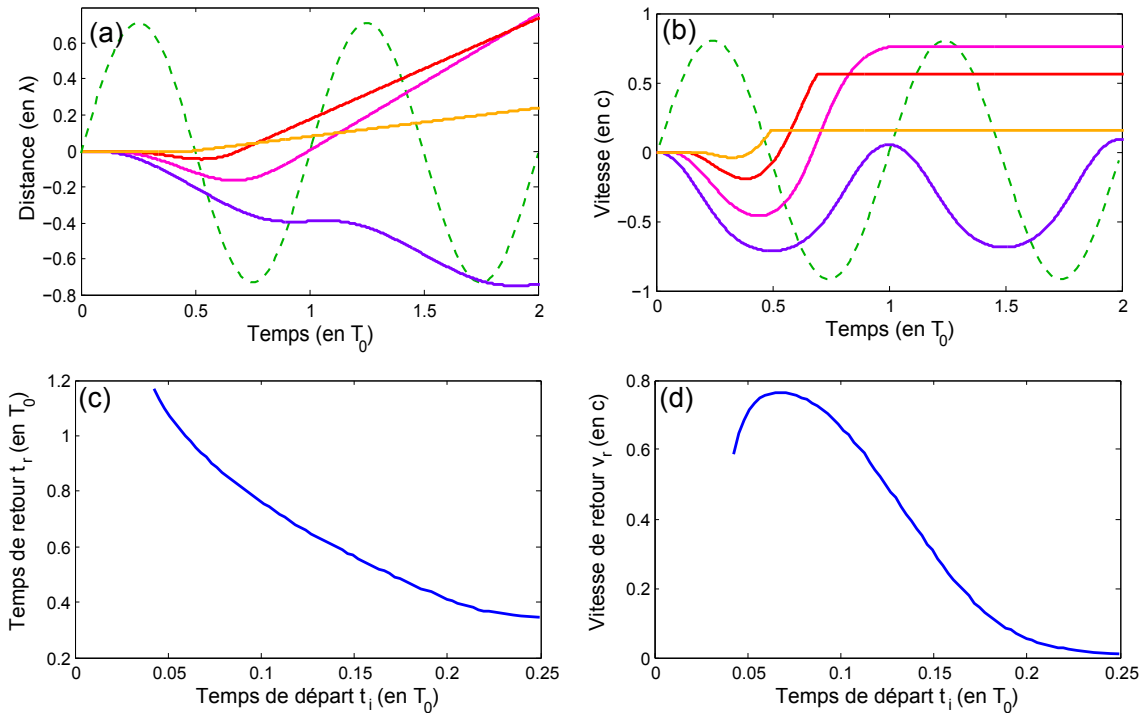


FIGURE 5.2 – Résultats de simulation en considérant les électrons arrachés pendant le premier cycle optique, l'amplitude du champ électrique est  $a_0 = 0.4$ . Evolution temporelle de la position  $x_i$  (a) et la vitesse  $v_i$  (b) de quatre électrons arrachés du plasma à des temps différents, le champ électrique du laser est représenté en pointillés. Temps de retour (c) et vitesse de retour (d) dans le plasma en fonction du temps de départ du plasma.

### Modèle avec impulsion laser

Le champ électrique d'une impulsion courte s'écrit  $E = E_0 A(t) \sin \omega t$  où  $A(t) = e^{-t^2/2\tau^2}$  pour une enveloppe gaussienne. Pour simplifier les équations, on fait l'approximation  $|\partial A(t)/\partial t| \ll \omega/\pi A(t)$  (l'enveloppe varie peu à l'échelle du demi cycle optique, durée caractéristique de la dynamique des électrons de Brunel dans le vide), l'équation 5.5 devient alors :

$$p_i/m_e = v_{osc} \left( e^{-t^2/2\tau^2} \cos \omega t - e^{-t_i^2/2\tau^2} \cos \omega t_i \right) + \omega v_{osc} e^{-t_i^2/2\tau^2} (t - t_i) \sin \omega t_i \quad (5.7)$$

La prise en compte de la CEP et du chirp s'effectue en remplaçant le temps  $\omega t$  par  $\omega t + \phi + \alpha t^2/2$ , où  $\phi$  est la CEP et  $\alpha$  la phase quadratique temporelle due au chirp. Ce simple changement de variable est justifié si la variation de fréquence est négligeable à l'échelle du cycle optique :  $\alpha T \ll \omega$ . D'autre part, dans le cas d'une impulsion chirpée il faut prendre en compte l'augmentation de la durée d'impulsion et la diminution de son intensité (voir partie I paragraphe 1.2).

La résolution numérique de la trajectoire des électrons de Brunel à partir des équations 5.7 et 5.6 pour une impulsion de 2 cycles optiques à mi-hauteur est illustrée sur la Fig. 5.3. Les électrons de Brunel effectuent une plus grande excursion dans le vide et ont une plus grande vitesse de retour pour les cycles optiques les plus intenses.

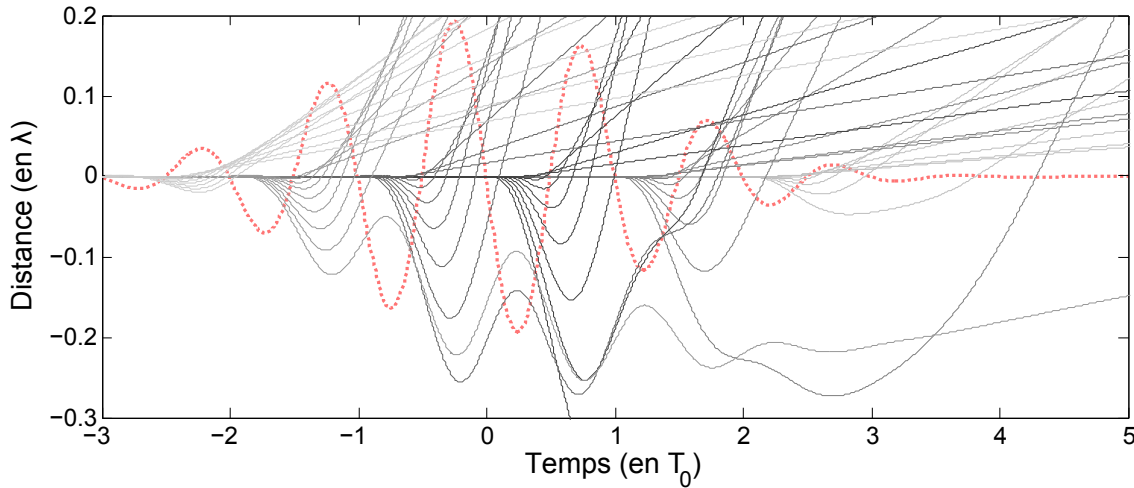


FIGURE 5.3 – Trajectoires des électrons de Brunel sous l'effet d'une impulsion de 2 cycles optiques à mi-hauteur, avec une CEP de  $-\pi/2$  (impulsion "sinus") et une intensité  $a_0 = 0.4$ , la force  $-eE(t)$  est en pointillés rouges. Seuls les électrons arrachés par les 6 principaux cycles optiques sont représentés. Les trajectoires des électrons issus du même cycle optique sont de la même couleur.

### 5.1.2 Croisement des trajectoires et pics de densité électroniques

Si on regarde désormais un grand nombre de trajectoires d'électrons de Brunel calculés avec le modèle pour différents temps de départ (Fig. 5.4 (a)) on observe une caustique dans le plasma sur laquelle tangentent toutes les trajectoires électroniques. Sur cette figure sont représentés les électrons qui se croisent à une profondeur comprise entre 0 et  $\lambda/10$  dans le plasma, cela correspond à des temps de naissance compris entre  $t = T_0/8$  ( $E = \sqrt{2} E_0$ ) à  $t = T_0/4$  ( $E = E_0$ ) pour une intensité de  $a_0 = 0.4$ . Les électrons se croisent ainsi massivement à l'intérieur du plasma : un pic de densité électronique se déplace suivant la caustique. La Fig. 5.4 (b) montre les temps de passage des électrons en fonction de leur temps de départ à une profondeur donnée ( $\lambda/50$ ) dans le plasma. Dans ce cas, tous les électrons sont représentés. On retrouve que les premiers électrons arrachés ( $t_i < 0.04 T_0$ ) ne retournent pas dans le plasma. Au voisinage du minimum de la courbe des temps de passage, les électrons atteignent la profondeur  $\lambda/50$  à des temps très proches, ils sont donc concentrés dans le temps : c'est le pic de densité électronique. Ce pic est d'autant plus grand que la dérivée seconde de cette courbe  $\partial t_p / \partial t_i$  est faible. Le temps d'excitation des oscillations plasma correspond donc au minimum de la courbe Fig. 5.4 (b).

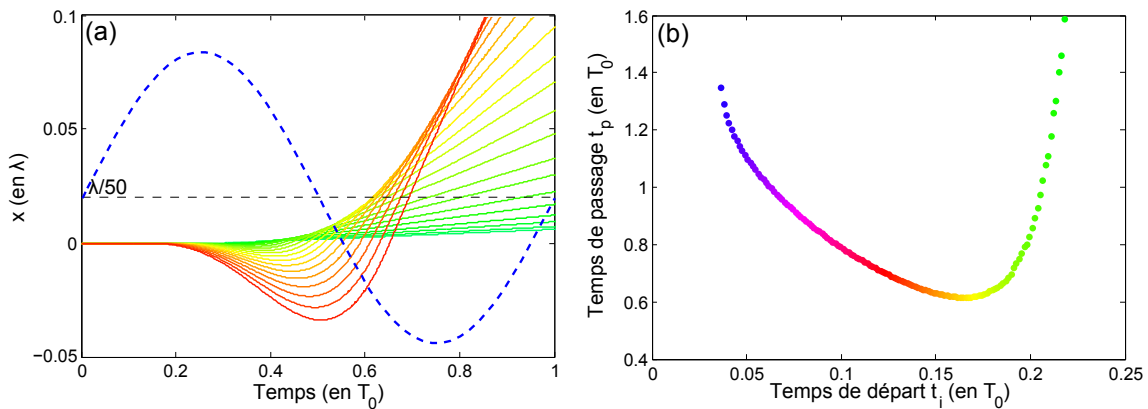


FIGURE 5.4 – (a) Trajectoires des électrons de Brunel arrachés du plasma entre  $t = T_0/8$  et  $t = T_0/4$ , le plasma est situé dans les  $x > 0$ , le champ électrique du laser est représenté en pointillés. (b) Temps de passage des électrons de Brunel à la profondeur  $\lambda/50$  dans le plasma en fonction de leur temps de départ. Entre ces deux figures, les couleurs identiques représentent les mêmes électrons.

A partir des courbes de temps de passage à différentes profondeurs dans le plasma, on obtient le temps d'excitation  $\tau(\omega)$  pour différentes fréquences d'oscillation plasma et donc différentes fréquences d'émission CWE. La relation entre la profondeur et la fréquence d'oscillation est

donnée par la longueur de gradient de densité du plasma (voir Fig. 5.5). La fréquence  $n\omega_0$  est émise à la profondeur  $x = 2\delta \ln n$ , par exemple l'harmonique 10 est émise à la profondeur  $x = 0.046 \lambda$  pour  $\delta = \lambda/100$  et  $x = 0.077 \lambda$  pour  $\delta = \lambda/60$ .

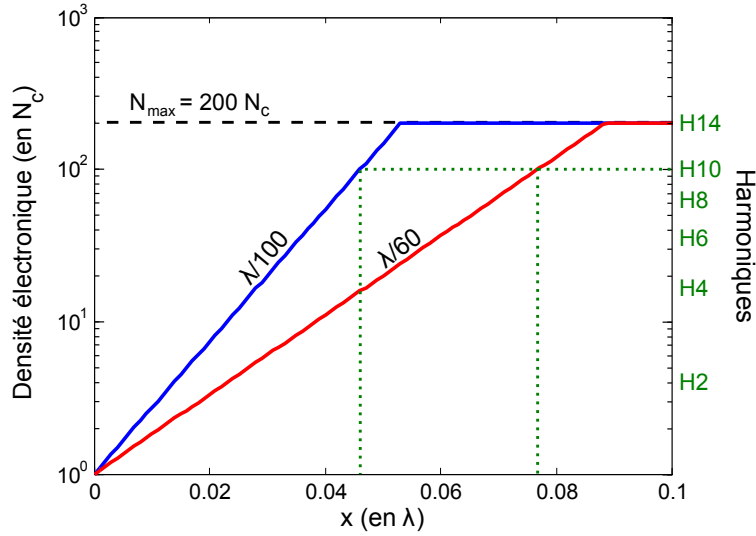


FIGURE 5.5 – Profil de densité plasma pour deux longueurs de gradient différentes ( $N(x) = N_c e^{x/\delta}$  avec  $\delta = \lambda/100$  en bleu et  $\delta = \lambda/60$  en rouge) avec  $N_{max} = 200 N_c$ . Les fréquences harmoniques sont indiquées sur l'échelle de droite.

### 5.1.3 Construction du champ émis

Le modèle calcule pour chaque cycle optique  $n$  les temps d'excitation  $\tau_n(\omega)$ . Pour obtenir le champ CWE, on néglige le délai entre le déclenchement des oscillations plasma et l'émission CWE. Ce délai est en effet très faible et il varie peu en fonction de l'intensité. Le champ CWE s'écrit alors comme la somme des émissions de chaque cycle optique  $n$  :

$$E(\omega) = \sum_n a_n A_n(\omega) e^{i\omega(nT_0 + \tau_e(n, \omega))} \quad (5.8)$$

où  $a_n$  est l'efficacité de génération et  $A_n(\omega)$  est l'enveloppe spectrale de l'émission du cycle optique  $n$ . Le modèle ne fournit pas ces deux paramètres mais on peut faire les approximations suivantes :

1. L'efficacité de génération est une puissance  $b$  de l'enveloppe laser :

$$a_n = e^{-bn^2/2\tau^2} \quad (5.9)$$

ce qui paraît naturel pour un effet non-linéaire.

2. L'enveloppe spectrale ne varie pas d'un cycle optique à l'autre :

$$A_n(\omega) = A(\omega) \quad (5.10)$$

cette approximation est vraie si l'enveloppe spectrale globale des CWE ne dépend pas de l'intensité et si le gradient n'évolue pas au cours de l'interaction. Si on se restreint à l'étude des modulations spectrales et non pas de l'enveloppe spectrale, on peut choisir arbitrairement  $A(\omega) \approx 1$ .

La Fig. 5.6 (a) montre un spectre CWE obtenu avec le modèle. En effectuant la transformée de Fourier de  $E(\omega)$ , on accède au train d'impulsion attoseconde  $E(t)$  dont l'enveloppe du champ  $|E(t)|$  est représentée en rouge sur la Fig. 5.6 (b). La non-linéarité  $b$  ayant été choisie arbitrairement, on ne peut tirer aucune conclusion sur la forme globale du train. Cependant, le modèle fournit les temps  $\tau_e(n, \omega)$ , on peut donc s'en servir pour étudier les écarts temporels entre les impulsions (dépendance en  $n$ ) et le chirp de chaque impulsion (dépendance en  $\omega$ ). Une étude des temps d'émission permet notamment d'expliquer pourquoi les largeurs spectrales des harmoniques augmentent avec la fréquence dans la Fig. 5.6 (a).

## 5.2 Caractéristiques des CWE

Les électrons de Brunel doivent parcourir une distance conséquente dans le vide puis dans le plasma avant de déclencher les oscillations plasma. Entre leur départ du plasma et l'excitation des oscillations plasma, il s'est en effet écoulé un temps de l'ordre du cycle optique. Une variation de la distance à parcourir ou de la vitesse des électrons va donc induire une variation du temps d'émission des CWE. Ainsi, les différentes fréquences étant émises à différentes profondeurs, les impulsions attosecondes présentent une dérive de fréquence (chirp attoseconde). De plus, l'amplitude du champ électrique varie au cours du temps et au sein de la tache focale, le temps d'émission CWE dépend alors du cycle optique considéré (chirp femtoseconde) et de la position sur la tache focale (courbure des fronts d'onde harmonique).

### 5.2.1 Dérive de fréquence attoseconde

Le chirp attoseconde est le nom donné à la dérive de fréquence de chaque impulsion attoseconde, il se traduit temporellement par une variation de la fréquence d'oscillation du champ et spectralement par une phase relative entre les harmoniques non linéaire. Le chirp attoseconde est mis en valeur sur la Fig. 5.6(a) par la courbe en pointillés. Pour l'étudier, on se restreint

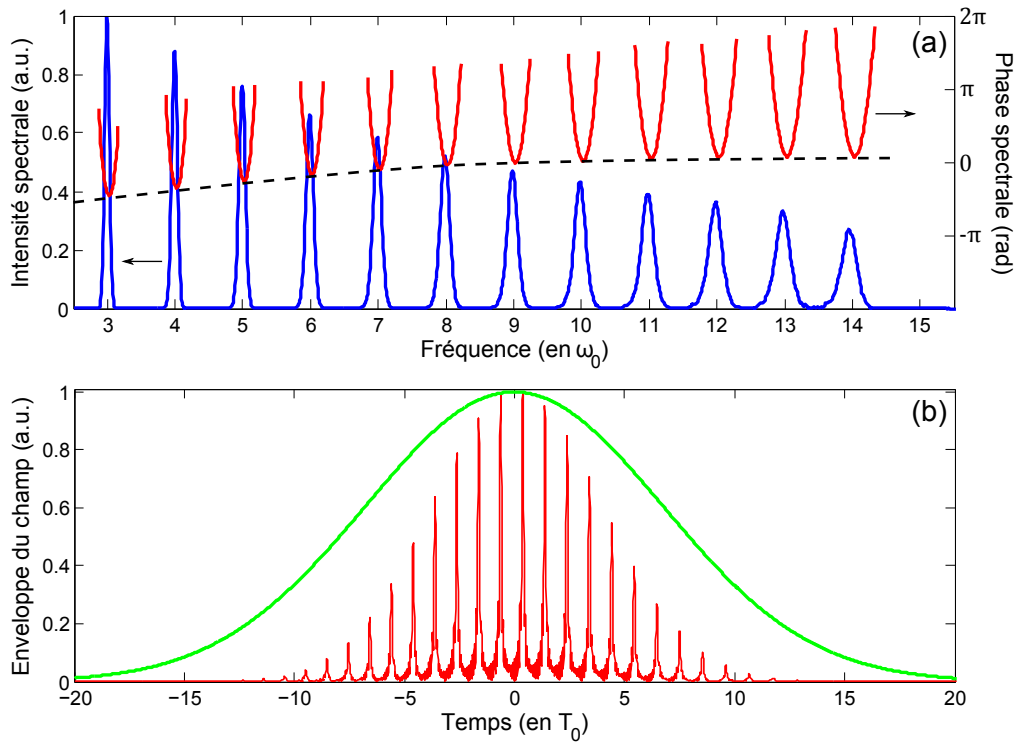


FIGURE 5.6 – (a) Spectre CWE (en bleu) et phase spectrale (en rouge) calculés par le modèle à une dimension pour une impulsion gaussienne de 11 cycles optiques, une intensité  $a_0 = 0.4$ , une longueur de gradient  $\delta = \lambda/100$ , une densité maximale  $N_{max} = 200 N_c$  et une non-linéarité  $b = 3$ . (b) Enveloppe du champ CWE dans les mêmes conditions (en rouge) et enveloppe du champ laser (en vert).

ici à l'émission d'une seule impulsion CWE. A partir du modèle, on regarde les temps de croisement des trajectoires électroniques en fonction de la profondeur dans le plasma à différentes intensités (Fig. 5.7(a)). On retrouve la caustique de la Fig. 5.4(a) : le temps d'excitation varie en fonction de la profondeur de manière non-linéaire car les électrons impliqués dans les croisements sont de plus en plus rapides en profondeur. A intensité plus faible, cet effet est accentué car les électrons sont globalement plus lents. La courbe des temps d'émission en fonction de la fréquence (Fig. 5.4(b)) est un peu différente car la fréquence ne varie pas linéairement avec la profondeur. Cela a pour conséquence de diminuer l'effet de retard pour les fréquences les plus hautes car elles sont émises dans des couches plus proches les unes des autres. Enfin, la longueur de gradient définit la distribution de fréquences dans la zone d'émission, ainsi, un gradient plus long augmente le chirp attoseconde.



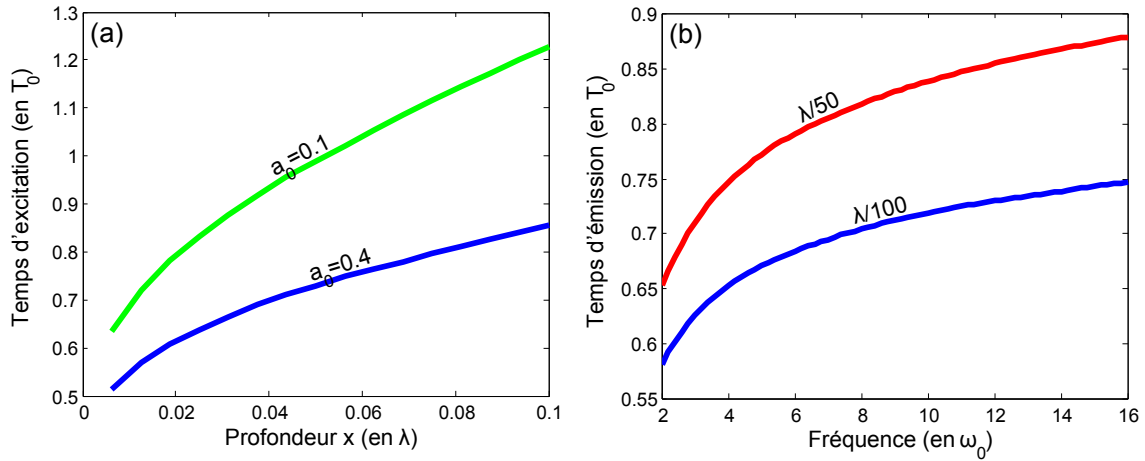


FIGURE 5.7 – (a) Temps d'excitation du plasma en fonction de la profondeur pour deux intensités différentes,  $a_0 = 0.1$  (en vert) et  $a_0 = 0.4$  (en bleu). (b) Temps d'émission CWE en fonction de la fréquence pour une intensité  $a_0 = 0.4$  et deux gradients différents,  $\delta = \lambda/50$  (en rouge) et  $\delta = \lambda/100$  (en bleu).

Dans le paragraphe 4.4.3 sur les simulations PIC de CWE, nous avons vu que la durée des impulsions attosecondes varie avec l'intensité. Comme le chirp attoseconde des CWE est réduit à plus forte intensité, les impulsions émises sont plus courtes (plus proches de la limite de Fourier). On ne peut pas utiliser le modèle pour prédire les durées d'impulsions car il ne fournit pas les efficacités spectrales. Cependant, les résultats du modèle permettent de prédire que pour obtenir des impulsions CWE courtes, il faut un gradient court et une forte intensité.

## 5.2.2 Chirp femtoseconde

Le chirp femtoseconde définit l'"irrégularité" (écart à la périodicité) du train attoseconde par rapport à la périodicité de l'impulsion laser. Si le temps d'émission est le même pour toutes les impulsions attosecondes, celles-ci sont régulièrement espacées dans le train (Fig. 5.8(a)). Dans le cas des CWE, la variation de l'amplitude du champ laser d'un cycle optique à l'autre induit un temps d'émission qui dépend du temps, les impulsions ne sont plus régulièrement espacées : le train CWE possède un chirp femtoseconde intrinsèque (Fig. 5.8(c)). Le chirp femtoseconde induit un élargissement des harmoniques dans le spectre CWE (Fig. 5.8(d)) car les impulsions successives en première partie de train sont espacées de  $\Delta t < T_0$  et en deuxième partie de train de  $\Delta t > T_0$ . Dans le domaine spectral, cela induit respectivement une génération d'harmoniques  $n(1 + \epsilon)\omega_0$  et  $n(1 - \epsilon)\omega_0$ . Cet élargissement est donc d'autant plus grand que l'harmonique considérée est grande. Cet effet est bien visible sur la Fig. 5.8(d).

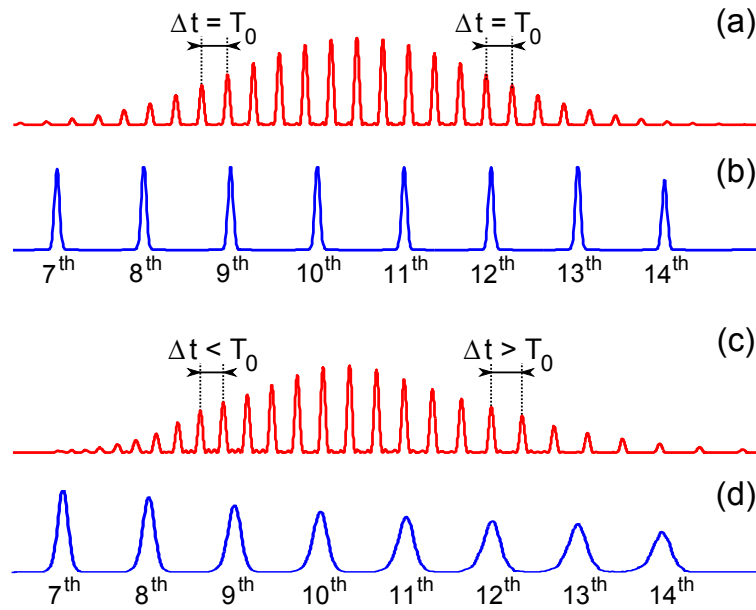


FIGURE 5.8 – Trains d’impulsions régulier (a) et irrégulier (c) et leur spectre harmonique respectif (b) et (d).  $T_0$  est la période laser, sur la figure (c), le chirp femtoseconde est amplifié pour plus de visibilité.

Le chirp femtoseconde est représenté graphiquement par la variation du temps d’émission  $\tau_e(n)$  au sein du cycle optique  $n$  (Fig. 5.9). Cette courbe en U témoigne de l’écart à la périodicité du train d’impulsions attosecondes, dans le cas d’un train régulier, cette courbe serait plate. Cette propriété est caractéristique de l’émission d’un train CWE [30], on la retrouve dans la phase spectrale de chacune des harmoniques (Fig. 5.6(a)), on dit que les harmoniques sont chirpés. Cette figure renforce le modèle car le chirp femtoseconde calculé par le modèle est pratiquement identique à celui fourni par la simulation PIC. Pour obtenir les temps d’émission dans les simulations PIC, on filtre un groupe d’harmoniques autour de la fréquence qui nous intéresse (ici  $8\omega_0$ ) et on mesure la position temporelle des maxima des impulsions du train. On récupère alors la fonction  $\tau'_e(n) = nT_0 + \tau_e(n)$ , il suffit de retrancher  $nT_0$  pour obtenir la courbe en U.

Le chirp femtoseconde varie naturellement en fonction des paramètres de l’interaction. En effet, une intensité plus forte ou un gradient plus court réduit le délai d’émission et par la même occasion la différence de temps d’émission entre deux impulsions successives (le chirp femtoseconde). Cette variation pour une intensité plus faible ( $a_0 = 0.2$ ) est illustrée sur la Fig. 5.10(a) et pour un gradient plus long ( $\delta = \lambda/50$ ) sur la Fig. 5.10(b), la courbe en pointillés est la référence ( $a_0 = 0.4$  et  $\delta = \lambda/100$ ). Dans les deux cas, la courbe en U est plus prononcée donc le chirp femtoseconde est plus grand.

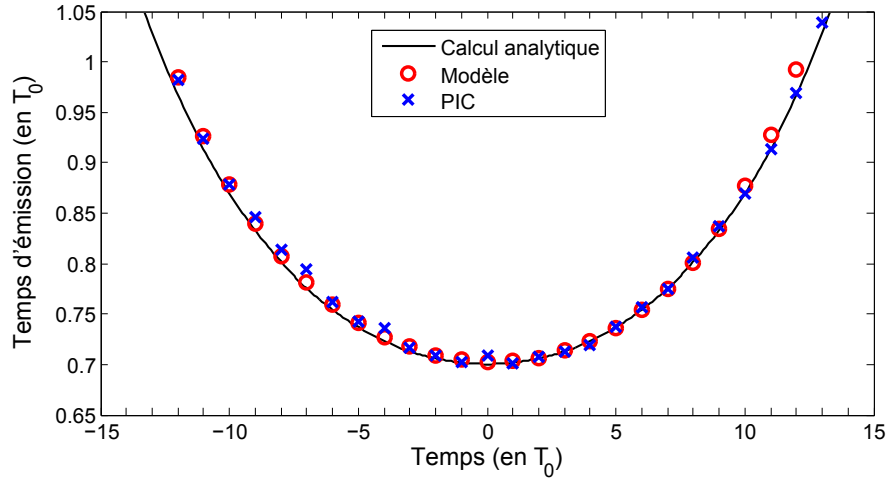


FIGURE 5.9 – Temps d'émission des impulsions CWE à la fréquence  $8\omega_0$  en fonction du cycle optique, pour une impulsion gaussienne de 11 cycles optiques, une intensité  $a_0 = 0.4$  et une longueur de gradient  $\delta = \lambda/100$ . Le résultat de la simulation PIC (croix bleues) est comparé aux prédictions du modèle (cercles rouges). La courbe noire représente le résultat du calcul analytique.

A partir de la résolution analytique des équations qui fournissent les temps d'émission (voir annexe C), j'ai trouvé, en effectuant des approximations, que ces courbes en U peuvent être calculées à partir de l'expression suivante :

$$\tau_e \approx 0.317 + 1.5 \sqrt[3]{\frac{2dc}{9.52\lambda_0 v_{osc}}} \quad (5.11)$$

où  $\tau_e$  est exprimé en  $T_0$ ,  $d$  est la profondeur à laquelle la fréquence considérée est émise,  $v_{osc} = eE/m\omega$ , où  $E$  est l'amplitude du champ électrique au cycle optique considéré. Pour une impulsion gaussienne d'intensité  $a_0$  et de durée  $\tau$ , cette équation s'écrit en fonction du cycle optique  $n$  :

$$\tau_e(n) \approx 0.317 + C_n e^{n^2/6\tau^2}, \text{ où } C_n = 1.5 \sqrt[3]{\frac{\sqrt{2}d}{9.52\lambda_0 a_0}} \quad (5.12)$$

Les courbes intitulées "calcul analytique" présentées précédemment sont obtenues à partir de cette équation. L'équation 5.12 prouve que  $\tau_e$  dépend de l'intensité ( $a_0$ ) et du gradient (car  $d(\omega) = 2\delta \ln \frac{\omega}{\omega_0}$ ) mais aussi de la fréquence considérée (chirp attoseconde de la forme  $\sqrt[3]{\ln \omega}$ ) et de la durée d'impulsion. La variation de  $\tau_e$  en fonction du cycle optique  $n$  (chirp femtoseconde) augmente avec la fréquence et diminue pour une durée d'impulsion plus grande. Nous verrons notamment dans le chapitre suivant que pour des impulsions très courtes (2 cycles optiques à mi-hauteur), le chirp femtoseconde est tel que les modulations spectrales ne correspondent plus

à des fréquences harmoniques. Nous verrons d'autre part que la sensibilité du chirp femtoseconde au gradient de densité plasma permet de mesurer la longueur de ce gradient à partir du spectre CWE.

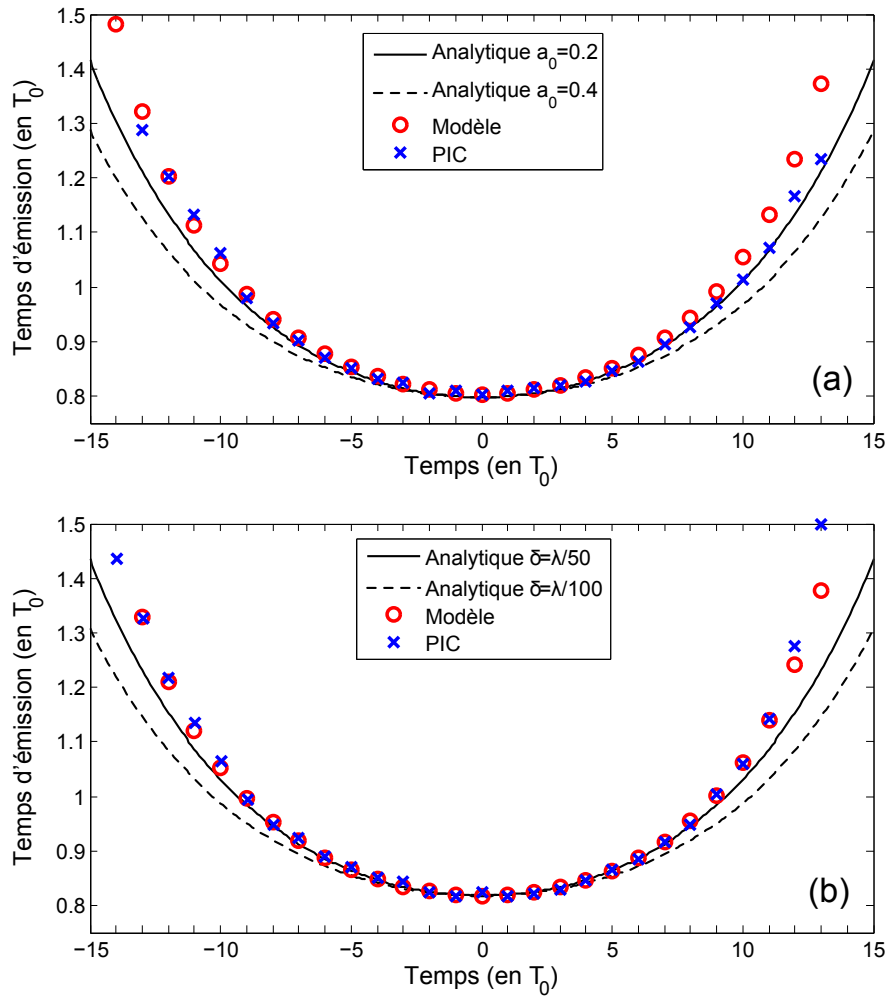


FIGURE 5.10 – Temps d'émission des impulsions CWE à la fréquence  $8\omega_0$  en fonction du cycle optique, pour une impulsion gaussienne de 11 cycles optiques. (a)  $a_0 = 0.2$  et  $\delta = \lambda/100$ , (b)  $a_0 = 0.4$  et  $\delta = \lambda/50$ . Les résultats des simulations PIC (croix bleues) sont comparés aux prédictions du modèle (cercles rouges). Les courbes en U coïncident avec le calcul analytique dans les mêmes conditions (courbe noire), la courbe en pointillés correspond au calcul analytique dans les conditions de la Fig. 5.9 translaté verticalement pour pouvoir comparer les U (une intensité plus faible ou un gradient plus long augmente le temps d'émission moyen).

### 5.2.3 Courbure de front d'onde et divergence

Quand on focalise le faisceau laser pour effectuer l'interaction laser plasma, l'intensité varie en fonction de la position dans la tache focale. Ainsi le délai d'émission CWE varie spatialement : les impulsions CWE possèdent une phase spatiale qui dépend de l'enveloppe spatiale du faisceau

laser, de la même manière que le chirp femtoseconde dépend de l'enveloppe temporelle de l'impulsion. Les fronts d'ondes des CWE sont courbés ce qui modifie la divergence du faisceau harmonique.

Les Fig. 5.11(a,c) montrent la dépendance spatio-temporelle d'un train d'impulsions CWE sans et avec prise en compte de la phase spatiale : les fronts d'intensité sont plans dans le premier cas et courbés dans le deuxième. On remarque que la courbure des fronts d'intensité a la même forme que les courbes en U présentées précédemment. Ce résultat du modèle est similaire à celui de la Fig. 4.21 obtenu par les simulations PIC. A la différence des simulations PIC, le modèle possède une seule dimension spatiale. Pour obtenir les résultats présentés ici, j'ai accolé les résultats du modèle à différentes intensités en choisissant une distribution gaussienne pour l'enveloppe spatiale, ce qui correspond à fabriquer un résultat en 2D à partir de plusieurs simulations 1D indépendantes. On peut ainsi conclure qu'au premier ordre, la génération de CWE en un point de l'espace est indépendante de son voisinage.

En effectuant une transformée de Fourier à deux dimensions de ces trains (Fig. 5.11(b,d)) et en la représentant dans le domaine  $(k_x/\omega, \omega)$ , on obtient la dépendance spectrale de la divergence du faisceau ( $\theta \propto \Delta k_x/\omega$ ). Dans le cas des fronts plans, la divergence décroît avec l'ordre harmonique, ce qui correspond à la limite de diffraction pour une taille de source constante  $a$  ( $\theta \propto 1/a\omega$ ). Dans le cas des fronts courbés, la divergence varie peu en fonction de l'ordre harmonique. On retrouve le même phénomène que pour le chirp femtoseconde : plus la fréquence est élevée, plus elle est sensible à un changement de phase et donc plus sa divergence est augmentée. On peut montrer à partir de la théorie des faisceaux gaussiens que la divergence d'une harmonique à la fréquence  $\lambda$  possédant une phase spatiale quadratique  $\phi(x) = x^2/2R_c$  s'écrit :

$$\theta = \theta_0 \sqrt{1 + \frac{z_R^2}{R_c^2}} \quad (5.13)$$

où  $\theta_0 = \lambda/\pi w_0$  ( $w_0$  est le "waist" du faisceau),  $z_R = \pi w_0^2/\lambda$  est la longueur de Rayleigh et  $R_c$  le rayon de courbure de la phase spatiale. Pour une phase spatiale très courbée ( $R_c \ll z_R$ ), la divergence ne dépend plus de la fréquence :  $\theta \approx w_0/R_c$ . Cela explique le résultat de la Fig. 5.11(d).

La courbure de la phase spatiale a les mêmes dépendances vis-à-vis des paramètres laser et plasma que le chirp temporel : plus l'intensité est faible, le gradient long ou la fréquence haute, plus le délai d'émission varie spatialement et plus la divergence est grande.

