

La focalisation des harmoniques

Ce dernier chapitre est consacré à la focalisation des faisceaux harmoniques, étape capitale en vue d'atteindre des éclaircissements intéressants pour les applications en optique non linéaire dans le domaine XUV. Des faisceaux de rayonnement XUV issus de la génération d'harmoniques ont déjà été focalisés pour observer des phénomènes d'ionisation multiphotonique de gaz rares par exemple [1], [2]. Cependant, comme nous le verrons, les problèmes technologiques posés par la focalisation du rayonnement XUV sont très importants, ce qui explique que la caractérisation précise de la taille de la zone focale d'un faisceau harmonique a été réalisée seulement récemment.

Des expériences de focalisation du rayonnement harmonique ont déjà été réalisées par les équipes du CEA-Saclay [3] et de Vienne [4] durant l'année 2000. Pour la référence [3], l'optique de focalisation est une lentille de Bragg-Fresnel multicouche qui présente l'avantage d'une bonne réflectivité pour un angle d'incidence fixé par les caractéristiques de l'optique multicouche, en contrepartie, les impulsions se verront étalées temporellement par diffraction. De plus, chacun des ordres harmoniques compris dans la bande passante de la lentille aura un foyer distinct des ordres contigus. Ces propriétés sont intéressantes dans le cas d'expériences nécessitant une grande finesse spectrale de la source, mais peuvent considérablement diminuer les intensités maximales atteignables en un point cible. L'intensité évaluée après focalisation de 70 % du rayonnement compris dans l'harmonique 37 générée dans le néon sur une tache de 1,2 microns est de 5.10^8 W/cm². Pour le cas de l'harmonique 21 générée dans l'argon, donc plus énergétique, l'intensité estimée au foyer est de 2.10^{11} W/cm².

Nos choix technologiques sont très différents et répondent à l'objectif d'atteindre des intensités focalisées plus importantes. Notre optique de focalisation étant un miroir torique essentiellement achromatique, nous focalisons tous les ordres harmoniques présents dans le spectre en un même point, sans étalement temporel des impulsions. On peut même raisonnablement concevoir que des ordres harmoniques consécutifs interfèrent constructivement dans le domaine spectral pour produire des trains d'impulsions encore plus courts, de l'ordre de la centaine d'attosecondes, comme cela a été démontré dans l'expérience de l'équipe de P. Agostini [5] sur l'installation laser de la salle rouge du LOA où était également utilisé un miroir torique pour focaliser les harmoniques.

Dans une première partie, nous rappellerons les propriétés géométriques et optiques des miroirs toriques. Nous aborderons dans une seconde partie la caractérisation de la zone focale des harmoniques pour conclure ensuite sur l'estimation des intensités réellement atteintes dans nos conditions expérimentales.

7.1. Propriétés du miroir torique utilisé pour focaliser les harmoniques

7.1.1. Problèmes techniques liés à l'optique dans la gamme spectrale XUV

La réalisation et l'utilisation d'optiques adaptées au rayonnement XUV est très délicate en raison de nombreux problèmes liés à la longueur d'onde considérée. Tout d'abord, l'utilisation d'optiques en transmission, telles que les lentilles par exemple, est rendue impossible par la forte absorption des composés usuels à ces longueurs d'onde. Les optiques en réflexion doivent quant à elles être utilisées en incidence quasi rasante pour obtenir des réflectivités acceptables : elles sont

de l'ordre de 70 à 90 % pour des métaux comme l'or et le platine. Enfin, la longueur d'onde étant plus faible que celles des lasers couramment utilisés (30 nm contre 800nm), la qualité de surface des optiques doit être plus importante : les défauts potentiels sont en effet mesurés par rapport à la longueur d'onde utilisée. On comprend alors le prix très élevé de ces optiques adaptées aux harmoniques et au rayonnement XUV en général.

Il est également important de préciser que cette gamme spectrale exige de travailler entièrement sous vide pour éviter l'absorption du rayonnement par l'air ambiant, ce qui rend les réglages nettement plus délicats.

Nous avons choisi de caractériser la zone focale d'un faisceau harmonique focalisé par un miroir torique recouvert de platine. Ce miroir nous a été prêté par l'équipe d'optique XUV du Laboratoire d'Interaction du rayonnement X Avec la Matière (LIXAM) d'Orsay et était utilisé précédemment sur le rayonnement synchrotron. Ce type de miroir présente l'avantage sur les miroirs sphériques de focaliser le rayonnement dans deux directions donc de réduire la surface du foyer.

