

Modélisation 1D de la génération d'harmoniques en géométrie longue focale

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un phénomène qui présente à la fois des aspects microscopiques et macroscopiques. La création de rayonnement harmonique par interaction dipolaire entre le gaz rare cible et le laser excitateur se fait à l'échelle atomique et des modèles quantiques expliquent ce processus tout en permettant de prédire l'amplitude et la phase de la polarisation créée.

Une fois émis par les atomes, le rayonnement harmonique devra se propager en milieu gazeux et une bonne efficacité de génération sera obtenue quand les dipôles seront en phase les uns avec les autres et pourront interférer constructivement pour engendrer le champ total. De nombreux effets peuvent influencer le déphasage, comme la géométrie du faisceau laser infrarouge, l'ionisation induite lors de son passage dans le milieu gazeux (qui est la contrepartie de la génération d'harmonique elle-même) et enfin la phase intrinsèque du dipôle atomique. L'optimisation simultanée de toutes ces contraintes a pour but d'obtenir un bon accord de phase.

Le dernier point important de l'interaction entre le rayonnement XUV et le gaz qui le génère est la réabsorption possible à l'intérieur du milieu. En effet, tout photon émis en début de milieu sera réabsorbé au bout de quelques longueurs d'absorption et tout se passera comme si le milieu gazeux avait pour unité de longueur effective la longueur d'absorption et non sa « vraie » longueur. Ce problème semble incontournable malgré un accord de phase parfait et c'est ainsi que la notion de limite d'absorption est apparue dans les articles récents qui traitent de l'accord de phase.

Le chapitre qui suit analysera chacun des points évoqués ci-dessus : de la génération de rayonnement harmonique au niveau atomique jusqu'au nombre de photons recueillis en sortie de milieu en passant par des considérations d'accord de phase et de longueur d'absorption. Tout ce qui suit rentre dans le cadre d'une approximation 1 D : on ne considère que les harmoniques émises colinéairement à l'axe de propagation du laser et résultant d'un accord de phase sur l'axe également. Il est évident que cette approximation néglige les effets d'accord de phase vectoriel et ne permet pas de prédire l'émission harmonique hors axe. Cependant, cette approximation est valide dans le cadre de notre étude de la génération d'harmonique en régime de focalisation douce et d'intensités au foyer du laser relativement faibles. De plus notre détecteur était dessiné pour collecter les photons émis sur l'axe de l'expérience et dans un petit angle solide.

3.1. À l'échelle microscopique : l'interaction laser intense - atome

Lors de l'interaction du champ laser intense avec les atomes du gaz, il se produit une ionisation partielle de ces atomes. Les électrons issus de cette ionisation sont accélérés dans le champ laser, puis se recombinent à leur ion parent. Ceci n'est possible qu'en polarisation linéaire pour laquelle la probabilité de recombinaison de l'électron sur son ion est non nulle; alors que cette probabilité est très faible en polarisation circulaire. C'est lors de cette recombinaison que se produit l'émission d'un rayonnement harmonique d'ordre très élevé.

La génération d'harmonique est donc intimement liée à l'ionisation puisque le processus implique que des électrons entrent dans un état du continuum. La première étape d'un modèle de génération d'harmoniques est basée sur la compréhension des processus qui aboutissent par interaction avec le champ du laser, à la libération d'un électron du potentiel attracteur qui le lie au noyau.

3.1.1. Les différents processus d'ionisation

Les progrès faits en technologie des lasers ont permis d'atteindre des intensités toujours plus importantes, à tel point que le champ électrique lumineux devient comparable au champ qui relie au noyau les électrons de la couche externe. Ceci a des conséquences sur les processus qui peuvent amener à l'ionisation des atomes.

3.1.1.1. Ionisation multiphotonique

En régime d'intensité modérée, un électron lié au noyau sera ionisé s'il absorbe un nombre de photons suffisant pour lui permettre d'acquérir une énergie égale à son énergie de liaison : c'est l'ionisation multiphotonique [1].

3.1.1.2. Ionisation tunnel

En régime d'intensité plus élevée (dès quelques 10^{13} W/cm² pour les gaz lourds) le champ du laser est capable de modifier le champ qui relie l'électron au noyau en abaissant la barrière de potentiel à franchir pour ioniser l'atome. Au moment du maximum de l'impulsion, cette barrière peut être si basse que la probabilité de franchissement de cette barrière par effet tunnel devient non nulle. Ce phénomène pourra se produire deux fois par cycle optique [2].

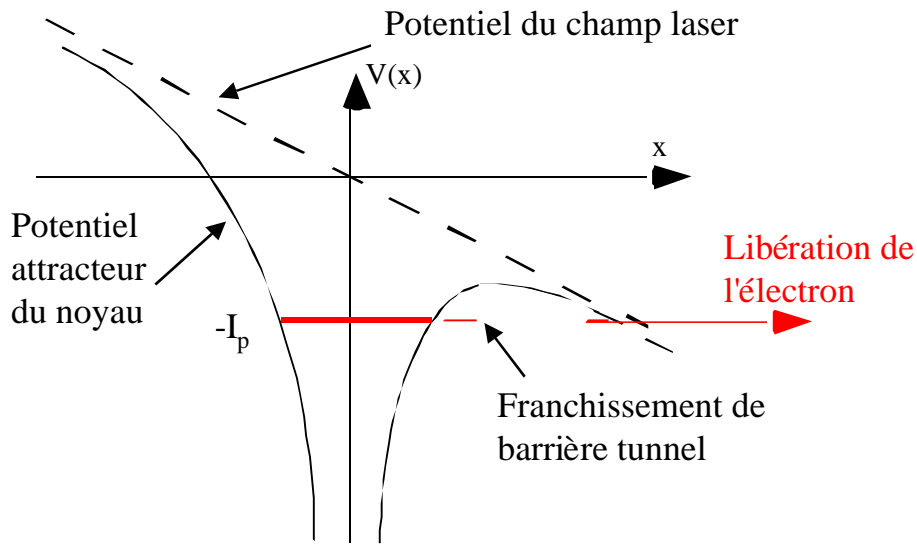


Figure 3.1 : Mécanisme d'ionisation par effet tunnel en présence d'un fort champ électrique laser oscillant.

On peut introduire à ce niveau le paramètre sans dimension de Keldysh, qui permet de savoir à intensité donnée quel est parmi les deux cités plus haut, le régime d'ionisation dominant [3].

$$g = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (3.1)$$

où U_p est le potentiel pondérateur du laser, et I_p le potentiel de première ionisation du gaz.

En fait, γ permet de comparer le potentiel d'ionisation de l'électron (I_p) et le potentiel pondérateur du laser (U_p). Si $\gamma \gg 1$, le potentiel atomique domine le potentiel laser et l'ionisation sera de nature multiphotonique. Dans le cas contraire, le champ laser étant assez important pour induire des modifications sur le champ coulombien, un processus d'ionisation par effet tunnel aura dans ce cas une probabilité non négligeable.

3.1.1.3. Ionisation par suppression de barrière

Si l'intensité augmente encore, la barrière de potentiel tunnel peut devenir effectivement négative et l'électron sera ionisé extrêmement facilement. On parle du régime de suppression de barrière ; il aura lieu quand le champ électrique laser aura une valeur supérieure au champ qui lie l'électron au noyau. On peut le traduire par une condition sur l'intensité laser en polarisation linéaire [3] :

$$I_{BSI} (W / cm^2) = 3.8.10^9 \frac{I_p^4 (eV)}{Z^2} \quad (3.2)$$

I_{BSI} est l'intensité de suppression de barrière, I_p le potentiel d'ionisation, Z la charge de l'ion obtenu (cette relation est valable pour les degrés d'ionisation successifs).

Il est important de noter que la transition entre ces différents régimes d'ionisation n'est pas aussi nette que pourraient le laisser penser les paramètres définis ci-dessus. Ces derniers caractérisent en réalité la nature du processus dominant l'ionisation mais ne sont pas des critères absolus de description du mécanisme global de libération de l'électron [4].

Dans la génération d'harmoniques, il importe de se placer dans une situation pour laquelle $I_{\text{laser}} < I_{\text{BSI}}$ car seuls les atomes neutres sont susceptibles d'émettre des harmoniques dans le cadre du modèle atomique généralement admis [5].

Gaz considéré	I_p (eV)	I_{BSI} (W/cm ²)
Néon	21,56	8,20E+14
Argon	15,76	2,34E+14
Xénon	12,13	8,23E+13

En deçà de cette intensité de suppression de barrière, on peut calculer « analytiquement » la probabilité d'ionisation par unité de temps d'un atome soumis à un champ laser [2] par le modèle Ammosov-Delone-Krainov (ADK).

3.1.2. Le modèle à trois étapes pour la génération d'harmoniques : modèle semi-classique

Historiquement, c'est un des premiers modèles qui a permis de rendre compte des caractéristiques principales d'un spectre d'harmoniques, c'est-à-dire l'existence d'un plateau suivi d'une coupure vers les ordres harmoniques élevés [6], [7]. Cette coupure recule avec l'intensité laser et dépend du gaz utilisé.

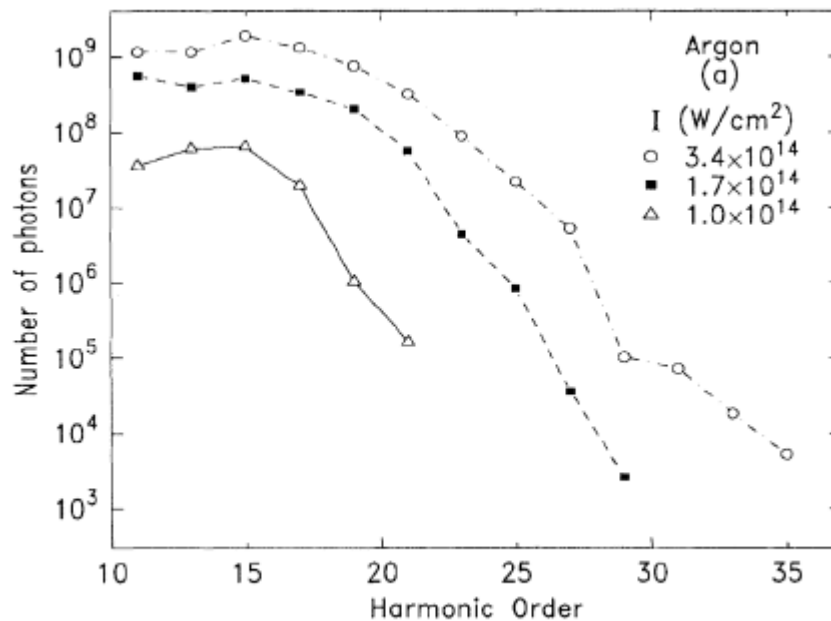


Figure 3.2 : Exemple de spectres caractéristiques observés dans l'argon pour différentes intensités laser. La figure est issue de la référence [8].

Le processus de génération d'harmoniques proprement dit se décompose en trois étapes :

1-Ionisation par effet tunnel induite par le laser

L'électron issu de l'ionisation laser entre dans un état du continuum avec une vitesse nulle et se trouve près du noyau à l'instant t' (notation reprise par la suite dans le modèle quantique).

2-Accélération dans le continuum par le champ du laser

L'électron libéré est accéléré par le champ laser, et ne ressent pratiquement plus l'effet du potentiel attracteur du noyau. Il acquiert une énergie cinétique dont la valeur dépend de son instant d'ionisation (t') par rapport au maximum du champ électrique du laser. Sa probabilité de recombinaison au noyau s'exprime par la condition de retour de la trajectoire au voisinage de l'ion : elle-même dépend de l'instant d'ionisation. Rappelons qu'en polarisation circulaire, le champ électrique a une direction qui tourne au cours d'un cycle optique et envoie l'électron loin de son point de départ. En polarisation linéaire au contraire, l'électron est accéléré toujours dans la même direction, seul le sens de variation change, ce qui rend possible un retour au point initial.

3-Recombinaison radiative et émission d'un photon harmonique

Arrivé à proximité du noyau, l'électron a une probabilité non nulle de se recombiner à l'instant t à son ion parent en émettant un photon harmonique qui aura pour énergie la somme du potentiel d'ionisation de l'électron et de son énergie cinétique acquise pendant son passage dans le continuum.

3.1.3. Équation de propagation de l'électron ionisé

Un simple calcul classique de l'équation du mouvement de l'électron dans le continuum en présence de la force électrique oscillante du champ laser permet de calculer le gain d'énergie cinétique de l'électron :

$$\begin{aligned} \dot{f} &= q\dot{E}(t) = qE_0 \cos(\omega t) \cdot \dot{e}_x \\ \text{soit } a(t) &= \frac{qE_0}{m} \cos(\omega t) \end{aligned} \quad (3.3)$$

$$\text{et } v(t) = \frac{qE_0}{m\omega} [\sin(\omega t) - \sin(\omega t')]]$$

t' est le temps d'ionisation et par définition $v(t')=0$, d'où finalement :

$$x(t) = -\frac{qE_0}{m\omega^2} [\cos(\omega t) - \cos(\omega t')] - \frac{qE_0}{m\omega} \sin(\omega t') \cdot (t - t') \quad (3.4)$$

On pose également $x(t')=0$, puisque l'électron est proche du noyau au moment de son ionisation ; le gain d'énergie cinétique dans le continuum sera alors donné par :

$$\Delta E_c = \frac{1}{2} m(v(t))^2 \quad (3.5)$$

t est par définition le moment de recombinaison.

La loi de vitesse de l'électron se compose d'une partie oscillante et d'une vitesse de dérive. En se plaçant dans un référentiel dont l'origine d'espace est la partie oscillante, référentiel dit de « Krammers-Henneberger » [9], la trajectoire de l'électron est tout simplement une droite, tandis que celle de l'ion parent devient sinusoïdale (il était immobile dans le référentiel du laboratoire). Les conditions $x(t')=0$ et $v(t')=0$ se traduisent par le fait que la trajectoire électronique est tangente à celle de l'ion au moment de l'ionisation.

On peut aisément représenter graphiquement ces deux trajectoires dans le nouveau référentiel et constater que tous les instants d'ionisation ne donnent pas nécessairement lieu à une recombinaison, de plus le temps de parcours dans le continuum de l'électron dépend de t' comme le montre la figure ci-dessous. On montre également que le gain d'énergie cinétique est proportionnel au carré de la différence des pentes des trajectoires électronique et ionique au moment de la recombinaison.