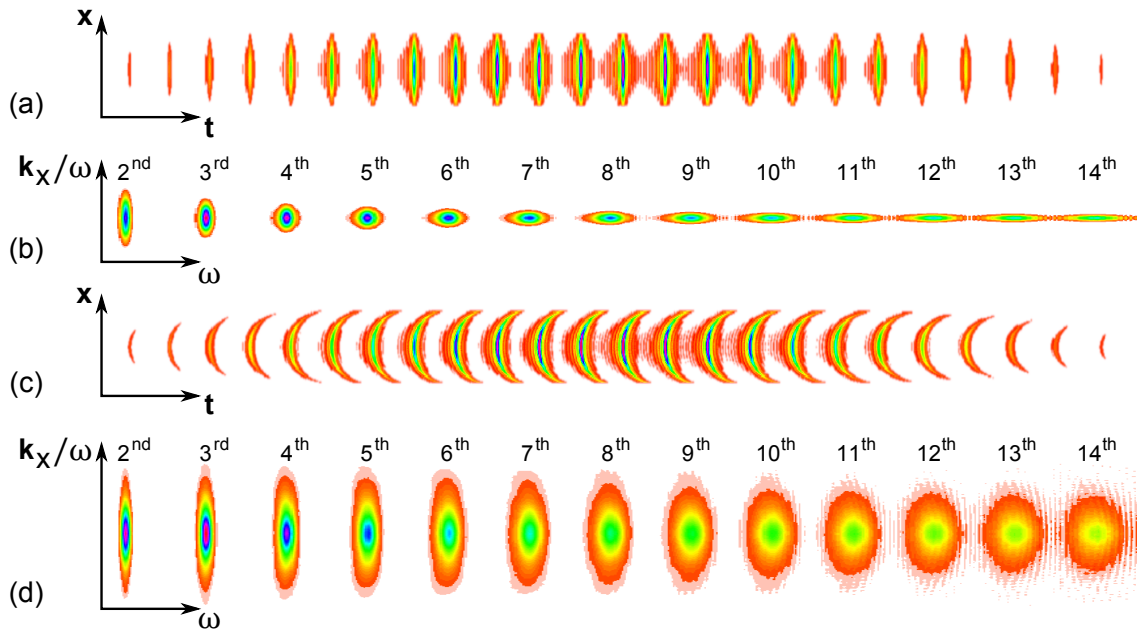


FIGURE 5.11 – Représentation à deux dimensions de trains d’impulsions attosecondes, (a,c) dans le domaine spatio-temporel  $|E(x, t)|$  et (b,d) dans le domaine de Fourier associé  $|E(k_x, \omega)|$ . Ces figures sont obtenues à partir du modèle d’émission CWE, sans prise en compte de la phase spatiale (a,b) et avec prise en compte de la phase spatiale (c,d).

Nous avons vu dans ce chapitre que le temps de croisement des électrons de Brunel peut être calculé à l’aide d’un modèle semi-analytique qui fournit les trajectoires des électrons de Brunel. Dans le cas d’impulsions "longues" ( $> 10$  cycles optiques à mi-hauteur), on a pu trouver une expression analytique de ces temps de croisement en fonction des paramètres laser et du gradient de densité plasma. En associant temps de croisement et temps d’émission, nous avons pu étudier la dépendance du délai d’émission en fonction de la fréquence (chirp attoseconde) et de l’intensité (chirp femtoseconde et phase spatiale). Le modèle permet ainsi de prédire les caractéristiques temporelles des trains d’impulsions CWE. Dans le chapitre suivant, nous allons utiliser le modèle et l’expression analytique des temps d’émission pour analyser les mesures expérimentales de spectres CWE en impulsions "longues" et impulsions "courtes" (2 cycles optiques à mi-hauteur), réalisées avec le laser de la Salle Noire du LOA.



# Chapitre 6

## Etude de l'interaction laser-plasma par spectroscopie CWE

### 6.1 Conditions expérimentales

Pour étudier expérimentalement la génération de CWE, nous avons utilisé le laser Ti :Sa de la "Salle Noire" du laboratoire d'optique appliquée. Le laser est focalisé sous vide sur une cible solide (silice) et le faisceau réfléchi est caractérisé au moyen d'un spectromètre. La difficulté expérimentale réside dans la mise en forme spatio-temporelle du faisceau laser (compression et focalisation sur la cible, contraste temporel) pour obtenir les conditions nécessaires à la génération de CWE et dans la stabilité de l'interaction pour pouvoir intégrer le signal et effectuer des études paramétriques. Notamment, le taux de répétition du laser étant de  $1\text{ kHz}$ , il a été nécessaire de développer un dispositif expérimental qui permet de renouveler la zone d'interaction au  $\text{kHz}$  [31]. Ce fut l'objet de la thèse d'Antonin Borot [32], qui a conçu un système basé sur une cible solide en rotation dont la position est stabilisée par interférométrie pour conserver les mêmes conditions d'interaction. En effet, si la cible est mal alignée, la zone d'interaction se déplace : l'intensité laser sur cible et la direction d'émission sont modifiées. Le schéma de l'expérience de génération d'harmoniques sur cible solide est représenté sur la Fig. 6.1. Le spectromètre est composé d'un réseau de diffraction sphérique, utilisé en incidence rasante, qui refocalise le faisceau sur une dimension, suivi d'un détecteur XUV (Micro-Channel Plate (MCP) accolée à un écran phosphore). Ce spectromètre permet d'observer les fréquences supérieures à  $7\omega_0$  et possède une fenêtre de détection restreinte par sa dimension (une fenêtre de  $3\omega_0$  autour de la fréquence  $9\omega_0$  et de  $5\omega_0$  autour de la fréquence  $14\omega_0$ ).

Le laser de la salle noire nous a permis d'étudier deux conditions d'interaction bien dis-



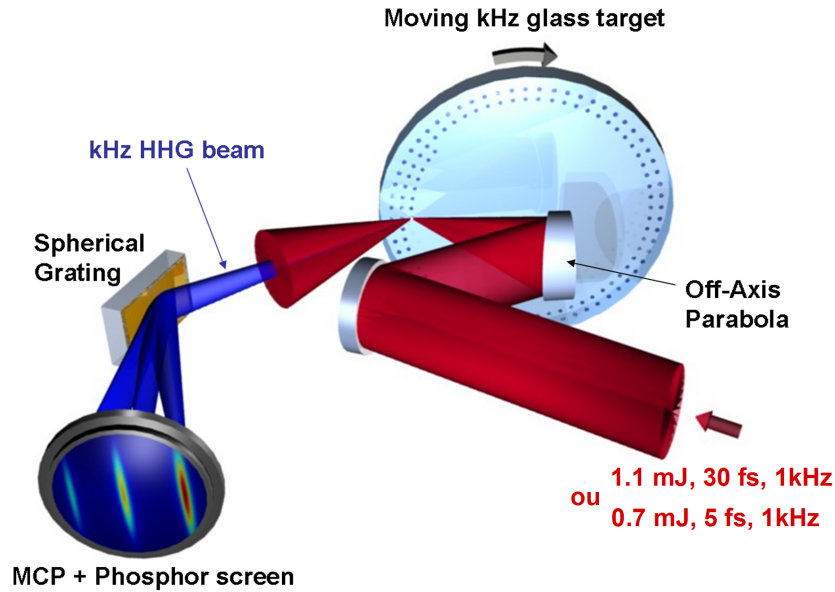


FIGURE 6.1 – Schéma de l'expérience

tinctes : les configurations "impulsions longues" et "impulsions courtes" dont les caractéristiques sont détaillées dans le tableau 6.1. Le passage d'une configuration à l'autre est possible grâce à la compression d'impulsions dans une fibre creuse, sujet de la première partie de cette thèse, et grâce à une focalisation plus forte. La stabilité en CEP en impulsions courtes est assurée par une double boucle de rétroaction [33]. Nous avons étudié le spectre de l'émission de CWE dans ces deux configurations, des mesures typiques sont représentées sur la Fig. 6.2 : les caractéristiques spectrales sont très différentes selon la durée de l'impulsion. L'analyse de ces résultats est effectuée dans les paragraphes suivants. Nous verrons notamment qu'une étude paramétrique associée aux résultats théoriques permet de remonter à des informations sur l'interaction laser-plasma. Il est important de souligner que l'analyse physique que nous avons pu effectuer à partir des mesures ne fut possible que grâce à l'excellente stabilité du laser et de l'interaction laser-plasma.

Configuration	Durée (fs)	Energie (mJ)	Intensité ( $a_0$ )	Stabilité CEP
Impulsions longues f/4	30	1.1	$\approx 0.2$	Non
Impulsions longues f/2	30	1.1	$\approx 0.6$	Non
Impulsions courtes f/2	5	0.7	$\approx 0.4$	Oui

TABLE 6.1 – Conditions laser sur cible pour les deux configurations utilisées : impulsions longues et impulsions courtes.

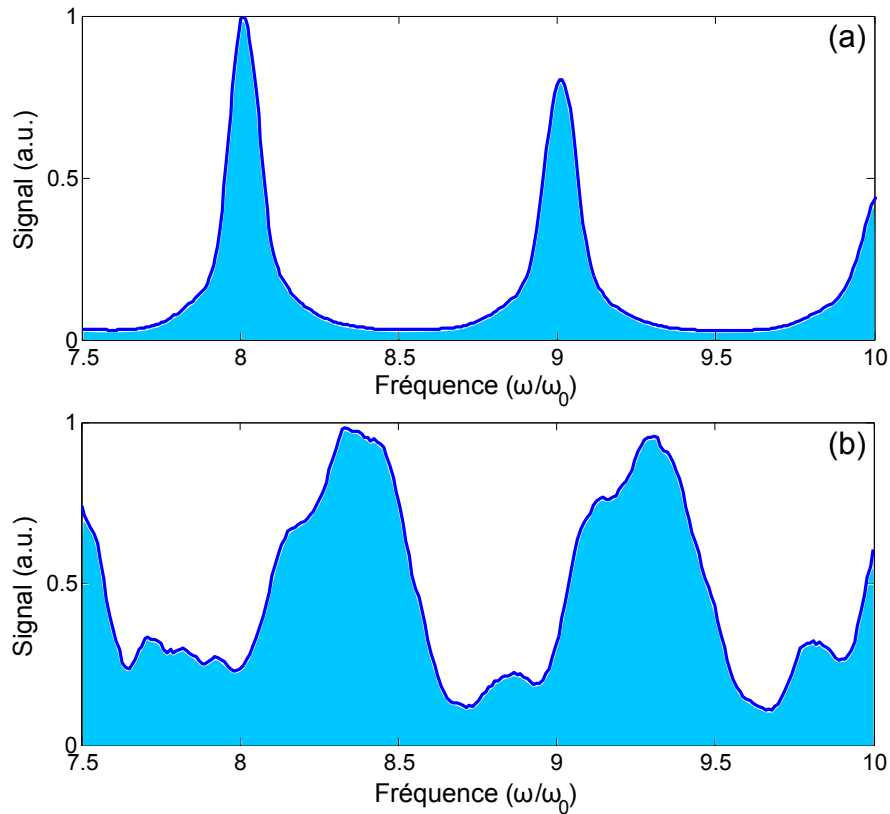


FIGURE 6.2 – Exemple de spectres CWE expérimentaux obtenus en impulsions longues (a) et impulsions courtes (b).

## 6.2 Spectres CWE générés par des impulsions longues (30 fs)

Les spectres CWE en impulsions longues sont constitués de pics dont la fréquence correspond aux fréquences harmoniques du laser. Les meilleurs résultats expérimentaux que nous avons obtenus sont présentés dans notre article Borot *et al* [31], dans lequel nous démontrons la génération d'harmoniques sur cible solide à 1 kHz (jusqu'à l'harmonique 19), nous démontrons également que le processus de génération est le CWE : cette démonstration est détaillée dans le paragraphe suivant. D'autre part nous avons effectué une analyse spectrale de l'émission CWE en fonction des paramètres laser (intensité) et des paramètres plasma (absence ou présence de pré-chauffage de la cible). En comparant les mesures expérimentales aux résultats du modèle présenté au chapitre précédent, nous avons obtenu des informations sur les conditions plasmas (Malvache *et al* [34]) : cette analyse est décrite dans le paragraphe 6.2.2.

## 6.2.1 Compensation du chirp femtoseconde

### Temps d'émission

Nous avons vu précédemment que le chirp femtoseconde est une caractéristique des harmoniques CWE. Cet effet augmente la largeur spectrale des harmoniques et dilate le train attoseconde (voir paragraphe 5.2.2). Cette caractéristique permet de distinguer sans ambiguïté l'émission CWE de l'émission ROM. En effet, Quéré *et al* [30] ont démontré que le chirp femtoseconde peut être compensé en utilisant une impulsion laser chirpée positivement. Une mesure de la largeur spectrale des harmoniques en fonction du chirp laser permet ainsi de déterminer le type d'émission. Avant d'étudier la variation des largeurs spectrales, nous allons, en restant dans le domaine temporel, étudier l'effet du chirp laser sur la dilatation du train d'impulsions attosecondes.

Le chirp d'une impulsion modifie l'espacement entre les cycles optiques comme illustré sur la Fig. 6.3, on regarde ici le cas d'une impulsions de 2 cycles optiques car les effets sont plus flagrants. Pour une impulsion comprimée (Fig. 6.3(b)), les cycles optiques laser sont régulièrement espacés et le train d'impulsions attosecondes n'est pas régulier. Dans le cas du chirp positif (Fig. 6.3(c)), les cycles optiques de l'impulsion laser sont plus éloignés au début (fréquence plus longue) et plus rapprochés à la fin (fréquence plus courte), ce qui compense la dilatation intrinsèque du train CWE. Enfin, pour une impulsion chirpée négativement (Fig. 6.3(a)), la variation des délais entre les cycles optiques laser est inversée, la dilatation du train CWE n'est pas compensée.

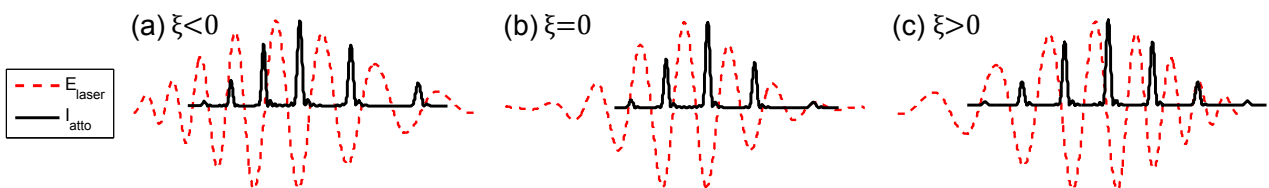


FIGURE 6.3 – Schémas d'une impulsion laser de deux cycles optiques à mi-hauteur (durée limitée par transformée de Fourier) à différents chirps (en rouge) et les trains d'impulsions CWE associés (en noir). Les dilatations sont amplifiées pour les mettre en valeur.

Mathématiquement, la phase temporelle quadratique associée au chirp de l'impulsion,  $\phi(t) = \alpha_C t^2 / 2$  se soustrait à la courbe en U du chirp femtoseconde. Les résultats de simulation des temps d'émission pour une impulsion longue chirpée sont présentés sur la Fig. 6.4. Pour  $\xi = 1$  (a), le chirp femtoseconde a pratiquement disparu : le temps d'émission dépend très peu du cycle optique. Pour  $\xi = -1$ , le chirp femtoseconde est quasiment inchangé, car le chirp de

l'impulsion laser amplifie le chirp du train attoseconde mais dans le même temps, l'impulsion est considérablement allongée, ce qui réduit le chirp femtoseconde : ces deux effets se compensent à peu près.

Il est possible de retrouver analytiquement la courbe des temps d'émission dans le cas d'une impulsion chirpée (voir Annexe C). On utilise la même équation que précédemment (Eq. 5.12) à laquelle on soustrait une phase temporelle quadratique :

$$\tau_e^\xi(n) \approx 0.317 + C_n(\xi) e^{n^2/6\tau^2(\xi)} - \frac{\alpha_C}{2\pi} \frac{n(n+1)}{2}, \text{ où } C_n(\xi) = 1.5 \sqrt[3]{\frac{2d}{a\lambda_0 a_0(\xi)}} \quad (6.1)$$

Dans ce cas, l'amplitude du champ électrique et la durée dépendent aussi de  $\xi$  (le chirp allonge l'impulsion), les équations sont données dans la première partie (paragraphe 1.2). Cette courbe analytique est représentée en noir dans la Fig. 6.4. Dans le cas d'une impulsion chirpée positivement le chirp femtoseconde intrinsèque des CWE est littéralement annulé par le chirp de l'impulsion laser.

### Largeur d'harmonique

La compensation du chirp femtoseconde a une incidence directe sur la forme du spectre CWE : comme le train d'impulsions attosecondes devient plus régulier, les pics harmoniques sont plus fins. Cet effet est clairement visible sur le spectre comme le montrent les simulations PIC de la Fig. 6.5 : les largeurs d'harmonique varient avec le chirp laser, un chirp négatif amplifie l'élargissement alors qu'un chirp positif affine très fortement les pics. Malgré un chirp femtoseconde apparemment plus faible (cf Fig. 6.4(b)), le chirp négatif ( $\xi = -1$ ) ne réduit pas les largeurs d'harmoniques. En réalité, le chirp femtoseconde ne dépend pas que de la forme de la courbe en U mais aussi de la durée de l'impulsion. Comme la variation du délai d'émission est plus forte aux extrêmes, un chirp négatif allonge l'impulsion ce qui génère un train plus long et plus dilaté en moyenne.

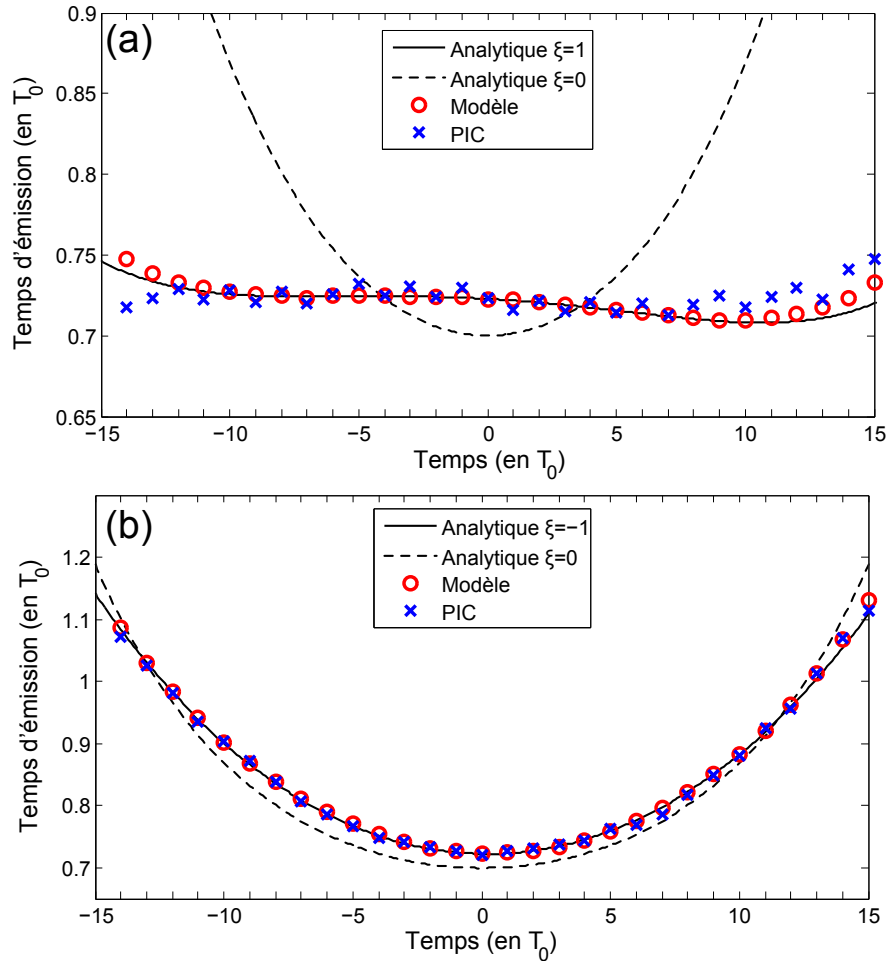


FIGURE 6.4 – Temps d'émission des impulsions CWE autour de la fréquence  $8\omega_0$  en fonction du cycle optique, pour une impulsion chirpée positivement (a)  $\xi = 1$  et négativement (b)  $\xi = -1$ . L'impulsion comprimée a une enveloppe gaussienne de 11 cycles optiques à mi-hauteur, une intensité  $a_0 = 0.4$  et la plasma a une longueur de gradient  $\delta = \lambda/100$ . Le résultat de la simulation PIC (croix bleues) est comparé aux prédictions du modèle (cercles rouges). Ces courbes se calculent analytiquement en prenant en compte séparément le chirp de l'impulsion laser et le chirp CWE (courbe noire). La courbe en pointillés représente la variation des temps d'émission dans les mêmes conditions avec une impulsion comprimée.

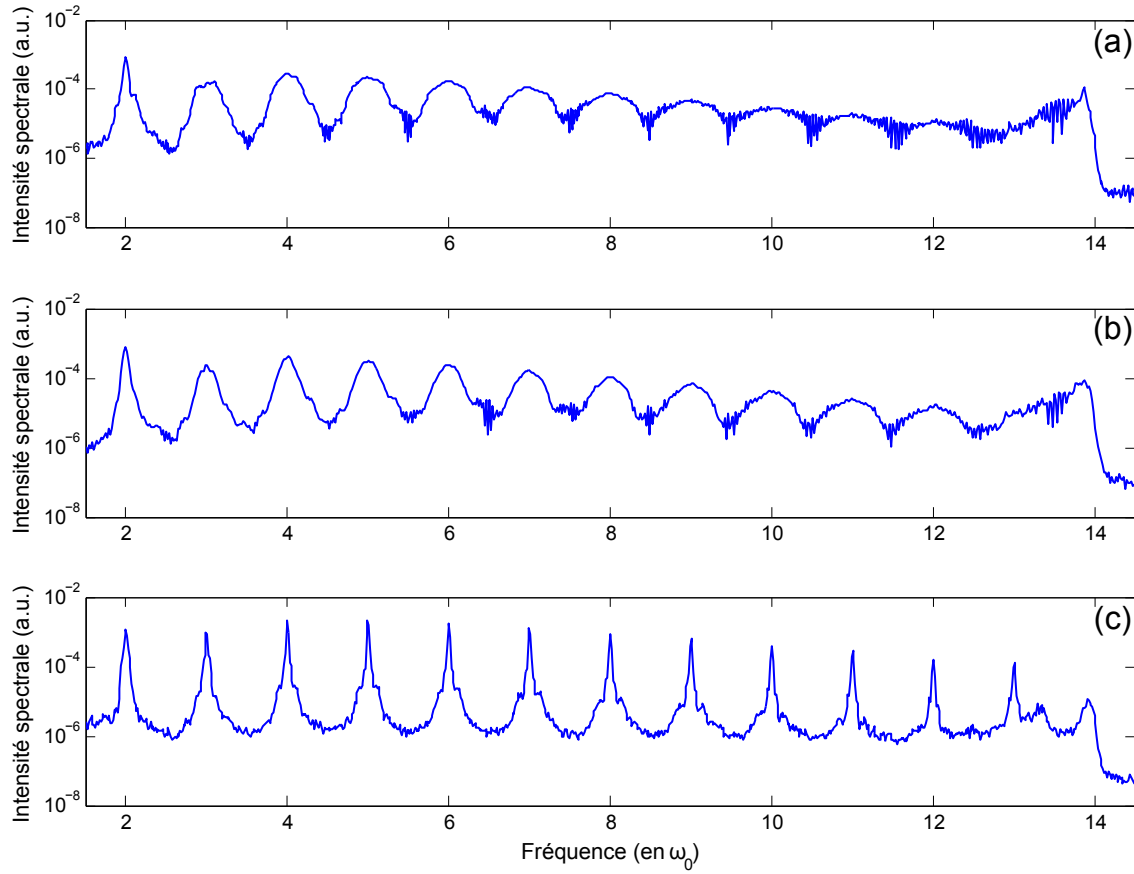


FIGURE 6.5 – Effet du chirp de l’impulsion laser sur le spectre de CWE (simulations PIC). (a) chirp négatif  $\xi = -1$ , (b) chirp nul  $\xi = 0$  et (c) chirp positif  $\xi = 1$ . Les conditions de simulations sont  $a_0 = 0.4$ ,  $\delta = \lambda/100$  et  $\tau = 30 fs$ .

Les oscillations très rapides visibles dans les spectres en chirp nul et négatif ne proviennent pas du bruit numérique, elles témoignent de la forte dilatation du train. En effet, la même fréquence peut être générée à deux temps très différents dans un train dilaté. Deux impulsions espacées de  $\tau_i$  génèrent les harmoniques de la fréquence  $\omega_i = 2\pi/\tau_i$ . S’il existe deux délais  $\tau_1$  et  $\tau_2$  tels qu’on puisse avoir  $\omega = n\omega_1 = (n+1)\omega_2$  ( $n$  entier), alors la fréquence  $\omega$  est dégénérée (voir Fig. 6.6). On observe une interférence spectrale de période  $2\pi/T$ , où  $T$  est l’écart temporel entre les couples 1 et 2. Plus la dilatation du train est forte, plus l’écart entre les fréquences  $\omega_i$  est grand, et donc plus il y a de possibilités de dégénérescence. C’est en regardant spécifiquement la provenance de ces oscillations spectrales dans les résultats des simulations PIC que j’ai identifié ce phénomène de dégénérescence.

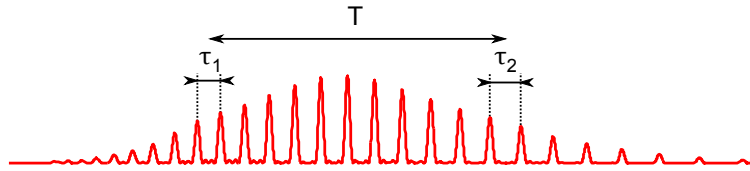


FIGURE 6.6 – Exemple de train d'impulsions dilaté.

Nous avons étudié expérimentalement la variation des largeurs d'harmoniques en fonction du chirp laser en impulsions longues. Les résultats (Fig. 6.7) sont similaires à ceux obtenus dans la réf. [30]. On observe un comportement asymétrique comme dans les simulations PIC, cependant on voit qu'au delà d'une certaine limite, le chirp positif du laser augmente à nouveau la largeur d'harmonique. Comme la phase quadratique temporelle  $\alpha$  est maximale pour un chirp spectral  $\xi = 1$  (voir Eq. 1.13), la compensation du chirp femtoseconde est a priori optimal pour cette valeur de chirp, et elle est moins efficace pour  $\xi > 1$ . Les prédictions du modèle soutiennent cette conclusion. Les écarts entre les mesures et le modèle peuvent être expliqués par les imperfections temporelles du laser. En effet, celui-ci présente de la phase non-linéaire d'ordre supérieur à 2 ce qui altère la compensation du chirp femtoseconde. C'est probablement pour cette raison que nous n'avons pas obtenu un rétrécissement des largeurs d'harmoniques aussi fort que prédit par le modèle.

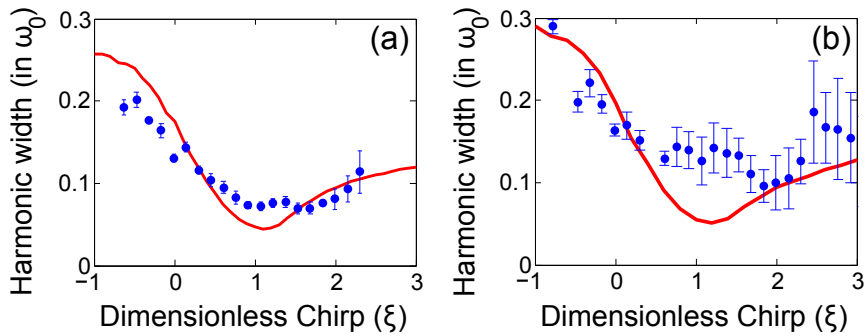


FIGURE 6.7 – Mesure expérimentale de la largeur de l'harmonique 8 en fonction du chirp laser en impulsions longues, avec focalisation à  $f/4$  (a) et  $f/2$  (b). Les courbes rouges sont calculées par le modèle en utilisant respectivement une non-linéarité  $b = 2.6$  et  $b = 3.6$  (voir paragraphe suivant).

Le comportement asymétrique des largeurs d'harmoniques en fonction du chirp démontre que les harmoniques observées sont générées par le mécanisme CWE.

### 6.2.2 Caractérisation du plasma

Nous avons vu que le modèle permet de reproduire la forme du spectre CWE émis à partir des conditions de l'interaction : durée, intensité, chirp de l'impulsion laser, longueur de gradient plasma et non-linéarité de l'émission. Les paramètres laser sont connus mais on ne connaît a priori ni la non-linéarité  $b$ , ni la longueur de gradient  $\delta$ . On ne peut donc pas prédire ab initio le résultat d'une expérience. Cependant, sous certaines approximations, il est possible de mesurer la non-linéarité de l'émission. Il ne reste alors qu'une seule inconnue  $\delta$ , que l'on détermine à partir des résultats expérimentaux : on ajuste sa valeur dans le modèle pour reproduire les spectres mesurés. On peut enfin se servir de cette méthode pour caractériser l'expansion du plasma et estimer sa température électronique. La longueur du gradient de densité et la température électronique du plasma sont des paramètres difficilement accessibles expérimentalement : la méthode FDI (Frequency Domain Interferometry) [35] permet de mesurer ces paramètres plasma mais demeure une technique complexe, peu adaptée pour des longueurs de gradient extrêmement courtes ( $\delta < \lambda/50$ ). La connaissance de ces paramètres est primordiale pour modéliser correctement l'interaction laser-plasma, ils font notamment partie des conditions initiales du code PIC CALDER.

#### Mesure de la non-linéarité

La non-linéarité  $b$  quantifie l'efficacité de génération d'un cycle optique en fonction de l'amplitude du champ laser. Comme on n'effectue pas de mesure temporelle du train attoseconde, on n'a pas accès à cette valeur. On peut en revanche mesurer à partir du spectre l'efficacité de génération intégrée dans le temps. En effectuant cette mesure en fonction de l'intensité laser, on obtient les résultats de la Fig. 6.8, où on fait varier l'intensité laser en utilisant une lame demi-onde suivie d'un polariseur. En faible focalisation, le signal harmonique varie en  $I^{2.6}$  ce qui suggère que la non-linéarité est  $b = 2.6$ , en forte focalisation, on mesure  $b = 3.6$ . Nous avons ici fait l'hypothèse que la non-linéarité du signal intégré en temps correspond à la non-linéarité de l'émission de chaque cycle optique de l'impulsion. Ceci est justifié si les conditions plasma n'évoluent pas au cours de l'interaction (ce qui est vrai pour une impulsion très courte et pour  $a_0 < 1$  : l'intensité est insuffisante pour affecter le plasma et celui-ci n'évolue pas significativement à l'échelle femtoseconde).



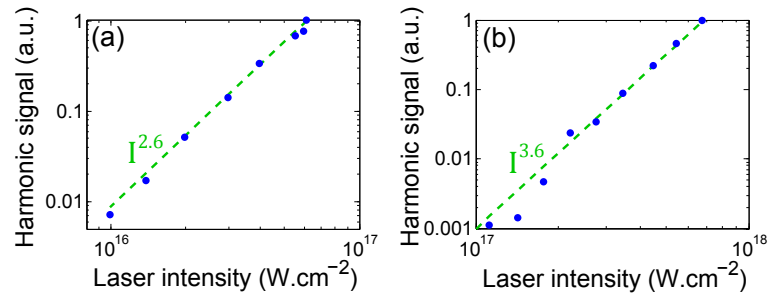


FIGURE 6.8 – Mesure de la non-linéarité de la génération de CWE (harmonique 8) en impulsions longues ( $30\text{ fs}$ ) en fonction de l'intensité laser pour une focalisation  $f/4$  (a) et  $f/1.7$  (b). L'intensité est estimée à partir des mesures de tâche focale, durée (FROG) et énergie des impulsions.

On observe que la non-linéarité varie en fonction des conditions expérimentales. Cela peut provenir d'une différence dans les conditions d'interaction (taille de tache, longueur de gradient) mais aussi d'une différence dans la détection du signal. En effet, à plus forte focalisation, le signal CWE ne pénètre plus entièrement dans le spectromètre car il diverge plus. Aux faibles intensités, la divergence est augmentée donc le signal est fortement diminué, ceci accroît artificiellement la non-linéarité. Ce phénomène reste à étudier et à quantifier.

### Mesure du gradient

La non-linéarité de l'émission CWE dans nos deux conditions expérimentales étant désormais connue, on peut effectuer une étude paramétrique des spectres CWE et essayer de les reproduire avec le modèle. Comme le modèle prédit seulement les caractéristiques des modulations spectrales (liées aux temps d'émission) et non pas l'enveloppe globale du spectre (liée à l'efficacité de génération), nous avons effectué une étude sur les largeurs d'harmoniques. Nous avons ainsi mesuré la variation des largeurs d'harmoniques en fonction de l'intensité (expériences identiques à celles de la Fig. 6.8) et la variation des largeurs d'harmoniques en fonction de l'ordre harmonique. Les résultats sont présentés sur les Fig. 6.9 et 6.10 pour les deux conditions de focalisation. On observe ici la preuve expérimentale de la dépendance du chirp femtoseconde avec l'intensité et la fréquence (voir paragraphe 5.2.2). Quand on augmente l'intensité, les largeurs d'harmoniques diminuent ; quand on augmente la fréquence (ou l'ordre harmonique), la largeur augmente. On vérifie ainsi que le chirp femtoseconde augmente avec la fréquence et varie à l'inverse de l'intensité. Cette conclusion est vraie avec les hypothèses suivantes : la non-linéarité – et donc le nombre d'impulsions attosecondes – ne varie pas en fonction de l'intensité et de l'ordre harmonique, et la longueur de gradient de densité plasma ne

varie pas en fonction de l'intensité. Cette dernière hypothèse est justifiée par le fort contraste ( $> 10^7$ ) du laser de la "Salle Noire" : le plasma se forme toujours au même instant, au niveau du front montant de l'impulsion, et ce tant que l'intensité est inférieure à  $10^{18} \text{ W.cm}^{-2}$  (voir Fig. 4.4) ce qui est le cas dans les expériences. Dans le cadre de ces hypothèses, seule une modification des temps d'émissions peut changer les largeurs d'harmoniques.

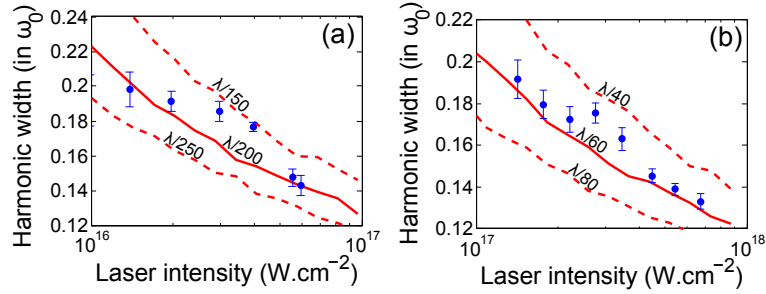


FIGURE 6.9 – Mesures de la largeur de l'harmonique 9 (CWE) en impulsions longues (30 fs) en fonction de l'intensité laser pour une focalisation  $f/4$  (a) et  $f/1.7$  (b).

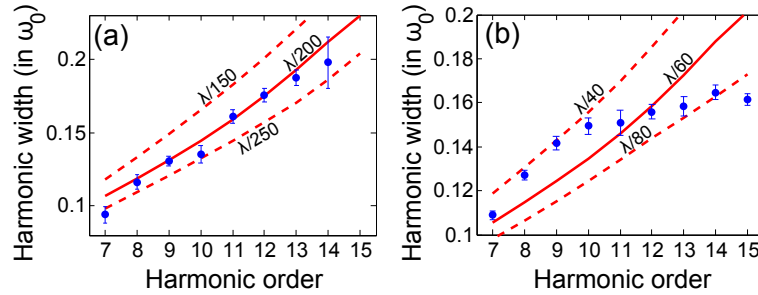


FIGURE 6.10 – Largeur des harmoniques CWE en impulsions longues (30 fs) en fonction de l'ordre harmonique pour une focalisation  $f/4$  (a) et  $f/1.7$  (b).

Comme le modèle permet de prédire la variation des largeurs d'harmonique en fonction de l'intensité pour différents gradients, j'ai proposé une méthode pour mesurer le gradient à partir de ces résultats expérimentaux. Les courbes rouges sont les prédictions du modèle pour différents gradients, en utilisant les non-linéarités mesurées précédemment. A partir de ces mesures paramétriques de largeurs d'harmonique, on peut ainsi avoir une estimation de la longueur de gradient avec une bonne précision : dans la configuration faible focalisation, le gradient plasma a une longueur caractéristique  $\delta \approx \lambda/200$ ; à forte focalisation, on trouve  $\delta \approx \lambda/60$ . Une telle différence était attendue car en augmentant l'intensité, on augmente aussi l'énergie qui précède l'impulsion laser principale et ionise la cible solide. Le plasma étant créé plus tôt, il se détend plus longtemps avant l'arrivée de l'impulsion, le gradient est donc plus

long. En pré-ionisant volontairement le plasma à l'aide d'une pré-impulsion, on peut étudier à partir des largeurs d'harmoniques l'évolution du plasma.

### Etude de l'expansion du plasma

A partir de la mesure du gradient décrite ci-dessus, on peut étudier l'expansion d'un plasma créé par une autre impulsion. Pour cela, nous avons effectué des expériences pompe-sonde. La moitié du laser est prélevée avant l'interaction et focalisée séparément avec une ouverture numérique moindre ( $f/10$  en focalisation faible et  $f/5$  en focalisation forte) et un angle d'incidence différent (le signal réfléchi de la sonde n'est pas mesuré). En utilisant une ligne à délai, on fait en sorte que cette impulsion atteigne la cible avant l'impulsion principale, avec un délai contrôlé (de 0 à 500  $fs$ ) : on "pompe" le plasma avec une pré-impulsion. Il est ensuite "sondé" par l'impulsion principale en émettant des harmoniques CWE. Pour effectuer l'expérience pompe-sonde, la pré-impulsion satisfait les conditions suivantes : d'une part, la tache focale est plus grande ( $20 \mu m$  de diamètre en focalisation  $f/10$  et  $10 \mu m$  en focalisation  $f/5$ ) que celle de l'impulsion principale afin de sonder sur une surface plane, d'autre part, l'énergie du faisceau pompe est choisie pour avoir une intensité sur cible de l'ordre de  $10^{15} W.cm^{-2}$  en focalisation faible et  $10^{16} W.cm^{-2}$  en focalisation forte. On mesure alors la largeur d'harmonique en fonction du délai entre la pompe et la sonde, on obtient les résultats de la Fig. 6.11.