7.1.2. Principe optique du miroir torique

Un miroir torique est en fait l'association de deux surfaces focalisantes correspondant à deux plans d'incidence perpendiculaires. Elles sont caractérisées par deux rayons de courbure distincts (r, R) qui peuvent être très différents l'un de l'autre. Chacune de ces surfaces est localement assimilable à un miroir sphérique et focalise le rayonnement dans une direction. Pour un faisceau incident quelconque sur le miroir, l'image correspondant au petit rayon de courbure n'a en général aucune raison d'être confondue avec l'image correspondant au grand rayon de courbure. Si l'angle d'incidence n'est pas réglé très précisément, on observe deux foyers successifs, appelés foyers sagittal et tangentielle, comme le montre la figure suivante (7.1).

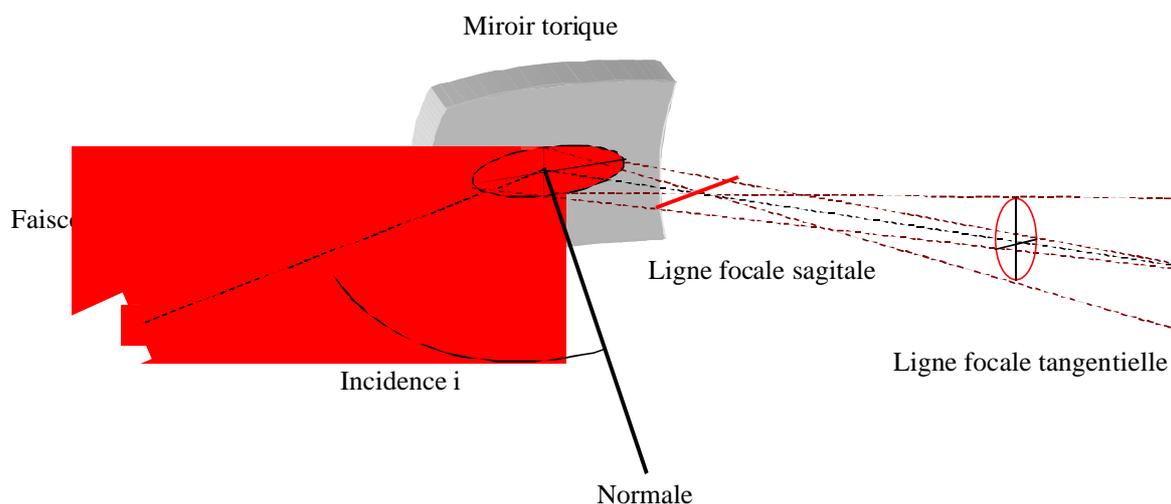


Figure 7.1 : Schéma d'optique géométrique d'un miroir torique.

Les relations de conjugaison d'optique géométrique appliquées à la surface sagittale sont d'après la référence [6] :

$$\frac{1}{s'} = \frac{1}{s} - \frac{2 \cos i}{r} \quad (7.1)$$

s est la distance objet, s' la distance image, i l'angle d'incidence et r le rayon de courbure sagittal.

Pour la surface tangentielle la relation de conjugaison est :

$$\frac{1}{t'} = \frac{1}{t} - \frac{2}{R \cos i} \quad (7.2)$$

t est la distance objet, t' la distance image et i l'angle d'incidence, R le rayon de courbure tangentiel.

Il existe une valeur de l'angle d'incidence pour laquelle les deux images sont confondues (t'=s') :

$$\frac{2}{R \cos i} = \frac{2 \cos i}{r} \Rightarrow \cos^2 i = \frac{r}{R} \quad (7.3)$$

Dans le cas où l'angle d'incidence est fixé par la relation (7.3), les deux foyers sont confondus et le rayonnement est bien focalisé dans les deux directions. Le réglage d'un miroir torique est une opération très délicate qui consiste à confondre les deux foyers sagittal et tangentiel. Dans nos conditions expérimentales, l'angle d'incidence correspondant est de 83,53° ce qui fait un angle de rasance de 6,5°.

On peut également obtenir par le calcul la valeur de la focale f du miroir dans ces conditions, elle est donnée par :

$$f = \frac{1}{2} \sqrt{rR} \quad (7.4)$$

Dans nos conditions, (r=2,6cm, R=2m), elle vaut 11,4 cm.