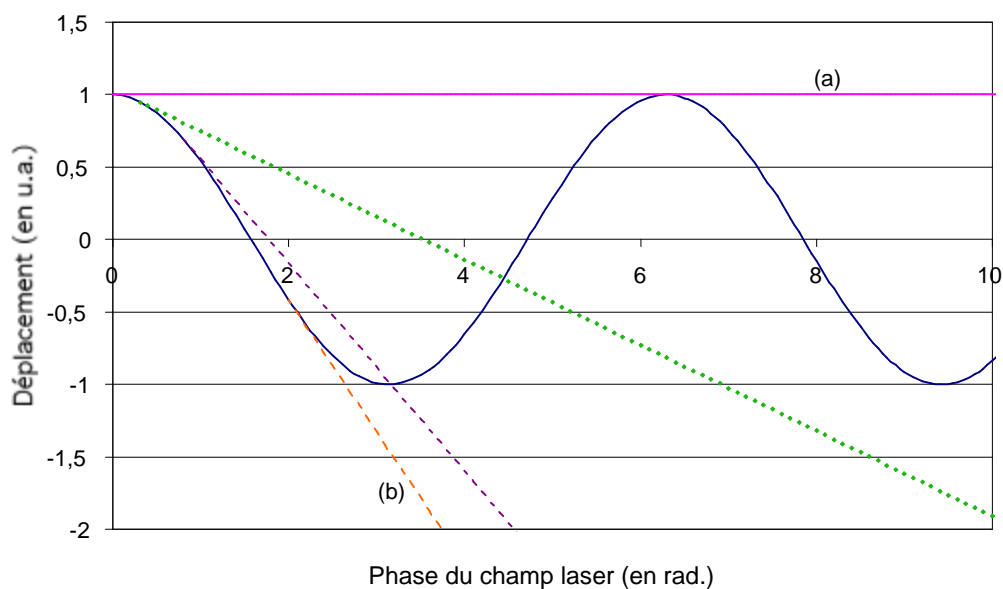


Figure 3.3 : Trajectoires ionique et électronique dans le référentiel de « Kramers-Henneberger », pour différents instants d'ionisation de l'électron par rapport au cycle optique du laser.

La trajectoire (a) correspond à un électron émis au maximum du champ laser, elle donne lieu à une recombinaison un cycle optique après, c'est la plus grande durée de passage de l'électron dans le continuum. Si l'électron est émis avec une certaine phase par rapport au laser, il y aura recombinaison tant que la phase sera comprise entre 0 et $\pi/2$ (modulo π), le temps de passage dans le continuum diminuant quand la phase augmente. La trajectoire (b) montre un cas sans recombinaison.

Un calcul totalement quantique de l'évolution de la fonction d'onde de l'électron lors de la génération d'harmoniques permet de visualiser le même phénomène :

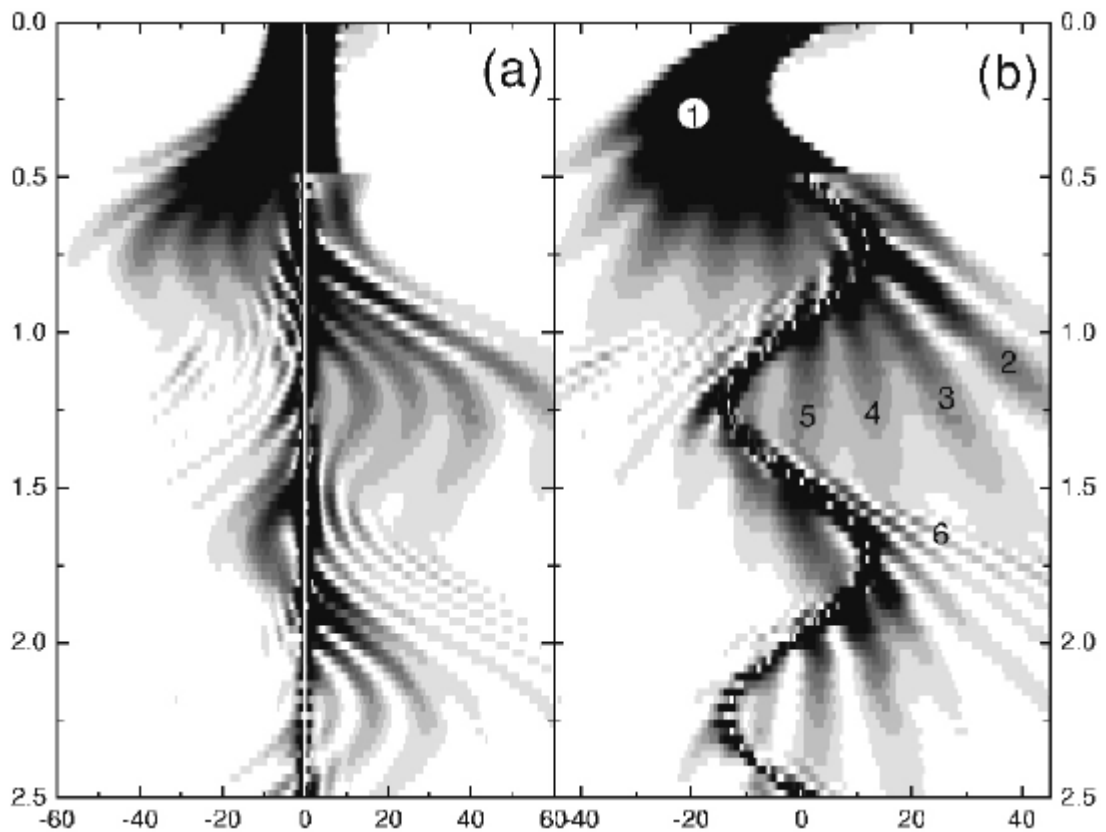


Figure 3.4 : Représentation des densités de fonction d'onde de l'électron en fonction du temps dans deux référentiels distincts : d'une part le référentiel usuel du laboratoire (a), d'autre part le référentiel de « Kramers-Henneberger »(b). Cette figure est extraite de la référence [9].

3.1.4. La loi de coupure par le modèle de la mécanique classique

L'énergie cinétique classique (équation (3.5)) maximale acquise par l'électron dans le champ laser en fonction des instants d'ionisation et de recombinaison correspond à $3,17 U_p$, où U_p est le potentiel pondérateur du laser, proportionnel à l'intensité selon la loi :

$$U_p(eV) \approx 5,99 \cdot 10^{-14} \cdot I(W/cm^2) \quad (3.6)$$

Ce modèle permet d'expliquer la loi de coupure du plateau des harmoniques et de comprendre son origine physique : c'est en fait l'énergie maximale que peut acquérir un électron accéléré dans le champ du laser ajoutée à l'énergie de liaison de l'atome.

$$N_{\max} = (I_p + 3,17U_p) / h\nu \quad (3.7)$$

On peut aussi voir sur la figure (3.3) qu'il peut exister plusieurs temps de passage dans le continuum qui aboutissent au même gain d'énergie cinétique final : ce sont des trajectoires ou des « chemins » dont la nature profonde sera expliquée dans le modèle quantique.

En revanche, ce modèle semi classique ne permet pas de calculer la polarisation induite par le laser à la fréquence $q\omega$, en termes de champ complexe caractérisé par son amplitude et sa phase. C'est l'intérêt majeur des deux articles de M. Lewenstein datant de 1994 et 1995 [5], [10].

3.2. Le modèle quantique de Lewenstein

3.2.1. Bases du modèle

Ce modèle totalement quantique de la génération d'harmoniques date de 1994 et a permis de franchir une étape importante dans la compréhension globale du processus. Une explication détaillée de toutes les étapes du calcul permettant d'aboutir aux composantes de Fourier du dipôle à partir de l'équation de Schrödinger de l'électron soumis au champ laser est donnée en annexe n°1.

Cette étude est valable dans le cas où U_p est très grand devant I_p (et même $I_p=0$) ; dans ce cas, le potentiel pondérateur du laser est si grand que l'électron une fois ionisé ne ressentira plus l'effet attracteur du potentiel du noyau. Cette approximation porte le nom d'« approximation de champ fort » (SFA en Anglais pour Strong Field Approximation). On suppose de plus que I_p est prépondérant devant l'énergie contenue dans un photon laser, ceci pour que l'ionisation se fasse par effet tunnel. Cette hypothèse est justifiée par le fait qu'un photon laser de 800 nm porte l'énergie $E=1,55$ eV et que les potentiels d'ionisation valent au minimum une dizaine d'électron-Volt pour les gaz rares que nous étudions.

Le calcul du dipôle d se ramène au calcul de l'excursion de l'électron par rapport au noyau (notée x) ; le dipôle vaut qx , où q est la charge de l'électron. La valeur de $x(t)$ fait apparaître une intégrale sur tous les instants de recombinaison t et d'ionisation t' et toutes les impulsions p :

$$x(t) = i \int_0^t dt' \int d^3p \cdot E \cos t' d_x(p - A(t')) d_x^*(p - A(t)) \exp(-iS(p, t, t')) \quad (3.8)$$

$$\text{avec } S(p, t, t') = \int_{t'}^t dt'' \left(I_p + \frac{(p - A(t''))^2}{2} \right)$$

Cette équation traduit tout simplement le fait que le dipôle résultant ($q \cdot x(t)$) provient de l'interférence entre tous les chemins quantiques caractérisés par les trois valeurs (t, t', p). Les termes dx et dx^* sont liés à la probabilité d'émission d'un électron dans le continuum pour l'une, et la probabilité de recombinaison radiative pour l'autre.

La phase de l'intégrand est par définition l'action, soit ici l'intégrale de l'énergie cinétique de l'électron dans le continuum plus le potentiel d'ionisation, et correspond à la phase de la fonction d'onde de l'électron, analogue au terme en $\exp(-i2\pi Et/h)$ dans le cas d'états stationnaires.

La réflexion physique à partir de ces calculs et la démonstration du fait qu'on retrouve les conclusions du modèle classique à trois étapes repose sur l'approximation de point selle aussi appelée méthode de la phase stationnaire (« *saddle point* » en Anglais). Cela revient à considérer que dans une intégrale complexe, seuls les termes qui n'oscillent pas au premier ordre contribuent de façon significative (voir annexe1). Les calculs sont considérablement simplifiés et les phénomènes physiques dominants ressortent. La condition de stationnarité de la phase introduite plus haut se ramène alors à la condition physique $x(t)=x(t')$: les électrons susceptibles d'induire un dipôle atomique important sont ceux qui se recombineront à l'ion dont ils sont issus. On note aussi que l'étalement du paquet d'onde de l'électron dans sa propagation libre dans le continuum diminue au cours du temps la probabilité de recombinaison au noyau et favorise les temps courts de

recombinaison. La deuxième intégrale impliquant une autre condition de stationnarité, on peut conclure que les électrons qui contribuent le plus au dipôle sont ceux qui arrivent dans le continuum avec une vitesse nulle.

On peut s'intéresser désormais au spectre harmonique, c'est-à-dire aux composantes de Fourier du dipôle. En raison de la symétrie radiale du potentiel du noyau atomique, seuls les ordres impairs joueront un rôle important dans la valeur de l'intégrale. L'application de la méthode de point selle au calcul de la transformée de Fourier permet d'aboutir à l'équation de conservation d'énergie :

$$E_c + I_p = (2M + 1)h\omega = qh\omega \quad (3.9)$$

M est un entier positif, q est l'ordre harmonique, E_c l'énergie cinétique de l'électron.

C'est de cette manière que l'on retrouve la loi de coupure (dite du « *cutoff* » en Anglais) qui donne l'ordre maximal que l'on peut obtenir à intensité laser donnée.

Les conclusions du modèle semi classique sont donc bien redémontrées dans le cadre plus rigoureux du modèle quantique. Ce modèle permet d'aller plus loin et de mettre en évidence la différence de phase entre les deux principaux chemins quantiques aboutissant à une même énergie de photon harmonique, comme permettait déjà de le comprendre le modèle semi classique.

3.2.2. Calcul de l'amplitude et de la phase du dipôle [10]

En repartant de l'équation (3.9), et des conditions initiales $x(t)=x(t')=0$ ainsi que $v(t')=0$, toutes issues de l'application de la méthode du point selle au calcul de l'intégrale donnant les composantes de Fourier du dipôle, on cherche à trouver le triplet (t, t', p) de solutions au problème.

On montre alors que lorsque l'intensité n'est pas suffisante pour qu'une harmonique donnée soit dans le plateau, le système n'a pas de solution réelle : l'harmonique est dans la coupure et ne pourra pas être générée efficacement. Si l'intensité augmente et que l'harmonique étudiée se trouve dans le plateau, deux solutions réelles d'égale importance existent au problème posé. L'une correspond à un électron émis au voisinage du maximum du champ et dont le temps de passage dans le continuum (τ_2) sera élevé, d'où une phase de la fonction d'onde importante au moment de la recombinaison ; l'autre correspond à une trajectoire bien plus courte dans le continuum (de durée τ_1) donc une phase accumulée plus faible. En effet, on peut montrer par la méthode de la phase stationnaire que la phase s'écrit au premier ordre :

$$\mathbf{j} = -U_p \cdot \mathbf{t} \quad (3.10)$$

Le chemin quantique présentant la phase la plus importante est appelé « chemin 2 » tandis que celui correspondant à une phase inférieure se nomme « chemin 1 ». Si l'intensité augmente encore, d'autres solutions réelles peuvent apparaître (chemin 3 et ainsi de suite). Elles correspondent à des trajectoires d'ordre supérieur dont le temps de passage dans le continuum dépasse la période optique du laser. Elles n'ont qu'une importance mineure dans les conditions de générations d'harmoniques qui nous intéressent.

La figure (3.4) suivante montre le résultat du calcul par la méthode de la phase stationnaire du dipôle en termes de phase et d'amplitude pour une harmonique donnée en fonction de l'intensité laser. On observe bien la transition plateau - coupure et le fait que la phase accumulée lors du

passage de l'électron dans le continuum est très importante (elle peut valoir plusieurs dizaines de radians même à des intensités relativement faibles). Le dipôle varie ici comme une loi de puissance de l'intensité laser (typiquement ordres 3 à 6) lorsque l'harmonique est dans le plateau.