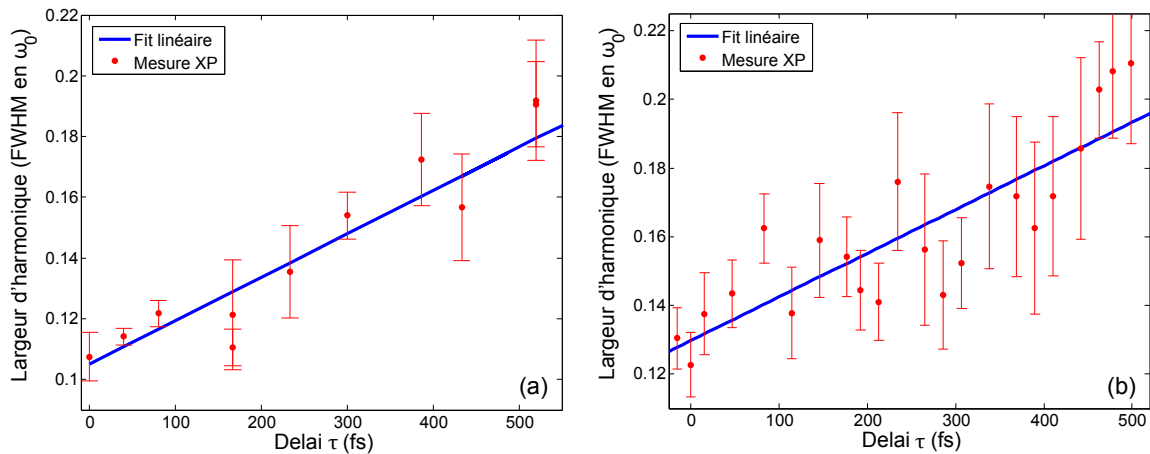


FIGURE 6.11 – Dépendance de la largeur de l'harmonique 8 en fonction du délai de pré-ionisation (résultats expérimentaux en  $f/4$  (a) et en  $f/2$  (b)). Les conditions lasers sont les suivantes : impulsions longues ( $30 fs$ ),  $a_0 = 0.2$  et  $a_0 = 0.6$ . Les barres d'erreurs sont estimées à partir de la qualité du fit gaussien utilisé pour mesurer les largeurs d'harmonique.

On observe que les largeurs d'harmoniques (et donc le chirp femtoseconde) augmentent avec le délai. En effet, la pré-impulsion ionise la cible solide, le plasma ainsi créé se détend

vers le vide : plus le plasma est créé tôt, plus la longueur de gradient est grande. On retrouve ici la dépendance du chirp femtoseconde à la longueur de gradient : celui-ci augmente pour un gradient plus long. En faisant l'approximation d'une expansion du plasma à la vitesse constante  $v_p$ , on peut relier le délai  $\tau$  à la longueur de gradient  $\delta$  :  $\delta(\tau) = \delta(0) + v_p\tau$ . On calcule cette vitesse à partir des dépendances des largeurs d'harmonique avec le délai de pré-ionisation (Fig. 6.11 issue de l'expérience) et la longueur de gradient (Fig. 6.12 issue du modèle), en effectuant des approximations linéaires sur les résultats :

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_0} = \alpha_p\tau, \text{ avec } \alpha_p = 1.43 \times 10^{-4} \text{ fs}^{-1} \text{ (f/4)} \text{ et } \alpha_p = 1.27 \times 10^{-4} \text{ fs}^{-1} \text{ (f/2)} \quad (6.2)$$

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_0} = \beta_p\delta, \text{ avec } \beta_p = 9.18 \times 10^{-3} \text{ nm}^{-1} \text{ (f/4)} \text{ et } \beta_p = 2.15 \times 10^{-3} \text{ nm}^{-1} \text{ (f/2)} \quad (6.3)$$

$$v_p = \frac{\alpha_p}{\beta_p} = 0.0156 \text{ nm} \cdot \text{fs}^{-1} \text{ (f/4)} \text{ et } v_p = \frac{\alpha_p}{\beta_p} = 0.0591 \text{ nm} \cdot \text{fs}^{-1} \text{ (f/2)} \quad (6.4)$$

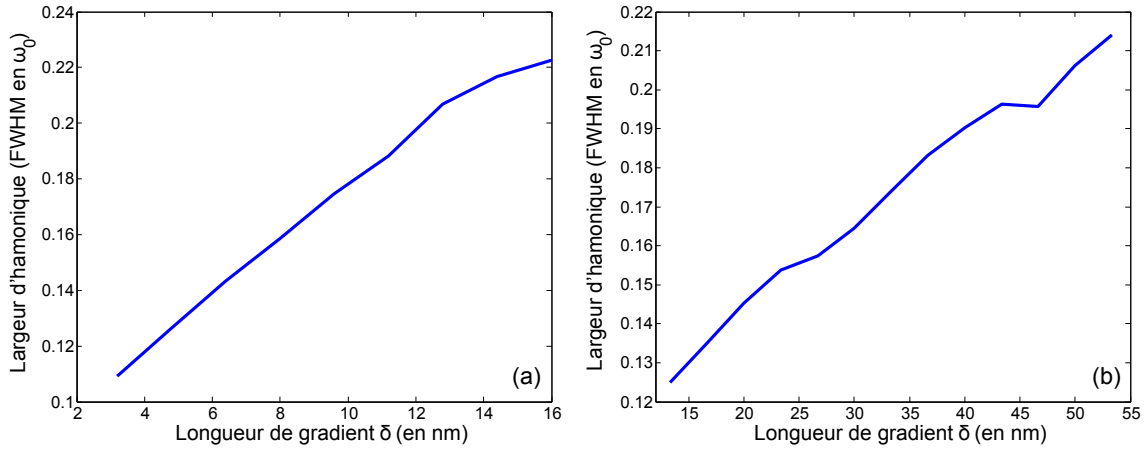


FIGURE 6.12 – Dépendance de la largeur de l'harmonique 8 en fonction de la longueur de gradient (prédictions du modèle avec une non-linéarité  $b = 2.6$  (a) et  $b = 3.6$  (b)). Les conditions lasers sont les suivantes : impulsions longues (30 fs),  $a_0 = 0.2$  (a) et  $a_0 = 0.6$  (b), chirp  $\xi = 0.3$ .

On peut ensuite calculer la température électronique  $T_e$  du plasma en utilisant la formule de l'expansion isotherme d'un plasma [16] :

$$v_p = \sqrt{\frac{Z_i k_b T_e}{m_i}} \quad (6.5)$$

ce qui revient à dire que l'énergie des ions (de masse  $m_i$  et de charge  $Z_i$ ) qui se déplacent vers le vide est égale à l'énergie thermique des électrons du plasma. Si on considère que les atomes sont entièrement ionisés, on a  $m_i/Z_i = m_{proton} + m_{neutron}$ . Si on veut obtenir la température électronique en électronvolts (eV), qui est l'unité usuelle dans les plasmas, on a  $T_e(\text{eV}) =$

$m_i v_p^2 / Z_i e$ , on trouve alors  $T_e = 5 \text{ eV}$  en focalisation  $f/10$  et  $T_e = 73 \text{ eV}$  en focalisation  $f/5$ . Comme nous l'avons déjà observé précédemment, une intensité plus forte de la pompe implique un préchauffage plus fort du plasma avant l'arrivée de l'impulsion sonde. Comme l'intensité varie d'un ordre de grandeur entre les deux conditions de focalisation, il est plutôt satisfaisant de retrouver cet écart d'un ordre de grandeur sur la température du plasma. Ainsi, à partir d'une mesure pompe-sonde sur le plasma, en utilisant les propriétés spectrales des CWE, on a pu mesurer la température électronique du plasma, qui est un paramètre difficilement accessible expérimentalement.

### 6.3 Spectres CWE générés par des impulsions courtes (5 fs)

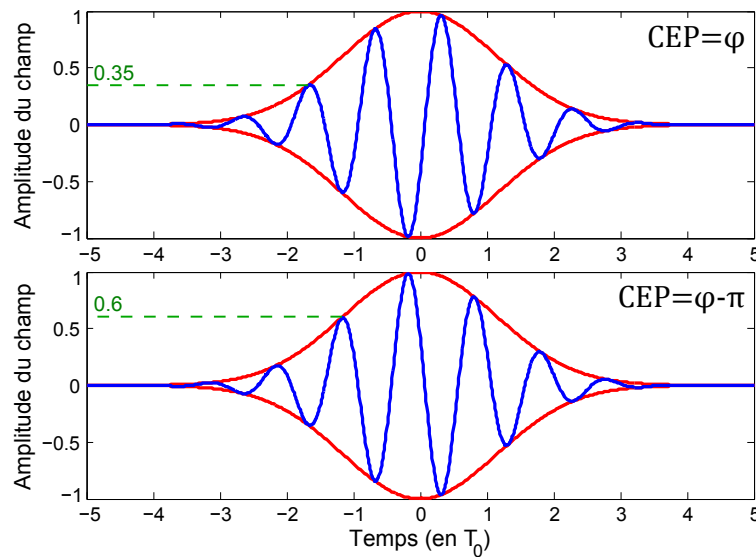


FIGURE 6.13 – Champ électrique et enveloppe d'une impulsion de 5 fs pour deux valeurs de CEP différentes.

La génération d'harmoniques en impulsion courte nécessite un contrôle de la phase entre la porteuse et l'enveloppe (CEP). En effet, la position relative du champ sous l'enveloppe définit l'amplitude de chaque cycle optique. Pour une impulsion longue, la variation de l'enveloppe sur une période laser est négligeable. En revanche, dans le cas d'une impulsion de 2 cycles optiques ( $\approx 5 \text{ fs}$  à  $800 \text{ nm}$ ), l'amplitude du champ sur un cycle optique donné varie fortement (voir Fig. 6.13). Le processus CWE dépendant fortement de l'amplitude du champ (en particulier les temps d'émission), la CEP est alors un paramètre crucial pour l'étude de l'interaction laser-plasma en impulsions courtes. Nous avons effectué une analyse expérimentale et théorique du

spectre CWE en fonction de la CEP et du chirp de l'impulsion laser [36]. Dans ce chapitre nous verrons d'abord les résultats expérimentaux et les prédictions du modèle, puis nous étudierons l'effet de la CEP sur le chirp femtoseconde. En utilisant une approche analytique simple, nous expliquerons ensuite le comportement apparemment complexe du spectre en fonction de la CEP. Enfin, nous utiliserons ces résultats pour estimer la longueur de gradient plasma.

### 6.3.1 Résultats expérimentaux

En utilisant des impulsions de  $5 fs$  pour générer des CWE, nous avons obtenu des spectres qui présentent des pics très larges et dont la position varie en fonction de la CEP (Fig. 6.14). Les pics se déplacent d'une fréquence harmonique à la suivante sur une période de  $2\pi$ . On n'a donc plus une émission d'harmoniques proprement dite mais plutôt d'un spectre modulé.

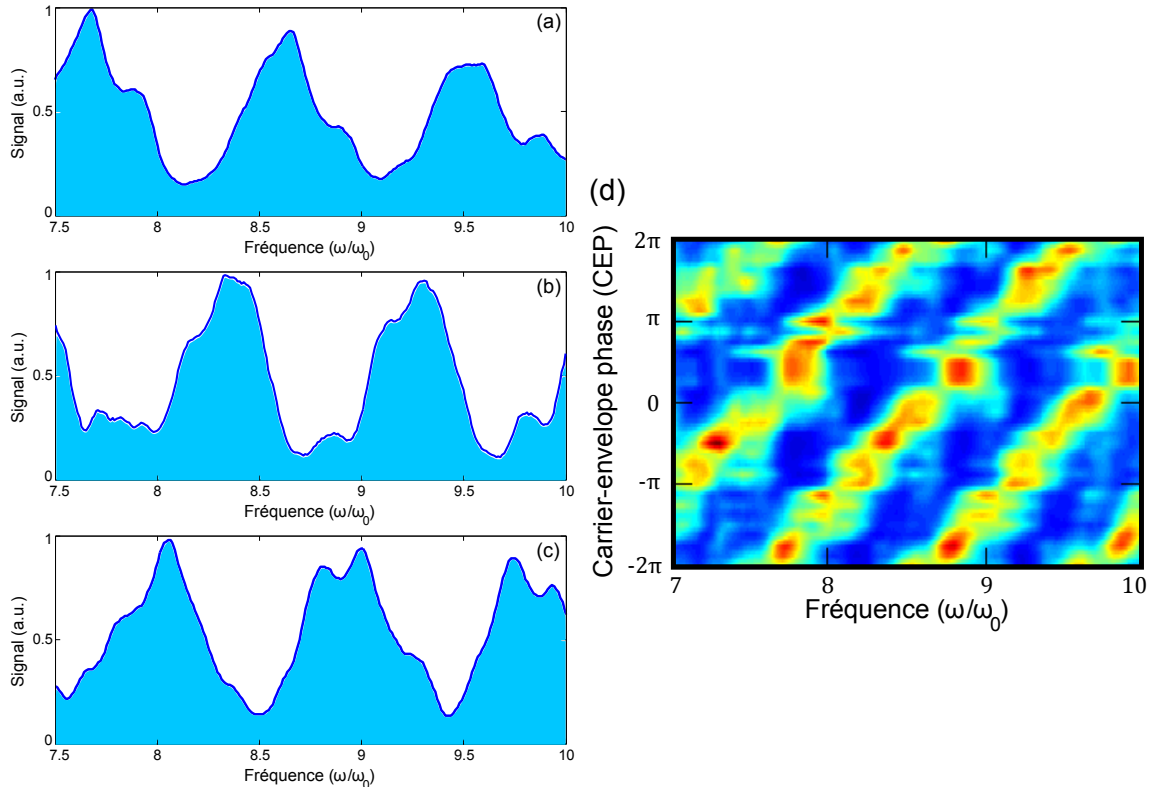


FIGURE 6.14 – Mesures expérimentales du spectre CWE en fonction de la CEP de l'impulsion laser dans la configuration impulsions courtes :  $\phi = 0$  (a),  $\phi = -2\pi/3$  (b),  $\phi = -4\pi/3$  (c) et scan sur  $4\pi$  (d).

Nous avons ensuite étudié la dépendance du spectre de CWE à la CEP pour différentes valeurs de chirp du laser (Fig. 6.15). Lorsque la durée de l'impulsion est augmentée, on observe toujours des effets de CEP en chirp négatif, cet effet disparaît en chirp positif. La compensation

du chirp femtoseconde (chirp positif) annihile apparemment l'effet de la CEP. En considérant l'émission dans le domaine temporel à l'aide du modèle, nous allons voir que ces effets CEP proviennent effectivement de la présence de chirp femtoseconde intrinsèque dans l'émission CWE. Les prédictions du modèle dans le domaine spectral sont aussi représentées sur la Fig. 6.15, le choix du gradient ( $\lambda/100$ ) et de la non-linéarité sera explicité dans le dernier paragraphe.

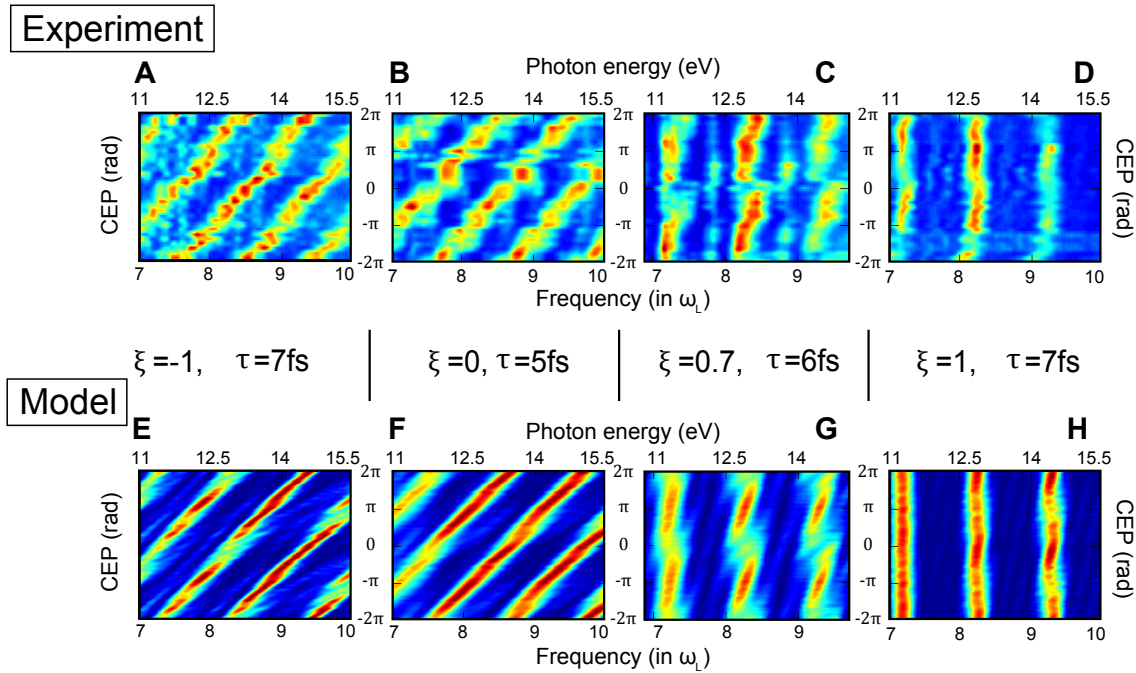


FIGURE 6.15 – Mesures expérimentales du spectre CWE en fonction de la CEP et du chirp ( $\xi$ ) de l'impulsion laser dans la configuration impulsions courtes (A-D) et les prédictions du modèle en utilisant  $\delta = \lambda/100$  et  $b = 1.2$  (E-H).

### 6.3.2 Chirp femtoseconde et CEP

Le contrôle de la CEP sur des impulsions ultracourtes est habituellement associé à la volonté de générer une impulsion attoseconde unique. En utilisant des impulsions "cosinus" (où le champ électrique est maximal au maximum de l'enveloppe) pour générer des harmoniques dans les gaz, il est en effet possible d'isoler une impulsion attoseconde en sélectionnant les fréquences les plus hautes, qui sont générées uniquement par le cycle optique le plus intense [37]. Sur cible solide, on cherche à utiliser la non-linéarité du phénomène de génération d'impulsions attosecondes pour générer une impulsion attoseconde centrale dont l'intensité est très grande devant celle des impulsions générées par les autres cycles optiques. Si l'impulsion laser est assez courte et le phénomène suffisamment non-linéaire, on peut obtenir la génération d'une impulsion unique, le spectre émis est alors continu. D'après les résultats expérimentaux, l'émission CWE n'est pas

suffisamment non-linéaire pour émettre une impulsion unique à partir d'une impulsion laser de 2 cycles optiques, dans ce cas, un train de quelques impulsions est généré. Cependant, l'étude du processus CWE en fonction de la CEP fournit de nombreuses informations sur l'interaction laser-plasma et constitue une étape vers la génération d'impulsions ROM avec des impulsions courtes stabilisées en CEP.

Pour comprendre l'effet de la CEP sur le spectre CWE, on étudie ce train d'impulsions attosecondes. La Fig. 6.16 (a) montre les trains d'impulsions attosecondes émis par une impulsion laser de 2 cycles optiques pour différentes CEP, obtenus par le modèle. On compte trois impulsions principales (mis à part pour une CEP de  $2\pi$  où il y en a seulement deux). L'effet de la CEP sur la répartition temporelle des impulsions est flagrant : les délais entre deux impulsions consécutives varient continuellement en fonction de la CEP.

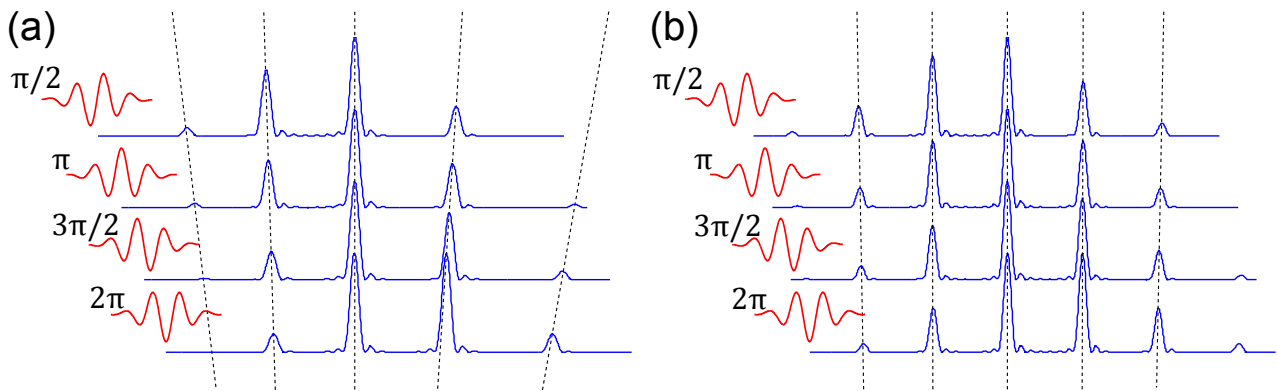


FIGURE 6.16 – Train d'impulsions attosecondes émis par une impulsion ultracourte à durée limitée par transformée de Fourier (a) et chirpée positivement (b) pour différentes CEP (résultats du modèle, la force  $-eE(t)$  est en rouge). Les trains sont traduits en temps afin de superposer les pics principaux.

On regarde désormais l'évolution en fonction de la CEP du train émis par une impulsion chirpée positivement (Fig. 6.16 (b)). En première approximation, les délais entre les impulsions ne dépendent plus de la CEP. Pour comprendre l'importance du chirp femtoseconde dans la dépendance en CEP des CWE, on regarde les courbes en U du délai d'émission en fonction du cycle optique (Fig. 6.17). Dans cette représentation, changer la CEP revient à traduire l'ensemble des points le long de la courbe en U. Dans le cas d'une impulsion comprimée, cette translation conduit à un changement des délais entre deux émissions. En revanche, dans le cas d'une impulsion chirpée positivement, la courbe est pratiquement linéaire et les délais ne sont pas modifiées par une translation.

Dans le domaine spectral, les modulations et la position des pics dépendent de la distribu-



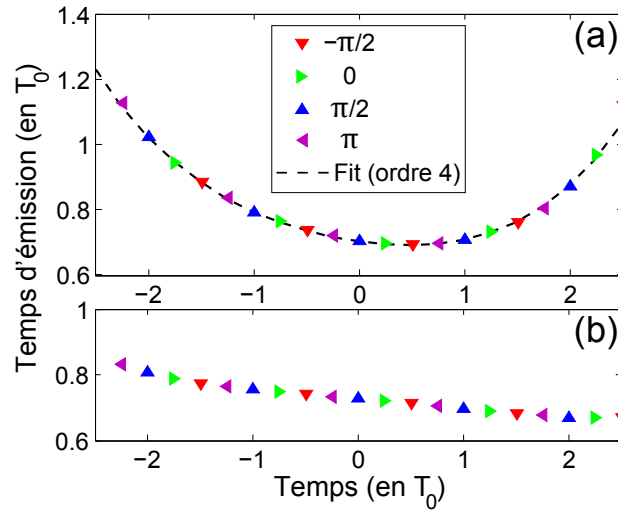


FIGURE 6.17 – Délai d'émission des impulsions CWE en fonction du cycle optique et de la CEP pour une impulsion de  $5\text{ fs}$  comprimée (a) et la même impulsion chirpée  $\xi = 1$  (b).

tion des délais. Ces caractéristiques spectrales dépendent donc de la CEP pour une impulsion comprimée et ne varient pas pour une impulsion chirpée positivement ( $\xi = 1$ ) : c'est bien ce que nous avons observé expérimentalement (Fig. 6.15). Nous allons voir dans le paragraphe suivant les détails quantitatifs de cet effet spectral.

### 6.3.3 Analyse spectrale

Expérimentalement, nous avons accès à une fenêtre spectrale réduite (de  $7\omega_0$  à  $10\omega_0$ ) imposée par le spectromètre. En revanche, les simulations fournissent l'intégralité du spectre CWE. J'ai utilisé le code PIC et le modèle pour étudier les modifications du spectre CWE en fonction de la CEP sur une grande gamme spectrale (de  $2\omega_0$  à  $13.5\omega_0$ ), le modèle est une nouvelle fois validé par l'excellent accord des résultats (Fig. 6.18)<sup>1</sup>. Ces spectres, calculés dans les conditions de l'expérience, sont surprenants. En effet, le déplacement continu des pics spectraux n'apparaît que dans une zone bien définie, qui correspond à la fenêtre expérimentale. En dehors de cette fenêtre, le déplacement des pics n'est pas continu, avec une pente plus faible pour les fréquences plus basses et une pente plus raide pour les fréquences plus hautes. Comme nous allons le voir à présent, on explique la présence d'une zone contrastée par un effet de

1. On observe cependant des différences entre ces deux résultats, notamment une translation d'environ  $\pi/2$  de la CEP. Nous verrons plus loin qu'une modification du gradient de plasma et/ou de l'intensité déplace la position des maxima spectraux. Les relativement faibles différences entre le modèle (1D) et le code PIC (2D) peuvent être expliquées par un écart de 5% entre les longueurs de gradient de plasma et les intensités dans ces deux simulations.

Moiré (voir Fig. 6.19) qui provient ici d'un battement entre deux fréquences. On a vu que le déplacement continu correspond à la variation des délais entre les impulsions attosecondes, enfin la variation de la pente provient de l'incidence accrue du chirp femtoseconde sur les fréquences les plus hautes.

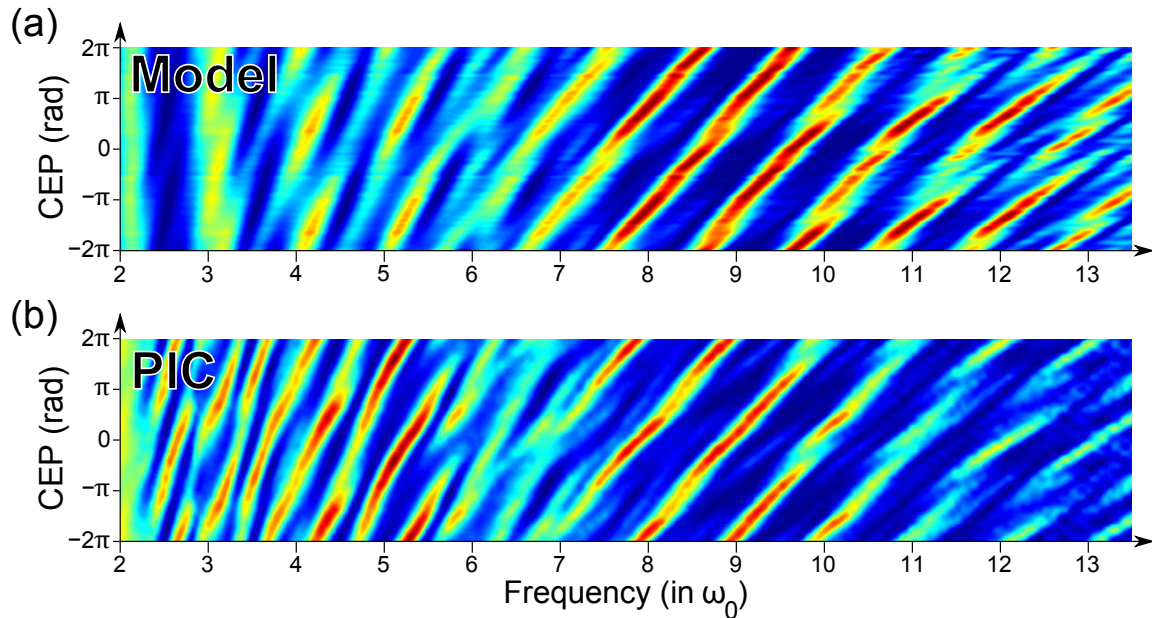


FIGURE 6.18 – Spectre d'émission CWE en fonction de la CEP issus du modèle 1D (a) et des simulations PIC 2D (b) dans les conditions de l'expérience : impulsions comprimées de  $5 fs$ ,  $a_0 = 0.4$ . Le gradient de plasma est  $\delta = \lambda/100$  et la non-linéarité dans le modèle est  $b = 1.2$ .

### Effet de Moiré

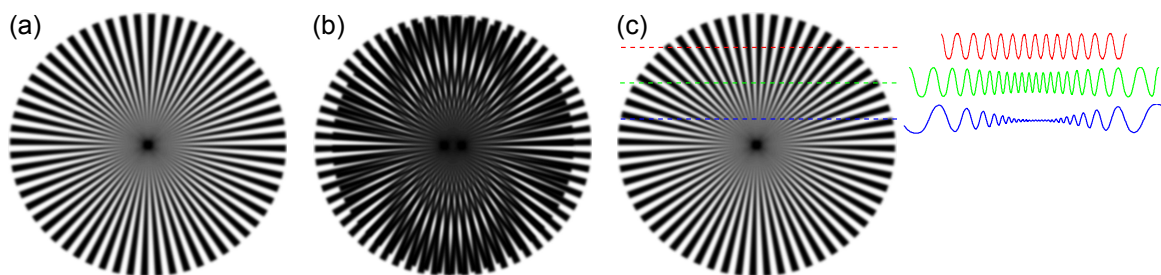


FIGURE 6.19 – Exemple artistique d'un effet de Moiré (b) : ici, deux images identiques (a) et (c) sont superposées avec un faible décalage horizontal. La présence de différentes fréquences dans chaque ligne des images initiales (voir profils) induit l'effet de Moiré : apparition de courbes qui sont les lieux de superposition des maxima d'oscillation.

Si on considère les contributions des impulsions principales du train attoseconde, le calcul du spectre émis est immédiat. Comme illustré sur la Fig. 6.20, on considère les deux couples

d'impulsions principaux pour reconstruire le spectre. Il est alors constitué de la somme de deux modulations spectrales dont la période est inversement proportionnelle aux délais entre les impulsions. On voit apparaître un effet de Moiré sur le spectre total, le battement entre les deux fréquences crée successivement des zones contrastées et des zones non contrastées. D'autre part, ce calcul très réducteur permet néanmoins d'observer le déplacement des pics quand on change la CEP : les pics spectraux se déplacent avec un pente positive.

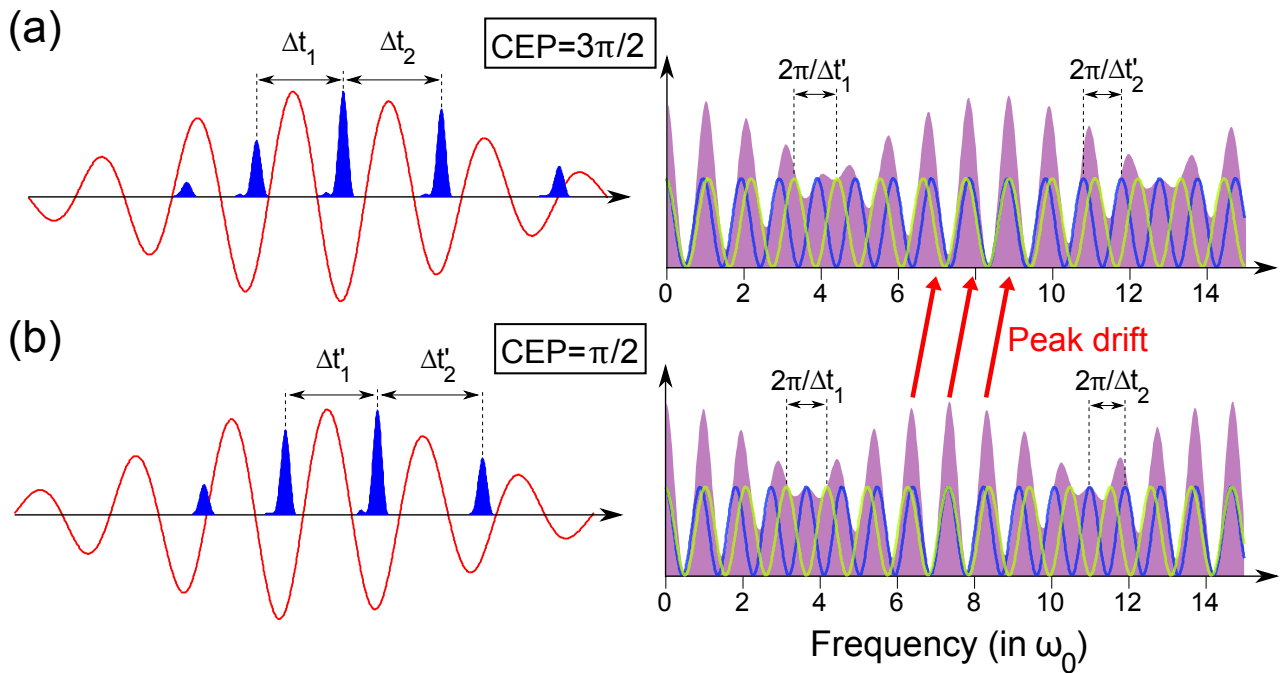


FIGURE 6.20 – Reconstruction analytique du spectre CWE à partir du train d'impulsions attoseconde (en bleu) pour deux CEP différentes :  $3\pi/2$  (a) et  $\pi/2$  (b) (la force  $-eE(t)$  est illustrée en rouge). Les délais  $\Delta t$  entre les impulsions principales créent des modulations dans le spectre de période  $2\pi/\Delta t$  (courbes vertes et bleues). La somme des deux principales modulations est représentée en violet.

En effectuant un fit polynomial à l'ordre 4 sur la courbe de chirp femtoseconde (voir Fig. 6.17) pour  $|t| < 1.5T_0$ , on obtient une expression analytique simplifiée du temps d'émission (normalisé par  $T_0$ ) :  $\tau = Ax^4 + Bx^3 + Cx^2 + Dx + E$  où  $x = n - \bar{\phi}$ ,  $n$  est le numéro du cycle optique et  $\bar{\phi} = \phi_{CEP}/2\pi$  la CEP normalisée.  $C$  et  $A$  quantifient le chirp femtoseconde d'ordre 1 et 2,  $D$  et  $B$  l'asymétrie d'ordre 1 et 2 due à l'effet d'enveloppe. A partir de cette approximation, on recherche l'expression de l'effet de Moiré. Les délais  $\Delta t_i$  entre deux impulsions successives s'écrivent :

$$\Delta t(n, \bar{\phi}) = 1 + \tau(x) - \tau(x-1) = 1 - 4Ax + 6Ax^2 - 4Ax^3 + 3Bx^2 - 3Bx + B + 2Cx - C + D \quad (6.6)$$

On considère les deux couples d'impulsions principaux (pour les définir sans ambiguïté, on se restreint à  $|\bar{\phi}| < 0.5$ ) le battement spectral s'écrit :

$$S(\omega) = 2 + \cos(2\pi\Delta t(0, \bar{\phi})\omega) + \cos(2\pi\Delta t(1, \bar{\phi})\omega) = 2 + 2 \cos(2\pi T_{env}\omega) \cos(2\pi T_{por}\omega) \quad (6.7)$$

Avec  $T_{env} = |\Delta t(0, \bar{\phi}) - \Delta t(1, \bar{\phi})|/2$  la fréquence de l'enveloppe et  $T_{por} = |\Delta t(0, \bar{\phi}) + \Delta t(1, \bar{\phi})|/2$  la fréquence de la porteuse. On trouve alors :

$$T_{env} = A + C - 3B\bar{\phi} + 6A\bar{\phi}^2 \quad (6.8)$$

$$T_{por} = 1 + (B + D) - 2(2A + C)\bar{\phi} + 3B\bar{\phi}^2 - 4A\bar{\phi}^3 \quad (6.9)$$

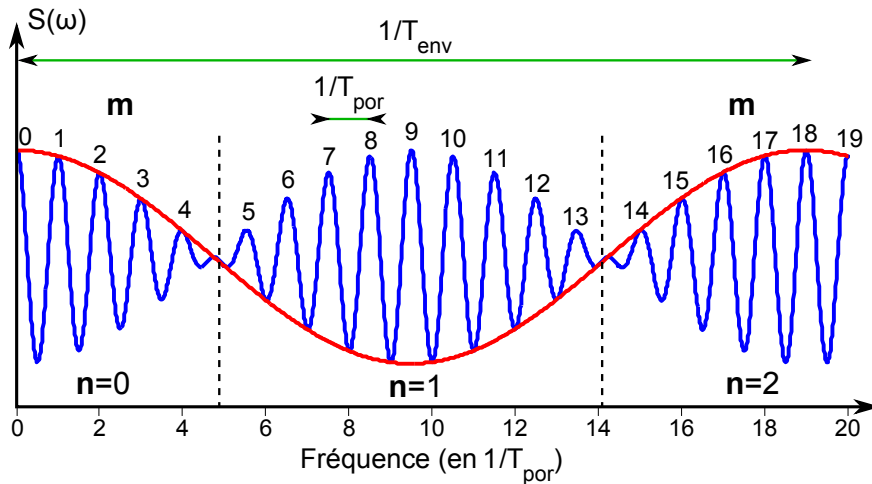


FIGURE 6.21 – Spectre  $S(\omega)$  calculé à partir de l'équation 6.7 pour une CEP donnée. Les zones de contrastes sont identifiées par l'entier  $n$  et les pics spectraux par l'entier  $m$ . L'enveloppe de ce battement est représentée en rouge.