7.1.3. Configuration expérimentale de focalisation

Le miroir torique est placé à 1m50 en aval de la source harmonique. On peut donc considérer que la source harmonique est ponctuelle et située à l'infini dans l'espace objet du miroir. Le foyer du faisceau XUV sera alors situé environ 10 cm après le miroir. La figure ci-dessous représente le montage expérimental :

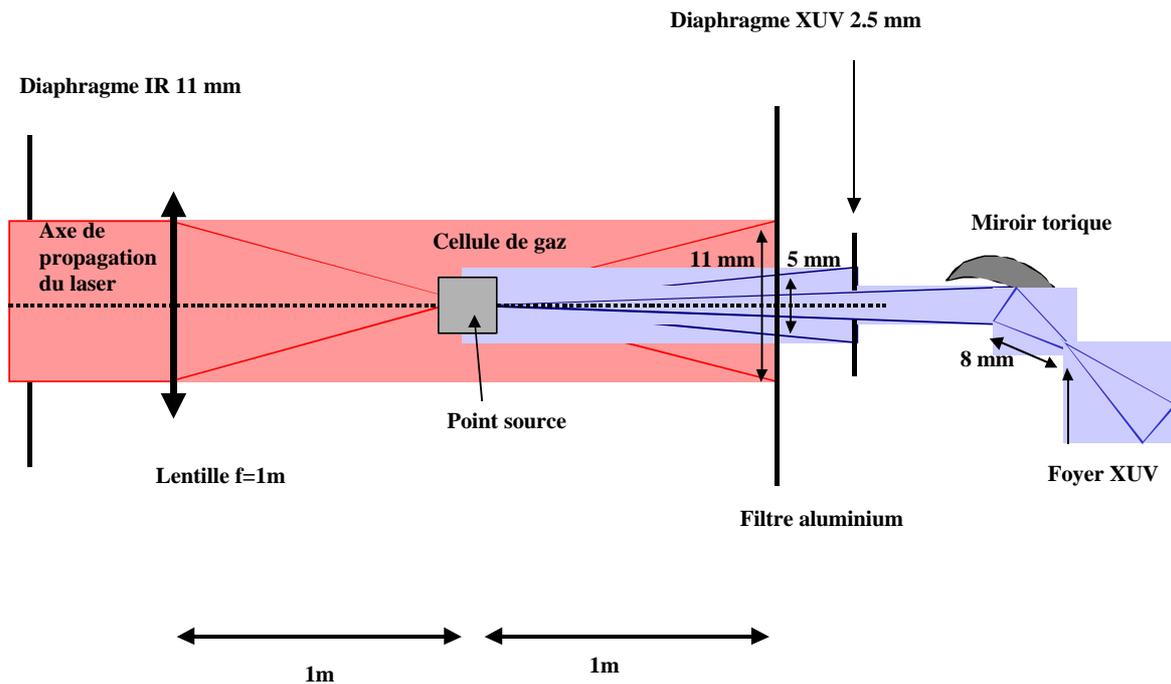


Figure 7.2 : Schéma du dispositif de focalisation des harmoniques par le miroir torique.

Le faisceau infrarouge est éliminé avant le miroir torique par un filtre en aluminium (voir chapitre 2). Cette méthode d'élimination présente l'inconvénient de ne transmettre que 20 à 40 % du rayonnement harmonique. En revanche, on s'assure ainsi qu'il n'y a pas de rayonnement infrarouge résiduel incident sur le miroir. Lors de l'élimination du rayonnement harmonique par d'autres méthodes telles que la diffraction par un réseau [1] ou l'utilisation de faisceaux annulaires pour générer les harmoniques [3], [5], une infime partie de ce faisceau peut éventuellement être focalisée par le miroir torique en même temps que les harmoniques et les intensités atteintes dans le domaine infrarouge sont susceptibles de perturber considérablement les résultats d'expériences de caractérisation du foyer ou d'application dans le domaine XUV.