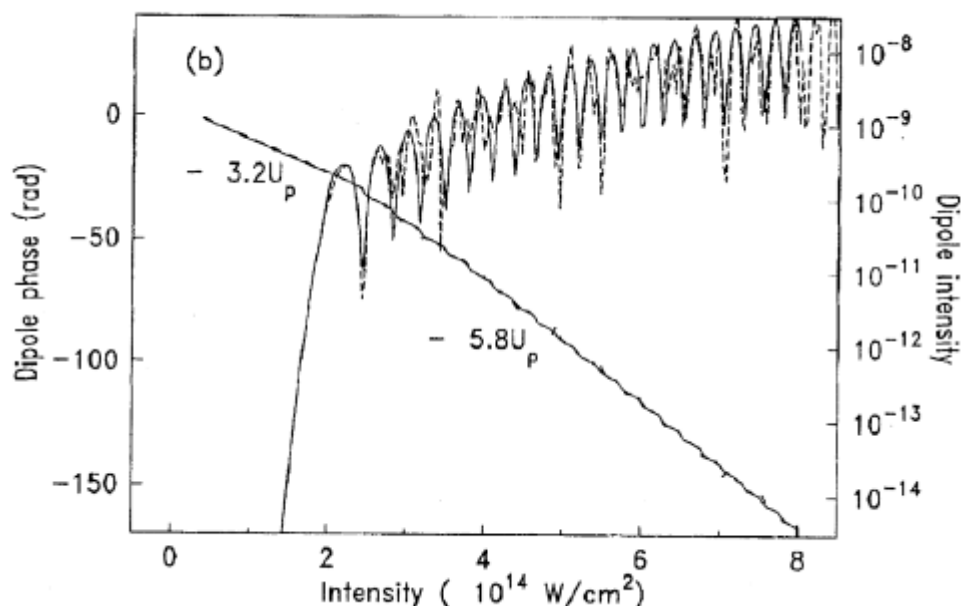


Figure 3.4 : Variation de la phase et de l'amplitude du dipôle en fonction de l'intensité pour l'harmonique 45 dans le néon, les valeurs sont obtenues par la méthode de la phase stationnaire et résultent de l'interférence entre les deux chemins quantiques prédominants. (Figure extraite de la référence [10])

3.2.3. La désintrication des chemins quantiques

En appliquant les techniques de l'analyse temps/fréquence aux composantes complexes du dipôle issu des calculs de Lewenstein, Ph. Balcou et al. ont montré comment on pouvait séparer qualitativement les contributions des différents chemins quantiques [11], en se basant sur une représentation graphique. Pour effectuer une modélisation globale du phénomène, comprenant à la fois les aspects microscopiques et macroscopiques, il est en effet indispensable de pouvoir étudier séparément les contributions de chaque chemin quantique, l'accord de phase dépendant fortement de ceux-ci. Il est donc nécessaire de définir une méthode numérique pour évaluer quantitativement les composantes du dipôle suivant chaque chemin, réalisant ainsi une « désintrication » numérique des chemins du dipôle.

On a vu dans le paragraphe 3.2.2 à travers la formule (3.10) que la phase correspondant à un chemin quantique donné est proportionnelle à l'intensité laser. Si on considère donc dans le cas général que la phase d'une composante spectrale du dipôle (notée $d_q(I)$) peut s'écrire $-\alpha I$, on peut calculer la valeur de ce dipôle (notée $d_q(\alpha)$) dans l'espace réciproque de variable α par une transformation de Fourier. Chaque chemin quantique sera alors caractérisé dans un diagramme $(\alpha, d_q(\alpha))$ par un pic de signal pour une valeur précise de α . La courbe de la figure (3.5) montre l'intensité du dipôle de l'harmonique 45 générée dans le néon en fonction de α à $I_0=6.10^{14} \text{ W/cm}^2$

fixée. On retrouve les conclusions exposées dans le paragraphe précédent : deux chemins quantiques principaux sont visibles, l'un de phase $-\alpha I$ avec $\alpha \sim 26 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ (le chemin 2), l'autre de phase quasi nulle (le chemin 1 : $\alpha \sim 3 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$). Pour des intensités encore supérieures, on détecte la présence de chemins quantiques d'ordres plus élevés (essentiellement les chemins 3 et 4). Ces derniers donnent lieu à des phases atomiques nettement supérieures à celles des deux premiers chemins ($\alpha_3=40 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ et $\alpha_4=54 \cdot 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ respectivement).

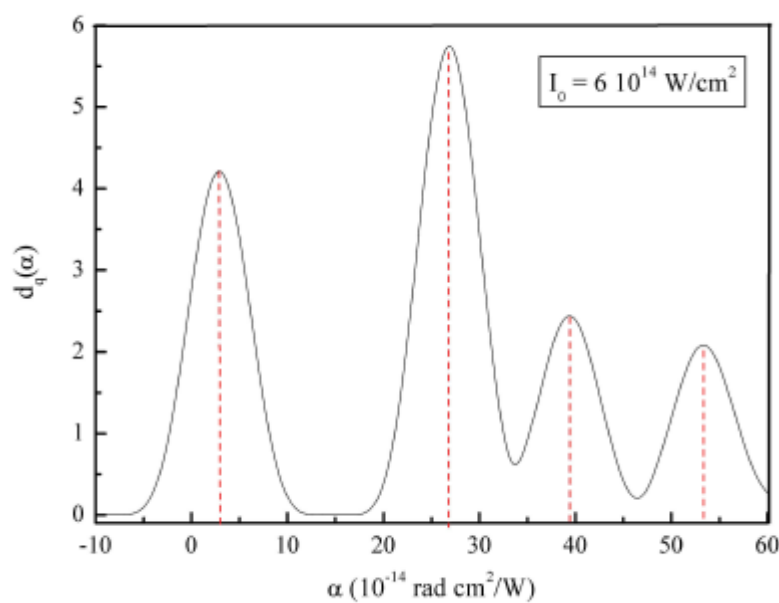


Figure 3.5 : Amplitude du dipôle correspondant à l'harmonique 45 dans le néon dans une coupe à I fixée d'un diagramme (\mathbf{a}, I) . On voit clairement les deux chemins quantiques prédominants ainsi que les chemins 3 et 4 d'intensité moindre (figure C. Valentin).

Nous avons réalisé une étude numérique nouvelle de cette problématique. Il apparaît en effet dès la référence [11], qu'une simple transformation de Fourier aboutit à des artefacts numériques pour le calcul des composantes du dipôle. Il est donc nécessaire d'y rajouter une fonction G , dite « d'apodisation », qui permet un filtrage du résultat numérique de l'intégrale suivante au voisinage de l'intensité de référence I_0 :

$$d_{q, I_0}(\mathbf{a}) = \int_0^{I_{\max}} d_q(I) e^{-i\alpha I} G(I, I_0) dI \quad (3.11)$$

Le dipôle est dans ce cas exprimé comme une fonction de la variable réciproque α , il est représenté sur la figure suivante pour différentes formes mathématiques de la fonction d'apodisation :

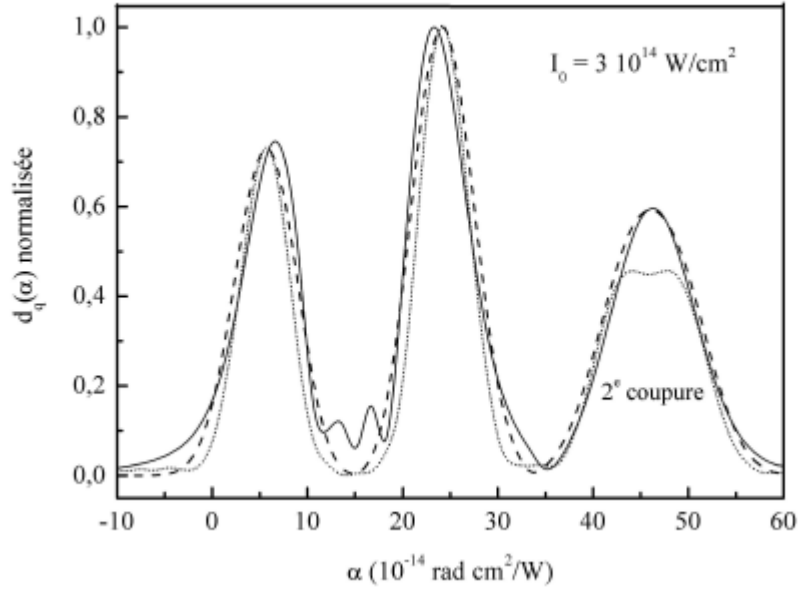


Figure 3.6 : Variation de l'intensité du dipôle de l'harmonique 41 générée dans le néon à une intensité de $3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, cette intensité est trop faible pour que les troisième et quatrième chemins quantiques soient dans le plateau, ce qui explique qu'ils soient représentés par un seul pic indifférencié situé dans la deuxième coupure. Ligne continue : fenêtre sinusoidale $G(I, I_0) = \exp(3I/2) \sin(\mathbf{p}(2I_0 - I)/2I_0)$. Petits pointillés : fenêtre gaussienne $G(I, I_0) = \exp(-(I - I_0)^2 / \mathbf{s}^2)$. Grands pointillés : fenêtre de Blackman-Harris $G(I, I_0) = a - b \cos(\mathbf{p}I/I_0) + c \cos(2\mathbf{p}I/I_0)$. (graphique C. Valentin).

On constate sur la figure (3.6) que la forme de la fonction d'apodisation n'a pas d'influence sur le résultat physique global des calculs mais plutôt sur l'allure des courbes. La fonction d'apodisation qui donne les résultats les plus satisfaisants est la fenêtre dite de « Blackman-Harris », couramment utilisée dans d'autres domaines de la physique basés sur des techniques de filtrage : elle aboutit à l'allure de courbe la plus lisse.

En conclusion de cette partie, la désintrinsication des chemins quantiques permet d'écrire la polarisation induite par le laser à la fréquence $q\omega$ sous la forme de la somme suivante sur tous les chemins quantiques k ($\varphi_{at,k} = -\alpha_k I$) :

$$d_q(\mathbf{w}) = \sum_k d_q(k) \exp(i \mathbf{j}_{at,k}) \quad (3.12)$$

Le calcul exposé graphiquement ci-dessus ne fait intervenir que des considérations atomiques pour évaluer l'importance des deux chemins. Eu égard à leur grande différence de comportement, chaque chemin quantique sera amené à jouer un rôle particulier dans l'accord de phase à travers le gradient de sa phase propre. Suivant les conditions, la propagation du faisceau harmonique et les considérations macroscopiques peuvent modifier les rapports d'amplitude de tel ou tel chemin.

Après avoir exposé l'origine atomique de la génération d'harmoniques, il convient d'étudier en détail la propagation du rayonnement émis avant de se prononcer sur l'importance des

paramètres qui sont susceptibles d'améliorer le nombre de photons en sortie de milieu. C'est pourquoi la partie suivante s'attache à présenter le cadre général d'étude de l'accord de phase pour se concentrer sur la spécificité de la génération d'harmoniques et conclure quant à l'influence de chaque chemin quantique sur le nombre de photons final.

3.3. À l'échelle macroscopique : l'accord de phase

L'accord de phase est régi par le comportement collectif des atomes du milieu par l'intermédiaire des dipôles. Chaque dipôle rayonne à partir de la position de son atome émetteur et peut interférer constructivement ou destructivement avec les dipôles émis en d'autres points du milieu suivant leur phase relative. On expliquera dans la suite, l'origine physique des termes entrant dans le calcul de la longueur de déphasage. Le code unidimensionnel permettant de reproduire nos données expérimentales est alors introduit. Il sert à expliciter les mécanismes d'accord de phase présentés en fin de chapitre 2.

3.3.1. Cadre général d'étude de l'accord de phase

Les équations de Maxwell appliquées au cas d'un champ E de fréquence ω se propageant dans un milieu de polarisation $P(\omega)$ et d'indice optique $n(\omega)$ aboutissent à l'équation suivante [12] :

$$\nabla^2 E(\mathbf{w}) + n^2(\mathbf{w}) \frac{\mathbf{w}^2}{c^2} E(\mathbf{w}) = - \frac{\mathbf{w}^2}{\epsilon_0 c^2} P^{NL}(\mathbf{w}) \quad (3.13)$$

Si l'on écrit le champ $E(\omega)$ sous la forme $\mathcal{E} \exp(-ik.z)$ avec k le vecteur d'onde associé à la pulsation ω ($k=n\omega/c$), on obtient dans le cadre de l'approximation paraxiale:

$$2i k(\mathbf{w}) \frac{\mathcal{E}}{\mathcal{E}} = \frac{\mathbf{w}^2}{\epsilon_0 c^2} P(\mathbf{w}) \exp(i k(\mathbf{w}) z) \quad (3.14)$$

Dans le cas du champ de l'harmonique q induite à la pulsation $q\omega$ par la polarisation atomique, on peut réaliser l'intégrale formelle pour E_q :

$$\mathbf{e} = \frac{q \mathbf{w}}{2i \epsilon_0 c n_q} \int P_q \exp(ik_q z) dz \quad (3.15)$$

Le terme de polarisation P_q est le produit de la densité du milieu (proportionnelle à la pression ρ) par le dipôle d_q issu des calculs atomiques présentés dans la partie précédente. Celui-ci est donc décrit par une amplitude et une phase atomique intrinsèque $\mathbf{j}_{at,k}$. À cette phase propre, s'ajoute la phase de propagation qk_1 , de telle sorte qu'on peut définir en tout point z un déphasage $\varphi(z)$ entre le faisceau harmonique et la polarisation source.

$$\mathbf{j} = (k_q - qk_1)z - \mathbf{j}_{at,k} \quad (3.16)$$

Avec cette définition le champ E_q émis par un milieu de longueur l_{med} devient :

$$E_q \propto \int_0^{l_{med}} \mathbf{r} |d_q(z)| \exp(i \mathbf{j}(z)) dz \quad (3.17)$$

L'expression (3.17) issue de la formule (3.15) traduit bien le fait qu'à chaque position z , le champ harmonique est le résultat de l'interférence entre les champs émis par tous les points en amont avec leur phase respective $\varphi(z)$. On néglige ici tout phénomène de réabsorption du rayonnement harmonique par le milieu.

3.3.2. L'accord de phase en milieu non absorbant

En ne considérant que la propagation 1D des harmoniques, le nombre de photons émis sur l'axe par unité de temps est donné par:

$$N_{out} = \frac{q\mathbf{w}}{4c\mathbf{e}_0\hbar} \left| \int_0^{l_{med}} \mathbf{r} |d_q(z)| \exp(i\mathbf{j}(z)) dz \right|^2 \quad (3.18)$$

Si, en première approximation, on considère que l'intensité du dipôle $|d_q|$ ne dépend pas de z et qu'on linéarise la phase en écrivant:

$$\mathbf{j}(z) = \mathbf{dk} \cdot z, \quad \text{alors :} \quad (3.19)$$

$$N_{out} = \frac{q\mathbf{w}\mathbf{r}^2}{4c\mathbf{e}_0\hbar} \left| \int_0^{l_{med}} |d_q(z)| \exp(i\mathbf{dk} \cdot z) dz \right|^2$$

et peut s'intégrer analytiquement en :

$$N_{out} \propto |d_q|^2 \left| \frac{e^{i\mathbf{dk}l_{med}} - 1}{\mathbf{dk}} \right|^2 \quad \text{soit :} \quad (3.20)$$

$$N_{out} \propto |d_q|^2 \frac{1}{\mathbf{dk}^2} (4 \sin^2(\mathbf{dk}l_{med}/2))$$

Pour étudier l'influence de l'accord de phase sur le nombre de photons produits, on sépare dans l'expression précédente la partie purement atomique (notée A) de la partie propagation à caractériser. On peut réécrire N_{out} sous la forme :

$$N_{out} = A * l_{med}^2 * F_{qlin} \quad \text{avec :} \quad (3.21)$$

$$F_{qlin} = \sin^2(\mathbf{dk} \cdot l_{med}/2)$$

F_{qlin} est un paramètre sans dimension (rappelons que δk est homogène à l'inverse d'une longueur), qui exprime la qualité de l'accord de phase puisqu'il atteint son maximum de 1 lorsque la phase φ est indépendante de z ($\delta k=0$). Dans ce cas, le signal harmonique sera une fonction quadratique de la longueur du milieu, comme on s'y attend dans un cas d'accord de phase parfait.