Le spectre  $S(\omega)$  pour une CEP donnée est représenté sur la Fig. 6.21. L'enveloppe (en rouge) atteint un extremum toutes les demi-périodes, les zones de contraste se situent ainsi autour des fréquences  $\omega_{co} = n/2T_{env}$  (normalisées par  $\omega_0$ ) avec  $n$  entier positif. Les maxima de la porteuse sont espacés de  $1/T_{por}$  mais elle subit un déphasage de  $\pi$  à chaque zéro de l'enveloppe, on a ainsi des pics aux fréquences  $\omega_{pic} = (m + n/2)/T_{por}$  (normalisées par  $\omega_0$ ) avec  $m$  entier positif. On trouve alors la position des zones de cohérence et des pics en fonction des paramètres du chirp femtoseconde (en utilisant  $(|A|, |B|, |C|, |D|) \ll 1$  et en négligeant les termes non-linéaires en  $\bar{\phi}$ ) :

$$\omega_{co}(n, \bar{\phi}) = \frac{n}{2(A + C - 3B\bar{\phi})} \quad (6.10)$$

$$\omega_{pic}(m, \bar{\phi}) = \left(m + \frac{n}{2}\right) (1 - (B + D) + 2(2A + C)\bar{\phi}) \quad (6.11)$$

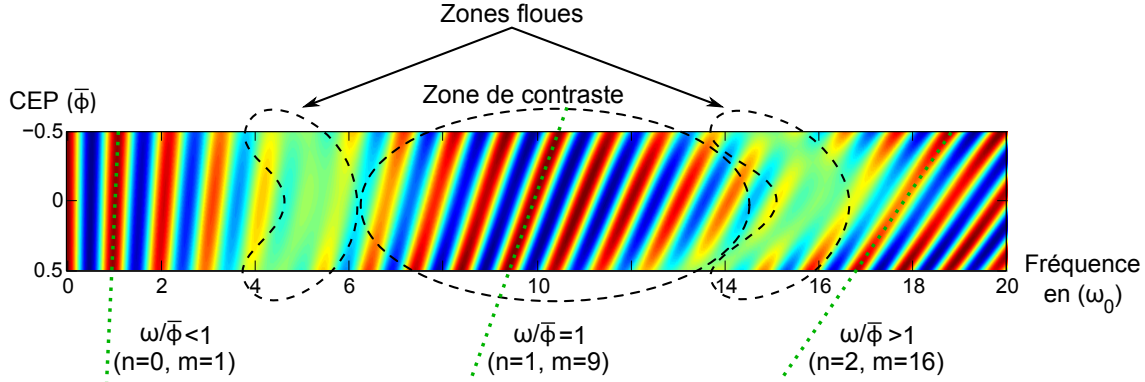


FIGURE 6.22 – Spectre  $S(\omega, \bar{\phi})$  calculé à partir de l'équation 6.7 pour une impulsion de  $5 fs$ , une intensité  $a_0 = 0.4$  et un gradient  $\delta = \lambda/100$ .

On voit sur la Fig. 6.22 que les positions des zones de contraste varient peu avec la CEP (car  $B \ll C$ ), selon l'équation 6.10, elles se situent autour de  $n/2(A + C)$ . L'équation 6.11 indique que pour une CEP donnée, le spectre est constitué d'harmoniques de la fréquence  $\omega_1(\bar{\phi}) = (1 - (B + D) + 2(2A + C)\bar{\phi})$ , décalés d'une demi-période si  $n$  est impair. On note que pour  $\bar{\phi}$  qui correspond à une impulsion laser "cosinus" (symétrique), on a  $\omega_1(0) > 1$  à cause de l'asymétrie ( $B + D < 0$ ) du chirp femtoseconde. Quand on change la CEP, ces pics se déplacent linéairement avec une pente de  $2(2A + C)(m + n/2)$  (voir Fig. 6.22) : plus la fréquence est grande ( $m$  est grand) ou le chirp femtoseconde est fort ( $A$  et  $C$  sont grands), plus la pente est forte. C'est exactement ce qu'on observe dans les spectres complets issus des simulations. De plus, on trouve que la pente vaut 1 au voisinage du maximum de contraste : au centre de la zone  $n = 1$ , le déplacement des pics sur plusieurs cycles de CEP ( $2k\pi$ ) est continu et un décalage de  $2\pi$  de la CEP correspond à un décalage des pics de  $\omega_0$  : cela correspond aux observations dans la fenêtre spectrale expérimentale avec une impulsion comprimée (Fig. 6.14).

Les équations ci-dessus ne prédisent pas de discontinuité dans le déplacement des pics en fonction de la CEP, comme observé dans les spectres complets (Fig. 6.18). Cette discontinuité provient des effets d'enveloppe qui ne sont pas pris en compte dans l'analyse précédente : selon la CEP, les deux fréquences du battement ont un poids différent, la différence étant extrême pour  $|\bar{\phi}| = 0.5$ . En première approximation, il y a une discontinuité quand le décalage des pics spectraux n'est pas cyclique avec la CEP, c'est-à-dire quand  $\omega_{pic}(m, -0.5) \neq \omega_{pic}(m + k, 0.5)$

pour tout  $k$  entier. Cela revient à dire que la pente  $2(2A + C)(m + n/2)$  n'est pas un nombre entier.

#### 6.3.4 Détermination du gradient de densité plasma

Sur la Fig. 6.23, j'ai mis en valeur les zones où les pics spectraux se déplacent avec une pente  $\omega/\phi = 1$  dans différentes conditions d'interaction. Quand on fait varier l'intensité ou la longueur de gradient de densité plasma, on observe un déplacement de ces zones. Cela est directement lié à la variation du chirp femtoseconde qui modifie l'expression de  $\omega_{pic}(m, \bar{\phi})$ . On peut alors raisonnablement envisager de mesurer la longueur de gradient à partir des mesures spectrales de CWE en fonction de la CEP. Il suffit par exemple de rechercher expérimentalement la zone où la pente  $\omega/\phi = 1$  puis d'effectuer des simulations dans les conditions expérimentales (intensité, chirp, durée d'impulsion) pour différentes longueur de gradient plasma pour déterminer sa valeur.

Ainsi, une étude paramétrique des spectres CWE en fonction de la CEP permet d'évaluer la valeur du gradient. A partir de mesures paramétriques de spectres CWE, j'ai ainsi proposé deux méthodes pour mesurer le gradient de densité électronique d'un plasma. En impulsions longues, il faut étudier les largeurs spectrales des harmoniques et en impulsions courtes il faut effectuer un scan de CEP. Ces deux techniques peuvent être utilisées dans des expériences pompe-sonde pour déterminer la température électronique (nous avons démontré cette méthode uniquement en impulsions longues).



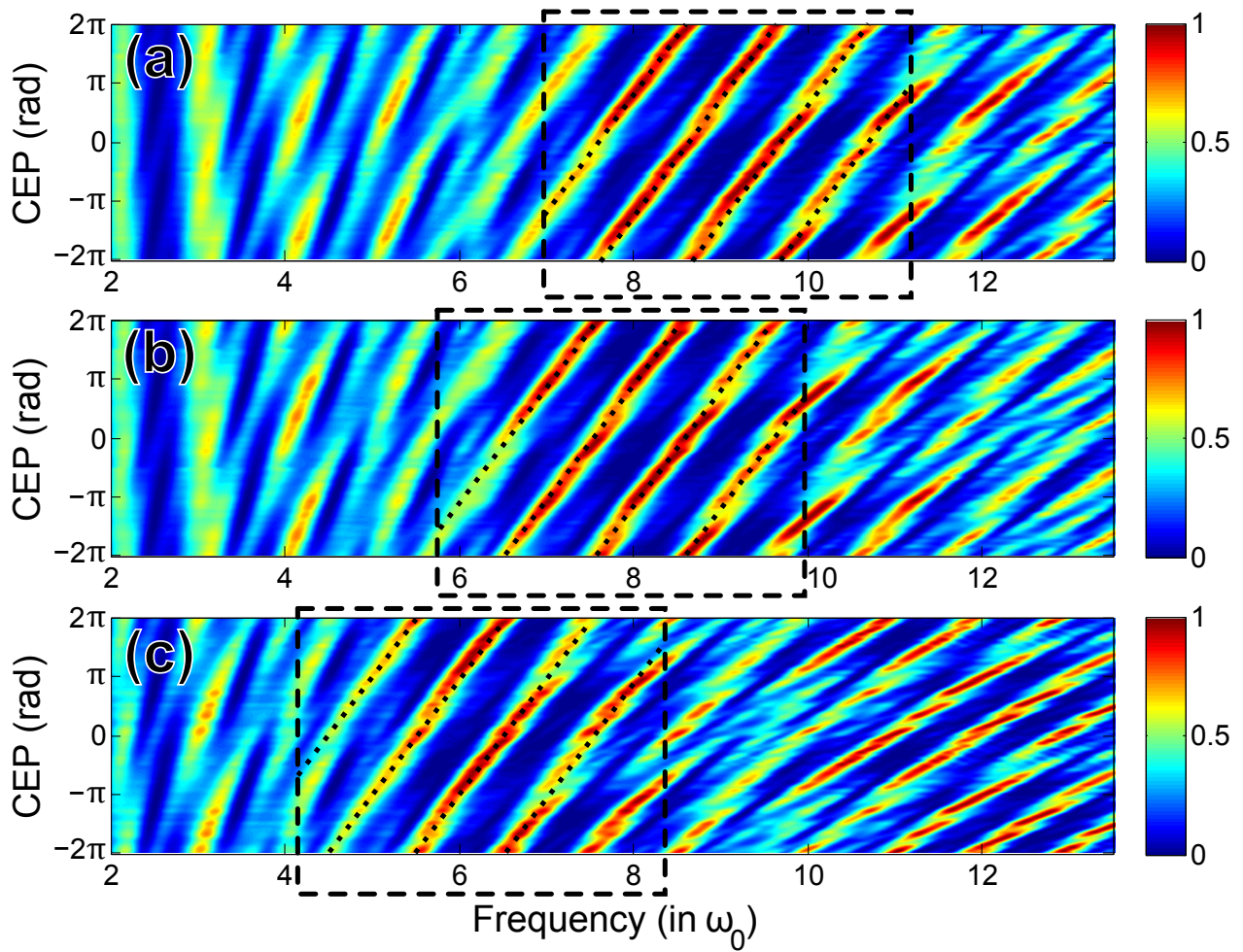


FIGURE 6.23 – Variation du spectre CWE en fonction de la CEP (résultat du modèle) dans les conditions suivantes : impulsions de  $5 fs$  comprimées, (a)  $a_0 = 0.4$  et  $\delta = \lambda/100$ , (b)  $a_0 = 0.3$  et  $\delta = \lambda/100$ , (c)  $a_0 = 0.4$  et  $\delta = \lambda/50$ .

# Conclusion

Durant mes trois années de thèse, mon travail sur l'émission d'harmoniques sur cible solide a évolué d'une approche générale (simulations PIC) qui englobe tous les types d'émission à une approche plus spécifique (modélisation des CWE) adaptée aux expériences de la "Salle Noire". Les simulations PIC m'ont permis de me familiariser avec l'interaction laser-plasma et d'en décrire les différentes composantes (émissions ROM et CWE, accélération de particules). J'ai pu ainsi initier une étude sur l'effet de l'enfoncement de la surface du plasma sur les harmoniques ROM [25] et participer à l'identification d'un nouveau phénomène d'accélération de protons [28]. La modélisation de l'émission CWE a simplifié grandement l'étude paramétrique de ce phénomène et mis en valeur l'importance des temps d'émission. Les simulations PIC d'harmoniques CWE ont participé à la validation de ce modèle. Ce travail théorique associé à des expériences pionnières de spectroscopie des CWE, notamment une étude paramétrique fine en fonction des conditions laser, a permis d'améliorer la compréhension de l'interaction laser-plasma [36]. Enfin, fort de cette nouvelle compréhension, j'ai proposé deux méthodes pour utiliser les CWE comme sonde des paramètres plasma (gradient, température) [34].

La non-linéarité temporelle de l'émission CWE demeure une inconnue dans les modèles théoriques présentés dans cette thèse. Les simulations PIC ne fournissent pas des résultats plausibles en terme d'efficacité de génération en fonction de l'intensité et le modèle calcule seulement les temps d'émission. Un début de réponse est donné dans [11] qui donne l'efficacité spectrale de l'émission en fonction de l'amplitude des oscillations plasma. A partir du modèle de trajectoires électroniques, on peut calculer la densité des pics électroniques excitateurs du plasma et relier ainsi les paramètres de l'interaction à l'amplitude des oscillations plasma. Cela permettrait de prévoir théoriquement la non-linéarité en fonction des paramètres de l'interaction. Expérimentalement, la non-linéarité pourrait être observée dans des expériences de "phare attoseconde" proposées par F. Quéré [38] où le front d'onde de l'impulsion laser tourne à l'intérieur de l'impulsion ce qui permet, lors de l'interaction laser-plasma, que chaque cycle optique déclenche une émission dans une direction différente. Les impulsions attosecondes sont donc



séparées spatialement ce qui permet de mesurer leurs intensités relatives et ainsi remonter à la non-linéarité.

Pour accéder expérimentalement aux temps d'émission, il faut effectuer une caractérisation temporelle des trains attosecondes. Cela nécessite un dispositif expérimental plus complexe : la corrélation croisée entre l'impulsion laser et le train d'impulsions attosecondes [39, 40]. Il est cependant possible d'obtenir expérimentalement les temps d'émission de manière plus simple : on mesure un spectre large d'harmoniques CWE et on effectue sa transformée de Fourier. On obtient alors l'auto-corrélation en champ du train attoseconde, qui, pour des impulsions courtes, contient l'information sur les temps d'émission.

Le phare attoseconde et la mesure d'un spectre large CWE en fonction de la CEP du laser en impulsion courte font partie de l'agenda d'expériences de la "Salle Noire". Elles vont apporter des informations plus précises sur l'interaction laser-plasma et permettront peut-être d'estimer le délai entre le déclenchement des oscillations plasma par les croisements d'électrons de Brunel et l'émission CWE, délai qui a été négligé dans mon modèle.

# Bibliographie

- [1] *Generation of Optical Harmonics*, P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters and G. Weinreich, PRL **7**, 118–119 (1961).
- [2] *Laser technology : Source of coherent kiloelectronvolt X-rays*, J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Streli, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann and F. Krausz, Nature **433**, 596 (2005).
- [3] *Bright, Coherent, Ultrafast Soft X-Ray Harmonics Spanning the Water Window from a Tabletop Light Source*, M.-C. Chen, P. Arpin, T. Popmintchev, M. Gerrity, B. Zhang, M. Seaberg, D. Popmintchev, M. Murnane and H. C. Kapteyn, PRL **105**, 173901 (2010).
- [4] *High harmonic generation in the relativistic limit*, B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakakis, S. Moustazis, R. Kodama, M. Tambo, C. Stoeckl, R. Clarke, H. Habara, D. Neely, S. Karsch and P. Norreys, Nat. Phys. **2**, 456 – 459 (2006).
- [5] *Attosecond physics*, F. Krausz and M. Ivanov, Rev. Mod. Phys. **81**, 163 (2009).
- [6] *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*, M. Ferray, A. L’Huillier, X.F. Li, L.A. Lompre, G. Mainfray and C. Manus, J. Phys. B **21** L31 (1988).
- [7] *Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation*, P.M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini, Science **1**, 1689-1692 (2001).
- [8] *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*, M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann and F. Krausz, Nature **419**, 803-807 (2002).
- [9] *Efficient Extreme UV Harmonics Generated from Picosecond Laser Pulse Interactions with Solid Targets*, P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustazis, A. P. Fews, J. Zhang, P. Lee, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark and A. E. Dangor, PRL **76**, 1832 (1996).

- [10] *Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas*, F. Quéré, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, Ph. Martin, J.-P. Geindre and P. Audebert, PRL **96**, 125004 (2006).
- [11] *High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors : basic mechanisms*, C. Thaury and F. Quéré, J. Phys. B **43**, 213001 (2010).
- [12] *Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity*, R. Lichters, J. Meyer-ter-Vehn, and A. Pukhov, Phys. Plasmas **3**, 3425 (1996).
- [13] *Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma*, S.V. Bulanov, N. Naumova, and F. Pegoraro, Phys. Plasmas **1**, 745 (1994).
- [14] *Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering*, H.C. Kapteyn, M.M. Murnane, A. Szoke and R.W. Falcone, Opt. Lett. **16**, 490–492 (1991).
- [15] *Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses*, G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, Ph. Martin, P. Audebert, J.-C. Gautier, JP. Geindre, T. Wittmann, Phys. Rev. E **69**, 026402 (2004).
- [16] *The Physics of Laser Plasma Interaction*, W. L. Kruer (1988).
- [17] *Not-so-resonant, resonant absorption*, F. Brunel, PRL **59**, 52–55 (1987).
- [18] *Analytic expressions for mode conversion in a plasma with a linear density profile*, D.E. Hinkel-Lipsker, B.D. Fried and G.J. Morales, Physics of Fluids B **4**, 559–575 (1992).
- [19] *Emission of electromagnetic pulses from laser wakefields through linear mode conversion*, Z-M. Sheng, K. Mima, J. Zhang and H. Sanuki Phys. Rev. Lett. **94**, 095003 (2005).
- [20] *Particle simulation of plasmas*, J.M. Dawson, Reviews of Modern Physics **55**, 403 (1983).
- [21] *Electron and photon production from relativistic laser-plasma interactions* E. Lefebvre, N. Cochet, S. Fritzler *et al.*, Nuclear Fusion **43**, 629–633 (2003).
- [22] *Ultrafast plasma studies by phase and amplitude measurements with femtosecond spectral interferometry*, C. Quoix, G. Hamoniaux, A. Antonetti, J. C. Gauthier, J. P. Geindre and P. Audebert, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **65**, 455-462 (2000).
- [23] *Electron Vacuum Acceleration in a Regime beyond Brunel Absorption*, J. P. Geindre, R. S. Marjoribanks and P. Audebert, PRL **104**, 135001 (2010).
- [24] *Relativistic AC Gyromagnetic Effects in Ultraintense Laser-Matter Interaction*, J. P. Geindre, P. Audebert and R. S. Marjoribanks, PRL **97**, 085001 (2006).

- [25] *Spatial properties of harmonics generated on plasma mirrors*, H. Vincenti, A. Malvache, F. Quéré (manuscript in preparation).
- [26] *Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics*, 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, *Nat. Phys.* **3**, 424–429 (2007).
- [27] *Diffraction-limited performance and focusing of high harmonics from relativistic plasmas*, B. Dromey, D. Adams, R. Hörlein, Y. Nomura, S. G. Rykovanov, D. C. Carroll, P. S. Foster, S. Kar, K. Markey, P. McKenna, D. Neely, M. Geissler, G. D. Tsakiris and M. Zepf, *Nat. Phys.* **5**, 146–152 (2009).
- [28] *Brunel-dominated proton acceleration with a few-cycle laser pulse*, M. Veltcheva, A. Borot, C. Thaury, A. Malvache, E. Lefebvre, A. Flacco, R. Lopez-Martens and V. Malka, *PRL* **108**, 075004 (2012).
- [29] *Plasma Expansion into a Vacuum*, P. Mora, *PRL* **90**, 185002 (2003).
- [30] *Phase Properties of Laser High-Order Harmonics Generated on Plasma Mirrors*, F. Quéré, C. Thaury, J.-P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot and Ph. Martin, *PRL* **100**, 095004 (2008).
- [31] *High-harmonic generation from plasma mirrors at kilohertz repetition rate*, A. Borot, A. Malvache, X. Chen, D. Douillet, G. Iaquaniello, T. Lefrou, P. Audebert, J.-P. Geindre, G. Mourou, F. Quéré and R. Lopez-Martens, *Optics Letters* **36**, 1461–1463 (2011).
- [32] *Génération d'impulsions attosecondes sur miroir plasma à très haute cadence*, A. Borot, PhD Thesis, Ecole Doctorale de l'X (2012).
- [33] *1mJ sub 5fs carrier envelope phase locked pulses*, X. Chen, L. Canova, A. Malvache, A. Jullien, R. Lopez-Martens, C. Durfee, D. Papadopoulos and F. Druon, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 149–157 (2010).
- [34] *Probing the density profile of a plasma mirror by coherent wake emission spectroscopy*, A. Malvache, A. Borot, F. Quéré and R. Lopez-Martens submitted to *PRL* (2012).
- [35] *Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma*, J. P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, F. Fallières, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, A. Dos Santos, G. Hamoniaux and A. Antonetti, *Opt. Lett.* **19**, 1997–1999 (1994).
- [36] *Attosecond control of collective electron motion in plasmas*, A. Borot, A. Malvache, X. Chen, J.-P. Geindre, P. Audebert, G. Mourou, F. Quéré and R. Lopez-Martens, accepted in *Nat. Phys.* (2012).

- [37] *Attosecond Control and Measurement : Lightwave Electronics*, E. Goulielmakis, V. S. Yakovlev, A. L. Cavalieri, M. Uiberacker, V. Pervak, A. Apolonski, R. Kienberger, U. Kleineberg and F. Krausz, *Science* **10**, 769–775 (2007).
- [38] *Attosecond Lighthouse : How to use spatiotemporally coupled light field to generate isolated attosecond pulses*, H. Vincenti and F. Quéré, accepted in PRL (2011).
- [39] *Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts*, Y. Mairesse and F. Quéré, *Phys. Rev. A* **71**, 011401 (2005).
- [40] *Complete temporal reconstruction of attosecond high-harmonic pulse trains*, Kyung Taec Kim, Dong Hyuk Ko, Juyun Park, Valer Tosa and Chang Hee Nam, *New J. Phys.* **12**, 083019 (2010).

# Conclusion générale

Ma thèse a porté sur la manipulation d'impulsions laser courtes et intenses en utilisant différentes approches d'optique non-linéaire et de processus plasma. Mon travail avait pour objectif d'amener un support théorique au développement de la "Salle Noire" du groupe PCO du Laboratoire d'Optique Appliquée : mise en place de la compression d'impulsions laser et conception d'une expérience de génération d'harmoniques sur miroir plasma. Ces deux thèmes distincts mais contigus dans la chaîne laser constituent les deux parties de mon manuscrit.

Avant compression, le laser de la "Salle Noire" fournissait au début de ma thèse en 2008 des impulsions de  $2.1 \text{ mJ}$ ,  $25 \text{ fs}$ , stabilisées en CEP, à  $1 \text{ kHz}$ , fruit du travail conjoint de Alexandre Trisorio et Lorenzo Canova (anciens doctorants du groupe PCO), d'Aurélie Jullien (chercheuse permanente) et de Rodrigo Lopez-Martens (chef du groupe PCO). L'énergie des impulsions sera augmentée à  $3 \text{ mJ}$  en 2009 suite à un changement du système de compression post-amplification CPA (passage d'un compresseur à prismes à un compresseur à réseaux). Le montage expérimental de la compression d'impulsion – une fibre creuse remplie de gaz associée à des miroirs chirpés – a été mis en place par Xiaowei Chen, post-doctorante du groupe PCO pendant ma thèse. Cette technique de compression était limitée dans la littérature à des impulsions de  $1 \text{ mJ}$  en entrée de fibre. Nous avons alors étudié différentes conditions de compression pour repousser cette limite en énergie, notamment le choix du gaz (Argon, Néon et Hélium), de la polarisation (linéaire ou circulaire) et du chirp de l'impulsion laser en entrée de fibre creuse. Pour quantifier la qualité de la compression, nous avons utilisé une mesure FROG "single-shot", conçue par Dimitri Papadopoulos dans le cadre d'une collaboration avec l'Institut d'Optique. Parallèlement, j'ai développé avec l'aide de Charles Durfee – chercheur américain de passage dans le groupe PCO en 2008 –, un modèle complet de propagation des impulsions dans la fibre creuse. Ce modèle fut un des premiers à prendre en compte le couplage spatio-temporel des deux effets non-linéaires qui apparaissent à haute énergie : l'effet Kerr optique et l'ionisation. Il a permis de comprendre et d'optimiser la compression d'impulsions jusqu'à  $3 \text{ mJ}$  dans le laboratoire ( $2 \text{ mJ}$ ,  $5 \text{ fs}$  après les miroirs chirpés), et permet d'envisager désormais la compression d'impulsions à

plus haute énergie qui seront sûrement disponibles dans les années à venir.

La stabilisation en CEP des impulsions comprimées fut un autre aspect important de la compression, ce travail fut assuré par Xiaowei, Aurélie puis Aurélien Ricci, nouveau doctorant du groupe en 2009. Cela nous a permis d'effectuer des expériences pionnières de génération d'harmoniques sur cible solide avec des impulsions de deux cycles optiques stabilisées en CEP.

En effet, dans le même temps, Antonin Borot, doctorant du groupe depuis fin 2007, a développé la plateforme d'interaction laser-plasma sur cible solide à haute cadence. Il a conçu un système de stabilisation interférométrique de la cible solide afin de pouvoir générer des harmoniques au taux de répétition du laser ( $1\text{ kHz}$ ). Toujours dans la même approche de support théorique des expériences, j'ai commencé, début 2009, à travailler sur la modélisation de l'interaction laser-plasma. Avec la collaboration de Fabien Quéré, chercheur au CEA Saclay (DSM/IRAMIS/SPAM), j'ai tout d'abord utilisé le code de simulation PIC CALDER en deux dimensions (développé par Erik Lefebvre chercheur au CEA/DAM/DIF). Mon premier travail fut d'étudier les propriétés spatiales des harmoniques dans les conditions relativistes (ROM), qui allaient être atteintes par le laser du SPAM. Ce travail fut ensuite repris et achevé par Henri Vincenti, doctorant au SPAM. Cette première utilisation du code CALDER m'a permis de maîtriser le code PIC (choix des paramètres initiaux et des diagnostiques) et l'analyse de données concomitante. J'ai ensuite réalisé des simulations PIC dans les conditions "Salle Noire" (sous-relativistes) pour étudier le régime de génération d'harmoniques CWE. Plus particulièrement, j'ai analysé la dépendance des spectres et divergences des CWE et des temps d'émissions des impulsions attosecondes en fonction de la durée d'impulsion et de la longueur du gradient de densité plasma. L'étude systématique de l'influence des paramètres de l'interaction m'a permis d'arriver à deux conclusions. La première sur les résultats expérimentaux futurs : les spectres que nous allons observer expérimentalement allaient dépendre très fortement non seulement de la durée et de la phase temporelle du laser (ce qui était déjà connu) mais encore de l'intensité laser et de la longueur de gradient de densité plasma. La deuxième sur une limitation du code PIC : les efficacités de génération n'étaient vraisemblablement pas correctement prédites.

C'est à ce moment (début 2010) que j'ai effectué un séjour d'un mois à l'Imperial College de Londres, prévu dans le cadre de ma bourse de thèse Monge. Avec le support mathématique de Misha Ivanov, chercheur théoricien dans le domaine attoseconde, j'y ai alors développé un modèle de simulation 1D du processus CWE inspiré de Brunel, sous l'oeil critique de Fabien. Très simplifié et beaucoup plus rapide que les simulations PIC, ce modèle m'a permis d'obtenir des résultats plus cohérent en terme d'efficacité de génération et ainsi de poursuivre l'étude paramétrique des CWE.

Expérimentalement, après quelques mois de travail pour obtenir un signal harmonique sur le détecteur, avec en particulier un combat contre la présence de pré-impulsions mené par l'ensemble du groupe PCO, et un acharnement d'Antonin, nous avons obtenu les premières harmoniques en impulsions longues début 2010. Quelques mois furent nécessaires pour fiabiliser l'expérience puis nous avons procédé à une étude paramétrique de l'émission jusque fin 2010.

A partir des résultats très satisfaisants en impulsion longue, j'ai proposé une méthode de mesure indirecte de la longueur de gradient plasma en utilisant la largeur spectrale des harmoniques. Le modèle m'avait en effet permis de comprendre que dans ces conditions, une partie de l'information sur l'interaction laser-plasma était encodée dans les largeurs d'harmonique.

En impulsion courtes, les expériences stabilisées en CEP furent le point d'orgue – et feu d'artifice – de ma fin de thèse. Dans ces conditions, les expériences sont très complexes car elles nécessitent dans le même temps la compression de l'impulsion sur la cible solide et la stabilisation de la CEP. Nous avons alors obtenu des spectres originaux, et accompli une étude de l'émission CWE en fonction de la CEP de l'impulsion laser, une première mondiale! Le modèle, appuyé par les simulations PIC m'a ensuite permis d'apporter une explication théorique aux résultats étonnants que nous obtenions.

D'autre part, durant nos expériences, Mina Veltcheva, doctorante du groupe SPL du LOA effectuait la détection de protons émis dans la direction normale à la cible solide. A l'aide de quelques simulations PIC que j'ai réalisée, puis d'un modèle développé par Cédric Thauray, nous avons démontré un nouveau régime d'accélération de particules sur cible solide.

Grâce à l'aspect pionnier de nos expériences et au dynamisme du laboratoire, j'ai ainsi pu participer à l'épopée passionnante de la génération d'harmonique sur cible solide et de l'étude de l'interaction laser-plasma en général. Je quitte ce laboratoire pour de nouveaux horizons en neurobiologie mais je vais continuer à suivre avec intérêt les avancées du groupe PCO. A l'heure où j'écris ces dernières lignes, un nouveau pas a déjà été franchi : la démonstration expérimentale par le groupe PCO du phare attoseconde, idée géniale de Fabien pour générer des impulsions attosecondes uniques.





# Annexe A

## Equation de propagation non-linéaire dans une fibre creuse

Le champ total dans la fibre s'écrit comme la somme du champ sur tous les modes :

$$E(r, z, \tau) = e^{-i\omega_0\tau} \sum_m A^{(m)}(z, \tau) J_{0m}(r) e^{i\beta_0^{(m)}z} + cc., \quad (\text{A.1})$$

On définit son amplitude complexe comme :

$$A(r, z, \tau) = \sum_m A^{(m)}(z, \tau) J_{0m}(r) e^{i\Delta\beta_0^{(m)}z} + cc., \quad (\text{A.2})$$

ainsi,

$$E = A e^{i(\beta_0^{(1)}z - \omega_0\tau)} + cc.. \quad (\text{A.3})$$

On définit aussi l'amplitude complexe  $B(r, z, \tau, A)$  de la polarisation non-linéaire telle que :

$$P_{nl} = B(r, z, \tau, A) e^{i(\beta_0^{(1)}z - \omega_0\tau)} + cc. \quad (\text{A.4})$$

Pour démontrer l'équation de propagation, on part de l'équation générale obtenue à partir des équations de Maxwell :

$$(\partial_z^2 + \nabla_{\perp}^2) \tilde{E} + \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \tilde{E} = -\frac{\omega^2}{c^2} \tilde{P}_{nl}, \quad (\text{A.5})$$

On étudie d'abord le cas sans terme source ( $P_{nl} = 0$ ). En utilisant l'expression du champ en fonction des modes et en posant  $k(\omega)^2 = \epsilon\omega^2/c^2$ , on obtient :

$$\sum_m \left[ \left( -\beta_0^{(m)2} + 2i\beta_0^{(m)}\partial_z + \partial_z^2 + \nabla_{\perp}^2 \right) \widetilde{A}^{(m)} J_{0m} e^{i\beta_0^{(m)}z} + k^2 \widetilde{A}^{(m)} J_{0m} e^{i\beta_0^{(m)}z} \right] = 0, \quad (\text{A.6})$$

où la transformée de Fourier est centrée en  $\omega_0$ . On cherche à faire apparaître un terme en  $k^{(m)2}$  pour annuler la dérivée radiale  $\nabla_{\perp}$  en utilisant la définition des modes de Bessel :

$$\nabla_{\perp}^2 J_{0m} + \left(k^2 - (k^{(m)})^2\right) J_{0m} = 0, \quad (\text{A.7})$$

Le développement de Taylor de  $k^{(m)}$  autour de  $\omega_0$  est :

$$k^{(m)}(\omega) = k^{(m)}(\omega_0) + \left(\frac{\partial k^{(m)}}{\partial \omega}\right)_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \dots, \quad (\text{A.8})$$

$$k^{(m)}(\omega) = \beta_0^{(m)} + \beta_1^{(m)}(\omega - \omega_0) + \frac{\beta_2^{(m)}}{2}(\omega - \omega_0)^2 + i\alpha_0^{(m)}, \quad (\text{A.9})$$

Ainsi on a toujours à l'ordre 1, en utilisant  $\beta_2^{(m)} \approx \beta_2$  et  $(\beta_1^{(m)})^2 \ll \beta_0^{(m)}\beta_2^{(m)}$  :

$$k^{(m)}(\omega)^2 \approx \beta_0^{(m)2} + 2\beta_0^{(m)}\beta_1^{(m)}(\omega - \omega_0) + \beta_0^{(m)}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + i\alpha_0^{(m)}\beta_0^{(m)}, \quad (\text{A.10})$$

On a ainsi l'égalité suivante :

$$\begin{aligned} & \sum_m \left[ \nabla_{\perp}^2 J_{0m} + \left(k^2 - (\beta_0^{(m)})^2\right) J_{0m} \right] \widetilde{A}^{(m)} e^{i\beta_0^{(m)}z} \\ &= \sum_m \left[ 2\beta_0^{(m)}\beta_1^{(m)}(\omega - \omega_0) + \beta_0^{(m)}\beta_2(\omega - \omega_0)^2 + i\alpha_0^{(m)}\beta_0^{(m)} \right] \widetilde{A}^{(m)} J_{0m} e^{i\beta_0^{(m)}z}, \end{aligned} \quad (\text{A.11})$$

En négligeant la dérivée seconde longitudinale  $\partial_z^2$  (Approximation de l'enveloppe lentement variable en  $z$  :  $\partial_z A^{(m)} \ll \beta_0^{(m)} A^{(m)}$ ), l'équation A.5 devient :

$$\sum_m \left[ 2i\partial_z + i\alpha_0^{(m)} + 2\beta_1^{(m)}(\omega - \omega_0) + \beta_2(\omega - \omega_0)^2 \right] \beta_0^{(m)} \widetilde{A}^{(m)} J_{0m} e^{i\beta_0^{(m)}z} = 0, \quad (\text{A.12})$$

Sa transformée de Fourier inverse centrée en  $\omega_0$  donne :

$$\sum_m \left[ 2i\partial_z + i\alpha_0^{(m)} - 2i\beta_1^{(m)}\partial_t + \beta_2\partial_t^2 \right] \beta_0^{(m)} A^{(m)} J_{0m} e^{i(\beta_0^{(m)}z - \omega_0\tau)} = 0, \quad (\text{A.13})$$

En projetant cette équation sur le mode  $m$  on a :

$$\partial_z A^{(m)} = \left( -\frac{\alpha_0^{(m)}}{2} + \beta_1^{(m)}\partial_t + i\frac{\beta_2}{2}\partial_t^2 \right) A^{(m)}, \quad (\text{A.14})$$

La prise en compte des modes discrets a permis d'annuler le terme de diffraction. De plus, on trouve bien que pour une propagation linéaire, les modes d'une fibre creuse se propagent indépendamment les uns des autres. Nous considérons maintenant le terme source (terme de droite de l'Eq. A.5), son expression dans le domaine temporel est :

$$\frac{1}{c^2} \partial_t^2 P_{nl} = -\frac{\omega_0^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_t\right)^2 B e^{i(\beta_0^{(1)} z - \omega_0 \tau)} \quad (\text{A.15})$$

On ajoute ce terme source dans l'Eq. A.13 et en changeant de référentiel pour suivre le mode fondamental ( $\tau = t - \beta_1^{(1)} z$  et  $\xi = z$  donc  $\partial_\xi = \partial_z - \beta_1^{(1)} \partial_\tau$ ) et en utilisant la même simplification que Brabec, on obtient :

$$\sum_m \left[ 2i \partial_\xi + i \alpha_0^{(m)} - 2i \Delta \beta_1^{(m)} \partial_\tau + \beta_2 \partial_\tau^2 \right] \beta_0^{(m)} A^{(m)} J_{0m} e^{i \beta_0^{(m)} \xi} = -\frac{\omega_0^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau\right) B e^{i \beta_0^{(1)} \xi} \quad (\text{A.16})$$

On projette cette équation sur le mode  $m$  :

$$\begin{aligned} & \left[ 2i \partial_\xi + i \alpha_0^{(m)} - 2i \Delta \beta_1^{(m)} \partial_\tau + \beta_2 \partial_\tau^2 \right] A^{(m)} \\ &= -\frac{\omega_0^2}{\beta_0^{(m)} c^2} e^{-i \Delta \beta_0^{(m)} \xi} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau\right) \int_r B J_{0m}(r) 2\pi r dr \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

Finalement, en écrivant  $\beta_0^{(m)}/\beta_0 \approx 1$  on obtient l'équation de propagation non-linéaire du mode  $m$  d'une fibre creuse :

$$\begin{aligned} \partial_\xi A^{(m)} &= \left( -\frac{\alpha_0 + \alpha^{(m)}}{2} - \Delta \beta_1^{(m)} \partial_\tau + i \frac{\beta_2}{2} \partial_\tau^2 \right) A^{(m)} \\ &+ i \frac{\beta_0}{2n_0^2} e^{-i \Delta \beta_0^{(m)} \xi} \left(1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_\tau\right) \int_r B(A) J_{0m}(r) 2\pi r dr, \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

Le couplage entre les modes est contenu dans  $B(A)$  car la polarisation non-linéaire prend en compte la contribution de tous les modes. Le terme source est ensuite projeté sur chacun des modes.



# Annexe B

## Analyse mathématiques des effets non-linéaires

Je vais démontrer ici la conservation d'énergie par effet Kerr, la présence d'absorption plasma et l'expression des pertes par ionisation.