La figure précédente permet également de caractériser les divergences des faisceaux et leur taille caractéristique au niveau du miroir. Le faisceau infrarouge est diaphragmé (voir chapitre 5) jusqu'à un diamètre de 11 mm, puis focalisé par une lentille de focale 1 mètre. Par symétrie, son diamètre sera identique 1 mètre après le foyer de la lentille, si l'on suppose que l'ionisation n'induit pas de modification trop importante sur la propagation du faisceau. L'étude des spectres harmoniques enregistrés à partir du spectrographe en transmission nous a permis de montrer que dans nos conditions expérimentales, la divergence du faisceau harmonique est deux fois plus faible que celle du faisceau infrarouge (2 mrad). Cela conduit à une taille du faisceau harmonique incident sur le miroir d'environ 7 à 8 mm. Ce diamètre de tache n'est plus négligeable devant le plus petit rayon de courbure du miroir torique ($r=26$ mm) et l'approximation de Gauss n'est plus vérifiée (taille transverse des objets petite devant le rayon de courbure). Dans ce cas, des effets d'aberrations sont susceptibles de survenir. C'est pourquoi, une focalisation de bonne qualité exige que le faisceau harmonique soit assez fortement diaphragmé, malgré la perte supplémentaire d'énergie XUV induite par cette diaphragmation. Nous vérifierons ce résultat expérimentalement dans le paragraphe (7.3).

7.2. Dispositif d'imagerie et de calibration de la zone focale

La taille de la zone focale attendue est d'environ quelques microns au maximum, ce qui est plus petit que la taille caractéristique des pixels de la caméra CCD que nous utilisons. Un dispositif d'imagerie devra donc comprendre un objectif de grossissement de l'image du foyer. De tels objectifs sont impossibles à mettre en œuvre dans le domaine XUV par manque d'optiques adaptées. L'imagerie d'un foyer d'harmoniques n'est pas chose aisée et les méthodes de calibration utilisées doivent être indirectes.

Dans le cas de la référence [3], l'équipe du CEA-Saclay a utilisé une technique de Foucaultage qui consiste à mesurer l'énergie transmise par une fente placée au niveau du foyer et dont on varie la position progressivement. La forme du foyer suivant les trois dimensions est alors recalculée à partir des mesures réalisées par motorisation de la lame suivant les trois directions (x,y,z). Cette technique est difficile à mettre en œuvre car elle exige des pas de motorisation submicroniques pour garantir une précision suffisante à la mesure de la taille réelle du foyer.

7.2.1. Dispositif expérimental

Nous avons choisi quant à nous une technique d'imagerie directe du foyer harmonique. Une caméra CCD 16 bits visible recueille l'image de la fluorescence induite par le faisceau harmonique sur un cristal de YAG dopé au Cérium, habituellement utilisé pour le rayonnement synchrotron. Le montage expérimental est représenté sur le dessin 3D ci-dessous :