En pratique, δk prend une valeur finie non nulle et l'on peut poser:

$$l_p = \mathbf{p} / \mathbf{dk} \quad \text{et} \quad (3.22)$$

$$F_{qlin} = \sin^2(\mathbf{p} \cdot l_{med} / 2l_p)$$

On définit la longueur de déphasage l_π , souvent également appelée longueur de cohérence, par la longueur séparant deux points source du milieu, émettant des ondes harmoniques avec une différence de phase de π . L'interférence sera alors destructive. Si l_{med} est inférieure à l_π , le champ

harmonique se construit progressivement, mais si l_{med} dépasse cette valeur, chaque couple de points séparés de l_{π} s'annule par interférence et au bout de $2l_{\pi}$ le signal est totalement nul.

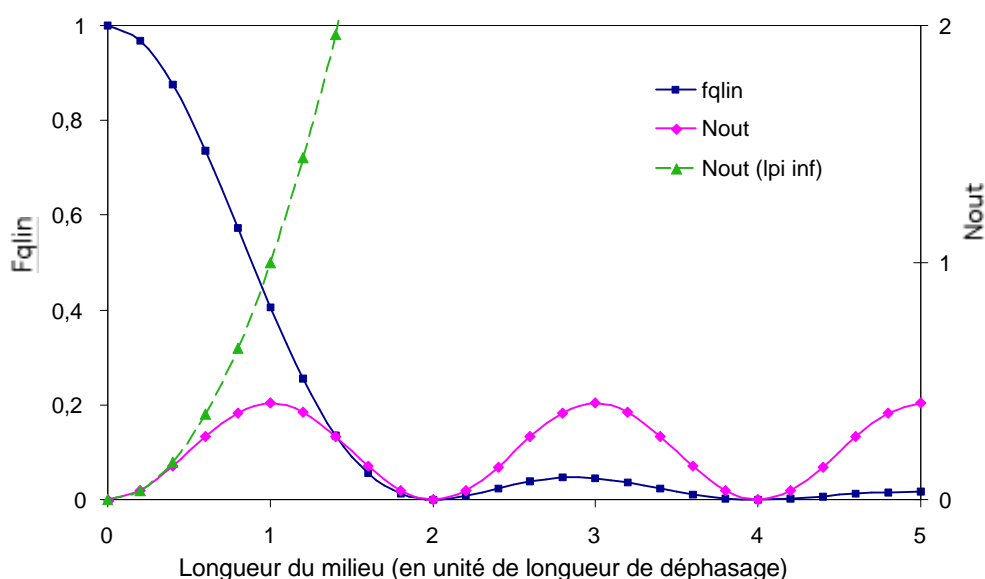


Figure 3.7 : Variation du nombre de photons produits en fonction de la longueur du milieu en unité de longueur de déphasage. On représente également le cas d'une longueur de cohérence infinie. Sur l'axe de gauche : variation du facteur d'accord de phase en fonction de la longueur du milieu.

Pour résumer, en l'absence d'absorption, le nombre de photons harmoniques émis par un milieu gazeux varie quadratiquement en fonction de sa longueur quand l'accord de phase est parfait ($l_{med} \ll l_{\pi}$). Dans le cas contraire, il s'exprime comme le produit d'un terme source purement atomique par l_{med}^2 et par un terme sans dimension, nombre compris entre 0 et 1 qui caractérise l'accord de phase (cf figure (3.7)).

Cependant, dans de nombreux cas, notamment à forte pression de gaz, le paramètre pertinent n'est plus la longueur du milieu mais la longueur d'absorption qui caractérise la distance que peut parcourir un photon harmonique avant d'être absorbé.

3.3.3. L'accord de phase en milieu absorbant : notion de limite d'absorption

On peut généraliser le calcul précédent au cas où la longueur d'absorption est le facteur limitant de l'accord de phase. Par définition, la longueur d'absorption est la distance de propagation au bout de laquelle un rayonnement est atténué par absorption d'un facteur $1/e$. On peut encore écrire que le champ électrique émis au point $z=0$ vaudra au point z :

$$E(z) = E_0 \exp(-z/2l_{abs}) \quad (3.23)$$

Le facteur 2 vient du fait que l_{abs} est définie pour l'énergie et que celle-ci est proportionnelle au module carré du champ électrique.

En faisant les mêmes approximations que précédemment, c'est-à-dire une phase φ linéaire en z et un dipôle harmonique indépendant de z , on peut écrire :

$$N_{out} = \frac{\mathbf{r}^2 q \mathbf{w}}{4c \mathbf{e}_0 \hbar} \left| \int_0^{l_{med}} |d_q| \exp\left(\frac{z - l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp(i \mathbf{dk} \cdot z) dz \right|^2$$

soit

$$N_{out} = \frac{\mathbf{r}^2 q \mathbf{w}}{4c \mathbf{e}_0 \hbar} |d_q|^2 \left| e^{\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}} \left(\frac{e^{\frac{l_{med}}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk} \cdot l_{med}} - 1}{\frac{1}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk}} \right) \right|^2 \quad (3.24)$$

ou encore :

$$N_{out} = \frac{\mathbf{r}^2 q \mathbf{w}}{4c \mathbf{e}_0 \hbar} |d_q|^2 \cdot 4l_{abs}^2 \cdot \frac{1}{1 + 4 \cdot \mathbf{dk}^2 l_{abs}^2} \left(1 + \exp\left(\frac{-l_{med}}{l_{abs}}\right) - 2 \cos(\mathbf{dk} \cdot l_{med}) \exp\left(\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \right)$$

Notons au passage que le champ électrique E est proportionnel à l'expression analytique suivante :

$$E \propto e^{\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}} \left(\frac{e^{\frac{l_{med}}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk} \cdot l_{med}} - 1}{\frac{1}{2l_{abs}} + i \mathbf{dk}} \right) \quad (3.25)$$

Le nouveau terme sans dimension F_{qabs} , compris entre 0 et 1, qui traduira l'accord de phase en régime d'absorption sera :

$$F_{qabs} = \frac{1}{1 + 4 \cdot \mathbf{dk}^2 l_{abs}^2} \left(1 + \exp\left(\frac{-l_{med}}{l_{abs}}\right) - 2 \cos(\mathbf{dk} \cdot l_{med}) \exp\left(\frac{-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \right)$$

de telle sorte que (3.26)

$$N_{out} \propto l_{abs}^2 * F_{qabs}$$

On vérifie aisément qu'on se ramène au cas précédent (cas sans absorption) en faisant tendre l_{abs} vers l'infini. Dans ce cas, les deux N_{out} seront identiques mais pas les facteurs d'accord de phase qui ne sont pas limites l'un de l'autre mais on a plutôt :

$$F_{qabs} * l_{abs}^2 \rightarrow F_{qlin} * l_{med}^2 \quad (3.27)$$

On vérifie aussi simplement que F_{qabs} tend vers 1 en limite d'absorption, c'est-à-dire quand l'accord de phase est assez bon pour que $l_{\pi} \gg l_{abs}$, $l_{med} \gg l_{abs}$, comme le montre la figure (3.8).

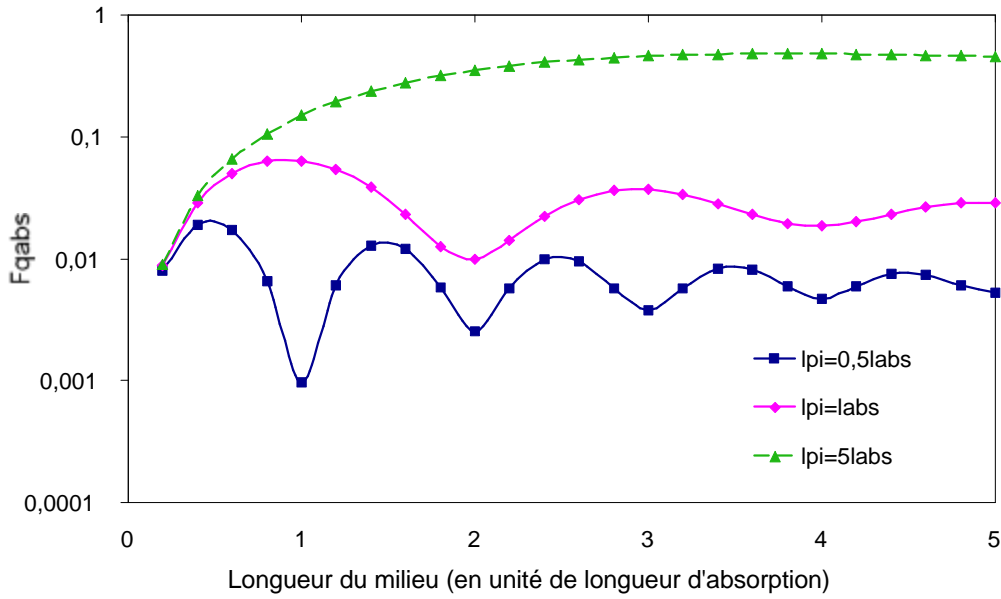


Figure 3.8 : Evolution du facteur d'accord de phase dans un milieu de longueur variable en présence d'absorption pour différentes valeurs de la longueur de déphasage l_p .

3.3.4. La condition de limite d'absorption

La limite d'absorption peut alors être définie comme la condition suivant laquelle le nombre de photons en sortie de milieu est uniquement limité par la longueur d'absorption et non par les deux autres longueurs qui sont la longueur du milieu et la longueur de déphasage. Cette condition se traduit simplement en termes de F_{qabs} qui doit être supérieur à une valeur fixée. Dans un article de 1999 [13], E. Constant et al. ont proposé $F_{qabs}=0,5$ comme limite inférieure. Cela donne les deux conditions suivantes sur l_{med} et l_p :

$$\begin{aligned} l_{med} &> 3l_{abs} \\ l_p &> 5l_{abs} \end{aligned} \quad (3.28)$$

Après avoir décrit un cadre d'étude de l'accord de phase et son influence sur le nombre de photons qu'on peut attendre en sortie de milieu, on détermine dans la partie suivante l'origine physique de ce déphasage et la façon de l'évaluer quantitativement.

3.4. Application aux harmoniques : calcul de la longueur de déphasage

Nous nous fixons comme objectif de comprendre les facteurs limitant l'accord de phase. On pourra alors montrer comment les flux harmoniques en sortie de milieu peuvent être optimisés.

On s'intéresse ici au désaccord de vecteurs d'onde δk , lui-même gradient du déphasage φ et qui dans le cas où la phase est linéaire en z , est lié à l_π par $\delta k = \pi/l_\pi$. D'après l'équation (3.16), on a :

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{k}} &= \dot{k}_q - q\dot{k}_1 - \dot{K} \\ \text{avec } \dot{K} &= \nabla_{\mathbf{r}} \mathbf{j}_{at} \end{aligned} \quad (3.29)$$

Dans le cadre du modèle théorique 1D qui nous intéresse, on peut ignorer la nature vectorielle des vecteurs d'onde et ne s'intéresser qu'au calcul de la norme de δk (pas d'accord de phase hors axe). Nous allons détailler dans la partie suivante chacun des termes de l'équation (3.29).

3.4.1. Le vecteur d'onde du laser : k_1

Ce vecteur d'onde est sensible à de nombreuses influences. D'une part, la focalisation du faisceau induit un déphasage plus connu sous le nom de phase de Gouy, d'autre part les termes de dispersion atomique et électronique jouent également un rôle que l'on étudie dans la suite.

3.4.1.1. Influence de la focalisation

La génération d'harmoniques d'ordres élevés requiert des intensités laser importantes, c'est pourquoi le milieu gazeux est placé au voisinage de la zone focale. Or, au passage du foyer, un faisceau gaussien voit sa phase de propagation augmenter de π en plus de sa phase de propagation naturelle ($\varphi(z) = -k \cdot z + \psi(z)$, d'après la convention de signe page 682 du Siegman [14]), traduisant le fait que la variation de la taille du faisceau a changé de signe (un faisceau converge vers le foyer pour ensuite diverger). Cette phase est majoritairement acquise par le faisceau sur une longueur caractéristique de la taille du foyer : la longueur de Rayleigh (z_0). Elle porte le nom de « phase de Gouy » et vaut $\psi(z) = \arctan(z/z_0)$ pour un faisceau gaussien, elle est représentée sur la figure (3.9).

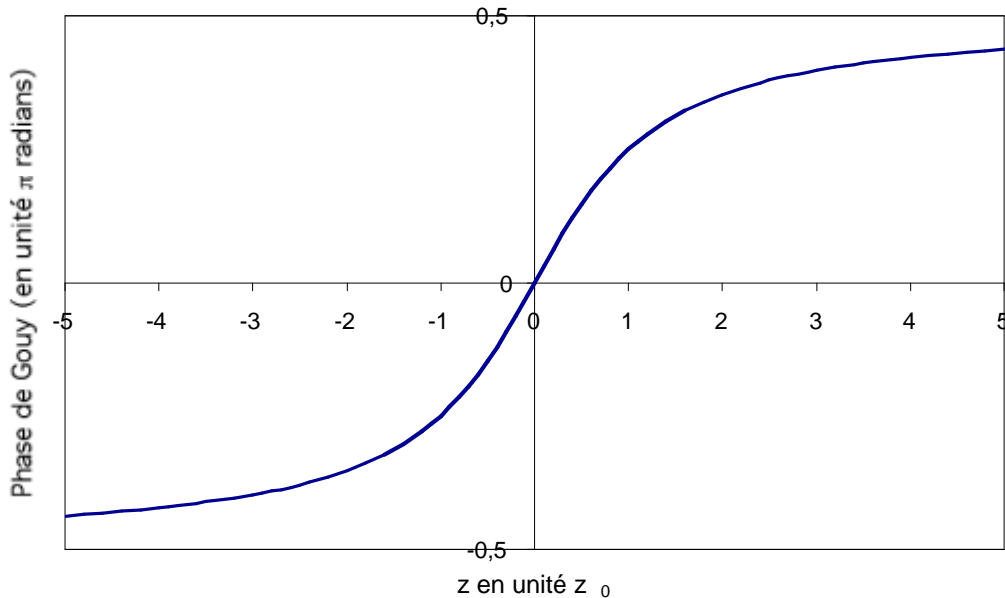


Figure 3.9 : Evolution de la phase spatiale de focalisation d'un faisceau gaussien appelée aussi phase de Gouy.