En négligeant tous les effets linéaires, l'équation de propagation non-linéaire à une dimension d'une impulsion ultra-courte peut se réduire à :

$$\partial_\xi A = i \frac{\beta_0}{2n_0^2} \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_t \right) B \quad (\text{B.1})$$

où  $B$  est l'amplitude de la polarisation non-linéaire. On a respectivement pour l'effet Kerr et pour l'ionisation :

$$B^{(Kerr)} = \frac{3}{4} \chi^{(3)} |A|^2 A, \quad B^{(Ion)} = -\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} A + \frac{2i}{\omega_0^3} \partial_t (\omega_p^2 A) \quad (\text{B.2})$$

En négligeant la dérivée seconde temporelle on obtient :

$$\partial_\xi A = i \frac{\beta_0}{2n_0^2} \left[ \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_t \right) \frac{3}{4} \chi^{(3)} |A|^2 A - \left( 1 - \frac{i}{\omega_0} \partial_t \right) \omega_p^2 A \right] \quad (\text{B.3})$$

L'amplitude du champ électrique  $A = |A| e^{i\phi}$  donc  $\partial_\xi A = (\partial_\xi |A| + i |A| \partial_\xi \phi) e^{i\phi}$ . En utilisant ces expressions dans B.3 et l'approximation  $\frac{\partial_t \phi}{\omega_0} \ll 1$ , puis en identifiant les parties réelles et imaginaires, on a pour l'effet Kerr :

$$\partial_\xi \phi = \frac{\beta_0}{2n_0^2} \frac{3}{4} \chi^{(3)} |A|^2, \quad \partial_\xi |A| = -\frac{3\beta_0}{2n_0^2 \omega_0} \frac{3}{4} \chi^{(3)} |A|^2 \partial_t |A| \quad (\text{B.4})$$

et pour l'ionisation :

$$\partial_\xi \phi = -\frac{\beta_0 \omega_p^2}{2n_0^2 \omega_0^2}, \quad \partial_\xi |A| = -\frac{\beta_0}{2n_0^2 \omega_0^3} \partial_t (\omega_p^2 |A|) \quad (\text{B.5})$$

On peut alors définir les longueurs caractéristiques des différents effets non-linéaires pour une impulsion de durée  $\tau_0$  et d'amplitude maximum  $A_0$  :

$$L_{SPM} = \frac{8n_0^2}{3\beta_0 \chi^{(3)} |A_0|^2}, \quad L_{SS} = \frac{8n_0^2 \omega_0}{9\beta_0 \chi^{(3)} |A_0|^2} \tau_0 \quad (\text{B.6})$$

$$L_{PBS} = \frac{2n_0^2 \omega_0^2}{\beta_0 \omega_{p0}^2}, \quad L_{PS} = \frac{6n_0^2 \omega_0 \tau_0}{\beta_0} \frac{\omega_0^2}{\omega_{p0}^2} \quad (\text{B.7})$$

$\omega_{p0}$  est la fréquence plasma au centre d'une impulsion gaussienne de maximum  $A_0$  et de durée  $\tau_0$ .

L'énergie d'une impulsion  $\mathbf{E}$  et sa variation au cours de la propagation s'écrivent :

$$\mathbf{E} \propto \int |A|^2 dt, \quad \partial_\xi \mathbf{E} \propto \int 2|A| \partial_\xi |A| dt \quad (\text{B.8})$$

Ainsi, pour l'effet Kerr on a :

$$\partial_\xi \mathbf{E} \propto - \int 2|A|^3 \partial_t |A| dt = - \left[ \frac{|A|^4}{2} \right]_{-\infty}^{+\infty} \quad (\text{B.9})$$

et pour l'ionisation :

$$\partial_\xi \mathbf{E} \propto - \int 2|A| \partial_t (\omega_p^2 |A|) = - \left[ (\omega_p |A|)^2 \right]_{-\infty}^{+\infty} - \int |A|^2 \partial_t \omega_p^2 dt \quad (\text{B.10})$$

Une impulsion étant nulle aux temps infinis, l'auto-raïdissement conserve l'énergie d'une impulsion, en revanche, le ralentissement plasma absorbe de l'énergie. Physiquement, l'effet Kerr n'est pas dispersif (loin d'une résonance,  $n_2(\omega) = n_2(\omega_0)$ ) alors que l'ionisation est dispersive, ce qui est toujours associé à une absorption (théorème de Kramers-Krönig).

# Annexe C

## Calcul analytique du mouvement des électrons de Brunel

On recherche ici une expression analytique du temps d'émission des impulsions CWE en fonction des paramètres de l'interaction, le temps d'émission étant assimilé au temps de croisement massif des électrons dans le plasma. En considérant d'abord un seul cycle optique d'amplitude  $a_0$  et une profondeur donnée dans le plasma  $d$ , nous allons calculer le temps d'émission  $\tau_e(a_0, d)$ . A partir de cette équation, on obtiendra une expression analytique du chirp attoseconde  $\tau_e(\omega)$  d'une impulsion CWE et du chirp femtoseconde  $\tau_e(n)$  d'un train d'impulsion CWE ( $n$  est le numéro du cycle optique). Nous verrons enfin les expressions analytiques du temps de naissance et de la vitesse de retour en fonction des paramètres de l'interaction.

### C.1 Expression générale $\tau_e(a_0, d)$

#### C.1.1 Mise en équation

Les variables  $\{t_i, t_r, v_r, \tau_e\}$  (respectivement le temps de naissance, le temps de retour et la vitesse de retour au plasma et le temps de croisement massif) sont déterminées par les conditions d'interaction  $\{a_0, d\}$  à travers le système d'équation suivant :

$$v_r = v_{osc} (\cos \omega t_r - \cos \omega t_i) + \omega v_{osc} (t_r - t_i) \sin \omega t_i \quad (\text{C.1})$$

$$0 = \frac{v_{osc}}{\omega} (\sin \omega t_r - \sin \omega t_i) - v_{osc} (t_r - t_i) \cos \omega t_i + \frac{1}{2} \omega v_{osc} (t_r - t_i)^2 \sin \omega t_i \quad (\text{C.2})$$

$$\tau_e = \frac{t_r}{T_0} + \frac{dc}{\lambda_0 v_r} \quad (\text{C.3})$$

$$\frac{\partial \tau_e}{\partial t_i} = 0 \quad (\text{C.4})$$



Les paramètres connus sont la vitesse  $v_{osc}$  et la profondeur dans le plasma  $d$ . On a  $v_{osc} = eE_0/m_e\omega_0$  où  $e$  et  $m_e$  sont la charge et la masse de l'électron,  $E_0 \propto a_0$  et  $\omega_0$  sont l'amplitude et la fréquence du champ laser. Les équations C.1 et C.2 proviennent des équations du mouvement des électrons de Brunel dans le vide [17] en posant  $v(t_r) = v_r$  et  $x(t_r) = 0$ . L'équation C.3 donne le temps d'émission  $\tau_e$  (normalisé en  $T_0$ ) en prenant en compte la propagation à vitesse constante  $v_r$  des électrons dans le plasma sur la distance  $d$ . Enfin, pour pouvoir déterminer quels électrons vont se croiser massivement à la profondeur choisie et donc déclencher l'émission CWE, il faut une condition supplémentaire sur  $t_r$  et  $v_r$  : le pic de densité électronique apparaît quand la dérivée du temps  $\tau_e$  s'annule (Equation C.4).

### C.1.2 Approximation

Pour résoudre ce système d'équations, on effectue les approximations suivantes :

$$\cos \omega t_i \approx -2\pi\epsilon_i \quad (\text{C.5})$$

$$\cos \omega t_r \approx -1 + \frac{(2\pi\epsilon_r)^2}{2} \quad (\text{C.6})$$

$$\sin \omega t_i \approx 1 - \frac{(2\pi\epsilon_i)^2}{2} \quad (\text{C.7})$$

$$\sin \omega t_r \approx -2\pi\epsilon_r \quad (\text{C.8})$$

avec  $\omega t_i/2\pi = 0.25 + \epsilon_i$  et  $\omega t_r/2\pi = 0.5 + \epsilon_r$ . Ces approximations apportent une erreur inférieure à 0.1 si  $(|\epsilon_i|, |\epsilon_r|) < 0.12$ , ce qui signifie que l'on considère des électrons arrachés peu de temps avant le maximum du champ ( $T_0/8 < t_i < T_0/4$ ) et qui reviennent dans le plasma aux alentours du temps où le champ électrique s'inverse ( $3T_0/8 < t_r < 5T_0/8$ ), comme représenté sur la Fig. C.1.

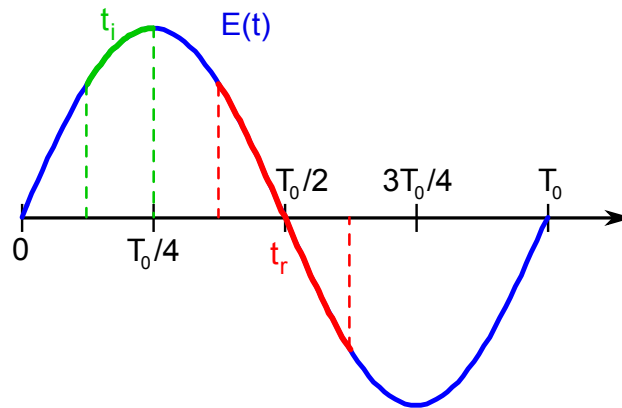


FIGURE C.1 – Représentation du champ électrique laser  $E(t)$  aux temps  $t_i$  (en vert) et  $t_r$  (en rouge) dans le cadre de l'approximation.

### C.1.3 Résolution

A partir des hypothèses précédentes sur  $t_i$  et  $t_r$ , on trouve d'abord une approximation linéaire entre les variables  $\epsilon_i$  et  $\epsilon_r$  à partir de l'équation C.2 :

$$\epsilon_i \approx \beta + \alpha\epsilon_r, \text{ avec } \alpha = -0.29 \text{ et } \beta = -0.082 \quad (\text{C.9})$$

Puis on utilise cette nouvelle équation pour relier  $v_r$  à  $\epsilon_r$  à partir de l'équation C.1 :

$$v_r \approx (a(\epsilon_r + b)^2 + \epsilon)v_{osc}, \text{ avec } a = 9.52, b = 0.183 \text{ et } \epsilon = 0.018 \quad (\text{C.10})$$

Les résultats du modèle sur  $\epsilon_r$  et  $v_r$  en fonction de  $\epsilon_i$  avec et sans prise en compte de la relativité sont comparés aux expressions analytiques (Eq. C.9 et C.10) sur la Fig. C.2. Pour  $-0.12 < \epsilon_i < -0.05$  on constate que les expressions analytiques constituent une bonne approximation.

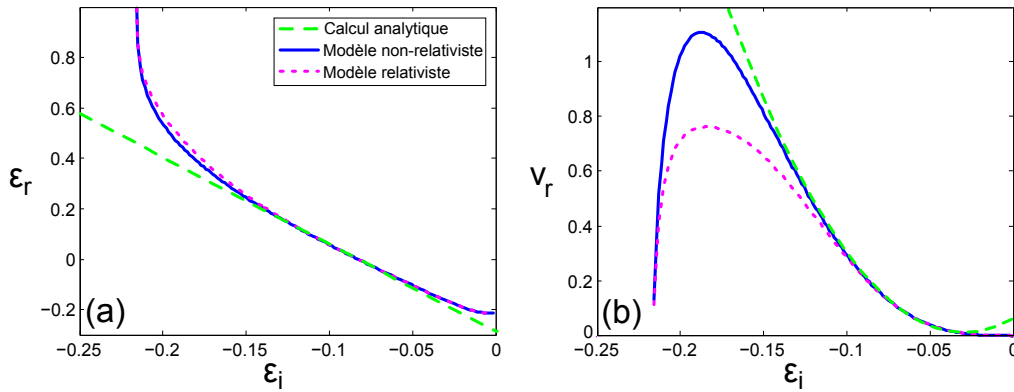


FIGURE C.2 – Temps  $\epsilon_r$  et vitesse  $v_r$  de retour au plasma calculés par différentes méthodes : le calcul analytique est comparé au modèle non-relativiste et relativiste.

Ensuite on trouve  $\tau_e$  en fonction de  $\epsilon_r$  à partir de l'équation C.3 (on néglige  $\epsilon$  devant  $ab^2$ ) :

$$\tau_e \approx \frac{dc}{a\lambda_0 v_{osc}(\epsilon_r + b)^2} + 0.5 + \epsilon_r \quad (\text{C.11})$$

enfin, on utilise la condition de croisement massif de l'équation C.4 pour trouver l'expression de  $\epsilon_r$  en fonction des paramètres de l'interaction :

$$\epsilon_r \approx \sqrt[3]{\frac{2dc}{a\lambda_0 v_{osc}}} - b \quad (\text{C.12})$$

Le temps d'émission s'écrit alors :

$$\tau_e \approx B + 1.5\sqrt[3]{\frac{2dc}{a\lambda_0 v_{osc}}}, \text{ où } B = 0.317 \quad (\text{C.13})$$

Selon l'équation C.3, le temps d'émission se décompose en deux parties distinctes : le temps passé dans le vide  $t_r/T_0$  et le temps dans le plasma  $dc/\lambda_0 v_r$ . On voit que ces deux temps varient de la même manière (à un facteur 2 près) en fonction des paramètres de l'interaction. Ainsi, si le quotient  $dc/\lambda_0 v_{osc}$  augmente ( $a_0$  plus petit ou profondeur  $d$  plus grande), les électrons vont déclencher des oscillations plasma plus tard et cette augmentation de temps est due pour un tiers à l'allongement du temps dans le plasma et deux tiers à l'allongement du temps dans le vide.

Avant de passer à l'interprétation physique de l'expression du temps d'émission des CWE, on détermine les conditions dans lesquelles les deux hypothèses  $|\epsilon_r| < 0.12$  et  $-0.12 < \epsilon_i < -0.05$  sont vérifiées. A partir de l'équation C.9, on voit que si la première hypothèse est vérifiée, alors la seconde l'est aussi. En utilisant l'équation C.12, on trouve alors la condition de validité de l'étude analytique précédente :

$$2 \times 10^{-3} < \frac{d}{\lambda_0 a_0} < 0.2 \quad (\text{C.14})$$

Pour une intensité  $a_0 = 0.4$  et une longueur d'onde laser de  $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ , la profondeur doit satisfaire la relation  $0.6 \text{ nm} < d < 64 \text{ nm}$ .

## C.2 Expression du chirp attoseconde

Le temps d'émission des CWE dépend naturellement de la profondeur dans le plasma à laquelle le croisement des électrons a lieu. Cette distance  $d = 2\delta \ln \omega/\omega_0$  dépend de la fréquence émise considérée  $\omega$  et de la longueur de gradient  $\delta$ . Ainsi, les différentes fréquences ne sont pas émises au même instant, c'est le chirp attoseconde  $\tau_e(\omega)$ . Pour des conditions d'interaction données, il s'écrit :

$$\tau_e(\omega) \approx B + C_\omega \sqrt[3]{\ln \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right)}, \quad \text{où } C_\omega = 1.5 \sqrt[3]{\frac{4c\delta}{a\lambda_0 v_{osc}}} \quad (\text{C.15})$$

La Fig. C.3 montre la dérivée seconde de la phase spectrale (qui quantifie le chirp) d'une impulsion CWE calculée d'une part à partir de l'équation C.15 et d'autre part avec le modèle. On retrouve que le chirp attoseconde est plus prononcé pour les fréquences basses, dans les conditions de la Fig. C.3, l'harmonique 4 a une avance de  $4.5 \times 10^{-3} T_0$  sur l'harmonique 5 alors que la différence de temps entre les harmoniques 13 et 14 est de  $0.25 \times 10^{-3} T_0$ .

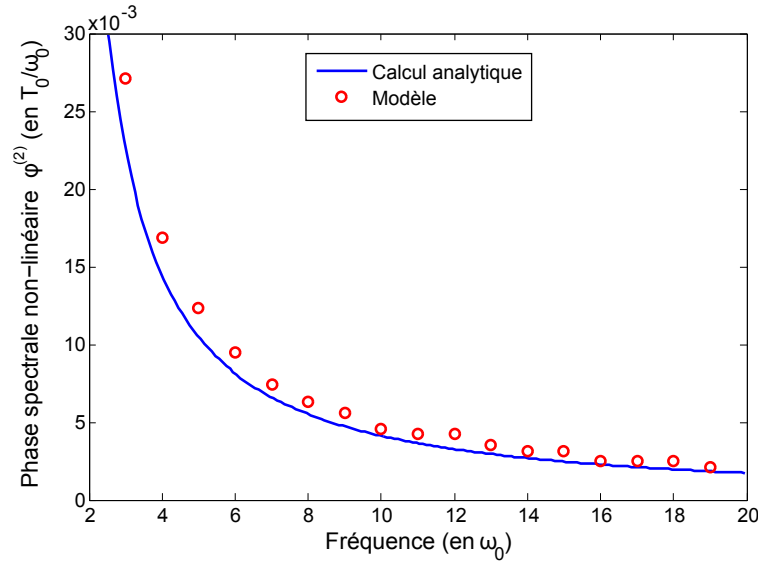


FIGURE C.3 – Phase spectrale non-linéaire quadratique  $\phi^{(2)} = \partial\tau_e/\partial\omega$  d’une impulsion CWE dans les conditions  $a_0 = 1$ ,  $\delta = \lambda/100$ . Comparaison du calcul analytique (trait plein) et du modèle (cercles).

## C.3 Expression du chirp femtoseconde

Au sein d’une impulsion laser femtoseconde, l’amplitude du champ électrique varie d’un cycle optique à l’autre. Comme  $v_{osc} \propto a_0$ , on voit que le temps d’émission des CWE dépend de l’amplitude du champ électrique :  $\tau_e - B \propto a_0^{-1/3}$ . Le temps d’émission des CWE varie d’un cycle optique à l’autre ce qui donne naissance au chirp femtoseconde.

### C.3.1 Impulsion laser comprimée ( $\xi = 0$ )

L’amplitude du champ d’une impulsion laser gaussienne comprimée de durée  $\tau$  (où les cycles optiques sont régulièrement espacés) en fonction du cycle optique  $n$  ( $n$  est un entier relatif et  $n = 0$  au maximum de l’impulsion) est  $a_0 e^{-n^2/2\tau^2}$ . En utilisant  $v_{osc} = eE/m_e\omega$  et  $E = \sqrt{2}E_{Laser}$  (somme des champs incident et réfléchi en incidence oblique à  $45^\circ$ ), on a  $v_{osc} = \sqrt{2}a_0 c$  et le temps d’émission s’écrit :

$$\tau_e(n) \approx B + C_n e^{n^2/6\tau^2}, \text{ où } C_n = 1.5 \sqrt[3]{\frac{\sqrt{2}d}{a\lambda_0 a_0}} \quad (\text{C.16})$$

Le chirp femtoseconde d’un train CWE est représenté sur la Fig. C.4, le calcul analytique fournit un résultat similaire au modèle. On observe une légère asymétrie de la courbe en U qui

provient du modèle, elle est due à la prise en compte de la variation de l'enveloppe laser au sein de chaque cycle optique. Ce phénomène n'est pas inclus dans le calcul analytique.

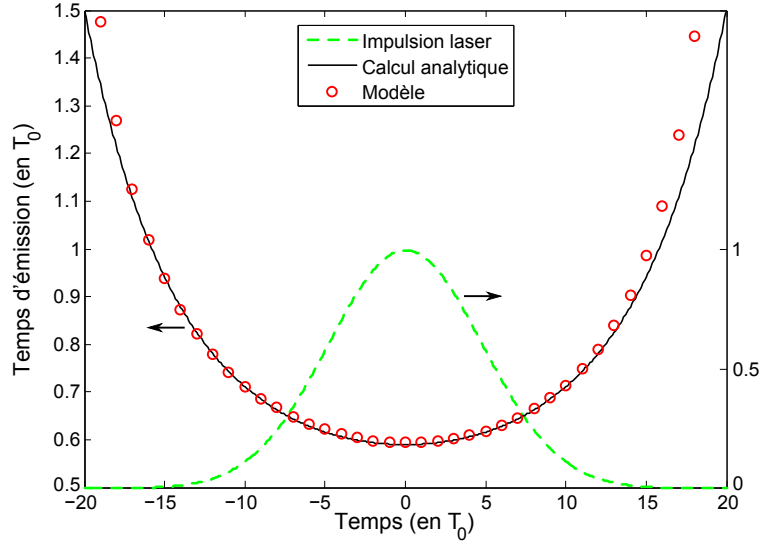


FIGURE C.4 – Temps d'émission de l'harmonique 8 (CWE) en fonction du cycle optique pour une impulsion laser de  $30 fs$  (représentée en pointillés) d'amplitude  $a_0 = 1$  et un gradient de densité plasma  $\delta = \lambda/100$ . Comparaison du calcul analytique (trait plein) et du modèle (cercles).

### C.3.2 Impulsion laser chirpée ( $\xi \neq 0$ )

Dans le cas d'une impulsion chirpée nous allons démontrer, qu'il suffit d'ajouter un terme quadratique en  $n$  dans l'expression du temps d'émission.

On considère que le temps d'émission  $\tau_e^\xi(n)$  est composé d'un délai dû à l'effet CWE  $\tau_e'(n)$  et d'un délai  $\Delta t(n)^\xi$  dû au décalage temporel du cycle optique  $n$  en présence de chirp :

$$\tau_e^\xi = \tau_e' + \Delta t^\xi \quad (\text{C.17})$$

En toute rigueur, on a  $\tau_e'(n) = \tau_e(n + \Delta t^\xi)$  car le cycle optique est décalé sous l'enveloppe de l'impulsion. Cette dépendance est négligeable pour des impulsions longues car pour le maximum de chirp temporel ( $\xi = 1$ ),  $\Delta t^\xi < 1 fs$  et la variation de l'enveloppe à l'échelle sub-fs est très faible. On a alors :

$$\tau_e' \approx B + C_n(\xi) e^{n^2/6\tau^2(\xi)}, \text{ où } C_n(\xi) = 1.5 \sqrt[3]{\frac{2d}{a\lambda_0 a_0(\xi)}} \quad (\text{C.18})$$

où on a pris en compte la variation de l'intensité et de la durée de l'impulsion due au chirp  $\xi$ . Le délai  $\Delta t^\xi$  est la différence entre la position du cycle optique  $n$  dans l'impulsion chirpée et

celle dans l'impulsion comprimée, il s'écrit :

$$\Delta t^\xi = \sum_{j=1}^n T'_0(j) - n \quad (\text{C.19})$$

$T'_0(j)$  est la période du cycle optique  $i$ . Pour une impulsion chirpée, elle s'exprime en fonction de la phase temporelle quadratique  $\alpha_C$  :

$$T'_0(j) = \frac{1}{1 + \alpha_C j/2\pi} \quad (\text{C.20})$$

Pour  $\alpha_C j/2\pi \ll 1$  on a  $T'_0(j) - 1 \approx -\frac{\alpha_C j}{2\pi}$ , on a donc :

$$\Delta t^\xi = -\frac{\alpha_C}{2\pi} \frac{n(n+1)}{2} \quad (\text{C.21})$$

Le temps d'émission des impulsions CWE à partir d'une impulsion laser chirpée est ainsi :

$$\tau_e^\xi \approx B + C_n(\xi) e^{n^2/6\tau^2(\xi)} - \frac{\alpha_C}{2\pi} \frac{n(n+1)}{2} \quad (\text{C.22})$$

Cette équation est validée par les comparaisons avec les résultats du modèle et des simulations PIC pour des impulsions laser chirpées positivement et négativement (voir Fig. 6.4). On retrouve notamment que la composante quadratique du délai provenant du chirp diminue la composante quadratique totale pour  $\alpha_C > 0$  : c'est la compensation du chirp femtoseconde.

## C.4 Temps de naissance et vitesse de retour

La solution analytique du mouvement des électrons de Brunel relie aussi le temps de naissance  $\tau_i = t_i/T_0$  et la vitesse de retour  $v_r$  aux conditions de l'interaction (voir Eq. C.23 et C.24). On trouve notamment le résultat non trivial  $v_r \propto a_0^{1/3}$  : la vitesse de retour des électrons de Brunel qui se croisent à une profondeur donnée  $d$  ne croît pas linéairement avec l'amplitude du champ laser. A plus forte intensité, les électrons qui se croisent à la profondeur  $d$  sont arrachés plus tard du plasma ( $\tau_i - 0.22 \propto -a_0^{-1/3}$ ), ils sont donc moins accélérés par le champ laser.

$$\tau_i = 0.22 - 0.29 \sqrt[3]{\frac{\sqrt{2}d}{a\lambda_0 a_0}} \quad (\text{C.23})$$

$$v_r = \sqrt{2}c \left(\frac{d}{\lambda_0}\right)^{2/3} (a a_0)^{1/3} \quad (\text{C.24})$$

Ces deux paramètres sont nécessaires pour estimer l'efficacité de l'émission CWE. Celle-ci dépend a priori de l'intégrale et de la hauteur du pic de densité électronique qui apparaît lors

du croisement des trajectoires électroniques. Le temps de naissance  $t_i$  détermine l'amplitude du champ laser au moment où l'électron considéré quitte le plasma ce qui permet de lui associer la densité  $N_i \propto (\partial E / \partial t)_{t_i}$ . La vitesse de retour  $v_r$  a un effet sur la hauteur du pic de densité car l'énergie cinétique des électrons s'oppose à l'énergie potentielle électrostatique et permet donc une meilleure concentration des électrons.

# Annexe D

## Publications

1. **Generation of 4.3 fs, 1 mJ laser pulses via compression of circularly polarized pulses in a gas-filled hollow-core fiber,**  
X. Chen, A. Jullien, A. Malvache *et al*, Optics Letters (2009).
2. **1-mJ, sub-5-fs carrier-envelope phase-locked pulses,**  
X. Chen, L. Canova, A. Malvache *et al*, Applied Physics B Laser and Optics (2010).
3. **Efficient Hollow Fiber Compression scheme for generating multi-mJ, carrier-envelope-phase stable, sub-5 fs pulses (p.189),**  
X. Chen, A. Malvache *et al*, Laser Physics (2011).
4. **Multi-mJ pulse compression in hollow fibers using circular polarization (p.193),**  
A. Malvache, X. Chen *et al* Applied Physics B : Laser and Optics (2011).
5. **High-harmonic generation from plasma mirrors at kHz repetition rate (p.199),**  
A. Borot, A. Malvache *et al* Optics Letters (2011).
6. **Brunel-dominated proton acceleration with a few-cycle laser pulse,**  
M. Veltecheva, A. Borot, C. Thaury, A. Malvache *et al*, Physical Review Letters (2012).
7. **Attosecond control of collective electron motion in plasmas (p.203),**  
A. Borot, A. Malvache *et al*, accepted in Nature Physics (2012).
8. **Probing the density profile of a plasma mirror by coherent wake emission spectroscopy (p.209),**  
A. Malvache, A. Borot *et al*, submitted to Physical Review Letters (2012).





# Efficient Hollow Fiber Compression Scheme for Generating Multi-mJ, Carrier-Envelope Phase Stable, Sub-5 fs Pulses<sup>1</sup>

X. Chen<sup>a, b</sup>, A. Malvache<sup>a</sup>, A. Ricci<sup>a, c</sup>, A. Jullien<sup>a</sup>, and R. Lopez-Martens<sup>a</sup>

<sup>a</sup> *Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-ParisTech, Ecole Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau Cédex, France*

<sup>b</sup> *Institut de la Lumière Extrême, CNRS, Ecole Polytechnique, ENSTA ParisTech, Institut d'Optique, Université Paris-Sud, Palaiseau, France*

<sup>c</sup> *Thales Optronique SA, Laser Solutions Unit, Elancourt, France*

\*e-mail: xiaowei.chen@ensta.fr

Received July 20, 2010; in final form, August 2, 2010; published online December 4, 2010

**Abstract**—We show that a standard hollow-core fiber (HCF) compressor device can be used to efficiently compress multi-mJ energy laser pulses down to few-cycle duration, when seeded with linearly chirped, circularly polarized pulses. With this approach, we routinely generate carrier-envelope phase (CEP)-locked, 1.6 mJ, 4.8 fs pulses using only 3 mJ, 25 fs pulses as the seed.

**DOI:** 10.1134/S1054660X11010063

## 1. INTRODUCTION

Since its invention over a decade ago [1, 2], HCF compressors have provided tremendous thrust to the field of ultrafast optics [3]. In a HCF filled with a rare gas at constant pressure, the spectrum of amplified, CEP-locked femtosecond laser pulses can be nonlinearly broadened to support pulse durations approaching the laser period. Adequate dispersive mirror technology can then be used to temporally compress the pulses, forming CEP-controlled, high peak-power, few-optical-cycle waveforms that can drive extreme nonlinear interactions with matter [4]. Such waveforms are now routinely used to generate attosecond pulses in the extreme ultraviolet region via high-harmonic upconversion in gases [5]. When focused down to wavelength-limited spot sizes, few-cycle pulses could even be used to drive highly efficient attosecond pulse generation from relativistic laser-plasma interactions [6]. Reaching such a regime, however, demands that the ultrashort pulses have multi-mJ energy and very high spatial beam quality. Extended mode confinement of the laser beam inside the HCF ensures spatially homogeneous spectral broadening, excellent beam pointing stability and near-diffraction-limited spatial beam quality, features that other non-guided techniques, such as filamentation, cannot afford [7, 8]. However, problems arise when trying to scale standard HCF compressors beyond the mJ energy level: self-focusing and multi-photon ionization prevent efficient coupling of energy into the fiber and excite high-order modes of the waveguide, thereby limiting the power density and spatial resolution attainable with the beam transmitted through the fiber. In practice, a standard HCF compressor with a

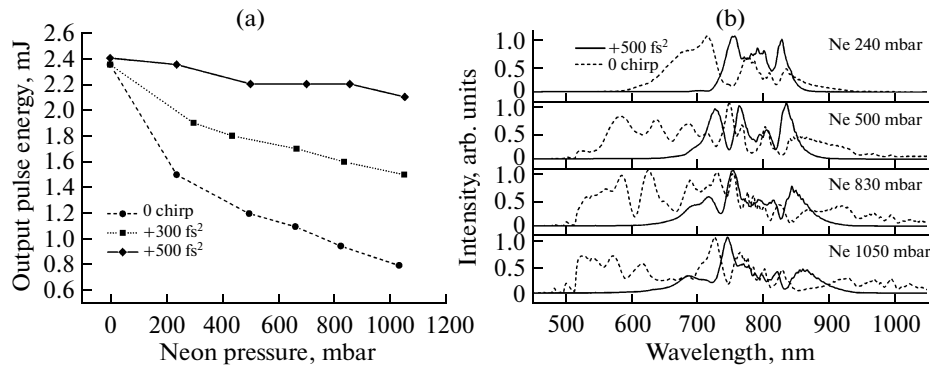
constant gas pressure may be seeded with multi-mJ pulses but the throughput of the device rapidly decreases, the output mode is degraded and spectral broadening becomes dominated by ionization (asymmetric and blue-shifted), making it generally quite difficult to achieve temporally and spatially clean few-cycle output pulses with the desired energy.

Several techniques have successfully managed to overcome these limitations, such as applying pressure gradients across the HCF [9, 10], partial guiding using planar waveguides [11] and the use of circular polarization [12]. Surprisingly easy to implement, circular polarization has the double benefit of increasing the critical power required for self-focusing and reducing the rate of ionization by almost one order of magnitude compared to linear polarization, resulting in a more stable output with higher temporal and spatial beam quality [13]. We recently demonstrated that circular polarization provides a simple way of seeding up to 2.1 mJ, 25 fs pulses into a standard HCF device to produce high quality 1 mJ, 4.3 fs compressed pulses [14]. At higher seed energies, the throughput of the HCF rapidly decreases even for circular polarization. Bohman and co-workers demonstrated the generation of 5 mJ, 5 fs pulses from a large-scale pressure gradient HCF compressor device, seeded with chirped multi-mJ pulses [10]. Here we show that the energy output of a compact HCF, seeded by circularly polarized pulses, can be increased by up to 60%, simply by linearly chirping the input pulses. With a standard, 1 m-long, 250  $\mu\text{m}$  inner-diameter HCF, we routinely generate CEP-stable (RMS  $\sim$  250 mrad), 1.6 mJ, 4.8 fs pulses using only 3 mJ, 25 fs pulses as the seed. This straightforward approach allows us to almost double the few-cycle pulse energy available from a standard HCF compressor seeded with chirp-free linearly polarized

<sup>1</sup> The article is published in the original.

## EFFICIENT HOLLOW FIBER COMPRESSION SCHEME

199



**Fig. 1.** (a) Energy transmission efficiency as a function of Neon pressure for different initial second-order spectral phase of the seed pulses; (b) output spectrum at different gas pressures for chirp-free (dashed line) pulses and optimally chirped seed pulses (solid line).

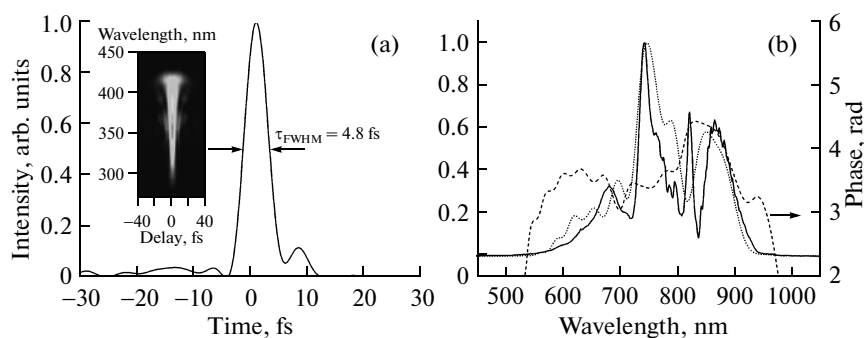
pulses [14], without the need for more complex pressures gradients schemes. Our setup features minimal losses inside the HCF (over 70% transmission) as well as excellent temporal and spatial output beam quality. The overall efficiency of the setup (53%) is limited only by the transmission of the optics downstream from the HCF. To the best of our knowledge, this is the highest CEP-stable sub-5 fs pulse energy reported so far.

## 2. EXPERIMENTAL SETUP

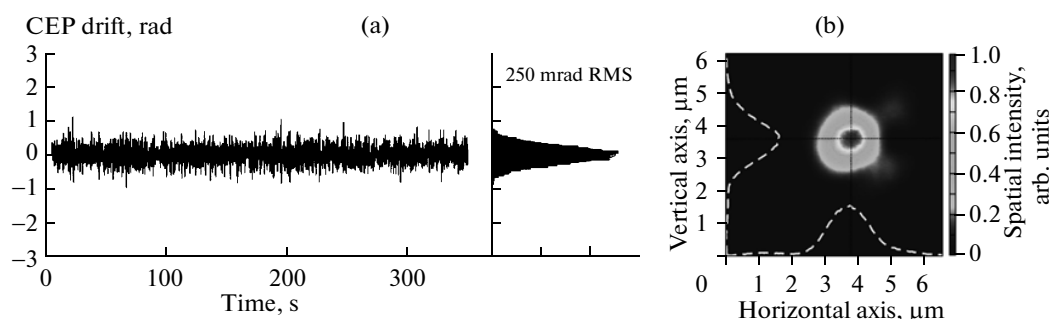
The 3 mJ, 25 fs seed pulses for the experiment are provided by our recently upgraded, 1 kHz, CEP-stabilized Ti:sapphire laser amplifier in Salle Noire at LOA [15]. After changing the beam polarization from linear (LP) to circular (CP), the seed pulses are launched into the HCF using an  $f = +1.5$  m focusing mirror. The HCF used here is a standard 1 m long, 250  $\mu\text{m}$  core diameter HCF (Femtolasers GmbH) filled with a static pressure of Neon gas. The transmitted beam is changed from CP back to LP using a broadband quarter wave plate (Femtolasers GmbH). The polarization purity of the transmitted beam, measured after a Glan-laser polarizer, is more than 99%, which is equivalent to that of the initial laser. The total pulse dispersion of the HCF setup, including the second broadband quarter wave plate and  $\sim 2.5$  m air, is precisely compensated using a combination of broadband chirped mirrors (CMs) (Femtolasers GmbH and Layertech GmbH) together with a pair of thin fused silica wedges at Brewster angle. The compressed pulse duration is measured and optimized using a home made frequency resolved optical gating (FROG) device suitable for few-cycle pulse characterization [16].

## 3. EXPERIMENTAL RESULTS AND ANALYSIS

In our laser system, the spectral phase of the whole system can be arbitrarily adjusted online using an acousto-optic programmable dispersive filter (Dazzler, Fastlite), located inside the first amplification stage [17]. We systematically measured the pulse energy and spectrum at the output of the HCF as a function of initial chirp of the seed pulse. Figure 1a shows the measured transmission efficiency of the HCF as a function of Neon pressure for three different pure second-order spectral phases of the seed pulse: 0 chirp (dashed blue line), +300 fs<sup>2</sup> (dotted green line), and +500 fs<sup>2</sup> (black solid line). The energy throughput increases with increasing input chirp and remains stable over a wider range of gas pressures. The intrinsic throughput of the HCF in the absence of gas is 80%. For an optimal input spectral phase of +500 fs<sup>2</sup>, the HCF throughput goes down to 70% whereas it drops below 30% for chirp-free input pulses. Similar efficiencies have recently been reported for 5 mJ, 25 fs circularly polarized seed pulses in a static HCF [18]. The dramatically enhanced throughput benefits from the lower peak-power of the seed pulse ( $\sim 2.4$  times lower for +500 fs<sup>2</sup> initial chirp,  $\sim 60$  fs pulse duration), which reduces ionization-induced losses inside the HCF and maintains good spatial and temporal pulse quality. Figure 1b shows that stretching the seed pulses results in moderate and more symmetric spectral broadening (solid black line). This is essential for obtaining good quality compressed pulses. In comparison, extensive, blue-shifted and strongly modulated broadening is observed in the case of chirp-free seed pulses (dashed blue line), which makes post-compression difficult because of the complex residual spectral phase and limited spectral response of the optics downstream. Note that using negatively chirped seed pulses was not beneficial as it rapidly leads to narrow modulated output spectra.



**Fig. 2.** Spectro-temporal characterization of the sub-5 fs compressed pulses: (a) retrieved FROG trace (insert) and reconstructed temporal profile; (b) FROG-retrieved spectrum (dotted line), and spectral phase (dashed line), compared with the measured spectrum (solid line).



**Fig. 3.** (a) CEP drift of the 1.6 mJ, sub-5 fs pulses after the HCF compressor; (b) measured spot size of the sub-5 fs laser beam at the focus of a  $f/1.7$ ,  $30^\circ$  off-axis parabola.