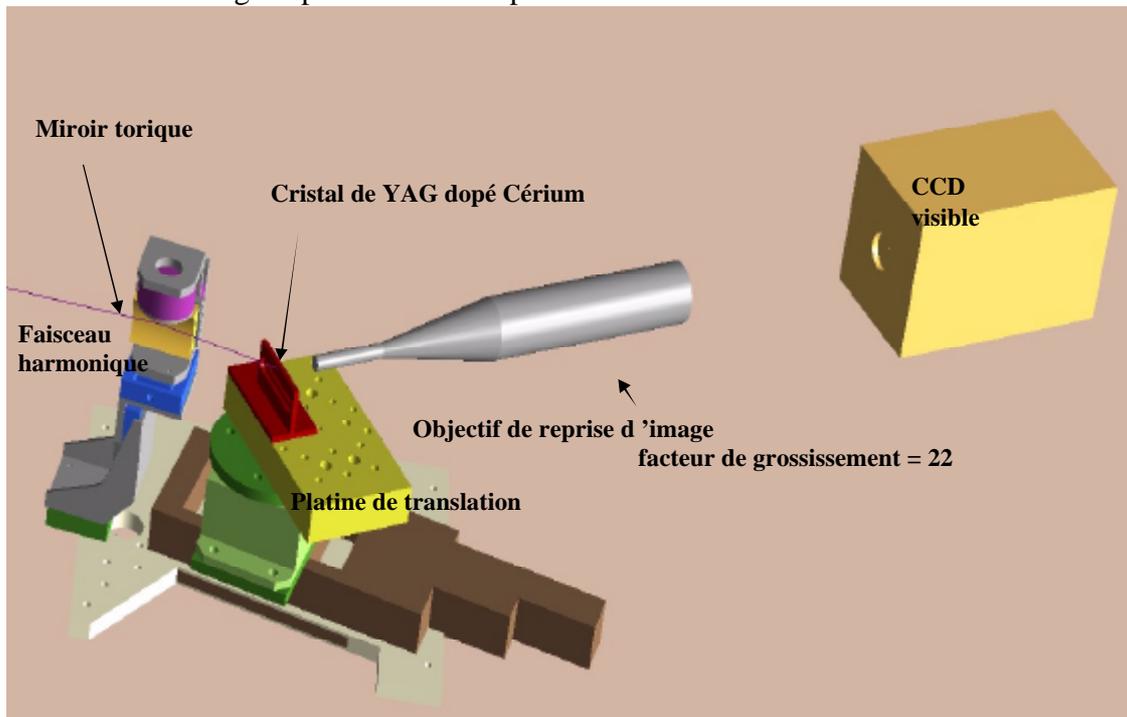


Figure 7.3 : Schéma tridimensionnel du dispositif d'imagerie du foyer des harmoniques (image D. Douillet).

On notera que le cristal de YAG est motorisé sous vide, ce qui permet d'étudier l'extension de la zone focale le long de l'axe de propagation.

7.2.2. Calibration des images

La fluorescence induite sur le cristal par le faisceau harmonique est dans le domaine visible, ce qui permet d'utiliser des systèmes de reprise d'image et de grossissement adaptés à cette gamme de longueur d'onde plus habituelle. L'objectif utilisé induit un facteur de grossissement de 22, ce qui permet à l'image recueillie sur la CCD d'occuper plusieurs pixels de la caméra. La calibration des images a été permise par l'imagerie d'une grille placée sur la surface amont du cristal de YAG comme le montre la figure (7.4):

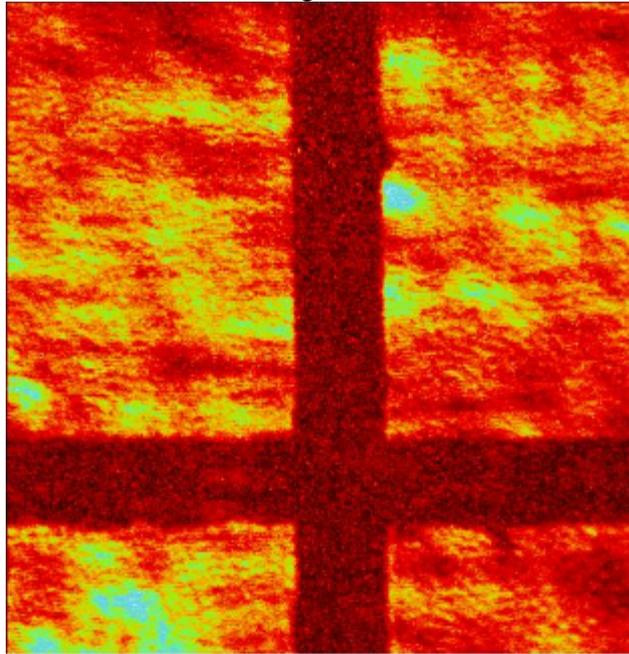


Figure 7.4 : Observation en transmission d'un laser He-Ne par la grille de calibration.

Les dimensions de cette grille ont été déterminées de façon précise grâce à un microscope à balayage (MEB), le résultat de la mesure est présenté sur la figure suivante :