La modification du vecteur d'onde k_1 induite par la focalisation est donc :

$$dk_{Gouy} = \frac{d}{dz} \left(-\arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \right) = \frac{-1/z_0}{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2} \quad (3.30)$$

δk_{gouy} est donc négatif quel que soit le signe de z et sera le plus important au niveau du foyer. Il peut être considérablement diminué si on augmente la distance de Rayleigh, comme c'est le cas pour une focalisation douce.

3.4.1.2. Influence des termes de dispersion

La relation entre l'indice d'un milieu et le module du vecteur d'onde est donnée par l'équation de dispersion $k = n \frac{\omega}{c}$.

Dans la génération d'harmoniques, on s'intéresse aux termes de dispersion qui induisent une modification temporelle de l'indice du milieu : ce sont la dispersion atomique et électronique.

La dispersion atomique :

L'indice des gaz rares est très légèrement supérieur à 1 mais cela suffit pour induire des effets notables dans le mécanisme d'accord de phase. La dispersion atomique est positive et d'autant plus importante que le gaz rare considéré est lourd, elle est 10 fois plus importante pour le xénon que pour le néon. Pour une pression de référence de 1 bar à température ambiante, l'indice du néon est de $1+6,70 \cdot 10^{-5}$, celui de l'argon de $1+2,51 \cdot 10^{-4}$ et celui du xénon de $1+6,21 \cdot 10^{-4}$. Ce qui donne [15] :

$$\begin{aligned} dk_{at}(Ne) &= \frac{\omega}{c} \cdot 6,70 \cdot 10^{-8} \text{ par mbar} \\ dk_{at}(Ar) &= \frac{\omega}{c} \cdot 2,51 \cdot 10^{-7} \text{ par mbar} \\ dk_{at}(Xe) &= \frac{\omega}{c} \cdot 6,21 \cdot 10^{-7} \text{ par mbar} \end{aligned} \quad (3.31)$$

Cette contribution positive à l'indice de réfraction n'est valable que tant que l'atome n'est pas ionisé car l'ion produit a une polarisabilité très inférieure à celle de l'atome. On peut aussi remarquer que la contribution de la dispersion atomique à l'indice est proportionnelle à la pression.

La dispersion électronique :

Le vecteur d'onde k_1 du laser infrarouge est dépendant de l'ionisation du milieu par la loi bien connue pour les plasmas qui donne la variation de l'indice en fonction de la densité électronique n_e

$$n(\omega) = \sqrt{1 - \frac{n_e}{n_c(\omega)}} \quad (3.32)$$

où n_c est la densité critique et vaut :

$$n_c = \frac{\omega^2 m_e}{\mu_0 c^2 e^2} \quad (3.33)$$

ω est la pulsation du laser, m_e , et e respectivement la masse et la charge de l'électron, μ_0 et c les constantes fondamentales du vide.

On en déduit directement la variation de vecteur d'onde induite par l'ionisation, dans le cas où $n_e \ll n_c$ pour lequel le développement limité de la racine carrée est possible :

$$dk_1 = dn \frac{W}{c} = -\frac{n_e}{2n_c} \frac{W}{c} \quad (3.34)$$

3.4.1.3. Bilan intermédiaire : influence de la pression sur la longueur de déphasage :

Les équations précédentes permettent d'écrire le vecteur d'onde du laser sous la forme suivante :

$$k_1 = n \frac{W}{c} - \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) = \frac{W}{c} \left(1 - \frac{n_e}{2n_c} + dn_{at}\right) - \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (3.35)$$

Avant d'aborder les facteurs atomiques intervenant dans le calcul du déphasage, on peut remarquer que les termes de dispersion atomique et électronique sont de signes opposés, avec une dispersion atomique susceptible de compenser en début d'impulsion le gradient de phase de Gouy. Il y aura compensation suffisante si le signe du désaccord total de vecteur d'onde est négatif avant que l'ionisation ne se produise au sein du milieu. Cette dernière induira en effet un accroissement du désaccord de vecteur d'onde à travers l'augmentation de n_e et la diminution de n_{at} . Le terme de gradient de phase de Gouy ne dépend pas de la pression alors que la dispersion atomique croît linéairement avec la densité du milieu. L'équation de compensation porte donc sur la densité ρ :

$$r \frac{W}{c} c_{at} = \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right) \quad (3.36)$$

c_{at} est la polarisabilité du milieu, les valeurs numériques sont données pour chaque gaz dans l'équation (3.31). Nous montrons sur la figure (3.10) la variation temporelle de la longueur de déphasage issue des calculs de taux d'ionisation pour différentes valeurs de la pression d'argon dans la cellule. Dans les conditions expérimentales présentées ici (longueur de Rayleigh de 10 mm), tant que la pression reste inférieure à 40 torr, la longueur de déphasage (moyennant $k_q=1$ et $K=0$) ne passe pas par une valeur infinie alors que ce phénomène se produit pour des valeurs de pression plus élevées. On remarque également qu'une pression élevée permet de reculer vers le maximum de l'impulsion l'instant où le maximum de la longueur de déphasage est atteint, ce qui favorise une plus grande réponse atomique du milieu (intensité plus élevée).

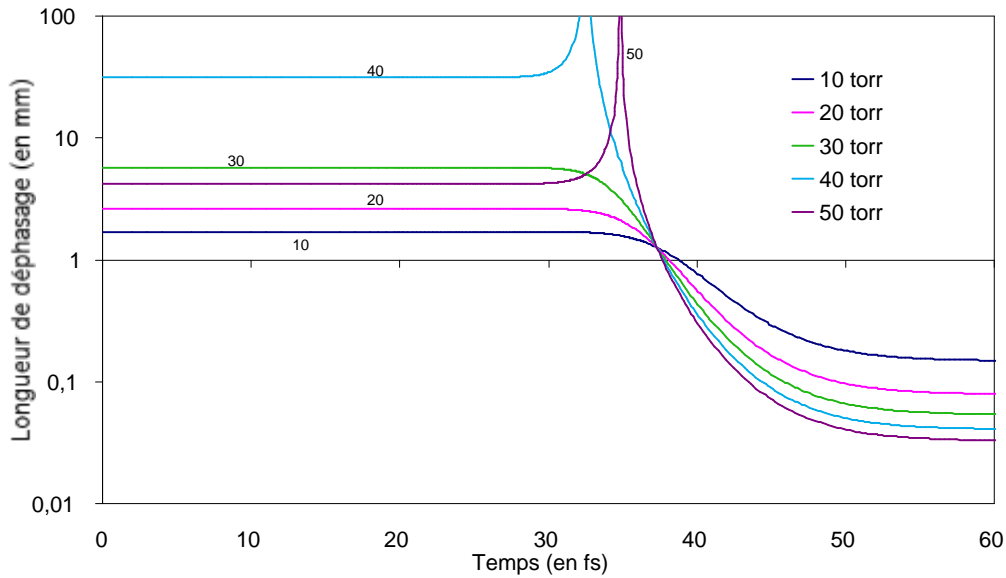


Figure 3.10 : Variation temporelle de la longueur de déphasage de l'harmonique 25 générée dans l'argon pour différentes valeurs de la pression : longueur de Rayleigh 10 mm, intensité 3.10^{14} W/cm², le maximum de l'impulsion de durée 30 fs correspond à t=50 fs.

On peut approfondir cette réflexion en calculant le taux d'ionisation qui permet à la longueur de déphasage de prendre une valeur infinie par équilibrage entre les deux termes de dispersion et la phase de Gouy. L'équation (3.35) permet de déduire la condition suivante :

$$P_{ionis} = \frac{\mathbf{dn}_{at} - \frac{c}{\mathbf{w}} \left(\frac{1/z_0}{1+(z/z_0)^2} \right)}{\frac{N_0}{2n_c} + \mathbf{dn}_{at}} \quad (3.37)$$

où N_0 est la densité du milieu.

Pour améliorer la réponse dipolaire, on aura intérêt à ce que le maximum de la longueur de déphasage ait lieu pour une intensité élevée donc une valeur de P_{ionis} également élevée. P_{ionis} est optimisée en augmentant la pression du milieu mais aussi la longueur de Rayleigh du laser. Nous avons jusqu'à présent négligé le gradient de phase propre du dipôle harmonique. Cela n'est bien sûr pas possible dans tous les cas. Nous montrerons dans la partie suivante l'influence des deux derniers termes sur l'accord de phase : k_q et K .

3.4.2. Le vecteur d'onde harmonique k_q

L'indice du milieu vu par les longueurs d'onde harmoniques est très proche de 1. La dispersion atomique est ici complètement négligeable tout comme la variation d'indice due à l'ionisation variant comme la longueur d'onde au carré (équation (3.37)) : $k_q = q\omega/c$.

3.4.3. Le gradient de phase propre K

Le seul terme de déphasage induit par les ondes harmoniques elles mêmes vient de la phase atomique du dipôle introduite plus haut. Elle varie proportionnellement à l'intensité et la

contribution à la variation du désaccord de vecteur d'onde sera, pour un faisceau gaussien d'intensité maximale I_0 et de longueur de Rayleigh z_0 :

$$K = -a \frac{qI}{z} = \frac{2aI_0 z / z_0^2}{(1 + (z/z_0)^2)^2} \quad (3.38)$$

Ce terme est le seul à introduire une dissymétrie de part et d'autre du foyer car il change de signe avec z . L'accord de phase sera meilleur sur l'axe pour z positif car K est alors positif et peut compenser le terme de dispersion électronique négative par exemple. L'effet inverse se produira pour z négatif, c'est-à-dire quand la cellule sera placée avant le foyer du laser.

3.4.4. Bilan final

Toutes les considérations précédentes permettent d'aboutir au calcul effectif du désaccord de vecteur d'onde :

$$\mathbf{dk} = k_q - qk_1 - K$$

$$\mathbf{dk} = \frac{qw}{c} \left(\frac{n_e}{2n_c} - \mathbf{dn}_{at} \right) + \frac{q/z_0}{(1 + (z/z_0)^2)} - \frac{2aI_0 z / z_0^2}{(1 + (z/z_0)^2)^2} \quad (3.39)$$

Le dernier point à aborder dans les considérations sur la propagation des harmoniques dans leur milieu générateur est la notion de longueur d'absorption, qui en cas d'accord de phase limite les efficacités de conversion.

3.5. La longueur d'absorption pour les harmoniques

Cette notion a déjà été abordée dans le paragraphe 3.2, mais sans indiquer les ordres de grandeur habituels de cette longueur, qui sont d'une grande importance pour comprendre dans quel régime d'accord de phase on se place.

On rappelle que, par définition, la longueur d'absorption est la distance de propagation au bout de laquelle un rayonnement est atténué par absorption d'un facteur $1/e$. Si le flux vaut F_0 en début de milieu et qu'il n'y a pas d'autre terme source, il vaudra $F_0 \exp(-L/L_{abs})$ au bout d'une distance L . La transmission T d'une certaine longueur L de milieu est liée à l_{abs} par $l_{abs} = -L/\ln(T)$. C'est ainsi que l'on calcule les longueurs d'absorption à partir des valeurs de transmission extraites du site du CXRO [16] (cf figures (3.11), (3.12), (3.13)).

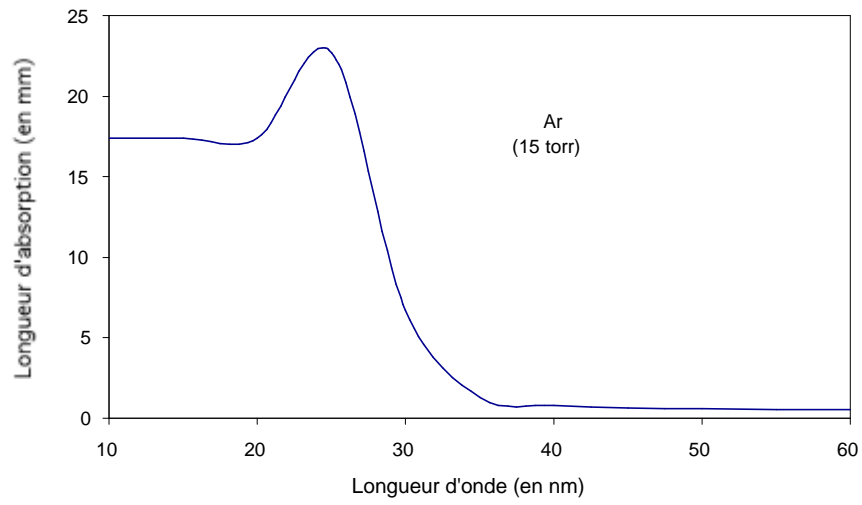


Figure 3.11 : Longueur d'absorption dans l'argon pour une pression de 15 torr en fonction de la longueur d'onde.

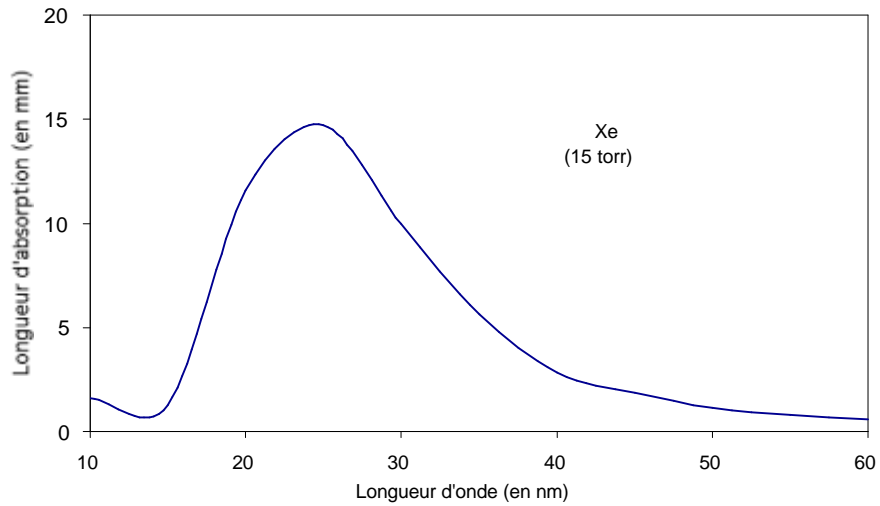


Figure 3.12 : Longueur d'absorption pour le xénon pour une pression de 15 torr en fonction de la longueur d'onde.