For an optimal input spectral phase of  $+500 \text{ fs}^2$ , pulses transmitted through the HCF contain  $> 2 \text{ mJ}$  energy. After precise dispersion compensation, at an optimal gas pressure of 1.18 bar,  $4.8 \pm 0.1 \text{ fs}$  pulses with 1.6 mJ energy are routinely generated. The additional 20% energy losses incurred after the HCF originate from the optics downstream: broadband quarter wave plate, uncoated wedges and 10 bounces off chirped mirrors. More efficient chirped mirrors together with AR-coated wedges should help significantly reduce these losses. Figure 2 shows the typically measured temporal profile and spectrum (measured by a Hamamatsu fiber spectrometer) (solid black line) together with the FROG-retrieved spectral phase (dashed blue line) and spectrum (dotted black line). Here the optimally broadened spectrum supports  $\sim 4.3 \text{ fs}$  transform-limited pulse duration. The residual spectral phase in the infrared part is due to poor dispersion compensation by the chirped mirrors in this wavelength region, implying that even shorter compressed pulses could be achieved using chirped mirrors with broader bandwidth characteristics. However, the clean FROG trace (insert in Fig. 2a) indicates adequate pulse compression quality. It is worth mention-

ing here that the initial chirp of the seed pulses does not affect significantly the measured output spectral phase, as reported in [10], and optimal compression can be achieved by small adjustment of the wedges in the beam path ( $\pm 10 \text{ fs}^2$ ).

In our experiment, the octave-spanning output pulse spectrum from the HCF can be directly used to measure and correct the slow CEP drift of the overall setup. A small fraction of the post-compressed beam is picked off by a broadband beam splitter and focused into a home made f-to-2f interferometer composed of a 0.5 mm thick BBO and a broadband polarizer. Interference fringes are acquired by a Thorlabs SPx spectrometer and analyzed using commercial software (Menlo Systems GmbH). Feeding the calculated CEP drift back to the Menlo electronics for the oscillator, the CEP of the whole laser system including the HCF compressor can be stabilized. A typical standard CEP deviation measurement is shown in Fig. 3a, indicating a RMS phase error of 250 mrad (10 shot averaging, 100 ms cycle-loop time).

Finally, the generated sub-5 fs laser beam shows excellent spatial quality as commanded by the mode

confinement of the HCF. The measured spot size (Fig. 3b) at the focus of a  $f/1.7$ ,  $30^\circ$  off-axis parabola is under  $1.8 \mu\text{m}$  (beam waist at  $1/e^2$  peak intensity) with more than 70% of the energy contained within the pulse spatial envelope (at  $1/e^2$  peak intensity) and without any prior wave-front correction. These conditions correspond to focused intensity above  $2 \times 10^{18} \text{ W/cm}^2$ , which is close to relativistic intensities for 800 nm light.

#### 4. CONCLUSIONS

In conclusion, we present that by chirping the initially circularly polarized seed pulses, the energy throughput of a compact HCF compressor with constant gas pressure can be increased by more than 60% and consequently, by up to almost 100% compared to seeding with linearly polarized, chirp-free pulses [14], with no added experimental complexity. High spatial quality, CEP-stable, 1.6 mJ, sub-5 fs pulses are routinely generated using only 3 mJ, 25 fs pulses from the laser. Better optics downstream should provide higher throughput and improved compression efficiency. We believe this approach could be successfully combined with the pressure gradient technique to achieve high-quality pulse compression at the multi-TW peak-power level.

#### ACKNOWLEDGMENTS

Financial support from the CNRC-CNRS 2007 program and the Agence Nationale pour la Recherche, through program ANR-09-JC-JC-0063 (UBI-CUIL) is gratefully acknowledged.

#### REFERENCES

1. M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793 (1996).
2. S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, C. Spielmann, F. Krausz, and K. Ferencz, *Opt. Lett.* **22**, 1562 (1997).
3. T. Brabec and F. Frazusz, *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
4. A. L. Cavalieri, E. Goulielmakis, B. Horvath, W. Helml, M. Schultze, M. Fieß, V. Pervak, L. Veisz, V. S. Yakovlev, M. Uiberacker, A. Apolonski, F. Krausz, and R. Kienberger, *New J. Phys.* **9**, 242 (2007).
5. C. Vozzi, F. Calegari, F. Ferrari, M. Lucchini, S. De Silvestri, O. Svelto, G. Sansone, S. Stagira, and M. Nisoli, *Laser Phys. Lett.* **6**, 259 (2009).
6. J. Nees, N. Naumova, E. Power, V. Yanovsky, I. Aokolov, A. Maksimchuk, A. W. Bahk, V. Chvykov, G. Kalintchenko, B. Hou, and G. Mourou, *J. Mod. Opt.* **52**, 305 (2005).
7. L. Gallmann, T. Pfeifer, P. M. Nagel, M. J. Abdel, D. M. Neumark, and S. R. Leone, *Appl. Phys. B* **86**, 561 (2007).
8. A. Zaïr, A. Guandalini, F. Schapper, M. Holler, J. Biegert, L. Gallmann, A. Couairon, M. Franco, A. Mysyrowicz, and U. Keller, *Opt. Express* **15**, 5394 (2007).
9. S. Bohman, A. Suda, M. Kaku, M. Nurhuda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa, *Opt. Express* **16**, 10684 (2008).
10. S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa, *Opt. Lett.* **35**, 1887 (2010).
11. S. Akturk, C. L. Arnold, B. Zhou, and A. Mysyrowicz, *Opt. Lett.* **34**, 1462 (2009).
12. S. Ghimire, B. Shan, C. Wang, and Z. Chang, *Laser Phys.* **15**, 838 (2005).
13. A. Malvache, X. Chen, C. Durfee, and R. Lopez-Martens, manuscript in preparation.
14. X. Chen, A. Jullien, A. Malvache, L. Canova, A. Borot, A. Trisorio, C. Durfee, and R. Lopez-Martens, *Opt. Lett.* **34**, 1588 (2009).
15. X. Chen, L. Canova, A. Malvache, A. Jullien, R. Lopez-Martens, C. Durfee, D. Papadopoulos, and F. Druon, *Appl. Phys. B* **99**, 149 (2010).
16. S. Akturk, C. D'Amico, and A. Mysyrowicz, *JOSA B* **25**, A63 (2008).
17. L. Canova, X. W. Chen, A. Trisorio, A. Jullien, A. Assion, G. Tempea, N. Forget, T. Oksenhendler, and R. Lopez-Martens, *Opt. Lett.* **34**, 1333 (2009).
18. A. Anderson, G. Tempea, M. Hofer, T. Prikoszovitz, Z. Cheng, T. Le, and A. Assion, *Proc. Of SPIE* **7578**, 75781T (2010).

# Multi-mJ pulse compression in hollow fibers using circular polarization

A. Malvache · X. Chen · C.G. Durfee · A. Jullien ·  
R. Lopez-Martens

Received: 12 May 2011 / Revised version: 14 June 2011 / Published online: 15 July 2011  
© Springer-Verlag 2011

**Abstract** We develop a numerical model to explore the polarization-dependent compression of multi-mJ laser pulses in a gas-filled hollow fiber. We show how losses and instabilities due to cycling of pulse energy between fiber modes can be efficiently minimized using circularly polarized light and adjusting simple experimental parameters such as pulse energy, chirp and gas pressure. This should help scale the peak power of few-cycle pulses available for high-field experiments using standard hollow fiber compressors. We also discuss the limits of this approach.

## 1 Introduction

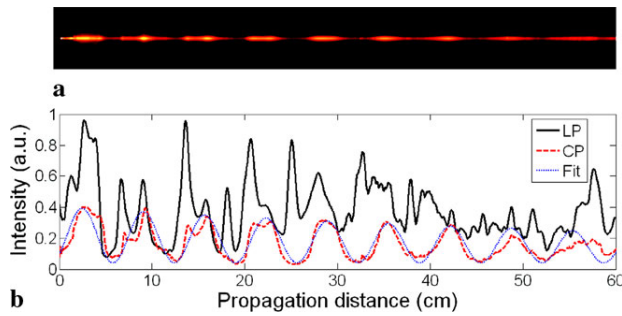
Temporal compression of optical pulses in a gas-filled hollow-core fiber (HCF) [1] is a key technique for generating few-cycle optical waveforms that can then be used for driving and probing attosecond electronic processes in matter [2]. Beam guiding in the fundamental mode of the fiber offers exceptional compression fidelity for sub-mJ energy pulses. For multi-mJ pulses, however, nonlinear focusing and plasma formation excite higher-order fiber modes and severely degrade the transmitted beam quality. This impedes the generalization of this technique to nowadays widely available multi-mJ femtosecond laser technology. Pressure gradients can be applied across the fiber to avoid transverse

beam nonlinearities up to quite pulse high energies [3] but this approach significantly adds to the size and complexity of the device.

Recently, we demonstrated efficient multi-mJ pulse compression using a standard HCF device seeded with circular polarization (CP) rather than linear polarization (LP) [4, 5]. In this high-intensity regime, we consistently observe oscillations of plasma fluorescence intensity (Fig. 1) along the fiber triggered by variations of beam intensity inside the fiber core. For LP, the oscillations are chaotic and the compressed pulse fidelity is low. With CP, the intensity oscillations follow a simple periodicity and allow high-quality compression. The periodic cycling of the intensity results from beating between fiber modes that are nonlinearly coupled [6, 7]. These results suggest that stronger and more localized ionization for LP drives the coupling of higher-order modes. They also show that one must carefully balance the nonlinearities in order to minimize losses and instabilities arising from uncontrolled beating of fiber modes. In this work, we develop a detailed propagation model that describes the influence of both nonlinear index and ionization cross-mode coupling on the quality of HCF compression. While the role of lower-order mode beating due to the nonlinear index has been addressed [6, 7], our model includes polarization-dependent ionization and high-order modes. Unlike in [8], we derive an explicit nonlinear equation that reduces the problem into one dimension and we take into account the frequency dependence of the ionization nonlinearity. This method highlights the mismatched propagation of the modes which plays a key role. We use the model to show how, with CP, one can optimize multi-mJ pulse compression in a standard HCF device with the appropriate combination of pulse energy, chirp and gas pressure, all of which are easily accessible experimental parameters.

A. Malvache (✉) · X. Chen · A. Jullien · R. Lopez-Martens  
Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA ParisTech, Ecole  
Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau Cedex, France  
e-mail: [arnaud.malvache@ensta-paristech.fr](mailto:arnaud.malvache@ensta-paristech.fr)  
Fax: +33-169-319996

C.G. Durfee  
Physics Department, Colorado School of Mines, 1523 Illinois St.,  
Golden, CO 80401, USA



**Fig. 1** (a) Plasma fluorescence induced by circularly polarized 2.1 mJ, 25 fs, 800 nm pulses propagating down a 1 m long, 250  $\mu\text{m}$  diameter HCF with 1 bar of neon [4]; (b) integrated plasma fluorescence for CP (dashed line) with decaying sinusoidal fit (dotted line, 6.6 cm period) and LP (solid line)

## 2 Numerical model

In our model, we derive a nonlinear envelope equation (NEE) from Maxwell's equations [9] accounting for the radial dependence of the fiber, including Kerr effect and ionization. We find suitable expressions for both the laser electric field and the nonlinear polarization to obtain a NEE that adequately describes the propagation of the nonlinearly coupled fiber modes [10]. The finite fiber core size imposes discrete propagation modes  $\text{EH}_{0m}$  with propagation constant  $k^{(m)}$ , which are solution to

$$\nabla_{\perp}^2 E(\omega) + (k(\omega)^2 - k^{(m)}(\omega)^2) E(\omega) = 0, \quad (1)$$

where  $\nabla_{\perp}^2 = (\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r})$  is the second derivative with respect to the radial coordinate  $r$ ,  $k(\omega) = n\omega/c$  is the propagation constant of the field in free space and

$$k^{(m)}(\omega) = \sqrt{k(\omega)^2 - \left(\frac{u_{0m}}{a}\right)^2} \approx k(\omega) \left(1 - \frac{1}{2} \left(\frac{u_{0m}c}{n\omega a}\right)^2\right),$$

where  $a$  is the core radius and  $u_{0m}$  is the  $m$ th zero of the zero-order Bessel function  $J_0$ .

The total field inside the fiber can be written as a sum of all these modes in the form

$$E(r, z, \tau) = e^{-i\omega_0\tau} \sum_m A^{(m)}(z, \tau) J_{0m}(r) e^{i\beta_0^{(m)}z} + cc., \quad (2)$$

where the radial dependence of the field is given by the Bessel functions  $J_{0m}(r) = J_0(\frac{u_{0m}r}{a})$ ,  $A^{(m)}$  are the complex envelopes of the modes and  $\beta_0^{(m)} = \text{Re}[k^{(m)}(\omega_0)]$ .

The induced nonlinear polarization has contributions from the Kerr and ionization nonlinearities, such that

$$\partial_t^2 P_{nl} = \partial_t^2 \left( \frac{3}{4} \chi^{(3)} E |E|^2 \right) + E \omega_p^2, \quad (3)$$

where  $\omega_p^2 = \frac{e^2 \rho}{m_e \epsilon_0}$  is the plasma frequency derived from ADK theory [11] that uses the real electric field  $E$  in LP

and its modulus in CP to evaluate the electronic density  $\rho(r, z, \tau)$ .

In order to highlight interference effects between the different fiber modes, we define

$$A(r, z, \tau) = \sum_m A^{(m)}(z, \tau) J_{0m}(r) e^{i\Delta\beta_0^{(m)}z} + cc. \quad (4)$$

where  $\Delta\beta_0^{(m)} = \beta_0^{(m)} - \beta_0^{(1)}$ . The total field becomes

$$E = A e^{i(\beta_0^{(1)}z - \omega_0\tau)} + cc. \quad (5)$$

We now substitute the above expression for  $E$  in (3). We then Fourier transform the expression for  $P_{nl}$  with respect to the time coordinate and multiply it by  $-1/\omega^2$ . Using a first-order Taylor expansion for  $1/\omega^2$  about  $\omega_0$ , we can perform the inverse transform to generate a new expression for the induced nonlinear polarization under the form  $P_{nl} = B(r, z, \tau, A) e^{i(\beta_0^{(1)}z - \omega_0\tau)} + cc.$ , where

$$B(r, z, \tau, A) = \frac{3}{4} \chi^{(3)} A |A|^2 - A \frac{\omega_p^2}{\omega_0^2} + \frac{2i}{\omega_0^3} \partial_t (A \omega_p^2). \quad (6)$$

From the new expressions of  $E$  and  $P_{nl}$ , we can now derive a suitable NEE describing the propagation of  $E$  inside the fiber, analogous to equation 6 in [9]. We center the calculation around the fundamental mode  $\text{EH}_{01}$  by setting the moving reference frame as  $\tau = t - \beta_1^{(1)}z$ , where  $\beta_1^{(m)} = \text{Re}[(\partial k^{(m)}/\partial \omega)_{\omega_0}]$ . To access the complex amplitude of each mode, the NEE is projected onto the basis set  $J_{0m}$  using the approximation  $\beta_0/\beta_0^{(m)} \approx 1$ ,

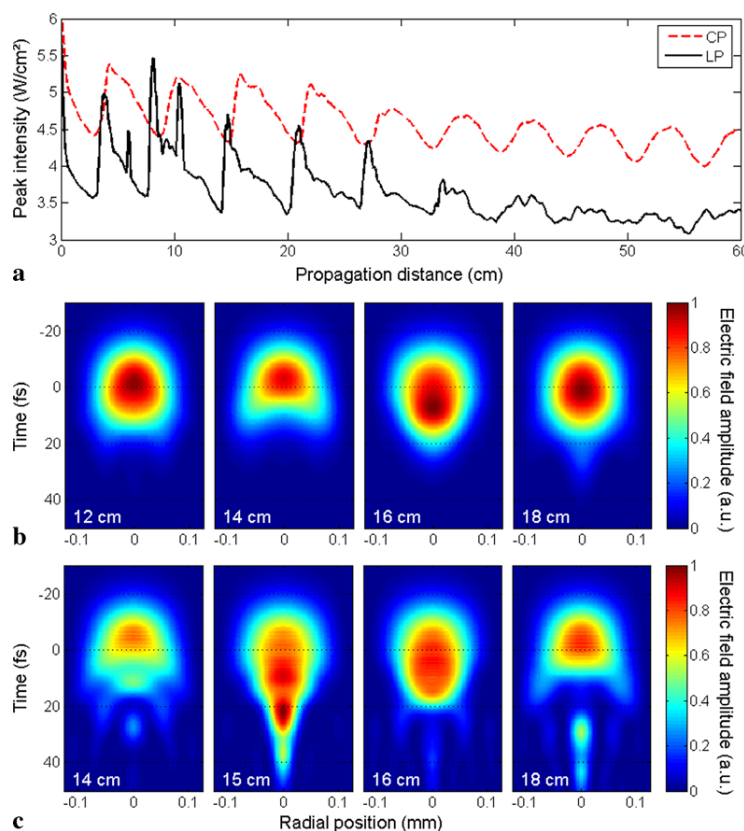
$$\begin{aligned} \partial_{\xi} A^{(m)} = & \left( -\frac{\alpha_0 + \alpha^{(m)}}{2} + i \hat{D}^{(m)} - \Delta\beta_1^{(m)} \partial_{\tau} \right) A^{(m)} \\ & + i \frac{\beta_0}{2n_0^2} e^{-i\Delta\beta_0^{(m)}\xi} \left( 1 + \frac{i}{\omega_0} \partial_{\tau} \right) \int_r B J_{0m} 2\pi r dr \end{aligned} \quad (7)$$

in the longitudinal coordinate  $\xi = z$  and  $\Delta\beta_1^{(m)} = \beta_1^{(m)} - \beta_1^{(1)}$ ,  $\alpha_0 = \text{Im}[k(\omega_0)]$  is the absorption of the gas,  $\alpha^{(m)}$  is the losses for each mode. The operator  $\hat{D}^{(m)}$  takes into account all higher-order dispersion and absorption terms for each mode. Losses due to ionization are calculated separately for the total field amplitude by

$$\partial_{\xi} |A| = \frac{\mu_0 c}{n_0 |A|} W I_p \rho_0, \quad (8)$$

where  $W$  is the ionization rate calculated from ADK ( $W = W(|A|)$  in CP and  $W = W(|A \cos \omega_0 t|)$  in LP),  $I_p$  is the ionization potential of the gas and  $\rho_0$  is the neutral gas density. The new total electric field  $A$  is then projected onto the different modes. In our model, we consider the influence of

**Fig. 2** (a) Simulated peak intensity variations for a 2.1 mJ, 25 fs, 800 nm pulse propagating in a 250  $\mu\text{m}$  diameter Ne-filled fiber (1 bar) for LP and CP; Modulus of the laser electric field over one energy cycle for (b) CP and (c) LP



plasma dispersion on the overall propagation to be negligible. Written in this form, the NEE clearly shows the nonlinear coupling of modes, via  $B(A)$ , as well as the intrinsically mismatched propagation characteristics of the different modes, via  $\Delta\beta_0^{(m)}$  and  $\Delta\beta_1^{(m)}$ .

For CP, the laser field can be projected onto a pair of out-of-phase, orthogonal linearly polarized fields with lower amplitude. In the model, this means a lower nonlinear refractive index,  $n_2^{(\text{CP})} = 2/3n_2^{(\text{LP})}$  and an ionization rate roughly one order of magnitude lower within the range of intensities considered in our study.

### 3 Polarization-dependent propagation dynamics

Figure 2(a) shows the beam intensity variations along the fiber simulated for different polarizations in the same conditions as in our original experiment [4] (numerical propagation including five spatial modes). The model explains the observed experimental trends: For CP, we observe regular oscillations corresponding to the Kerr-induced energy exchange between  $E_{01}$  and  $E_{02}$  modes [6, 7]. The oscillation period, given by  $2\pi/\Delta\beta_0^{(1)} \approx 6.25$  cm, is very close to that observed in experiment. For LP, the beam intensity oscillates faster and with larger amplitude, corresponding to a more complex energy exchange process. The propagation

dynamics can be understood by considering the combined effects of wave vector (phase) and group velocity (energy) mismatch between the two first fiber modes that are coupled via the competing spatial nonlinearities, Kerr-induced self-focusing (SF) and plasma defocussing (PD).

Figures 2(b) and (c) show the evolution of the electric field amplitude in space and time over one full cycle of energy exchange between  $E_{01}$  and  $E_{02}$ . For CP, at the beginning of a cycle (12 cm), SF couples energy into  $E_{02}$ . After some propagation (14 cm), the two modes interfere destructively because of their phase mismatch and the peak intensity is reduced. The phase mismatch then drives energy back to  $E_{01}$  (16 to 18 cm). For LP, at the beginning of a cycle (14 cm), SF transfers energy to  $E_{02}$ . SF being higher for LP, the increase in intensity (15 cm) leads to strong ionization followed by PD (16 cm). Inside the fiber, however, PD cannot simply spread energy radially. Here, energy is transferred to the high-order modes (2 to 5) with a  $\pi$  phase shift with respect to that transferred through SF. This  $\pi$  phase shift comes from the negative contribution of ionization in the nonlinear polarization (second term in (6)). This explains why the amplitude of  $E_{02}$  disappears at the rear of the pulse between 15 and 16 cm. At the end of the cycle (18 cm), the natural phase mismatch brings energy back to  $E_{01}$  while some energy trapped in the modes 2 to 5 by PD reappears lagging at the rear of the pulse due to the lower



group velocity. This dynamics explains why the compression fidelity drops during experiments for LP [4]: First, the higher Kerr nonlinearity transfers more energy to  $E_{02}$  that experiences higher propagation losses. Second, some energy transferred to high-order modes through ionization is lost forever because of the lower group velocity. Third, because of the higher intensity due to SF, the ionization losses are increased and the higher plasma nonlinearity lead to a cycling of energy between modes that will be more sensitive to input power fluctuations.

#### 4 Energy scaling

Energy scaling of pulse compression in a gas-filled hollow fiber requires the optimization of a large set of parameters: fiber core diameter and length, gas type and pressure, pulse energy and chirp. Our model allows us to optimize all these parameters toward a specific pulse shortening factor. In our study, we consider the particular case of compression from 25 fs down to 5 fs duration (FWHM) similar to experiments [4, 5]. Our criterion for quantifying the compression fidelity is the effective energy contained within the intensity envelope of the compressed pulse. For this, we define the output power loss,  $P_{\text{loss}} = 1 - \eta_{\text{propa}} * T_q$ , where  $\eta_{\text{propa}}$  is the throughput efficiency of the fiber and,  $T_q$ , is the compression quality calculated from the ratio of the energy contained in the pulse after compression over the total energy transmitted through the fiber. Pulse compression is simulated by applying the appropriate negative linear group delay to the spectrally broadened pulse out of the fiber (as typical linearly chirped mirrors would do in experiment). For a given input energy and gas type, we search for the combination of gas pressure and pulse chirp, which provides the spectral broadening necessary to compress the pulse down to  $5 \pm 0.05$  fs after group delay compensation. Figure 3 shows the output power losses optimized for different input pulse energies in Ne and He gas along with the gas pressure required (color map). The different simulation conditions are detailed in Table 1. In order to account for the polarization-dependent coupling efficiency observed in experiments [4], chiefly due to plasma formation at the fiber entrance, we consider that the fraction of pulse energy coupled into the fiber is 90% for CP and 85% for LP.

On Fig. 3, we first see that for optimal compression the gas pressure is reduced as the energy gets higher for conditions without chirp whereas it is increased when an optimal chirp is applied. What is striking is that the curves in Fig. 3 all have the same shape and present a minimum as a function of pulse energy ( $E_{\text{opt}}$  in Table 1). This optimum corresponds to the best compression fidelity in terms of efficiency and stability. Experimentally, we observe this enhancement of pulse fidelity [4, 5] by changing from LP to CP in the

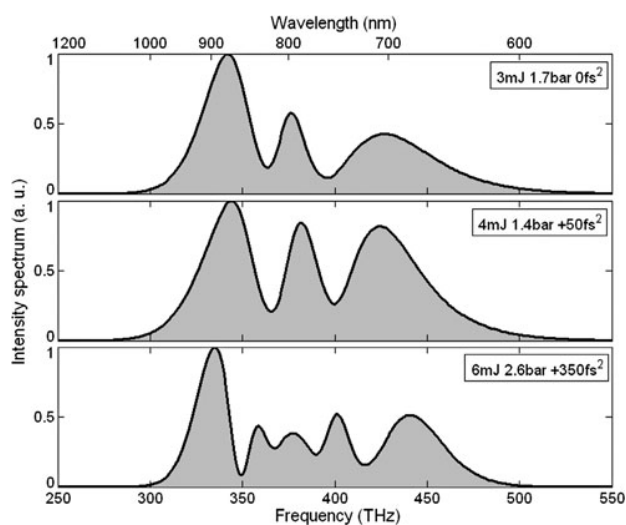
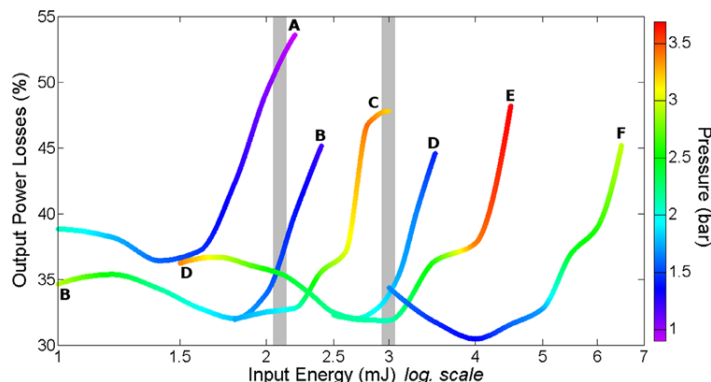
**Table 1** Simulation conditions for Fig. 3: length and diameter of the fiber, laser pulse polarization (Pol.) and chirp ( $\xi_{\text{opt}}$ ), optimal energy range ( $E_{\text{opt}}$ ). The indicated chirp ranges are the ones used in the optimal energy range

	$L$	$D$	Gas	Pol.	$\xi_{\text{opt}}$	$E_{\text{opt}}$
A	1 m	250 $\mu\text{m}$	Ne	LP	No	1–1.5 mJ
B	1 m	250 $\mu\text{m}$	Ne	CP	No	1.5–2 mJ
C	1 m	250 $\mu\text{m}$	Ne	CP	0.45–1.1	2–2.5 mJ
D	1 m	250 $\mu\text{m}$	He	CP	No	2.5–3 mJ
E	1 m	250 $\mu\text{m}$	He	CP	0.45–0.9	3–3.5 mJ
F	1.5 m	300 $\mu\text{m}$	He	CP	0–0.9	3.5–5 mJ

same gas (case A to B), by chirping the pulse and using the same gas (case B to C) or by chirping the pulse and using a gas with lower Kerr nonlinearity and higher  $I_p$  (case C to E) [5] (gray areas in Fig. 3). We can use our model to make predictions about the quality of hollow fiber operation at higher energies and discuss their experimental feasibility. In case E, using He, the rare gas with highest  $I_p$ , CP and standard hollow fiber dimensions (1 m length and 250  $\mu\text{m}$ ), optimum compression occurs around 3 mJ. Satisfactory operation should be expected up 4 mJ, where the  $P_{\text{loss}}$  are comparable to that for compression with CP in Ne at 2.1 mJ energy (case B) [12]. Operation of a standard hollow fiber beyond 4 mJ is experimentally feasible but the throughput efficiency of the fiber drops significantly as seen in [13] even if the pulse-to-pulse stability remains acceptable. For further scaling, we consider case F of compression in He with CP and chirped pulses using a 1.5 m fiber with 300  $\mu\text{m}$  core diameter. Here,  $P_{\text{loss}}$  are minimized at 4 mJ but are still comparable to that of the previously mentioned experimentally observed cases at energies up to 6 mJ. This indicates that minimal scaling of a standard hollow fiber device would be needed to produce compressed 5 fs pulses of more than 3 mJ energy for applications with acceptable power fluctuations and adequate compactness.

Operating outside the region of balance between the nonlinearities will nevertheless lead to lower pulse quality. This effect is illustrated in Fig. 4 showing the spectral broadening (in frequency) simulated for different energies about the optimum at 4 mJ in case F: If the energy is too low (3 mJ), the energy losses are kept relatively low but the higher gas pressure needed to achieve the necessary spectral broadening increases the effect of the Kerr nonlinearity. Here, self-steepening (faster propagation of the rear part of the pulse) leads to red-shifting and hence lower pulse fidelity. At the optimum (4 mJ), blue-shifting due to ionization compensates red-shifting due to self-steepening. The broadened spectra fill out and become more symmetric, which maximizes the amount of energy contained within the compressed pulse envelope. If the energy is too high (6 mJ), losses and instabilities increase with increased ionization

**Fig. 3** Output power losses versus pulse energy simulated in conditions A to F (see Table 1), the color map represents the gas pressure. The gray areas correspond to our experimental conditions (2.1 mJ [4] and 3 mJ [5])



**Fig. 4** Simulated optimal spectral broadening with CP in He for input pulses of energy 3, 4 and 6 mJ

even if ionization carries on compensating the effect of self-steepening on the pulse spectrum. Moreover, these spectra exhibit the typical shape associated with Kerr broadening of chirped pulses [14], indicating that the chirp of the pulses cannot be arbitrarily increased to accommodate higher energies as this would lead to highly modulated output spectra and hence lower compression quality. For case F, we choose only a small increase in core diameter from 250 to 300  $\mu\text{m}$ . This is because the frequency of energy cycling between  $E_{01}$  and  $E_{02}$  modes scales as the inverse square of the fiber radius, meaning that for a given fiber length, the number of cycles rapidly decreases with increasing core radius. With fewer cycles during propagation, energy will be trapped in  $E_{02}$  over longer distances and be therefore irremediably lost through higher modal losses. This energy loss can be

moderated by increasing the number of cycles using longer fibers but this would mean using a larger setup.

## 5 Conclusion

In conclusion, our simulations show that switching to CP can help configure a standard HCF device for highly efficient temporal compression sub-30 fs pulses with energies up to 6 mJ. Optimal scaling is possible in conditions where the contributions from both Kerr and plasma nonlinearities balance each other out during propagation. Efficient scaling beyond this energy level would, however, require a significant increase in device size.

## References

1. M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, *Appl. Phys. Lett.* **68**, 2793 (1996)
2. M. Ivanov, F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **427**, 817 (2003)
3. S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, K. Midorikawa, *Opt. Lett.* **35**, 1887 (2010)
4. X. Chen, A. Jullien, A. Malvache, L. Canova, A. Borot, A. Trisorio, C.G. Durfee, R. Lopez-Martens, *Opt. Lett.* **34**, 1588 (2009)
5. X. Chen, A. Malvache, A. Ricci, A. Jullien, R. Lopez-Martens, *Laser Phys.* **21**, 198 (2011)
6. D. Homoelle, A. Gaeta, *Opt. Lett.* **25**, 761 (2000)
7. N. Milosevic, G. Tempea, T. Brabec, *Opt. Lett.* **25**, 672 (2000)
8. M. Nurhuda, A. Suda, K. Midorikawa, M. Hatayama, K. Nagasaka, *J. Opt. Soc. Am. B, Opt. Phys.* **20**, 2002 (2003)
9. T. Brabec, F. Krausz, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 3282 (1997)
10. G. Tempea, T. Brabec, *Opt. Lett.* **23**, 762 (1998)
11. M.V. Ammosov, N.B. Delone, V.P. Krainov, *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191 (1986)
12. A. Anderson, G. Tempea, M. Hofer, T. Prikoszovits, Z. Cheng, T. Le, A. Assion, *Proc. SPIE* **7578**, 75781T (2010)
13. A. Anderson, F. Lücking, T. Prikoszovits, M. Hofer, Z. Cheng, C.C. Neacsu, M. Scharer, S. Rammler, P.St.J. Russel, G. Tempea, A. Assion, *Appl. Phys. B* **103**, 531 (2011)
14. G.P. Agrawal, *Nonlinear Fiber Optics* (Academic Press, San Diego, 1989)



# High-harmonic generation from plasma mirrors at kilohertz repetition rate

Antonin Borot,<sup>1,\*</sup> Arnaud Malvache,<sup>1</sup> Xiaowei Chen,<sup>1</sup> Denis Douillet,<sup>1</sup> Grégory Iaquaniello,<sup>1</sup> Thierry Lefrou,<sup>1</sup> Patrick Audebert,<sup>2</sup> Jean-Paul Geindre,<sup>2</sup> Gérard Mourou,<sup>3</sup> Fabien Quéré,<sup>4</sup> and Rodrigo Lopez-Martens<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée, Ecole Nationale Supérieure de Techniques Avancées-Paristech, Ecole Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau Cedex, France

<sup>2</sup>Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, Ecole Polytechnique, CNRS, 91128 Palaiseau Cedex, France

<sup>3</sup>Institut de la Lumière Extrême, Ecole Nationale Supérieure de Techniques Avancées-Paristech, Ecole Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau Cedex, France

<sup>4</sup>Service des Photons, Atomes et Molécules, Commissariat à l'Energie Atomique, DSM/IRAMIS, CEN Saclay, 91191 Gif sur Yvette, France

\*Corresponding author: antonin.borot@ensta-paristech.fr

Received March 3, 2011; accepted March 10, 2011;  
posted March 22, 2011 (Doc. ID 142325); published April 14, 2011

We report the first demonstration of high-harmonic generation from plasma mirrors at a 1 kHz repetition rate. Harmonics up to nineteenth order are generated at peak intensities close to  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> by focusing 1 mJ, 25 fs laser pulses down to 1.7  $\mu$ m FWHM spot size without any prior wavefront correction onto a moving target. We minimize target surface motion with respect to the laser focus using online interferometry to ensure reproducible interaction conditions for every shot and record data at 1 kHz with unprecedented statistics. This allows us to unambiguously identify coherent wake emission as the main generation mechanism. © 2011 Optical Society of America  
OCIS codes: 190.4160, 350.5400.

Femtosecond laser-driven high-harmonic generation (HHG) from plasma mirrors has been earmarked as the next generation, high-brightness attosecond light source [1]. The main experimental objective is to reach the highly efficient relativistic oscillating mirror (ROM) regime [2,3] that operates at laser intensities in excess of  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> for 800 nm laser light. Because of the high intensities required, most experiments to date have been carried out with terawatt-class peak-power laser systems delivering pulse energies from several tens of millijoules to several tens of Joules on a single shot basis [4–7]. However, Quéré *et al.* demonstrated another mechanism for HHG in solid density plasmas, coherent wake emission (CWE) [8], operating at intensities as low as a few  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. This makes it possible to observe HHG from plasma mirrors with driving pulse energies as low as a few millijoules [8,9] and opens the door to exploring HHG from plasma mirrors using high-repetition-rate lasers.

In this Letter, we present the first demonstration of HHG from plasma mirrors driven at a kilohertz repetition rate. The experiment was performed using the “Salle Noire” laser system at the Laboratoire d'Optique Appliquée, which routinely delivers 2.5 mJ, 25 fs pulses generated by a commercial 1 kHz Ti:sapphire chirped-pulse amplifier front end from Femtolasers GmbH (Femtopower Compact Pro CE Phase) followed by a homemade booster amplifier [10]. Before entering the interaction chamber, the laser beam is spatially filtered under vacuum through a 1-m-long hollow waveguide with a 250  $\mu$ m core diameter. Then, the remaining 1 mJ beam is focused onto a moving target by an  $f/1.7$ , silver-coated, 25° off-axis parabola down to a spot size of 1.7  $\mu$ m FWHM without wavefront correction. The maximum peak intensity on target is approximately  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. Under these conditions, the temporal contrast of the laser ( $>10^7:1$ ) is sufficient to avoid target preionization by amplified spon-

taneous emission or prepulses before the arrival of the pulse peak.

The experimental setup is shown in Fig. 1. The beam reflected off the target is then sent onto a 600 grooves/mm, gold coated, aberration-corrected, flat-field, grazing incidence spherical diffraction grating with a 10% to 30% efficiency in the 125 to 22 nm wavelength range. The diffracted harmonic spectrum is detected using a single stage multichannel plate (MCP) coupled to a phosphor screen imaged onto a high-dynamic-range (12 bit) CCD camera. The MCP and imaging system are mechanically translated along the spectrometer image plane to record full harmonic spectra. Precautions are taken to avoid any stray emission (laser light or particles) onto the MCP from the plasma-generated on target; in this way, no filter is needed. The combination of a very small point source emission ( $<2 \mu$ m) and the use of an aberration-corrected grating as well as a single stage MCP yields a measured resolution (using known plasma emission lines) better than 0.2 nm over the full spectral range.

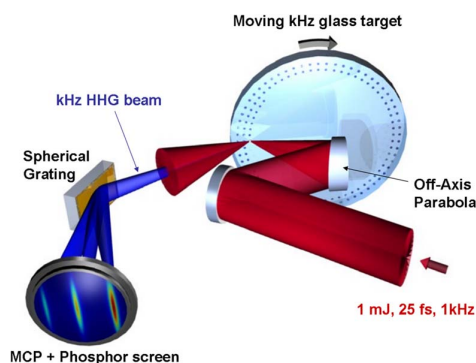


Fig. 1. (Color online) Experimental setup for plasma mirror HHG at 1 kHz.

Laser–solid target interaction at high repetition rate is far from trivial as the target surface needs to be quickly refreshed between each shot while maintaining identical interaction conditions. Doing so with millijoule energy pulses demands that the target surface be positioned with respect to the laser focus with a precision better than the Rayleigh length typically of the order of a few micrometers ( $8.2\ \mu\text{m}$  in our case). The use of a nonimaging spectrometer with a centimeter-size detector placed about a meter away from the HHG source also means keeping the angle between the target normal and the direction of laser propagation in the few hundred microrad range to avoid spreading of the signal in the vertical direction on the detector when averaging over multiple shots. Lastly, because of rapid consumption of the target at high repetition rates, large surface area targets moving at several centimeters per second must be used to accumulate a significantly large number of shots before changing the target. Our target consists of a 14 cm diameter circular BK7 glass substrate mounted on a rotating and translating holder. It is rotated over a full period after which it is translated and rotated again in order to draw a shot pattern concentric with the previous one. Repeated across the whole target surface and imposing a  $100\ \mu\text{m}$  distance between each shot to avoid debris from previous shots, this procedure allows us to achieve up to 1.5 million consecutive shots per target face at 1 kHz.