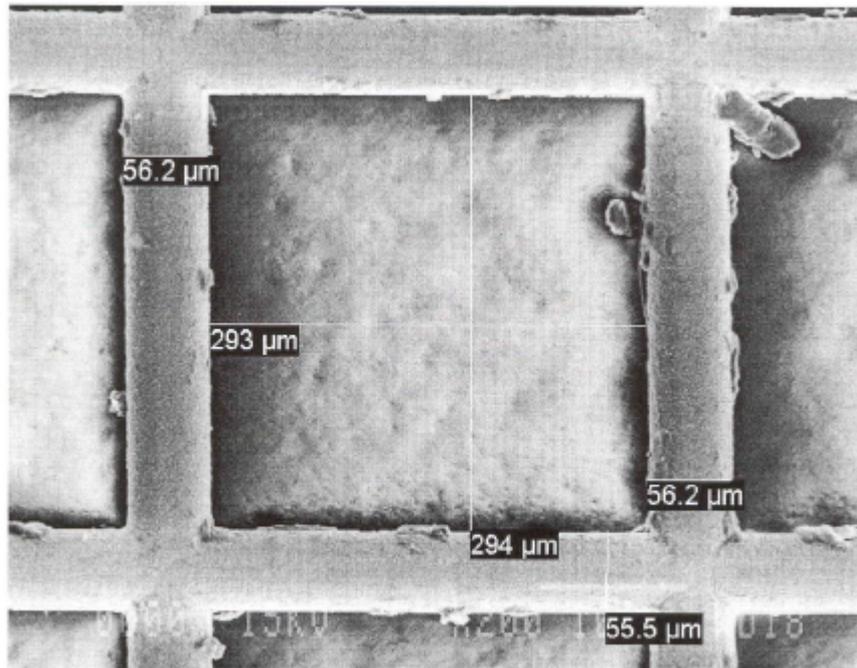


Figure 7.5 : Observation de la grille de calibration au microscope électronique à balayage (MEB)

La correspondance pixel/micron ainsi obtenue est de 1 pixel pour 0,8 micron.

7.3. Exploration et calibration de la zone focale des harmoniques

7.3.1. Importance des effets d'aberration

Pour les raisons que nous avons exposées dans la partie 2, de nombreux effets d'aberration ont été observés et nous ont obligés à considérablement diaphragmer le faisceau harmonique avant son arrivée sur le miroir.

L'ouverture de diaphragme que nous avons sélectionnée expérimentalement a un rayon de 2,5 mm. Les effets d'aberration sont considérablement diminués bien que subsiste encore une sorte de double queue, dont la forme fait penser à une aberration de type coma. Ces données expérimentales sont bien confirmées par les résultats d'un code de propagation de faisceau (logiciel Oslo), utilisé en supposant que le faisceau harmonique est issu d'une source ponctuelle de divergence 2 mrad placée à 1m50 du miroir. La taille attendue de la tache focale est d'environ 2,5 microns de diamètre et un bon accord avec les résultats de mesure expérimentaux est obtenu (figure (7.8)).

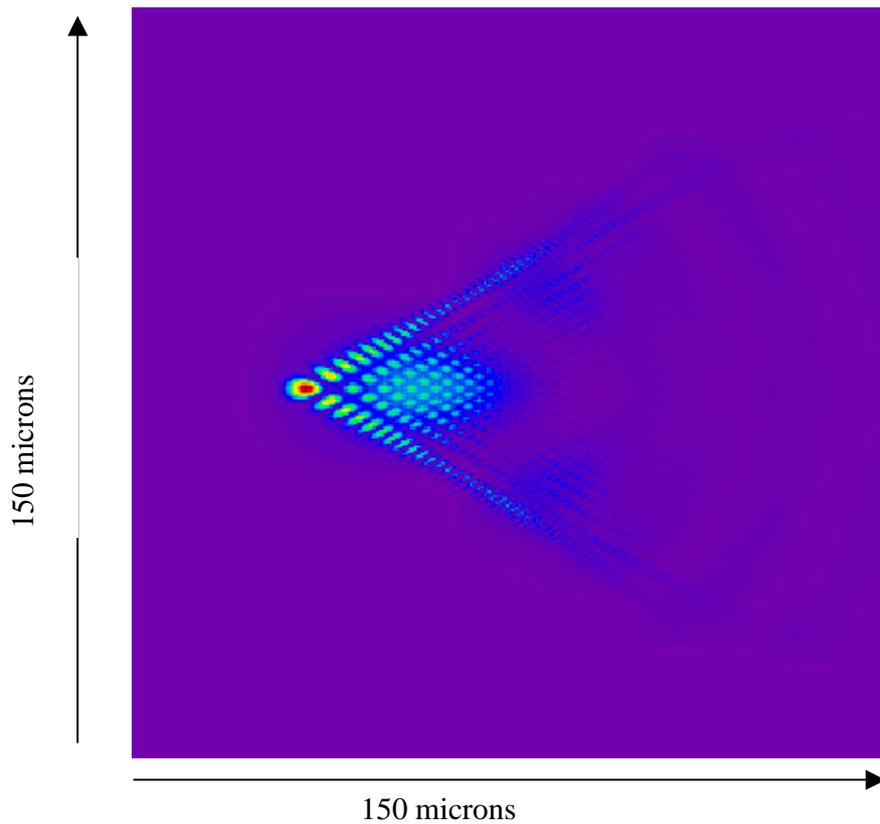


Figure 7.6 : Allure du foyer d'un faisceau harmonique de diamètre 2,5 mm focalisé par un miroir torique (calculs Oslo P. Mercère).