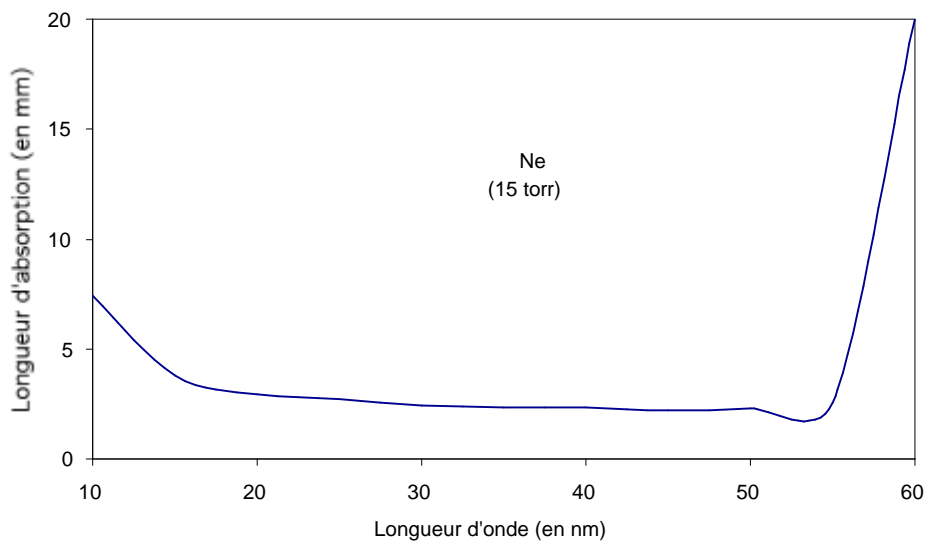


Figure 3.13 : Longueur d'absorption dans le néon pour une pression de 15 torr en fonction de la longueur d'onde.

D'un point de vue microscopique, l'absorption par un gaz rare d'un photon de longueur d'onde fixée peut induire une ionisation de celui-ci si l'énergie contenue dans le photon est supérieure au seuil d'ionisation de l'atome considéré. C'est pourquoi l_{abs} est inversement proportionnelle à la section efficace de photoionisation (σ) : $l_{\text{abs}}=1/\sigma\rho$ où ρ est la densité de gaz (l'absorption est proportionnelle au nombre d'absorbeurs potentiels). La section efficace de photoionisation permet de calculer la probabilité d'absorption d'un photon par l'atome en vue d'émettre un électron. La génération d'harmoniques correspond au phénomène strictement inverse : un électron accéléré par le laser se recombine avec son ion parent pour émettre un photon. Une grande section efficace de photoionisation à une longueur d'onde donnée impliquera donc une petite longueur d'absorption mais aussi une émission harmonique plus importante. Les dipôles harmoniques les plus intenses du spectre d'un gaz donné sont donc aussi ceux pour lesquelles la longueur d'absorption est la plus faible.

Comme nous l'avons vu et nous le verrons plus amplement plus tard, la longueur d'absorption est une grandeur fondamentale pour la génération d'harmoniques. De plus, elle peut varier considérablement d'un gaz à l'autre et d'une harmonique à la suivante comme c'est le cas pour les harmoniques efficaces dans l'argon : pour une pression de 15 torr, elle varie de 7 mm pour l'harmonique 27 à seulement 700 microns pour l'harmonique 19. Le tableau suivant récapitule les valeurs en mm utiles pour la compréhension des expériences :

Ordre harmonique	$L_{\text{abs}}\text{Ne}(\text{mm})$	$L_{\text{abs}}\text{Xe}(\text{mm})$	$L_{\text{abs}}\text{Ar}(\text{mm})$
51	3,8	1,84	17
49	3,58	1,84	17
47	3,38	2,89	17
45	3,38	2,89	17
43	3,24	3,6	17
41	3,07	11,59	17
39	2,94	14,2	17
37	2,8	14,6	19

35	2,8	14,94	22
33	2,75	14,92	23
31	2,73	14,7	22
29	2,64	13,37	19
27	2,54	10,82	7
25	2,38	8,2	2,74
23	2,37	6,44	1,46
21	2,34	3,45	0,95
19	2,28	2,38	0,72
17	2,2	1,57	0,61
15	2,56	0,94	0,57

Tableau récapitulatif 3.14 : Longueurs d'absorption en mm pour néon, argon, xénon à une pression de 15 torr et pour les principaux ordres harmoniques visibles dans un spectre

3.6. Code de calcul de l'accord de phase dépendant du temps

Nous rappelons que le processus de génération d'harmoniques implique des phénomènes dont la variation en temps est très rapide. Le dipôle harmonique lui-même varie comme une loi de puissance de l'intensité du laser, de plus l'accord de phase dépend fortement de l'ionisation à travers les variations des dispersions atomique et électronique. La première étape d'un code de simulation de génération d'harmoniques est donc le calcul des taux d'ionisation.

3.6.1. Les taux d'ionisation ADK et le calcul du déphasage

Les formules les plus communément utilisées sont celles des taux dits ADK (pour Ammosov, Delone et Krainov). L'expression de ces taux est relativement complexe, notamment à cause de l'utilisation de potentiels issus de la méthode du défaut quantique pour ramener le cas des atomes lourds au cas plus simple de l'atome d'hydrogène. L'interprétation de la valeur de chaque terme de l'équation est parfois ambiguë et la dépendance en les nombres quantiques l , m , n peut varier d'un auteur à un autre. Pour toutes ces raisons, les taux qui seront utilisés par la suite dans le programme sont issus de l'article [17] dans lequel les auteurs donnent une valeur corrigée des taux ADK et surtout élimine la dépendance problématique en l , m ,

$$w_{ADK} = \sqrt{\frac{3n^* F}{pZ^3}} \frac{FD^2}{8pZ} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^* F}\right)$$

avec

$$n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}} \quad (3.40)$$

$$D = \left(\frac{4eZ^3}{Fn^{*4}}\right)^{n^*}$$

Z est la charge de l'ion produit (pour les harmoniques : $Z=1$) et F est le champ laser relié à l'intensité par :

$$F(V/m) = \sqrt{8p \cdot 10^{-7} c \cdot 10^4 \cdot I(W/cm^2)} \quad (3.41)$$

Les unités utilisées pour la formule ci-dessus sont les unités atomiques : l'unité atomique d'énergie est par définition deux fois le potentiel d'ionisation de l'hydrogène et vaut 27,2 eV tandis que l'unité atomique de champ électrique vaut $5,14 \cdot 10^{11}$ V/m, c'est le champ électrique qui lie le noyau et l'électron dans l'atome de Bohr. L'unité de temps atomique est $2,41 \cdot 10^{-17}$ s.

En exprimant les taux en s^{-1} pour les rendre utilisables dans les calculs, on obtient leur loi de variation avec l'intensité suivant la nature du gaz étudié.

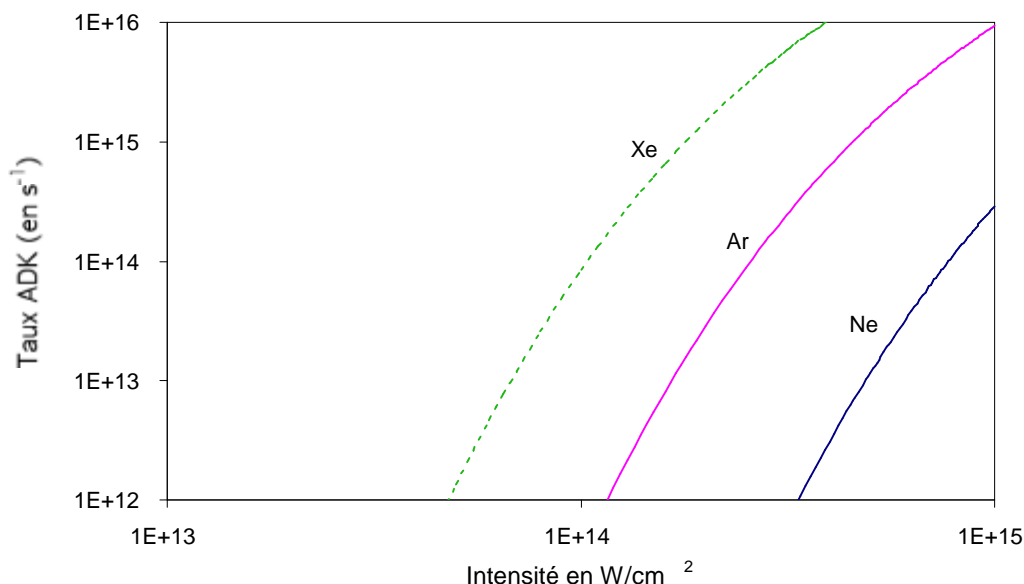


Figure 3.15 : Evolution des taux d'ionisation ADK de première ionisation en fonction de l'intensité pour trois gaz rares.

Les taux ADK permettent de résoudre un système d'équations aux populations atomique et ionique et de calculer la probabilité d'ionisation d'un atome soumis à une impulsion laser de durée et d'intensité fixées.

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}[N^0] &= -w_{ADK}(F(t)) \cdot [N^0] \\ \frac{d}{dt}[N^+] &= +w_{ADK}(F(t)) \cdot [N^0] \end{aligned} \quad (3.42)$$

$[N^0]$ et $[N^+]$ sont les concentrations respectives d'atomes neutres et d'espèce une fois ionisée, la concentration électronique est égale à $[N^+]$. Il est possible de généraliser ce système au cas où l'intensité dans le milieu est telle que plusieurs états successifs d'ionisation sont atteints ; c'est rarement le cas dans les conditions de génération d'harmoniques que nous allons étudier. La figure (3.16) montre les degrés d'ionisation de l'argon en fonction du temps pour différentes valeurs usuelles de l'intensité laser.

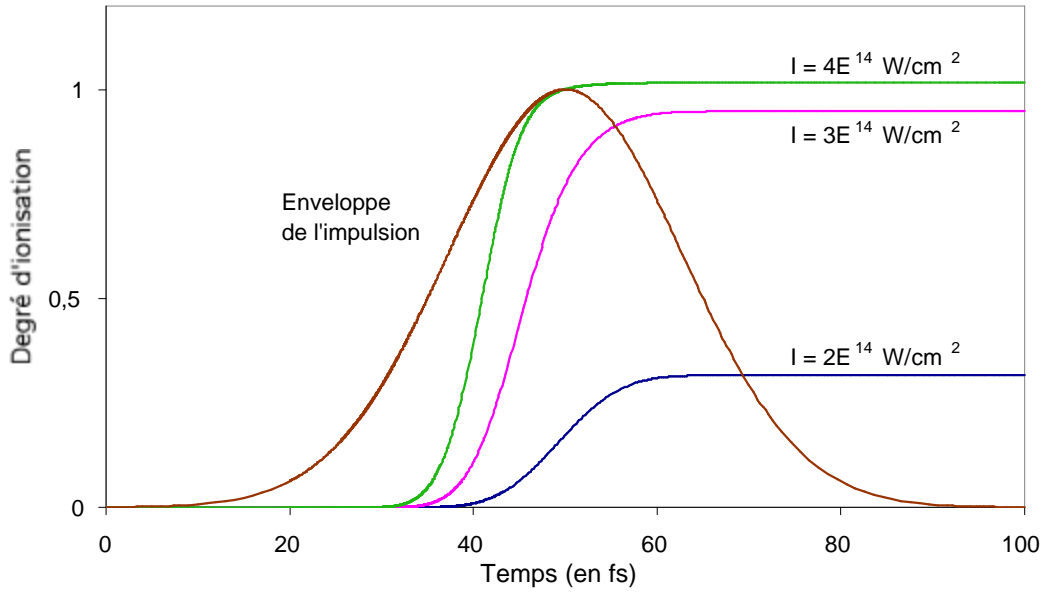


Figure 3.16 : Evolution du degré d'ionisation calculé dans l'argon avec les taux ADK pour une impulsion de durée 30 fs et d'intensité variable, le maximum se situant à 50 fs. Pour $I=10^{14}$ W/cm², ce taux est pratiquement nul, tandis que dès que $I>3.10^{14}$ W/cm², l'ionisation est presque totale. Enfin, si I dépasse 5.10^{14} W/cm², on peut ioniser des états de charge supérieurs.

3.6.2. Le calcul du déphasage

Dans le programme de simulation, on calcule d'abord les concentrations électroniques dépendantes du temps. Ces valeurs sont ensuite utilisées pour le calcul du déphasage entre le faisceau harmonique et le faisceau laser infrarouge. Cette phase dépend de très nombreux paramètres, tels que la position relative cellule-foyer, le taux d'ionisation, la longueur de la cellule, la longueur de Rayleigh, etc. Comme il a été exposé ci-dessus, le nombre de photons émis sur l'axe par unité de temps et de surface est proportionnel à l'intégrale suivante :

$$N_{out}(t) \propto \left| \int_0^{l_{med}} |dq(z)| \exp\left(\frac{z-l_{med}}{2l_{abs}}\right) \exp(i\mathbf{j}(t,z)) dz \right|^2 \quad (3.43)$$

Il est important de préciser les notations qui seront utilisées, notamment dans le cas où la cellule est placée avant le foyer. L'intégrale devra être faite sur la longueur de la cellule (ζ va de 0 à l_{med}), mais de nombreuses grandeurs sont définies par rapport au foyer du laser (z est tel que l'entrée de la cellule est en z_{cell}). La figure (3.17) résume cela graphiquement.