We use an online optical technique to probe and minimize target motion during experiments. We set up a Mach–Zehnder interferometer with a frequency-stabilized He–Ne laser (for better fringe stability and longer coherence length), where one arm is reflected off the moving target and another off a fixed mirror. The spatial fringe pattern generated by the recombination of the two arms of the interferometer is recorded online with a CCD camera. From the fringe displacement, we deduce the real-time changes in target surface position (i.e., the horizontal displacement) and angle of orientation (i.e., the two coordinates of the vector normal to the target surface). A set of two picomotor actuators are then used to minimize the precession of the target normal with respect to the rotation axis. Operational target stability measurements are presented in Fig. 2. Residual target surface motion is  $1.7\ \mu\text{m}$  peak-to-valley in position (310 nm standard deviation) and  $80\ \mu\text{rad}$  peak-to-valley in orientation ( $25\ \mu\text{rad}$  standard deviation), which, in this case, is amply sufficient for continuous operation at 1 kHz.

Figure 3(a) shows a typical harmonic spectrum averaged over 100 consecutive shots (corresponding to a

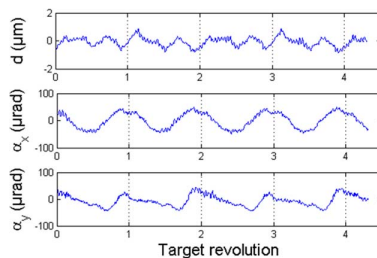


Fig. 2. (Color online) (a) Position, (b) tangential, and (c) azimuthal angle variations measured over four full target revolutions [11].

100 ms camera exposure time) at a peak intensity of  $8 \times 10^{17}\ \text{W}/\text{cm}^2$ . We observe narrow and well-contrasted peaks corresponding to harmonic orders 7 to 19. The observed lower amplitude of harmonic order 7 is due to the bottom edge of the MCP spectral response. Because our spectrometer is nonimaging, the spectrum shown is integrated over a central portion of the harmonic beam [Fig. 3(b)] spanning 10 mrad of the 20–30 mrad FWHM average divergence angle around harmonic 13 and thus does not take into account the respective divergences of the individual harmonics. To estimate the correct laser-to-harmonics conversion efficiency, each harmonic line is integrated angularly (vertical direction) and spectrally (horizontal direction) and their respective energies are then estimated by computing the “transfer functions” of each component of our spectrometer for each harmonic order: the efficiency of the grating, the quantum efficiency of the photon-to-electron conversion of the MCP, the MCP gain, the electron-to-photon conversion of the phosphor screen, the collection efficiency of the imaging system as well as the response of the CCD camera. We finally estimate the overall conversion efficiency for all harmonics from 9 to 17 to be higher than  $3 \times 10^{-6}$ . Estimated generation efficiencies per harmonic are presented in Fig. 3(c).

Several observations lead us to conclude that the harmonics observed are generated via the CWE mechanism rather than via the ROM mechanism. First, our peak intensity on target lies below the relativistic limit for 800 nm light, which corresponds to the onset of ROM. Second, the highest harmonic order observed (19) is very close to the maximum plasma frequency of fully ionized silica at the initial solid density, which indeed corresponds to the expected plasma conditions with our interaction parameters. This is consistent with CWE emission. Finally, to support this conclusion, we measured the

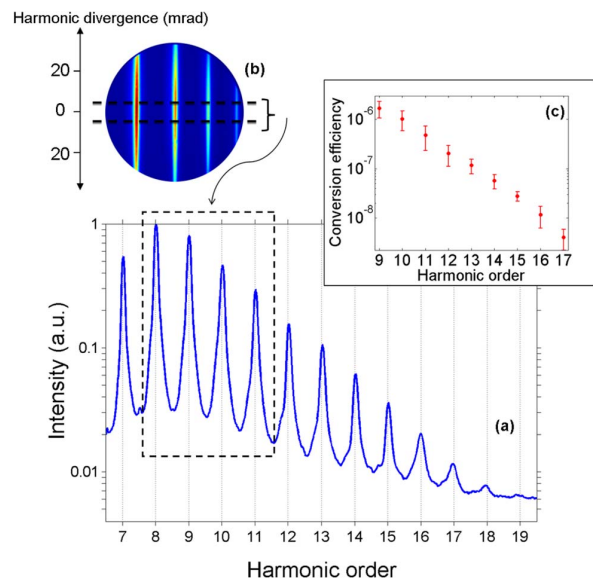


Fig. 3. (Color online) (a) Typical harmonic spectrum averaged over 100 shots and integrated over the (b) central part of the HHG beam. (c) Estimated conversion efficiency for harmonic 9 to 17.



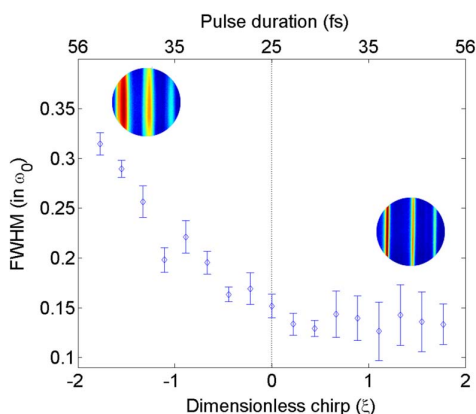


Fig. 4. (Color online) Evolution of spectral width of harmonic 8 with driving laser chirp ( $\omega_0$  is the central angular frequency of the laser).

dependence of the harmonic spectral widths on the chirp of the driving laser, which is characteristic of sublaser cycle dynamics of the CWE process [12]. This dependence manifests itself experimentally by either a broadening or a narrowing of the individual harmonic peaks for a respectively negative or positive input laser chirp. This behavior is exactly reproduced in our experiment, as illustrated in Fig. 4, which shows the measured change in spectral width for harmonic order 8 as a function of the dimensionless laser chirp ( $\xi$ ) and concomitant laser pulse duration  $\tau = \tau_0 \sqrt{1 + \xi^2}$ , where  $\tau_0$  is the Fourier transform-limited pulse duration.

In conclusion, we demonstrate kilohertz-driven HHG from plasma mirrors for the first time. High on-target intensities can be achieved using tightly focused millijoule energy pulses without deformable mirror wavefront correction simply by spatially filtering the laser beam through a hollow waveguide prior to focusing. CWE is clearly identified as the main mechanism responsible for HHG. By filling the hollow waveguide with a rare gas for spectral broadening and using chirped mirrors for temporal compression, our laser system can be modified to generate highly focusable millijoule energy few-cycle pulses featuring full carrier-envelope control [13].

This should allow us to guide the HHG process with sublaser cycle precision.

Financial support from the CNRC-CNRS 2007 program and the Agence Nationale pour la Recherche, through programs Chaire d'Excellence 2004, Blanc 2006 (ILAR) and Jeunes Chercheuses et Jeunes Chercheurs 2009 (UBICUIL), as well as the European Research Council (grant agreement 240013) are gratefully acknowledged.

#### References and Note

1. G. Tsakiris, K. Eidmann, J. M. ter Vehn, and F. Krausz, *New J. Phys.* **8** (2006).
2. R. Lichters, J. Meyer-Ter-Vehn, and A. Pukhov, *Phys. Plasmas* **3**, 3425 (1996).
3. S. V. Bulanov, N. Naumova, and F. Pegoraro, *Phys. Plasmas* **1**, 745 (1994).
4. A. Tarasevitch, K. Lobov, C. Wünsche, and D. von der Linde, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 103902 (2007).
5. C. Thauy, F. Quere, J.-P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Reau, P. d'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and P. Martin, *Nat. Phys.* **3**, 424 (2007).
6. B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakakis, S. Moustazis, R. Kodama, M. Tampo, C. Stoeckl, R. Clarke, H. Habara, D. Neely, S. Karsch, and P. Norreys, *Nat. Phys.* **2**, 456 (2006).
7. Y. Nomura, R. Horlein, P. Tzallas, B. Dromey, S. Rykovanov, Z. Major, J. Osterhoff, S. Karsch, L. Veisz, M. Zepf, D. Charalambidis, F. Krausz, and G. D. Tsakiris, *Nat. Phys.* **5**, 124 (2009).
8. F. Quere, C. Thauy, P. Monot, S. Dobosz, P. Martin, J.-P. Geindre, and P. Audebert, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 125004 (2006).
9. J. H. Easter, A. G. Mordovanakis, B. Hou, A. G. R. Thomas, J. A. Nees, G. Mourou, and K. Krushelnick, *Opt. Lett.* **35**, 3186 (2010).
10. L. Canova, X. Chen, A. Trisorio, A. Jullien, A. Assion, G. Tempea, N. Forget, T. Oksenhendler, and R. Lopez-Martens, *Opt. Lett.* **34**, 1333 (2009).
11. The double periodicity in position and orientation comes from the fact that the cylindrical ball bearings inside the rotation stage require two target revolutions to fully rotate themselves. We observe here ball-bearing defaults.
12. F. Quere, C. Thauy, J.-P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot, and P. Martin, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 095004 (2008).
13. X. Chen, A. Malvache, A. Ricci, A. Jullien, and R. Lopez-Martens, *Laser Phys.* **21**, 198 (2011).



# Attosecond control of collective electron motion in plasmas

Antonin Borot<sup>1†</sup>, Arnaud Malvache<sup>1★†</sup>, Xiaowei Chen<sup>1</sup>, Aurélie Jullien<sup>1</sup>, Jean-Paul Geindre<sup>2</sup>, Patrick Audebert<sup>2</sup>, Gérard Mourou<sup>3</sup>, Fabien Quéré<sup>4</sup> and Rodrigo Lopez-Martens<sup>1</sup>

**Today, light fields of controlled and measured waveform can be used to guide electron motion in atoms and molecules with attosecond precision. Here, we demonstrate attosecond control of collective electron motion in plasmas driven by extreme intensity ( $\approx 10^{18}$  W cm<sup>-2</sup>) light fields. Controlled few-cycle near-infrared waves are tightly focused at the interface between vacuum and a solid-density plasma, where they launch and guide subcycle motion of electrons from the plasma with characteristic energies in the multi-kiloelectronvolt range—two orders of magnitude more than has been achieved so far in atoms and molecules. The basic spectroscopy of the coherent extreme ultraviolet radiation emerging from the light–plasma interaction allows us to probe this collective motion of charge with sub-100 as resolution. This is an important step towards attosecond control of charge dynamics in laser-driven plasma experiments.**

**Q1** **1** Two major trends can at present be identified in the  
**2** interaction of ultrashort laser pulses with matter. On the  
**3** one hand, ultrahigh intensities provided by multi-terawatt  
**4** femtosecond lasers can be used to drive collective electron motion  
**5** in plasmas up to the 0.1–1 GeV energy range<sup>1</sup>, opening the  
**6** way to very compact laser-based particle accelerators for nuclear  
**7** and medical applications<sup>2</sup>. On the other hand, controlled few-  
**8** cycle light waves can be used at moderate intensities to drive  
**9** and probe the attosecond dynamics of few-electron motion in  
**10** atoms<sup>3–6</sup>, molecules<sup>7,8</sup> and condensed matter<sup>9,10</sup>—with typical  
**11** energies ranging from tens to a few hundred electronvolts<sup>11</sup>.

**12** Merging these two trends, that is, using tailored waveforms  
**13** of extreme intensity light to steer the collective motion of  
**14** high-energy plasma electrons, will open new perspectives for  
**15** imaging ultrafast charge dynamics during extreme intensity laser–  
**16** plasma interactions. First experiments have already highlighted  
**17** the need for waveform control when trying to reproducibly guide  
**18** attosecond electronic processes in plasmas with intense few-cycle  
**19** light fields<sup>12</sup>. For the first time, we use fully controlled few-cycle  
**20** near-infrared (NIR) light fields of extreme intensity ( $10^{18}$  W cm<sup>-2</sup>)  
**21** to reproducibly launch and probe collective electron motion at  
**22** the interface between vacuum and a solid-density plasma with  
**23** attosecond precision (Fig. 1a–b).

## **24** Light-driven plasma mirrors

**25** When an intense femtosecond laser pulse interacts with a solid  
**26** its rising edge strongly ionizes the surface atoms, creating a  
**27** layer of plasma with near-solid electronic density ( $\sim 10^{23}$  cm<sup>-3</sup>),  
**28** which becomes highly reflective—a so-called plasma mirror—for  
**29** radiation at wavelengths greater than a few tens of nanometres<sup>13–17</sup>.  
**30** During the interaction with the pulse, the plasma layer can only  
**31** expand by a small fraction of the optical laser wavelength,  $\lambda_L$ , which  
**32** leads to the formation of a very sharp interface with the vacuum  
**33** extending over a distance  $\ll \lambda_L$  (Fig. 1b), typically of the order of

a few tens of nanometres. At this steep plasma–vacuum interface,  
 the laser field behaves as in the usual case of optical reflection at  
 a metallic surface. The total electric field inside the plasma is zero  
 owing to screening by the dense conducting plasma.

On a macroscopic scale, the boundary conditions on the  
 oscillating electromagnetic field at the interface imply that the  
 component  $E_t$  of the laser electric field parallel to the surface  
 is continuous and therefore vanishes. In contrast, its component  
 $E_n$  normal to the surface can exhibit a discontinuity: it has an  
 oscillation amplitude that jumps from zero, in the conducting  
 medium, to a maximum of  $2E_i \sin\theta$ , where  $\theta$  is the incidence angle  
 of the laser with respect to the target normal. At light intensities  
 close to  $10^{18}$  W cm<sup>-2</sup>, the amplitude of the laser electric field normal  
 to the plasma–vacuum interface can thus exceed teravolts per metre  
 and therefore accelerate electrons from the plasma up to very high  
 kinetic energies on the timescale of a single optical cycle.

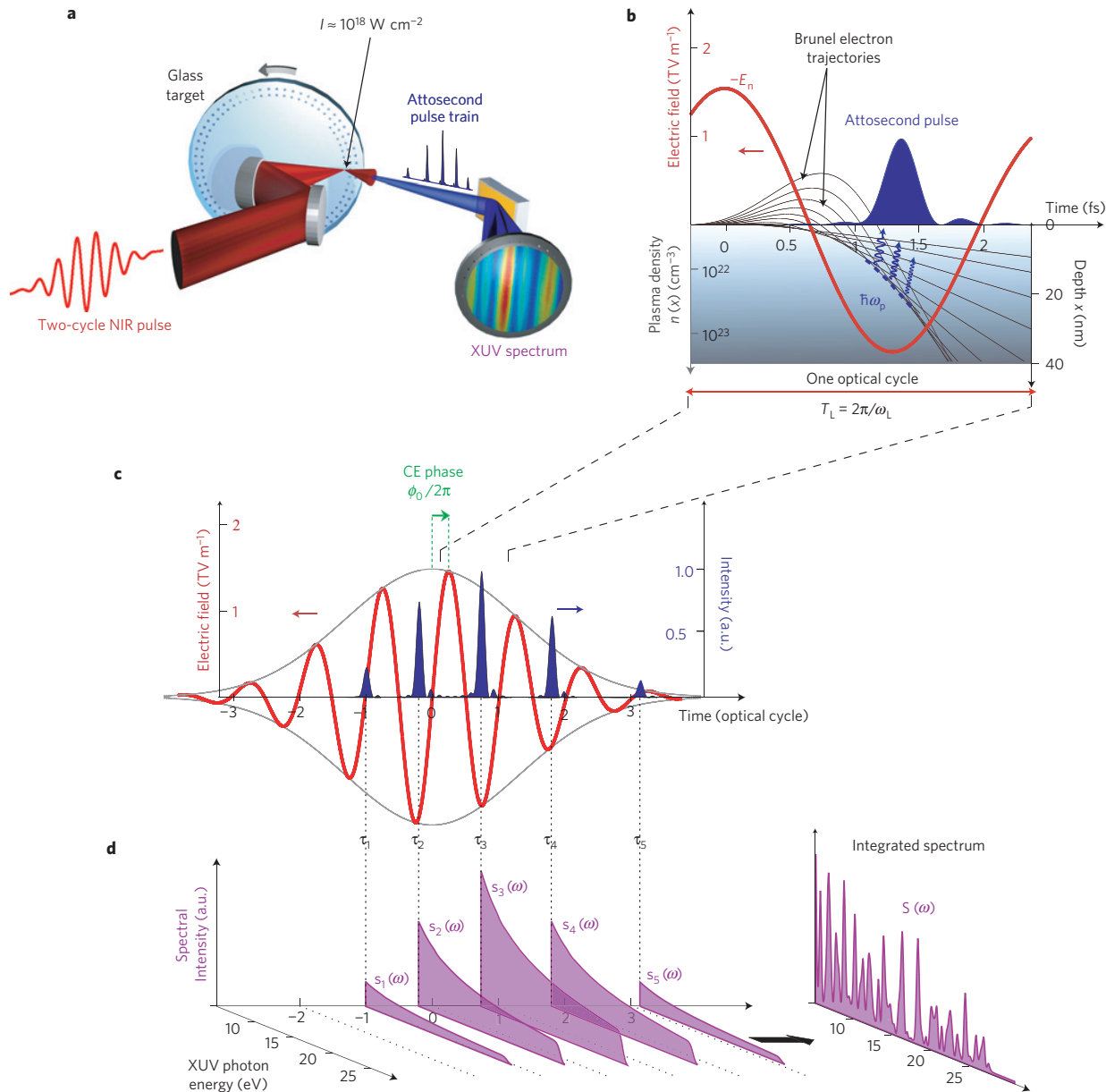
On a microscopic scale, there is of course no such field  
 discontinuity. Electrons at the plasma surface are periodically  
 dragged in and out of the target by the  $E_n$  component of the  
 oscillating laser field, whereas the much heavier ions of the plasma  
 are left behind. This creates a charge separation field on the  
 timescale of the laser cycle which screens  $E_n$  over a finite length.  
 For everyday light intensities, this screening length is very small,  
 typically on the Ångström scale, hence justifying the usual boundary  
 condition at conductor surfaces. In the intense laser field, however,  
 the excursion of surface electrons into the vacuum can reach  
 several tens of nanometres (Fig. 1b)—a significant fraction of  
 the laser wavelength—with kinetic energies of the order of the  
 ponderomotive energy  $U_p = e^2 E_n^2 / 4m\omega_L^2$  ( $e$  and  $m$  are electron  
 charge and mass, respectively,  $\omega_L$  is the laser angular frequency)  
 in the light field—typically several tens of kiloelectronvolts  
 (keV) for intensities in the range  $10^{17}$ – $10^{18}$  W cm<sup>-2</sup>. In our  
 experiment, we probe this large-amplitude collective motion of  
 charge with sub-100 as resolution. This we achieve by recording the

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-Paristech, Ecole Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau, France, <sup>2</sup>Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, Ecole Polytechnique, CNRS, 91128 Palaiseau, France, <sup>3</sup>Institut de la Lumière Extrême, ENSTA-Paristech, Ecole Polytechnique, CNRS, 91761 Palaiseau, France, <sup>4</sup>Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA, DSM/IRAMIS, CEN Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France. †These authors contributed equally to this work. \*e-mail: arnaud.malvache@ensta-paristech.fr.



## ARTICLES

NATURE PHYSICS DOI: 10.1038/NPHYS2269



**Figure 1 | Schematic and principle of the experiment.** **a**, Experimental set-up. Controlled few-cycle NIR waveforms are focused at a 1 kHz repetition rate onto a rotating glass surface<sup>26</sup> at a peak intensity around  $10^{18} \text{ W cm}^{-2}$ . The coherent XUV radiation emitted by the plasma created at the target surface is spectrally resolved. **b**, Sketch of the charge dynamics at the plasma surface within a single NIR cycle. The intense NIR electric field (red) first pulls electrons out of the plasma and then pushes them back into the dense plasma layer, where their different trajectories (black lines) cross to form a few-100 as charge density wave that triggers background plasma oscillations in its wake. These oscillations radiate in the form of attosecond XUV bursts (blue) with spectral components  $\omega_p$  dependent on the plasma density (bottom left axis). **c**, Sketch of the attosecond pulse train (APT, blue) generated by a two-cycle NIR waveform (red) with arbitrary CE phase  $\phi_0$ . The unevenly spaced emission times  $\tau_j$  show the influence of the waveform on the time structure of the APT. **d**, Build-up of the time-integrated spectrum. The purple areas  $s_j(\omega)$  show the spectra of the individual attosecond bursts for each laser cycle. The total measured spectrum  $S(\omega)$  results from the spectral interference of all the XUV bursts produced during the laser pulse.

1 laser waveform-dependent emission of extreme-ultraviolet (XUV)  
2 radiation triggered by the subcycle motion of the surface electrons  
3 within the solid plasma layer.

#### 4 Coherent wake emission

5 As shown in Fig. 1b, electrons at the plasma surface are pulled  
6 out into vacuum when, during each laser cycle, the force  $-eE_n$   
7 exerted by the laser electric field points towards the vacuum. Later

8 in the laser cycle, as  $E_n$  decreases in magnitude, some of the  
9 electrons involved in the screening are pushed back towards the  
10 dense plasma because the space-charge field they experience from  
11 other electrons exceeds the laser field  $E_n$ . Finally, when  $E_n$  changes  
12 sign, all the electrons are accelerated back towards the plasma layer.  
13 Once they pass the region of the plasma above critical density  $N_c$ ,  
14 where the laser radiation is screened by the high electronic density,  
15 they escape the grip of the laser field and travel field-free. For

800 nm radiation, this occurs at a depth  $x$  in the plasma, where the local density is  $n(x) > N_c = m \epsilon_0 \omega_L^2 / e^2 = 1.7 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  (Fig. 1b). During this process, electrons carry away the energy they acquired in the light field: this is the so-called Brunel absorption<sup>18,19</sup>. The combined effect of both the laser and space-charge fields is to make faster electrons return to the plasma surface at later times during the laser cycle. In the overdense region of the plasma, however, faster electrons can now freely catch up with slower moving electrons that returned earlier during the cycle: as a result, Brunel electrons pulled out of the plasma around the same time in the laser cycle eventually bunch together to form a local electron density peak of a few  $N_c$  inside the plasma<sup>20</sup>. Lower-energy electrons bunch earlier at lower electronic densities closer to the plasma surface and higher-energy electrons bunch later at higher electronic densities deeper inside the plasma layer. This electron density peak has a typical duration of the order of 100 as and travels across the plasma at typical velocities ranging from 0.1 to 0.3 times the speed of light for the laser intensities considered here<sup>20</sup>. In its wake, it pushes the background plasma electrons, which collectively oscillate at the local plasma frequency  $\omega_p(x) = \sqrt{n(x)e^2/m\epsilon_0}$ . In the steep plasma density gradient, these plasma oscillations, which are initially longitudinal electrostatic modes, can couple to transverse electromagnetic modes and thus radiate at the plasma frequency  $\omega_p(x)$  (ref. 21). This can be seen as the time-reverse of resonant absorption<sup>22</sup>, where laser radiation is partially converted into collective electron oscillations in a gradient of plasma density (both effects correspond to linear mode conversion mechanisms<sup>22,23</sup>). This emission, known as coherent wake emission (CWE; refs 24), consists of a sub-femtosecond burst of coherent radiation, superimposed on the laser light reflected at the plasma surface<sup>25</sup>, with a spectrum extending into the extreme ultraviolet (XUV) up to  $\omega_{\text{max}} = \sqrt{N_{\text{solid}}/N_c} \omega_L$ , emitted from the region of solid plasma density  $N_{\text{solid}}$  (Fig. 1b). Experimentally, the measured CWE spectrum results from the interference in time of successive light bursts triggered by the attosecond bunching of returning Brunel electrons inside the plasma with each laser cycle (Fig. 1c–d). The total emission spectrum can therefore be expressed as:

$$S(\omega) = \left| \sum_{j=1}^N s_j(\omega) e^{i\omega\tau_j} \right|^2 \quad (1)$$

where  $s_j(\omega)$  is the complex spectrum emitted in the  $j$ th laser cycle, corresponding to an attosecond pulse centred at time  $\tau_j$ . When driven by a laser pulse containing many wave cycles, CWE consists of a long train of attosecond pulses—one per laser cycle—and a measured XUV spectrum made up of odd and even harmonics of the laser frequency  $\omega_L$ . In our experiment, we measure the CWE spectrum generated by a laser waveform containing only a few controlled oscillations of NIR light. We exploit the fact that the waveform-driven collective dynamics of Brunel electrons are directly mapped onto the time structure of the emitted attosecond pulse train (APT; Fig. 1b–c) and that even subtle changes in the subcycle charge dynamics induced by different NIR waveforms can lead to dramatic changes in the measured XUV spectrum (Fig. 1d)<sup>12</sup>.

### Waveform-dependent emission spectra

In the experiment, we use  $p$ -polarized 5 fs (full-width at half-maximum), 0.8- $\mu\text{m}$  wavelength laser pulses focused at oblique incidence down to a 1.7  $\mu\text{m}$  spot size onto a moving optically polished glass surface<sup>26</sup> at peak intensities close to  $10^{18} \text{ W cm}^{-2}$  (further details in Supplementary Information). The waveform of the laser electric field can be written in complex form as  $E_L(t) = E_0 a_L(t, \alpha) e^{-i((\omega_L + \alpha t / 2\tau_0^2)t + \phi_0)}$ , where  $E_0$  is the peak electric field strength,  $a_L(t, \alpha)$  is the normalized amplitude envelope,  $\alpha$  the linear frequency chirp of the pulse,  $\tau_0$  the Fourier transform

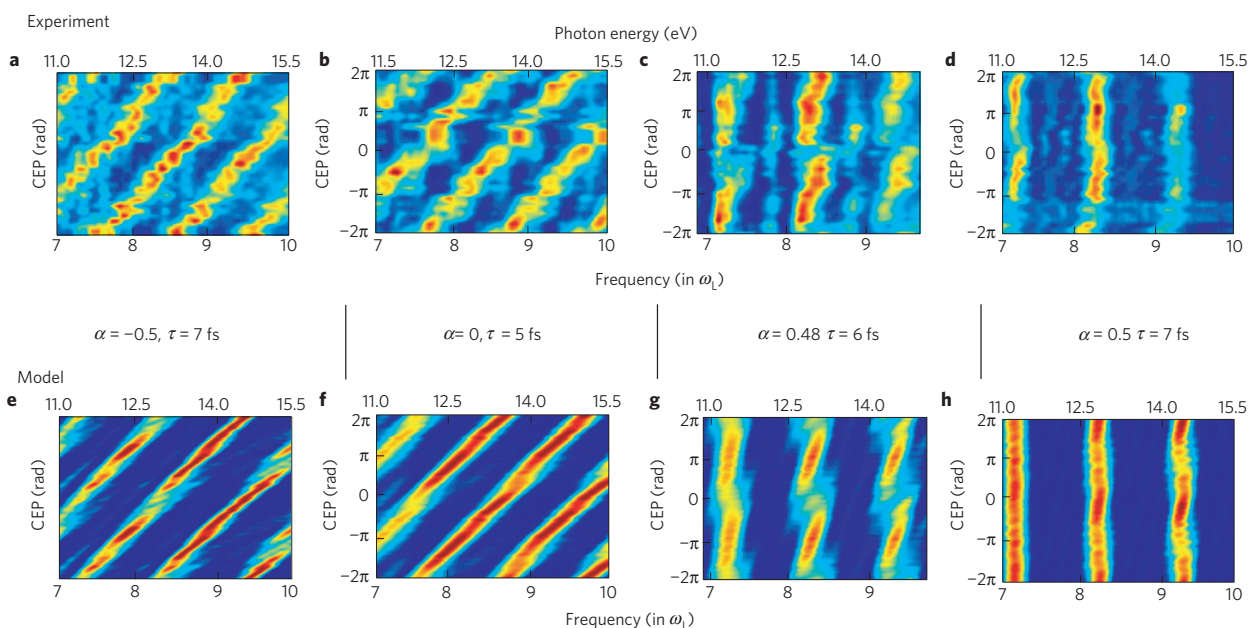
limited pulse duration,  $\phi_0$  the carrier-envelope (CE) phase (defined on Fig. 1c) and  $\omega_L$  the carrier wave frequency (the variation of the pulse temporal width  $\tau$  with  $\alpha$  is detailed in the Supplementary Information). The CE phase drift of the laser system can be stabilized down to 200 mrad (root mean squared), corresponding to a sub-100 as jitter of the few-cycle NIR waveform with respect to the pulse envelope.

Figure 2b shows the measured CWE spectra in the  $7\omega_L$ – $10\omega_L$  spectral range as a function of the relative CE phase of Fourier transform limited 5 fs laser pulses, that is, with zero frequency chirp. Peaks separated by  $\omega_L$  are clearly observed, as one would expect in experiments using a many-cycle laser waveform. However, as the CE phase of the pulse changes, the positions of these harmonic-like peaks no longer correspond to integer multiples  $n\omega_L$  of the laser frequency, but instead linearly drift with a slope of  $\approx \omega_L / 2\pi$ . Figure 2a–d shows the same measurements performed for different frequency chirps, both positive and negative. These results show that the effect of the CE phase on the CWE spectrum also depends on the frequency chirp of the NIR waveform. For  $\alpha < 0$ , the peaks are slightly narrower and their position still drifts linearly with relative CE phase, whereas just changing the sign of the chirp ( $\alpha > 0$ ) almost suppresses the effect of the CE phase on the measured position of the peaks in the spectrum. The reproducible changes in the plasma emission spectrum induced by only  $\pi/10$  changes in the CE phase of the driving laser field show that we can control the collective plasma electron dynamics underlying CWE with sub-200 as precision.

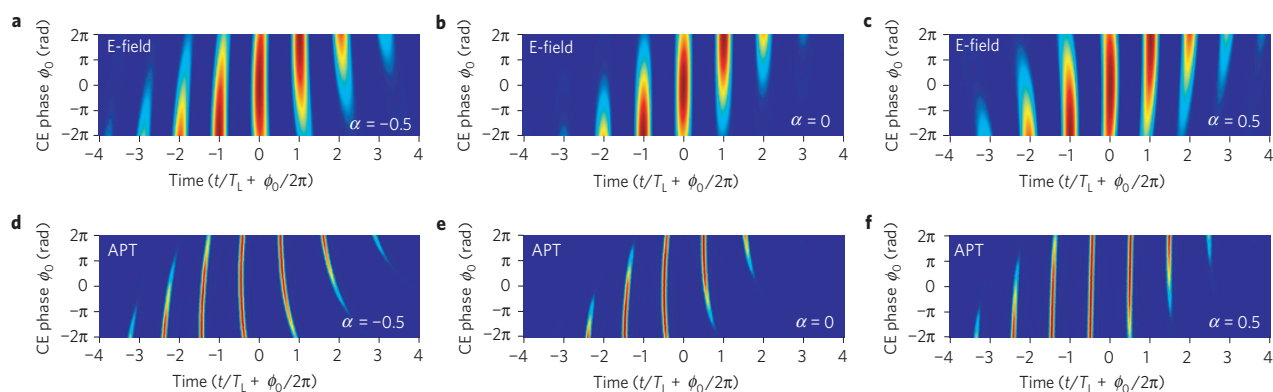
### Collective attosecond electron dynamics

The spectroscopy of CWE provides information on the collective attosecond dynamics of Brunel electrons. To demonstrate this, we developed a simple model, inspired by the one developed in ref. 18 and similar to the one described in ref. 12, which gives direct insight into the measurements of Fig. 2. This model consists in solving the relativistic equation of motion for a collection of electrons, assuming one-dimensional motion along the target normal. In this equation, the only forces taken into account, when the electrons are in vacuum, are the ones exerted by the laser electric field  $E_L$  normal to the target and by the space-charge field induced by the collective plasma response to the laser. Once in the plasma, electrons are considered to experience no force at all. From the obtained set of electron trajectories, shown in Fig. 1b, we determine the crossing times of electron trajectories inside the plasma layer for each laser cycle (further details in Supplementary Information). This collection of subcycle crossing times in turn dictates the relative timing of pulses in the APT emitted by the background plasma oscillations. Because in CWE, the shape of the attosecond pulse is almost independent of the amplitude of the light wave, the time structure of the APT is almost exclusively determined by the relative timing of XUV emission from one wave cycle to the next (Fig. 1c), and this model allows us to reconstruct the temporal structure of CWE with attosecond resolution.

Figure 3d–f show the temporal intensity profile of the APTs predicted by our model as a function of the CE phase  $\phi_0$  of the three different NIR waveforms (Fig. 3a–c). The intensity of the APTs are plotted as a function of  $t/T_L + \phi_0/2\pi$  (horizontal axis): a vertical line in this plot therefore corresponds to an event that drifts linearly in time with changing CE phase. Figure 3 shows that the main effect of the CE phase is to shift the temporal position of APT relative to the pulse envelope. This is because the subcycle motion of the electrons is temporally locked to the NIR waveform and a change of  $\Delta\phi$  in the CE phase thus delays the electron trajectory crossing times inside the plasma by  $\approx \Delta\phi/\omega_L$ , which is directly mapped onto the APT structure. More generally, by controlling the NIR waveform, we can control the electron crossing time and thereby the timing of emission of XUV radiation by the plasma with sub-100 as precision.



**Figure 2 | Waveform-dependent plasma emission spectra.** Experimental (top row) and modelled (bottom row) CWE spectra obtained for different few-cycle NIR light waveforms (CE phase and linear frequency chirp) with a central wavelength of 0.8  $\mu\text{m}$ . The experimental set-up allows us to record XUV photon energies ranging from 11 to 15.5 eV, corresponding to harmonics 7–10 of the central frequency  $\omega_L$  of the NIR laser. The relative CE phase range of the experimental scans is calibrated against the absolute CE phase values used in the model, assuming an exponentially decaying plasma density gradient of  $\lambda_L/100$  at the target surface and a peak intensity for a non-chirped pulse of  $4 \times 10^{17} \text{ W cm}^{-2}$ .

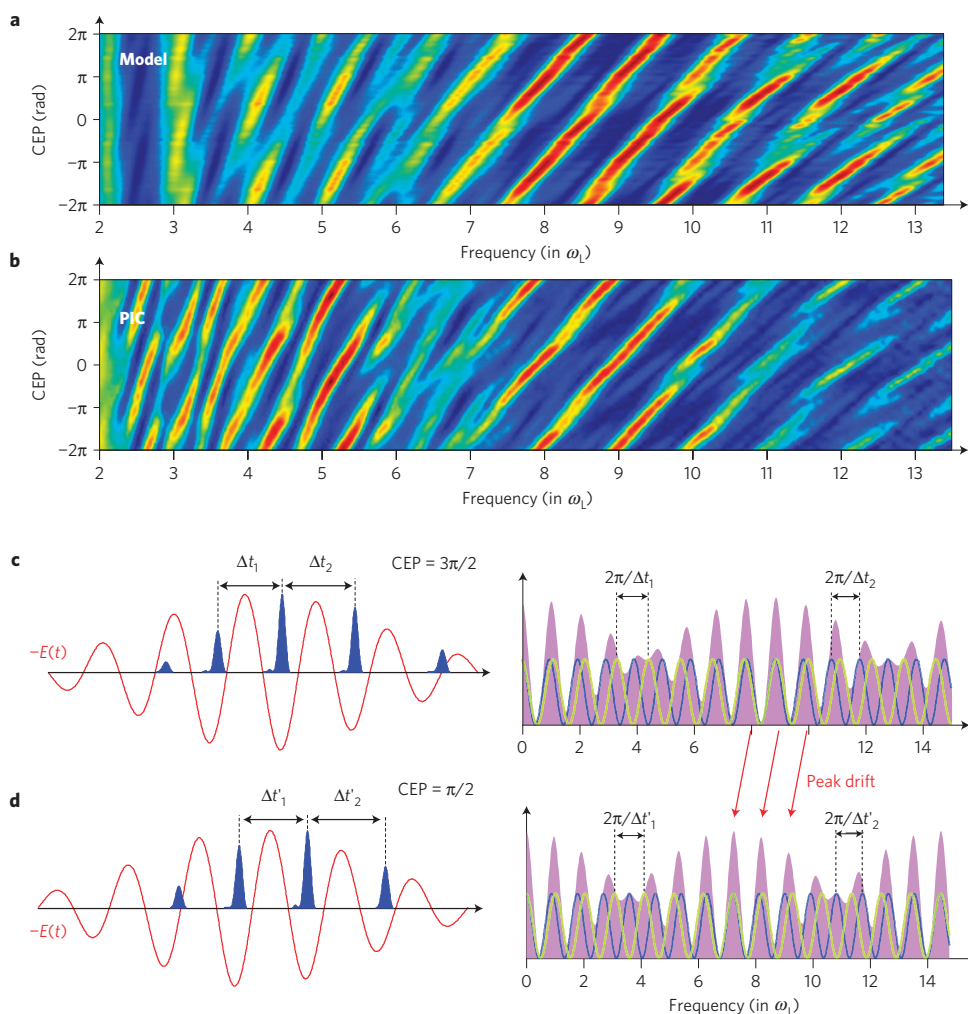


**Figure 3 | Attosecond metrology of the plasma emission.** Attosecond pulse emission time for controlled two-cycle (5 fs Fourier limit) NIR waveforms with different frequency chirps. **a–c** NIR Waveforms corresponding to different frequency chirps, where for clarity only the positive values of the NIR wave oscillations are shown. **d–f** Corresponding temporal intensity profiles of the generated APT. All the data are plotted as a function of  $\tilde{t} = t/T_L + \phi_0/2\pi$ , where  $\phi_0$  is the CE phase of the light field with respect to the few-cycle pulse envelope. This representation shows how the whole attosecond pulse train shifts in time as the CE phase is swept. A negative chirp (**a** and **d**) increases the naturally uneven spacing between the attosecond pulses (subcycle emission time) in the APT that is observed for zero chirp (**b** and **e**). In contrast, a positive chirp (**c** and **f**) leads to an evenly spaced APT with a weak CE phase dependence.

### 1 Moiré patterns

2 Measuring the sensitivity of CWE spectra (Fig. 2) to the waveform  
3 of the driving light provides a measure of how accurately we can  
4 control the ultrafast charge dynamics unfolding in the plasma. The  
5 sensitivity of the harmonic generation process to the CE phase  
6 results from the combination of two effects. First, owing to the  
7 global temporal drift of the APT it induces, a change in the CE  
8 phase changes the intensities at which each individual attosecond  
9 XUV burst in the APT is generated. Second, a change in intensity  
10 modifies the subcycle emission time of each XUV burst because  
11 it changes the time it takes for the returning Brunel electrons to  
12 reach the dense part of the plasma where they cross and trigger

CWE (refs 27,28). For a few-cycle pulse envelope, the combination  
of these two effects leads to a dependence of the APT time structure  
on the CE phase of the pulse. This effect is clearly visible in Fig. 3d–e,  
where the temporal spacings between individual attosecond pulses  
(that is, the distances between vertical stripes) vary with the CE  
phase of the driving waveform. Using our model, we can calculate  
the whole CWE spectrum (from  $2\omega_L$  to  $\omega_p^{\text{max}}$ ), that is, the Fourier  
transform of the APT of Fig. 3e, as a function of CE phase. The  
outcome of this calculation, shown in Fig. 4a, is compared to  
the results of a much more comprehensive simulation, carried  
out using a two-dimensional (2D) particle-in-cell (PIC) code  
(further details in Supplementary Information), in Fig. 4b, showing



**Figure 4 | Moiré patterns in plasma emission spectra.** **a, b**, CWE spectra as a function of the CE phase of a two-cycle (5 fs Fourier limit) NIR pulse in the same conditions as described in Fig. 2b. The 1D model is shown in **a** and the 2D PIC simulation in **b**. The spectra consist of a region with well-contrasted harmonic-like peaks surrounded by intervals with lower contrast but still a periodic CE phase dependence. **c, d**, Corresponding moiré patterns produced by the spectral interference between the unevenly spaced attosecond pulses for two different CE phase values (left). The moiré pattern resulting from the interference between the three most intense pulses in the APT (right). The beating of the sinusoidal waves with slightly different frequencies, resulting from the different timing between adjacent attosecond pulses, leads to a blurring of the overall signal except when waves happen to be in phase. Moreover, as the CE phase is decreased from **c** to **d**, the spacing between the attosecond pulses increases, thereby shifting the constructive interference pattern to lower harmonic frequencies and giving rise to the linear drift observed in the experiment.

1 a remarkable agreement. In both cases, spectra exhibit a central  
 2 portion consisting of well-resolved harmonic-like peaks whose  
 3 position in frequency drifts linearly with CE phase. This central  
 4 portion corresponds to our experimental spectral detection window  
 5 and, here, our model perfectly matches the experiment (Fig. 2b).

6 Another feature revealed by our model is that outside the  
 7 experimental detection window, at both ends of the spectrum, the  
 8 harmonic-like structure of CWE becomes blurred but still exhibits  
 9 the same periodic dependence on the CE phase of the laser pulse.  
 10 This global structure corresponds to a moiré pattern, a well-known  
 11 interference effect ubiquitously observed in nature<sup>29</sup>. Indeed, a pair  
 12 of attosecond pulses spaced by  $\Delta t_i = \tau_{i+1} - \tau_i = T_L + \delta t_i$  (with  $T_L$   
 13 the laser period) in the APT produces a sinusoidal interference  
 14 pattern in the frequency domain of periodicity  $\Delta\omega_i = 2\pi/\Delta t_i$ .  
 15 The total spectrum originates from the superposition of such  
 16 interference patterns between all the different pairs of attosecond  
 17 pulses generated during the light–plasma interaction. It is only

when these sinusoidal patterns are in phase that well-contrasted  
 harmonic-like peaks occur in the spectrum. In our case, considering  
 the simple spectral interference pattern created by the beating of  
 the three most intense XUV light bursts in the APT for different  
 values of CE phase (Fig. 4c–d) is enough to qualitatively understand  
 the complex features of the whole CWE spectra of Fig. 4, as well as  
 the drift of the harmonic-like peaks with the CE phase, observed  
 experimentally for a Fourier transform limited laser waveform  
 (5 fs laser pulse). This phenomenon also explains why the well-  
 contrasted peaks in the spectrum cannot be strictly interpreted as  
 harmonics of the driving laser frequency.

In the harmonic spectra, the positions of the harmonic-like  
 peaks corresponding to contrast revival in the moiré pattern,  
 which depend on the temporal spacings between different pairs  
 of attosecond pulses in the APT, are therefore directly determined  
 by the waveform of the laser light. This is how our experiment  
 probes the temporal drift of the APT as a function of CE phase.



## ARTICLES

## NATURE PHYSICS DOI: 10.1038/NPHYS2269

1 Experiments carried out for different frequency chirps support this  
 2 interpretation. For a non-chirped laser waveform, the time spacing  
 3 between neighbouring attosecond pulses naturally increases with  
 4 time during the laser pulse, regardless of the value of the CE phase  
 5 (Fig. 3e). This effect can be compensated by using a positively  
 6 chirped laser waveform, for which the linearly decreasing light  
 7 period from one wave cycle to the next balances the increasing delay  
 8 between successively generated attosecond pulses induced by the  
 9 temporal variation of the pulse envelope. Under these conditions,  
 10 an almost perfectly periodic train of evenly spaced attosecond pulses  
 11 can be generated (Fig. 3f). Here, as the CE phase changes, the  
 12 position of the whole APT still drifts with respect to the pulse  
 13 envelope as before, but this drift no longer leads to changes in its  
 14 temporal structure. This is why, for a positively chirped waveform,  
 15 the experimental CWE spectrum exhibits very little dependence  
 16 on the CE phase (Fig. 2g and h). In contrast, a negative frequency  
 17 chirp in time throughout the pulse will increase the uneven time  
 18 spacing between pulses in the APT (Fig. 3d). The dependence of  
 19 the CWE spectrum on the CE phase is therefore similar to the case  
 20 of a non-chirped laser waveform, except that the harmonic-like  
 21 peaks become narrower owing to the greater number of attosecond  
 22 pulses interfering in time during the longer frequency-chirped  
 23 pulse envelope (Fig. 2a).

### Controlling laser-driven plasmas

24 In summary, our experiment is the first demonstration of  
 25 attosecond control of collective electronic processes in laser-driven  
 26 plasmas and with it the successful extension of attosecond optical  
 27 techniques to plasma physics. Simply by spectrally resolving the  
 28 coherent XUV radiation emitted by a solid illuminated by an intense  
 29 few-cycle laser field of controlled waveform, we get an accurate  
 30 temporal picture of the field-driven motion of charge through the  
 31 thin layer of plasma formed at the surface. These experiments open  
 32 the door to direct attosecond probing of the collective electronic  
 33 response of a plasma to ultra-intense laser fields. As few-cycle laser  
 34 pulses with peak powers orders of magnitude higher will become  
 35 accessible in the near future, our work is the first step towards  
 36 controlling attosecond electronic processes in plasmas at relativistic  
 37 light intensities, which is the key to developing ultrafast plasma-  
 38 based particle accelerators and X-ray sources for applications.

39  
 40 Received 27 July 2011; accepted 16 February 2012;  
 41 published online XX Month XXXX

### References

- 42 1. Esarey, E., Schroeder, C. B. & Leemans, W. P. Physics of laser-driven  
 43 plasma-based electron accelerators. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1229–1285 (2009).
- 44 2. Malka, V. *et al.* Principles and applications of compact laser-plasma  
 45 accelerators. *Nature Phys.* **4**, 447–453 (2008).
- 46 3. Baltuska, A. *et al.* Attosecond control of electronic processes by intense light  
 47 fields. *Nature* **421**, 611–615 (2003).
- 48 4. Uiberacker, M. *et al.* Attosecond real-time observation of electron tunnelling  
 49 in atoms. *Nature* **446**, 627–632 (2007).
- 50 5. Eckle, P. *et al.* Attosecond ionization and tunneling delay time measurements  
 51 in helium. *Science* **322**, 1525–1529 (2008).
- 52 6. Goulielmakis, E. *et al.* Real-time observation of valence electron motion.  
 53 *Nature* **466**, 739–743 (2010).
- 54 7. Kling, M. F. *et al.* Control of electron localization in molecular dissociation.  
 55 *Science* **312**, 246–248 (2006).
- 56

- 57 8. Sansone, G. *et al.* Electron localization following attosecond molecular  
 58 photoionization. *Nature* **465**, 763–766 (2010).
- 59 9. Cavalieri, A. L. *et al.* Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*  
 60 **449**, 1029–1032 (2007).
- 61 10. Schultze, M. *et al.* Delay in photoemission. *Science* **328**, 1658–1662 (2010).
- 62 11. Ivanov, M. & Krausz, F. Attosecond physics. *Rev. Mod. Phys.* **81**,  
 63 163–234 (2009).
- 64 12. Heissler, P. *et al.* Toward single attosecond pulses using harmonic emission  
 65 from solid-density plasmas. *Appl. Phys. B* **101**, 511–521 (2010).
- 66 13. Rolland, C. & Corkum, P. B. Generation of 130-fsec midinfrared pulses.  
 67 *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 1625–1629 (1986).
- 68 14. Kapteyn, H. C., Murnane, M. M., Szoke, A. & Falcone, R. W. Prepulse energy  
 69 suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma  
 70 shuttering. *Opt. Lett.* **16**, 490–492 (1991).
- 71 15. Doumy, G. *et al.* Complete characterization of a plasma mirror for the  
 72 production of high-contrast ultraintense laser pulses. *Phys. Rev. E* **69**,  
 73 026402 (2004).
- 74 16. Dromey, B., Kar, S., Zepf, M. & Foster, P. The plasma mirror—A subpicosecond  
 75 optical switch for ultrahigh power lasers. *Rev. Sci. Instrum.* **75**, 645–649 (2004).
- 76 17. Thaury, C. *et al.* Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nature Phys.* **3**,  
 77 424–429 (2007).
- 78 18. Brunel, F. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.* **59**,  
 79 52–55 (1987).
- 80 19. Bonnaud, G., Gibbon, P., Kindel, J. & Williams, E. Laser interaction with a  
 81 sharp-edged overdense plasma. *Laser Part. Beams* **9**, 339–354 (1991).
- 82 20. Thaury, C. & Quéré, F. High-order harmonic and attosecond pulse generation  
 83 on plasma mirrors: Basic mechanisms. *J. Phys. B* **43**, 21300 (2010).
- 84 21. Krueer, W. L. *The Physics of Laser Plasma Interaction* (Westview Press, 2003).
- 85 22. Hinkel-Lipsker, D. E., Fried, B. D. & Morales, G. J. Analytic expressions for  
 86 mode conversion in a plasma with a linear density profile. *Phys. Fluids B* **4**,  
 87 559–575 (1992).
- 88 23. Sheng, Z.-M., Mima, K., Zhang, J. & Sanuki, H. Emission of electromagnetic  
 89 pulses from laser wakefields through linear mode conversion. *Phys. Rev. Lett.*  
 90 **94**, 095003 (2005).
- 91 24. Quéré, F. *et al.* Coherent wake emission of high-order harmonics from  
 92 overdense plasmas. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 125004 (2006).
- 93 25. Nomura, Y. *et al.* Attosecond phase locking of harmonics emitted from  
 94 laser-produced plasmas. *Nature Phys.* **5**, 124–128 (2009).
- 95 26. Borot, A. *et al.* High-harmonic generation from plasma mirrors at kilohertz  
 96 repetition rate. *Opt. Lett.* **36**, 1461–1463 (2011).
- 97 27. Quéré, F. *et al.* Phase properties of laser high-order harmonics generated on  
 98 plasma mirrors. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 095004 (2008).
- 99 28. Thaury, C. *et al.* Coherent dynamics of plasma mirrors. *Nature Phys.* **4**,  
 100 631–634 (2008).
- 101 29. Amidror, I *The Theory of the Moiré Phenomenon* 2nd edn, Vol. I (Springer,  
 102 2009).

### Acknowledgements

103 The authors would like to thank M. Ivanov for fruitful discussions, E. Lefebvre for  
 104 providing the PIC code CALDER and R. Nuter for modifying this code to include the CE  
 105 phase parameter. The 2D PIC calculations were performed using the computing  
 106 resources of the ‘Grand Equipement National de Calcul Intensif’ (GENCI), under project  
 107 number 2011-056057, and those of the ‘Centre de Calcul Recherche et Technologie’  
 108 (CCRT). Financial support was received from the Agence Nationale pour la Recherche  
 109 through programs Chaire d’Excellence 2004 and ANR-09-JC-JC-0063 (UBICUIL). A.B.  
 110 acknowledges financial support from the RTRA—Triangle de la Physique and F.Q. from  
 111 the European Research Council (ERC grant agreement no 240013).  
 112

### Author contributions

113 The experimental setup was designed by A.B. and R.L.-M., the experiments were carried  
 114 out by A.B. and A.M. The theoretical work was done by A.M. and F.Q. **Q3** 115

### Additional information

116 The authors declare no competing financial interests. Supplementary information  
 117 accompanies this paper on [www.nature.com/naturephysics](http://www.nature.com/naturephysics). Reprints and permissions  
 118 information is available online at [www.nature.com/reprints](http://www.nature.com/reprints). Correspondence and  
 119 requests for materials should be addressed to A.M.  
 120

## Probing the density profile of a plasma mirror by coherent wake emission spectroscopy

A. Malvache<sup>1</sup>, A. Borot<sup>1</sup>, F. Quéré<sup>2</sup>, and R. Lopez-Martens<sup>1</sup>

<sup>1</sup>*Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-ParisTech, CNRS,  
Ecole Polytechnique, UMR 7639, 91761 Palaiseau, France*

<sup>2</sup>*CEA, IRAMIS, Service des Photons Atomes et Molécules, 91191 Gif/Yvette, France*

Precise knowledge of the spatial extent of a surface plasma layer is essential for controlling high-intensity laser-solid interactions. We present here a novel method for determining the density gradient length of a plasma mirror based on spectral analysis of coherent wake emission (CWE) by the laser-driven plasma. By confronting a semi-analytical model of the interaction with measurements, we extract the length of the plasma density profile encoded in the spectral shape of the emission. We also use this method to estimate the expansion velocity of the plasma into vacuum.

When an intense, high-contrast, femtosecond laser pulse interacts with an optical surface, it forms a reflecting layer of supercritical plasma extending into vacuum by only a few tens of nanometers. The collective motion of plasma electrons driven by the incident electromagnetic wave can be considered as an oscillating mirror or plasma mirror (PM). The phase modulation of the reflected light introduced by the PM gives rise to high-order harmonic frequencies of the laser, which are associated with intense attosecond pulses in the XUV or X-ray spectral domains [1].

High-harmonic generation (HHG) from PMs constitutes a powerful probe of the interaction dynamics between the overdense plasma and the intense laser field: it can be used to probe large magnetic fields generated during high-intensity laser-plasma interactions, to gather information on the sub-laser cycle dynamics of plasma electrons [2, 3] or to diagnose the effect of laser radiation pressure on the plasma density profile [4].

In this Letter, we show how the spectral features of PM harmonics can be exploited to accurately determine the spatial extension of electronic density at the plasma-vacuum interface (henceforth density gradient length or DGL). This parameter has a major influence on the laser-plasma interaction, particularly on the efficiency of the HHG process. Yet, it remains extremely difficult to calculate numerically using plasma simulation codes as it not only depends on the complex ionization dynamics of the target surface atoms but also on the temporal pulse intensity profile over a large dynamic range.

A leading method for measuring the DGL of a plasma is frequency domain interferometry [5] that requires the use of a pair of synchronized probe pulses and becomes challenging at ultra-high laser intensities. In this paper, we describe a single driving beam approach that is easier to implement than the more involved interferometric approach. The key idea here is to exploit the strong influence of the plasma density gradient on the harmonic spectral properties. We show that quantitative information about the DGL encoded in the harmonic spectrum can be extracted by confronting parametric measurements against a simple one-dimensional model of the

HHG process. This method provides an indirect yet sensitive measurement of the electronic density ramp  $\delta$  at the plasma vacuum interface, which we assume to be exponential, such that the density can be expressed as  $N(x) = \exp(-x/\delta)$ ,  $x$  being the spatial coordinate along the target normal.

In our experiments, the harmonic signal is generated through Coherent Wake Emission (CWE), a mechanism that dominates at moderate laser intensities  $a_0 = 0.01 - 1$  and has been observed experimentally up to  $a_0 \approx 5$ , where  $a_0^2 = I\lambda^2/I_0$ ,  $I$  and  $\lambda$  are, respectively, the laser intensity and wavelength, and  $I_0 = 1.37 \times 10^{18} \text{W.cm}^{-2}.\mu\text{m}^2$ . In this intensity regime, the leading edge of the laser pulse ionizes the target surface, creating a plasma that starts expanding towards vacuum. CWE occurs during the main part of the laser pulse, precisely within the plasma density gradient: the associated harmonic signal is therefore a natural probe of this gradient [4, 6–8].

CWE is based on the excitation of plasma waves inside the density gradient by laser-driven electron bunches, also called Brunel effect [9]. Within each laser field cycle, electrons at the plasma surface are accelerated out into vacuum and then back into the plasma layer, where they form an attosecond bunch due to collective electron trajectory crossings [10]. High-frequency plasma waves are impulsively excited in the wake of this bunching of Brunel electrons [9]. In the inhomogeneous part of the plasma formed by the plasma gradient, these waves subsequently emit an attosecond XUV burst through linear mode conversion [11]. The broad XUV spectrum of these attosecond pulses is made up by the emission of different frequencies  $\omega_p(x)$  at different depths  $x$  inside the plasma gradient, such that the local plasma frequency  $\omega_p(x) = \sqrt{N(x)e^2/m\epsilon_0}$ . Over the course of many laser cycles, this process leads to the emission of an attosecond pulse train (APT).

The structure of the APT carries cycle-averaged information about the plasma density profile. The time of attosecond pulse emission within each laser cycle is determined by the time Brunel electrons travel both in vacuum and inside the plasma (Fig. 1(a)). This time decreases

with increasing field amplitude (Fig. 1(a)) due to the higher velocities of Brunel electrons: attosecond pulses generated around the maximum of the laser pulse are emitted earlier within the laser cycle than those emitted at lower intensities at the leading and trailing edges of the pulse (see supplementary material). The time-varying intensity envelope of the laser pulse therefore leads to the emission of an unevenly spaced APT (Fig. 1(c)). The spacing of the APT also depends on the plasma density gradient: for softer plasma gradients, returning Brunel electrons must travel shorter distances inside the plasma before triggering CWE, which reduces the difference in delay of emission from one cycle to the next ( $\tau_2 < \tau_1$  in Fig. 1(a-b) and see supplementary material).

Deviations from perfect periodicity of the APT are rather straightforward to estimate experimentally. Indeed, an uneven spacing of the pulses in the train leads to broader, chirped harmonics (Fig. 1(d)) because the central part of the APT (generated around the maximum of the laser pulse envelope) effectively beats at the laser frequency leading to a signal at  $n\omega_L$  in the harmonic spectrum, while the head and tail of the APT beat at respectively higher and lower harmonic frequencies,  $n(\omega_L - \epsilon)$  and  $n(\omega_L + \epsilon)$ . This spectral broadening effect increases with harmonic order (Fig. 1(d)) and gets more pronounced for larger deviations from perfect periodicity of the APT, as is the case for softer plasma gradients.

Figure 1(e) displays the experimentally measured spectral widths of CWE harmonics as a function of harmonic order. The widths clearly increase with harmonic order  $n$  as expected from the previous qualitative discussion. The experiment is performed using the "Salle Noire" laser system at Laboratoire d'Optique Appliquée, which delivers 30 fs, 2.5 mJ pulses at 800 nm with 1 kHz repetition rate [12]. CWE harmonics are generated by focusing the laser beam at a maximum intensity of  $a_0 = 0.2$  on a moving disc of optical grade fused silica, which continuously refreshes the interaction surface between laser shots [13]. The harmonic signal is dispersed by a 600 grooves/mm spherical grating onto a micro-channel plate detector coupled to a fast phosphor screen. The spectral resolution is measured to be better than  $0.02\omega_0$ , and therefore sufficient for precisely determining the individual harmonic spectral widths. Each spectrum is integrated over 100 consecutive shots.

The measurement of Fig. 1(e) can in principle be used to determine the pulse spacing inside the APT and from it the value of  $\delta$ . To do this, we developed a one dimensional semi-analytical model which determines the trajectories of Brunel electrons at the plasma-vacuum interface as a function of the different interaction parameters. The excellent agreement between model predictions and more rigorous Particle-In-cell simulations has already been established in [3] for few-cycle pulses and is demonstrated for longer pulses in supplementary material. As explained by Brunel [9], at the plasma surface,

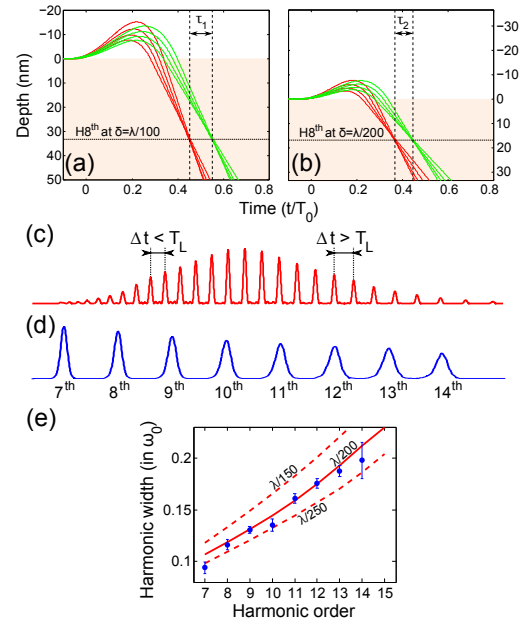


FIG. 1. (a-b) Modeled Brunel electron trajectories crossing at a given depth (corresponding to  $\omega_p = 8\omega_L$ ) in the plasma for  $a_0 = 0.4$  and (a)  $\delta = \lambda/100$  and (b)  $\delta = \lambda/200$ . The red and green lines are the trajectories of the electrons that cross at the chosen depth  $\delta$ , generated respectively at the maximum and at the periphery of the laser pulse envelope where the laser field amplitude is halved. The time origin corresponds to the local maximum of the laser field in the laser cycle. For shorter gradient of plasma, the electrons that reach a given density layer are pulled out later in the optical cycle, this explains the smaller excursion of the electrons in vacuum in (b) compared to (a). (c) typical CWE attosecond pulse train and (d) its corresponding spectrum from  $7\omega_L$  to  $14\omega_L$ . (e) Harmonic spectral width as a function of harmonic order for  $a_0 = 0.2$  from experiment (blue circles) and model (red lines) for different plasma density gradients.

electrons are driven by both the laser field and the electrostatic field of the electrons already in vacuum. Assuming no overcoming between electrons in vacuum, the electrostatic field for a given electron is constant in time and opposite to that of the laser at the time when the electron leaves the plasma surface. We can then calculate the electron trajectories in vacuum. As the electrostatic field only exists in vacuum and the laser field is strongly screened inside the plasma, once back in the plasma, the electrons keep their return velocity and propagate linearly. By simulating a collection of electrons pulled out at different times in the laser field, we obtain a distribution of collective trajectories. If we assume that the trajectory crossing time at a given depth  $x$  corresponds to the emission time at the corresponding plasma frequency  $\omega_p(x)$  (there is an emission delay between the electron crossing and the actual emission but its variation with interaction parameters is small compared to

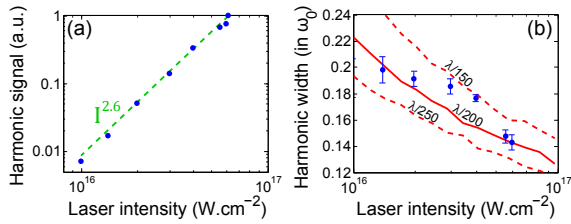


FIG. 2. (a) Intensity of the  $8^{th}$  harmonic signal (blue circles) for laser intensities ranging from  $10^{16}$  to  $10^{17}$   $W.cm^{-2}$  with a power law fit (green dashed line). (b) Harmonic width as a function of laser intensity from experiment (blue circles) and model (red lines) for different plasma gradient lengths.

the crossing time variation), we can calculate the emitted spectrum by summing the contributions from each consecutive laser cycle  $n$ :

$$E(\omega) = \sum_n a_n A(\omega) e^{i\omega\tau_n(\omega)} \quad (1)$$

where the amplitude  $a_n$  of the emission from the  $n^{th}$  cycle varies as a power  $b$  of the laser pulse intensity ( $a_n = e^{-bn^2/2\tau^2}$ ,  $\tau$  is the half-width duration at  $1/e$  of the laser pulse intensity envelope),  $A(\omega)$  is the spectral amplitude of individual attosecond pulses (which can be arbitrarily chosen as it does not affect the individual harmonic widths) and  $\tau_n(\omega)$  is the emission time of the frequency  $\omega$  generated by the  $n^{th}$  optical cycle. This model provides theoretical harmonic spectra in which the individual harmonic spectral widths exhibit a clear dependence not only on the DGL but also on the laser field amplitude  $E_0$  and its temporal profile  $E(t)$ . They also depend on the nonlinearity parameter  $b$ , since it determines the overall duration of the APT.

In our experiment, the pulse temporal profile  $E(t)$  is accurately measured using SHG FROG and this information, together with an accurate measurement of pulse energy and spatial beam profile at focus, is used to determine  $E_0$ . To measure the nonlinearity parameter  $b$ , we performed a parametric measurement of the CWE signal as a function of the laser intensity  $I$ , using a half-wave plate and polarizer to vary the incident pulse energy. The measured variation of the  $8^{th}$  harmonic intensity is plotted on Fig. 2 yielding a  $I^{2.6}$  power law. Assuming that the time-integrated nonlinearity measured in this way corresponds to the instantaneous nonlinearity for each single optical cycle (i.e. that the nonlinearity remains constant throughout the duration of the pulse) implies that  $b = 2.6$ .

Once these different parameters are experimentally determined, we adjust the DGL  $\delta$  in the model to fit the experimental variation of harmonic widths from Fig. 1(e). A very good agreement is obtained for a DGL between  $\lambda/150$  and  $\lambda/250$ , with a best fit for  $\delta = \lambda/200$ . This cor-

responds to the time- and space-averaged plasma density ramp around the spatiotemporal peak of the laser pulse. We also measured the intensity dependence of the individual harmonic spectral widths (Fig.2(b)). We observe that the spectral width of the  $8^{th}$  harmonic decreases with increasing laser peak intensity, as expected from the higher velocities of Brunel electrons for larger field amplitudes (Fig.1(a-b)), which tend to reduce the difference in emission time between different attosecond pulses in the APT. Quite remarkably, this experimental curve can also be fitted with our model using the same value of the DGL found earlier. We therefore manage to fit the dependence of the harmonic spectral widths on two independent physical variables using only one adjustable parameter in our model. Due to stronger sensitivity of high frequencies to APT timing, this indirect measurement of the PDR is all the more accurate as the considered harmonic orders are high.

This second result also shows that the DGL does not vary significantly with the laser peak intensity. This is consistent with the fact that in our experiment, the plasma is most likely created by the so-called coherent pedestal of the femtosecond pulse ( $> 10^7 : 1$  contrast ratio), a few tens of  $fs$  before the pulse peak, leading to the extremely short DGL we measure.

Finally, we performed a parametric study of the harmonic width with respect to the frequency chirp of the driving pulse (Fig. 3). As observed and analyzed in [7], we measure a narrowing of the harmonic width in the case of positive chirp, down to a minimum where the laser chirp compensates the intrinsic harmonic chirp, and a broadening for negative chirp. Using our model with the parameters previously determined, we quantitatively reproduce this behavior (Fig. 3 (d)). We observe here that, as opposed to previous measurements, the dependence on laser chirp barely depends on the DGL. This is because the laser chirp has a much stronger effect than the DGL on the temporal structure of the APT. Such measurements are thus of little use to estimate the DGL but they do confirm the validity of our conceptual approach for extracting the information encoded in the harmonic spectral widths.

Our technique can be considered as a pump-probe experiment: first the plasma is created at the rising edge of the laser pulse and expands towards vacuum. Then, the DGL is probed by the CWE around the peak of the laser pulse. An obvious extension of this idea consists in using a first pulse to trigger plasma formation and a second pulse to induce CWE and probe the plasma expansion in real time. This assumes that the effect of the probe pulse on this expansion can be neglected.

Experimentally, the pump pulse is generated by picking off half the initial laser pulse energy with a beam splitter and sending the beam through a motorized delay line before loosely focusing it onto the target using a low numerical aperture lens ( $f/10$ ). The pump beam focal spot



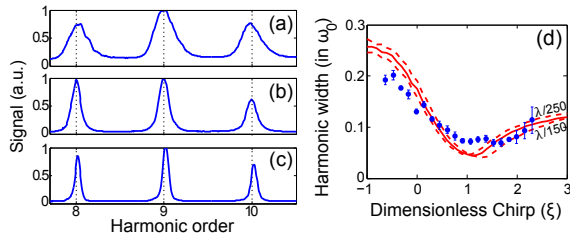


FIG. 3. Chirp dependence of experimental harmonic signal (a)  $\xi = -1$ , (b)  $\xi = 0$ , (c)  $\xi = 1$ . (d)  $8^{th}$  harmonic spectral width as a function of laser chirp from experiment (blue) and model (red) for different plasma gradient lengths:  $\delta = \lambda/200$  (solid line),  $\delta = \lambda/150$  and  $\delta = \lambda/250$  (dashed lines).  $\xi$  is the normalized quadratic spectral phase:  $\xi\tau^2 = (\partial^2\phi_\omega/\partial\omega^2)_{\omega_0}$  where  $\phi_\omega$  is the laser spectral phase.

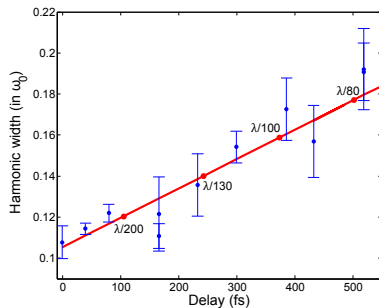


FIG. 4.  $8^{th}$  harmonic spectral width variation with respect to pump-probe delay, experimental results (blue) using a pre-pulse at  $10^{15} W.cm^{-2}$  and a  $30 fs$  probe at  $9 \times 10^{16} W.cm^{-2}$  ( $a_0 = 0.2$ ). These results are fitted by the model (red lines) using the CWE non-linearity  $b = 2.6$  and a linear expansion of the plasma with  $v_{exp} = 15 nm/ps$ .

size was thus four times larger than that of the probe beam inducing CWE, which is focused onto the expanding plasma under the same conditions as before. The pump pulse peak intensity is estimated at  $10^{15} W.cm^{-2}$ . We then measure the width of the  $8^{th}$  harmonic as a function of pump-probe delay (Fig. 4). The harmonic width increases with increasing delay, which is consistent with a higher DGL due to the expansion of the plasma after the arrival of the pump pulse. We use our model to determine the DGL corresponding to the measured harmonic widths, which are displayed in Fig. 4. The nonlinearity

parameter  $b$  is assumed to be independent of  $\delta$  and is kept constant. From the evolution of  $\delta$  with increasing pump-probe delay, we evaluate the expansion velocity  $v_{exp}$  of the plasma at around  $15 nm/ps$ , consistent with previous measurements using interferometric techniques [14].

In conclusion, we demonstrate the first quantitative measurement of the density gradient length of a laser-driven plasma mirror using coherent wake emission spectroscopy. This approach relies on simple fitting of experimental data with the results of a semi-analytical model of the emission process. This technique is complementary to more sophisticated measurement methods such as time-resolved interferometry. Although it provides less detailed information, further extensions of this approach are possible. In particular, a spatial resolution across the focal spot can be obtained by establishing one-to-one mapping between the position at focus and the propagation direction of the coherent plasma emission, for instance by placing the target slightly out of focus in order to generate harmonics with a diverging laser beam. Accessing the plasma dynamics at times shorter than the duration of the laser pulse will require more sophisticated measurements techniques that can access the attosecond temporal structure of the plasma emission.

This work was performed using HPC resources from GENCI- CCRT/CINES (Grant 2011-056057). Financial support from the Agence Nationale pour la Recherche (grant ANR-09-JCJC-0063 and Chaire d'Excellence 2004) is gratefully acknowledged.

- 
- [1] G. Tsakiris *et al*, New J. of Phys. **8**, 19 (2006).
  - [2] C. Thaury *et al*, Nat. Phys. **4**, 631 (2008).
  - [3] A. Borot *et al*, Nat. Phys., accepted for publication (2012).
  - [4] B. Dromey *et al*, Phys. Rev. Lett. **102**, 225002 (2009).
  - [5] J-P. Geindre *et al*, Opt. Lett. **19**, 1997 (1994).
  - [6] A. Tarasevitch *et al*, Phys. Rev. Lett. **98**, 103902 (2007).
  - [7] F. Quéré *et al*, Phys. Rev. Lett. **100**, 095004 (2008).
  - [8] C. Thaury and F. Quéré, J. Phys. B **43**, 213001 (2010).
  - [9] F. Brunel, Phys. Rev. Lett. **59**, 52 (1987).
  - [10] F. Quéré *et al*, Phys. Rev. Lett. **96**, 125004 (2006).
  - [11] Z-M. Sheng *et al*, Phys. Rev. Lett. **94**, 095003 (2005).
  - [12] L. Canova *et al*, Opt. Lett. **34**, 1333 (2009).
  - [13] A. Borot *et al*, Opt. Lett. **36**, 1461 (2011).
  - [14] C. Quiox *et al*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **65**, 455 (2000).

## Probing the density profile of a plasma mirror by coherent wake emission spectroscopy — Supplementary material —

A. Malvache<sup>1</sup>, A. Borot<sup>1</sup>, F. Quéré<sup>2</sup>, and R. Lopez-Martens<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA-ParisTech, CNRS,  
Ecole Polytechnique, UMR 7639, 91761 Palaiseau, France

<sup>2</sup>CEA, IRAMIS, Service des Photons Atomes et Molécules, 91191 Gif/Yvette, France

In this paper, we exploit the fact that the emitted attosecond pulse train exhibits a deviation from the perfect periodicity of the laser field oscillation [1]. The semi-analytical model we develop calculates the emission delay of each attosecond pulse. The deviation can be quantified by plotting these emission delays with respect to the generating optical cycle. Fig. 1 shows two typical emission time curves of CWE attosecond pulse train (for different plasma scale lengths) exhibiting two different deviations from perfect beating (which would be a flat curve). Each curve has the typical U-shape of CWE, due to the time-varying envelope of the laser pulse [1].

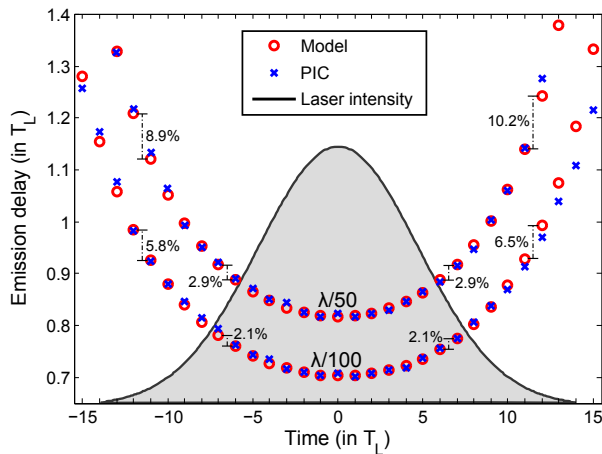


FIG. 1. Emission delay between the first zero of the generating optical cycle and the actual CWE pulse with respect to optical cycle number. The laser intensity is represented in gray. Comparison of 2D PIC simulation (blue cross) and 1D model (red circle) for two different plasma length scales ( $\lambda/50$  and  $\lambda/100$ ). Some emission delay differences are indicated in percent of optical period  $T_L$ . The laser parameters are Fourier limited  $30 fs$  pulses with intensity  $a_0 = 0.4$ , the emission delay is calculated on the frequency  $8\omega_L$ .

We first use this figure to compare the model predictions with two-dimensional PIC simulations that are much more comprehensive calculations of the laser-

plasma interaction. The results in terms of emission time are quantitatively similar, especially for times where the laser pulse amplitude is above the tenth of its maximum (where most of the CWE occurs). This result validate this model for the calculation of emission time. We performed the PIC simulation using the CALDER code in two dimensions. The laser is p-polarized and focused onto the target at an oblique incidence of  $45^\circ$ . The target is a dense plasma with an exponentially decaying density gradient, an initial electronic temperature of  $0.5 keV$  and the position of the ions is fixed. The simulation box size is  $19 \times 2.4\lambda_L^2$ , the time step is  $2 \times 10^{-3}T_L$ , the grid size  $2.4 \times 10^{-3}\lambda_L$  and we use 100 particles per cell.

We now compare the two U-shaped curves obtained from two different plasma length scales. In a first-order analysis, the two curves are separated in time by an average emission delay difference 11.4% of  $T_L$ , which has no influence on the harmonic spectrum. In a second-order analysis, we observe that the spacing between two consecutive pulses is bigger for a longer PLS (some delay differences are indicating on Fig. 1, this difference is higher for pulses at the peripheral part of the APT. More generally, the steepness of the U-curves (in other words its slope) depends on gradient length. These slope changes, even subtle, lead to consequent effects on the CWE spectrum structure as observe in Fig. 1, particularly concerning the harmonic spectral width: the slope of the U-shaped curve determines the spectral width of each harmonic. Finally, in a third-order analysis, the U-shaped curves are asymmetrical due to the envelope variation during each optical cycle: for 'negative' optical cycles, the envelope is increasing, for 'positive' optical cycles, the envelope is decreasing. This leads to an asymmetric broadening of the harmonics, larger towards low frequencies.

These emission time curves confirm that the deviation from perfect periodicity, resulting from the generation process, is directly related to the plasma length scale  $\delta$ . A shorter gradient at identical laser intensity flattens the emission time curve.

[1] F. Quéré *et al*, Phys. Rev. Lett. **100**, 095004 (2008).