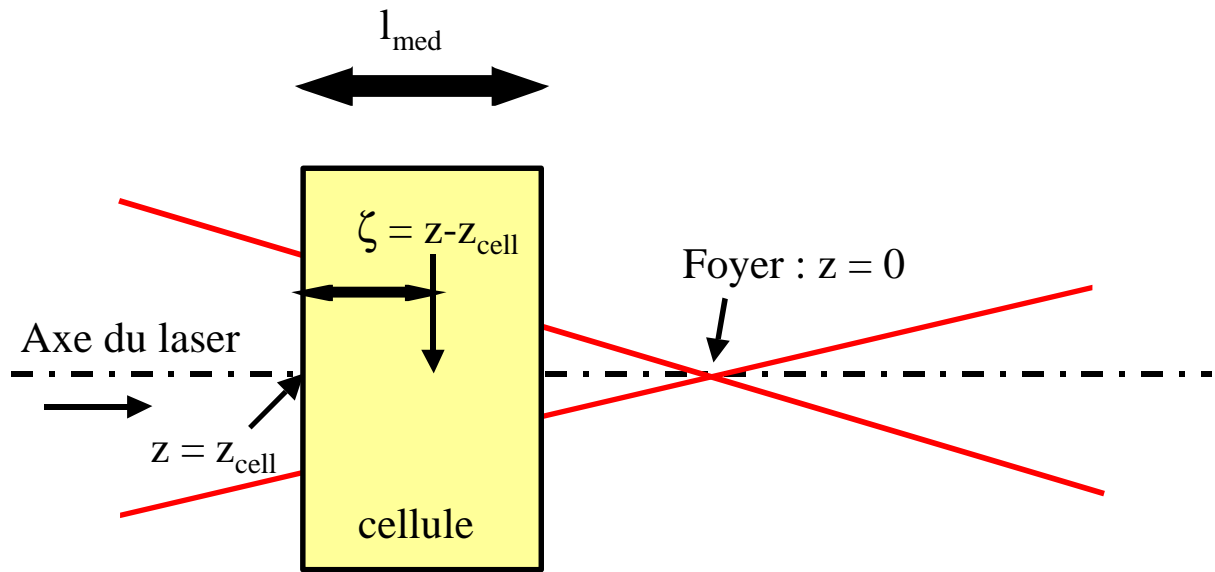


Figure 3.17 : Schéma récapitulatif des notations utilisées dans le calcul de N_{out} .

Avec les conventions énoncées plus haut, la phase à l'intérieur de l'intégrale s'écrit :

$$\mathbf{j}(\mathbf{z}, t) = \mathbf{z} \cdot \mathbf{dk}_{disp} + q \arctan\left(\frac{\mathbf{z} + z_{cell}}{z_0}\right) + \mathbf{a}I(\mathbf{z} + z_{cell}) \quad (3.44)$$

δk_{disp} contient les termes de dispersions électronique et atomique.

Le carré du dipôle peut lui aussi être inclus dans l'intégrale, il varie comme la puissance cinquième de l'intensité [5] et dépend donc de la position z . Une correction au dipôle doit être apportée en cas d'ionisation : seuls les atomes non ionisés peuvent émettre des harmoniques dans notre modèle, on multiplie le dipôle par la concentration de neutres encore présents dans le milieu.

Par intégration de la formule précédente on obtient un flux instantané de photons qu'il reste à intégrer sur toute la durée de l'impulsion pour obtenir un nombre proportionnel au nombre de photons émis dans une harmonique donnée par impulsion.

La figure (3.18) suivante montre dans un cas typique de nos conditions expérimentales, l'évolution temporelle des différents facteurs entrant dans l'accord de phase. On représente la valeur algébrique des désaccords de vecteurs d'onde associés respectivement aux dispersions atomique et électronique, aux gradients de phase de Gouy et de phase atomique

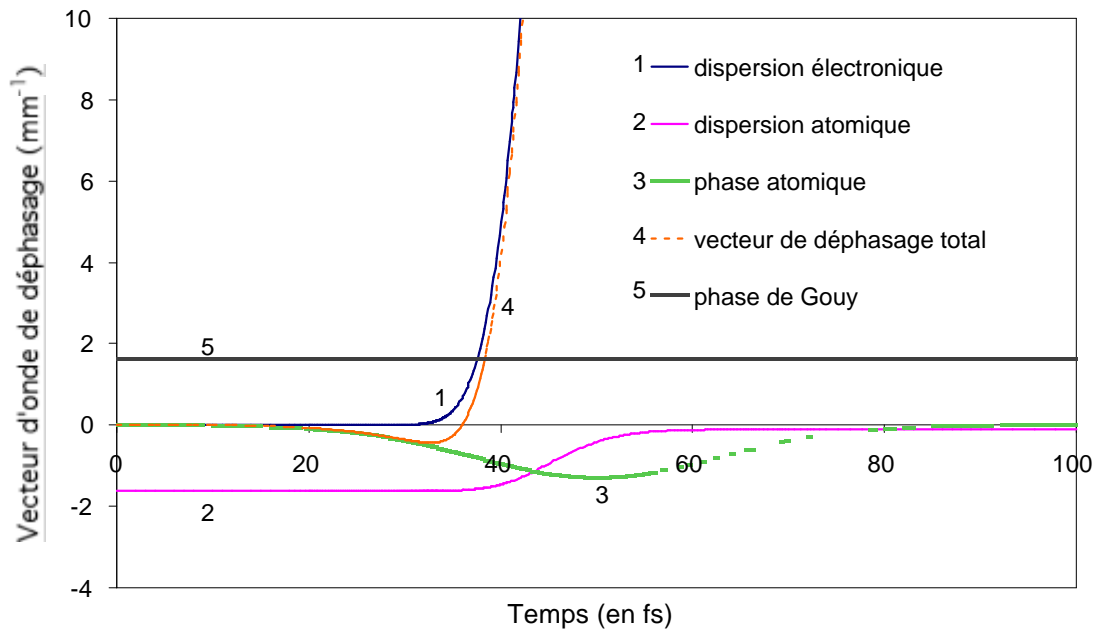


Figure 3.18 : Evolution temporelle des différents paramètres entrant dans l'accord de phase de l'harmonique 25 générée dans l'argon. Longueur de Rayleigh de 15 mm, intensité laser de 3.10^{14} W/cm², cellule 2 mm après le foyer, 25 torr d'argon. Impulsion centrée à 50 fs et de largeur 30 fs.

3.6.3. Les avantages du code 1D

Ce code 1D présente l'avantage d'être facilement modifiable pour pouvoir étudier l'influence de n'importe quel paramètre entrant en jeu dans la génération d'harmoniques. Le calcul est quasi instantané et l'on a accès à la dépendance en temps de toutes les grandeurs pertinentes. Ce code est écrit sous le logiciel Matlab et nous a permis non seulement de comprendre de façon plus approfondie les points importants de la génération d'harmoniques dans nos conditions expérimentales mais aussi de reproduire assez fidèlement les données plus quantitatives (voir par exemple chapitre 5).

Nos conditions de génération (focalisation douce) et de collection du rayonnement harmonique (sur l'axe et avec un faible angle solide) étaient bien adaptées à l'utilisation d'un code unidimensionnel. À titre d'exemple, nous allons l'utiliser pour illustrer les diverses conditions utilisées pour la génération d'harmoniques par les équipes dont nous avons rapporté les efficacités de conversion à la fin du chapitre précédent.

3.7. Illustration des différentes méthodes d'accord de phase

Nous allons étudier, au moyen du même modèle, 3 configurations différentes d'accord de phase afin de comprendre ce qui fait la spécificité de chacune et de voir que les expériences étant toute en limite d'absorption, on observe cependant des différences dans les efficacités de conversion obtenues.

En effet, la condition dite de « limite d'absorption » impose des valeurs minimales à la longueur de déphasage et à la longueur du milieu à partir de la longueur d'absorption (cf. équation (3.28)). Ce critère d'accord de phase longitudinal n'évoque pas les autres dimensions du problème qui sont le temps et l'espace transverse. On peut en effet se demander pendant combien de temps durera l'accord de phase et quelle sera alors la valeur du dipôle atomique. Le code 1D présenté ci-dessus peut bien répondre à ces différentes questions.

3.7.1. La configuration capillaire à partir de l'article de Durfee et al. [18]

Cet article présente les conditions de génération d'harmoniques en capillaires creux sans toutefois donner d'efficacité de conversion chiffrée, on peut supposer qu'elle est proche de celle publiée par la même équipe dans la revue Science datée de 2002 [19].

Les conditions de génération sont ici une intensité faible ($1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$), une pression modérée (15-30 torr) et une longueur de milieu de 5cm composée de trois capillaires mis bout à bout (celui du milieu fait 3 cm et assure une pression constante). Le taux d'ionisation ne dépasse pas 1% et un très bon accord de phase est obtenu par compensation des dispersions électronique et atomique pendant toute la durée de l'impulsion. La contrepartie est que le dipôle est peu intense. C'est l'inconvénient majeur de la configuration capillaire.

La propagation du faisceau laser dans un capillaire implique au premier ordre que l'intensité est constante dans le milieu sur tout l'axe de propagation, mais il ne faut pas oublier que le guide d'onde qu'est le capillaire implique une dispersion négative. En effet, le vecteur d'onde du fondamental s'écrit dans ces conditions :

$$k_f = \frac{2p}{1} - \frac{u_{11}^2 I}{4pa^2} \quad (3.45)$$

avec $u_{11} = 2,405$ et $a = \text{rayon du capillaire}$

Dans le cas de l'expérience de Durfee et al., [18] a vaut 75 microns et la variation de la norme du vecteur d'onde vaut $6,55 \cdot 10^{-2} \text{ mm}^{-1}$. Il est d'ores et déjà intéressant de comparer cette valeur à celle qu'induirait la phase de Gouy d'un faisceau laser, de longueur de Rayleigh z_0 , en propagation libre :

$$dk_{Gouy} = \frac{1/z_0}{1 + (z/z_0)^2} \quad (3.46)$$

La valeur de la longueur de Rayleigh qui donnerait une dispersion de vecteur d'onde analogue à celle induite par le guide d'onde dans la configuration capillaire est de 15 mm. On comprend alors aisément que la configuration propagation libre devient équivalente à celle de la propagation guidée dès lors que la focalisation est assez douce.

La figure (3.19) est issue du code et représente la variation au cours de l'impulsion du facteur d'accord de phase et du dipôle atomique, le flux harmonique étant l'intégrale en temps du produit des deux. On remarque que ce facteur d'accord de phase est très bon tout au cours de l'impulsion, on se place ici clairement dans le cadre de la limite d'absorption.

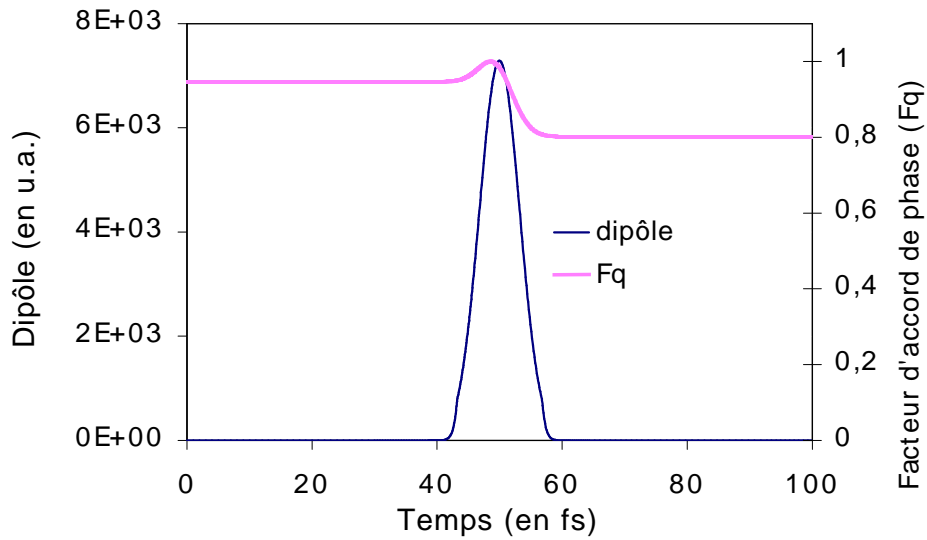


Figure 3.19 : Evolution des paramètres microscopique et macroscopique dans la génération de l'harmonique 23 dans l'argon en capillaire, telle que rapportée dans l'article [18] (pression=28 torr, intensité $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, durée d'impulsion 20 fs longueur de milieu 3cm centrée sur 50 fs).

3.7.2. La configuration de focalisation douce

En optimisant les efficacités de conversion dans nos conditions expérimentales, nous avons observé un maximum pour une focalisation douce correspondant à une longueur de Rayleigh proche de 20 mm. L'intensité est alors supérieure à celle de la configuration en capillaire, de même que l'intensité du dipôle au moment d'un bon accord de phase. De plus, l'intérêt de la propagation libre est que la présence de la phase atomique (pour le deuxième chemin quantique, et si la cellule est placée après le foyer) peut améliorer l'accord de phase et lui permettre d'avoir lieu plus près du maximum de l'impulsion.

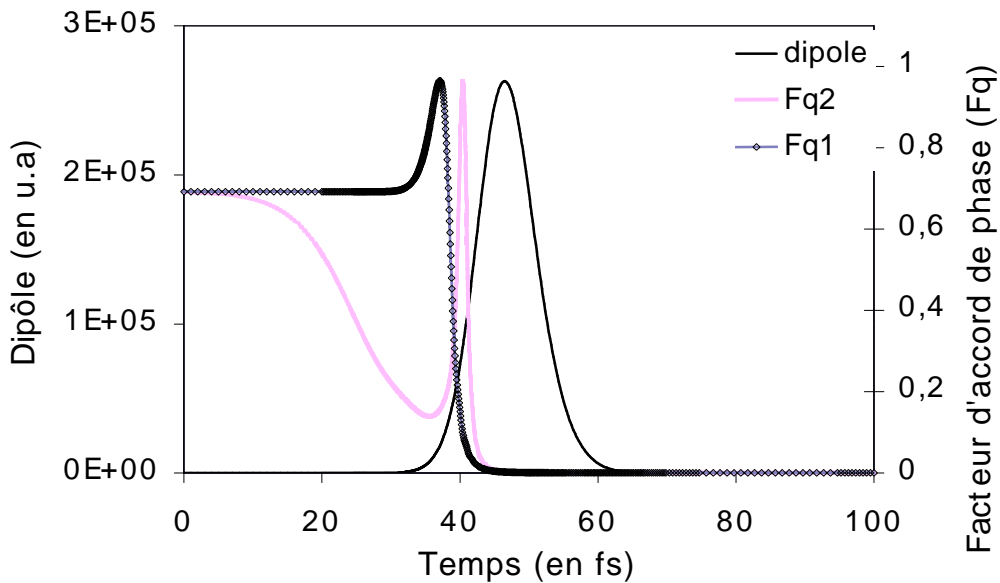


Figure 3.20 : Evolution des paramètres microscopiques et macroscopiques dans la génération de l'harmonique 23 dans l'argon en propagation libre et focalisation douce (pression=20 torr, intensité $3 \cdot 10^{14}$ W/cm², durée d'impulsion 30 fs, longueur de Rayleigh de 20 mm, longueur de milieu 8mm).fq1 et fq2 sont respectivement les facteurs d'accord de phase des chemins 1 et 2.

Cette amélioration du signal harmonique due à la présence de la phase atomique est confirmée expérimentalement par la courbe présentée sur la figure (3.21) qui donne le nombre de photons produits en fonction de la position relative foyer/cellule. Un bon accord est obtenu entre les résultats du code pour le deuxième chemin quantique et les données expérimentales. Une large zone d'optimisation du signal est observée pour z positif, donc un gradient d'intensité négatif. Cette zone a une étendue équivalente à la longueur de Rayleigh du faisceau (17 mm dans ce cas).

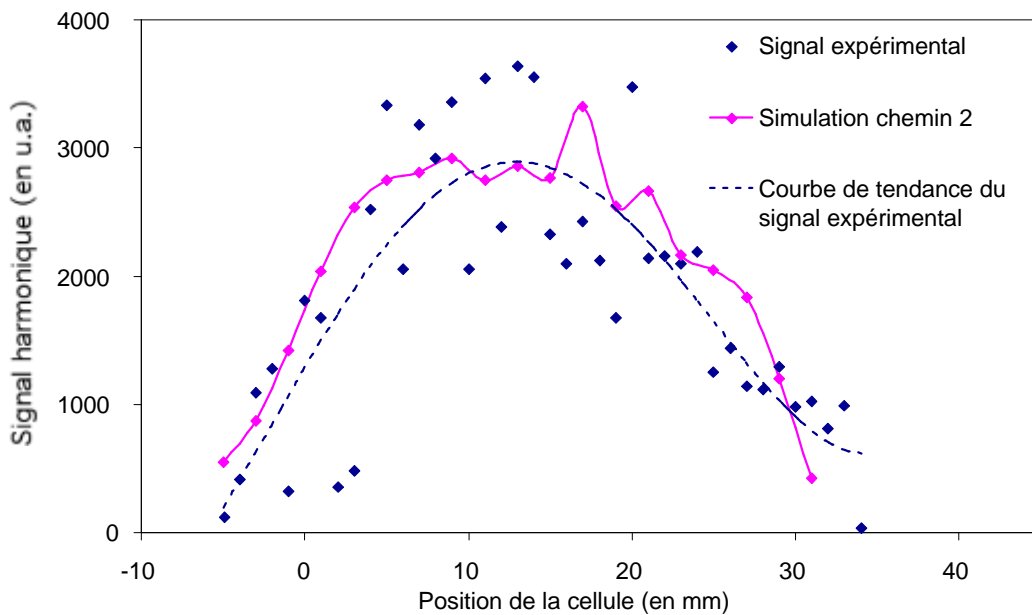
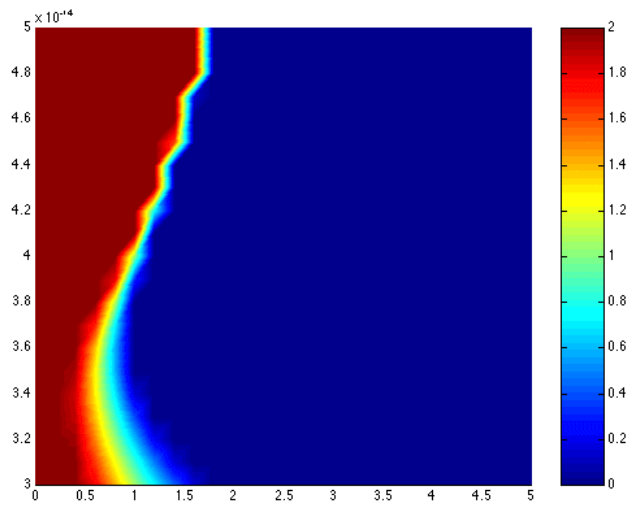


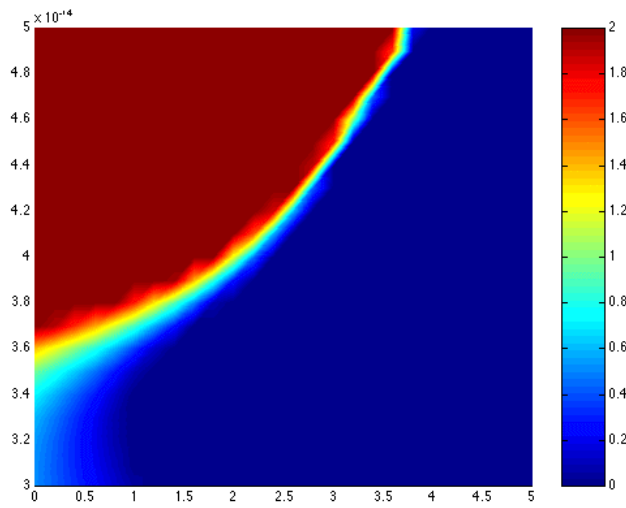
Figure 3.21 : Variation du signal de l'harmonique 23 générée dans l'argon en fonction de la position relative foyer - cellule. Pression 15 torr, diaphragme 12 mm longueur de cellule 4 mm.

Nous pouvons adopter l'approche utilisée dans la référence [20] puis dans la thèse de doctorat de R. Haroutunian [15] pour représenter graphiquement les zones d'accord de phase. La figure (3.22) montre le cas de trois longueurs de Rayleigh différentes : 5mm, 10 mm et 15 mm. On considère la génération de l'harmonique 25 dans l'argon à une intensité maximale de $3 \cdot 10^{14}$ W/cm². La cellule mesure 5 mm, c'est-à-dire environ 3 fois la longueur d'absorption pour une pression de 30 torr. Son entrée est placée au foyer. Un bon accord de phase sera représenté par un désaccord de vecteur d'onde dont la norme n'excède pas $\frac{P}{5l_{abs}}$ soit environ $0,4 \text{ mm}^{-1}$ (zone en bleu d'après l'échelle de couleur utilisée dans les figures 3.22 ci-dessous). La coordonnée x va de 0 à 5 et représente en mm la position dans la cellule, le foyer est en 0. La coordonnée y représente le temps entre 30 et 50 femtosecondes. Le maximum de l'impulsion est pour 50 fs et la durée d'impulsion est de 30 fs.

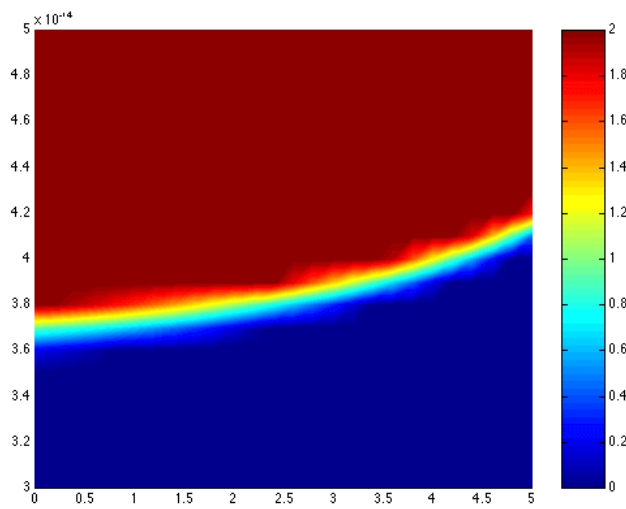
Chemin 2
 $z_0 = 5 \text{ mm}$



Chemin 2
 $z_0 = 10 \text{ mm}$



Chemin 2
 $z_0 = 20 \text{ mm}$



Figures 3.22 ci-dessus : Module du désaccord de vecteur d'onde (en mm^{-1}) pour les chemins 1 et 2 et différentes géométries laser en fonction du temps (le maximum de l'impulsion est en 50 fs) et de la coordonnée z sur l'axe de propagation.

On montre ainsi une nouvelle fois l'intérêt de la génération d'harmonique en configuration longue focale. Une grande longueur de Rayleigh permet d'assurer une zone étendue d'accord de phase homogène. En outre, la présence du deuxième chemin quantique permet de repousser les limites temporelles de l'accord de phase. Comme on s'y attend, l'effet sera moins spectaculaire pour une longueur de Rayleigh réellement très grande car le gradient d'intensité devient négligeable.

3.7.3. La configuration forte pression - forte focalisation [21]

Pour ce concept de génération d'harmoniques, toutes les longueurs en présence sont diminuées : taille du foyer, durée d'impulsion, longueur d'absorption. L'accord de phase est obtenu transitoirement, comme le montre le graphique suivant, mais l'intensité qui règne dans le milieu au moment de l'accord de phase est très importante, ce qui augmente la réponse atomique :

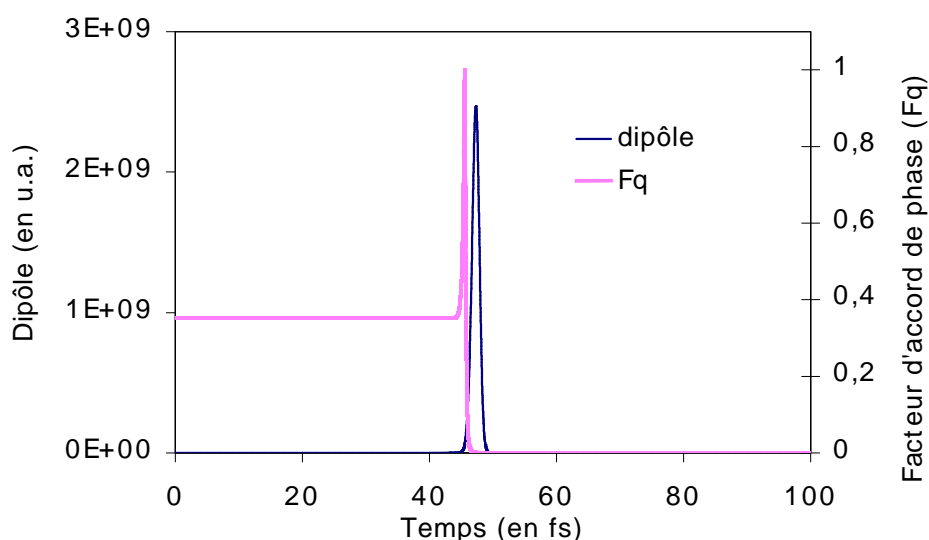


Figure 3.23 : Évolution des paramètres microscopique et macroscopique dans la génération de l'harmonique 23 dans l'argon (pression 300 torr, Intensité $7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, durée d'impulsion 7 fs, longueur de Rayleigh 3 mm = longueur de milieu), présenté dans la référence Schnürer et al. [21]

Les considérations précédentes permettent de mieux comprendre les avantages de notre configuration expérimentale et d'expliquer les bonnes efficacités de conversion que nous avons obtenues. Le caractère doux de la focalisation nous permet de nous placer dans une situation de propagation laser analogue à celle qu'on voit dans les capillaires avec toutefois une intensité supérieure (en pratique deux fois plus grande) qui nous permet d'avoir une réponse atomique plus efficace, et pendant une durée plus longue (30fs contre 20 fs pour la référence [18]). L'intérêt de la propagation libre est de pouvoir utiliser les potentialités de la phase atomique en termes d'accord de phase. La technique viennoise quant à elle présente un flux harmonique instantané exceptionnellement élevé mais pendant un instant très court et généré sur une distance très limitée

à cause de l'absorption. Notre configuration semble être un bon compromis entre ces deux extrêmes.

3.7.4. Le cas spécifique de l'autoguidage du faisceau et ses conséquences sur l'accord de phase

L'équipe de Tamaki et al. a publié dans la référence [22], une efficacité de conversion exceptionnellement élevée dans le néon (plus de 1 ordre de grandeur de plus que toutes les autres équipes). La raison invoquée est l'autoguidage du faisceau par compensation de la focalisation due à la lentille par la défocalisation due à l'ionisation. En effet, le terme d'ionisation introduit une courbure du front d'onde car l'indice est plus faible au centre que sur la périphérie du faisceau, aboutissant formellement à une lentille divergente. Cet effet ne se produit que si la cellule est placée avant le foyer du laser.

Dans la mesure où ce processus peut avoir lieu, les conséquences sur l'accord de phase semblent très intéressantes en ce sens que l'ionisation n'est plus aussi critique pour l'accord de phase. Cependant, il est bon de rappeler que l'autoguidage par ionisation est très sensible à de petites variations des caractéristiques du laser (intensité, propagation). Les derniers résultats obtenus en focalisation douce de lasers énergétiques font état également de ce phénomène d'autoguidage [23], [24].

3.8. Conclusion du chapitre

Ce chapitre a permis d'exposer tous les paramètres qui pouvaient avoir une influence sur la génération d'harmoniques tant du point de vue microscopique que macroscopique. L'utilisation d'un code 1D basé sur les considérations précédentes a permis d'analyser différentes possibilités d'accord de phase et de conclure que nos configurations expérimentales correspondent à un bon compromis entre les termes dipolaires (qui exigent une forte intensité pour être conséquents) et la problématique de l'accord de phase qui peut être détruit par une ionisation trop importante. On a montré que l'utilisation appropriée de la phase atomique permet d'améliorer les efficacités de conversion en décalant le moment de l'accord de phase vers le maximum de l'impulsion. Enfin, les expériences de génération d'harmoniques en faisceau autoguidé par l'ionisation ouvrent de nouvelles possibilités pour la génération d'harmoniques en présence d'une forte ionisation.

3.9. Références du chapitre 3:

- [1] Agostini et al., IEEE J. Quantum Electron. **QE-4**, 667 (1968)
- [2] Ammosov, Delone et Krainov (ADK) JETP **64**, 1991 (1986)
- [3] Ilkov et al., J. Phys. B **25**, 4005 (1992)
- [4] Taïeb et al., Phys. Rev. Lett. **87** (2001)
- [5] Lewenstein et al., Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
- [6] Kulander et al., in Proceedings of the super intense laser atom physic III workshop, vol. 316 of NATO Advanced study institute, series B/Physics, edited by B. Piraux (Plenum Press, New York, 1993)
- [7] Corkum et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
- [8] Wahlström et al., Phys. Rev. A, **48**, 4709 (1993)
- [9] Muller et al., Phys. Rev. Lett., **81**, 1207 (1998)
- [10] Lewenstein et al., Phys. Rev. A, **52**, 4747 (1995)

- [11] Balcou et al., J. Phys. B, **32**, 2973 (1999)
- [12] Cours d'optique non linéaire de l'ENSTA
- [13] Constant et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999)
- [14] Siegman, Lasers (The University of California, 1986)
- [15] Haroutunian, thèse de doctorat de l'école Polytechnique (2001)
- [16] Site du CXRO: <http://www-cxro.lbl.gov>
- [17] Delone et al., Physics Uspekhi **41**,469 (1998)
- [18] Durfee et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 2187 (1999)
- [19] Bartels et al., Science, **297**, 376 (2002)
- [20] Balcou et al., Phys. Rev. A **55**, 3204 (1997)
- [21] Schnürer et al., Phys. Rev. Lett., **83**, 722 (1999)
- [22] Tamaki et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999)
- [23] Hergott et al., Phys. Rev. A **66**, 021801(R) (2002)
- [24] Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)