Dans le cas d'une taille de faisceau encore plus faible, comme dans la figure (7.7) pour laquelle le diamètre vaut 1 mm, la qualité de la tache est encore améliorée. Cependant, il n'est pas raisonnable de trop diaphragmer le faisceau harmonique car la diminution de l'énergie harmonique incidente est considérable. Pour le cas de la figure 7.6, la transmission du diaphragme tombe déjà à 15 % environ, tandis qu'elle ne serait plus que de 3 % pour un diaphragme fermé à 1 mm comme représenté sur la figure 7.7.

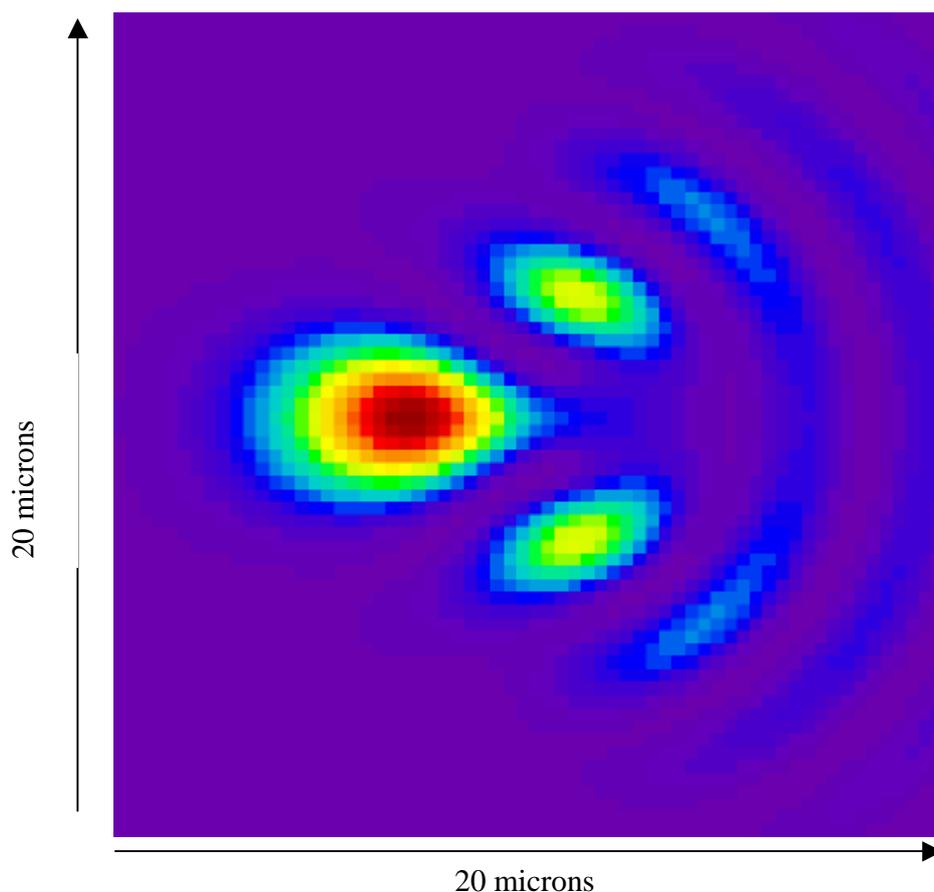


Figure 7.7 : Allure du foyer d'un faisceau harmonique de diamètre 1 mm focalisé par un miroir torique (calculs Oslo P. Mercère).

Nous remarquons que la taille de la tache centrale est très peu influencée par la taille du faisceau harmonique incident sur le miroir, en revanche la fraction d'énergie dans les zones périphériques est plus importante dans le cas d'un faisceau peu diaphragmé.

7.3.2. Évolution de l'allure de la tache en fonction de la distance au foyer (z)

Nous avons réalisé une série de mesures de la zone focale d'un faisceau d'harmoniques générées dans l'argon, dont la longueur d'onde centrale est d'environ 30 nm. La figure suivante présente le meilleur foyer ainsi que l'allure du faisceau 100 microns avant et après ce foyer :

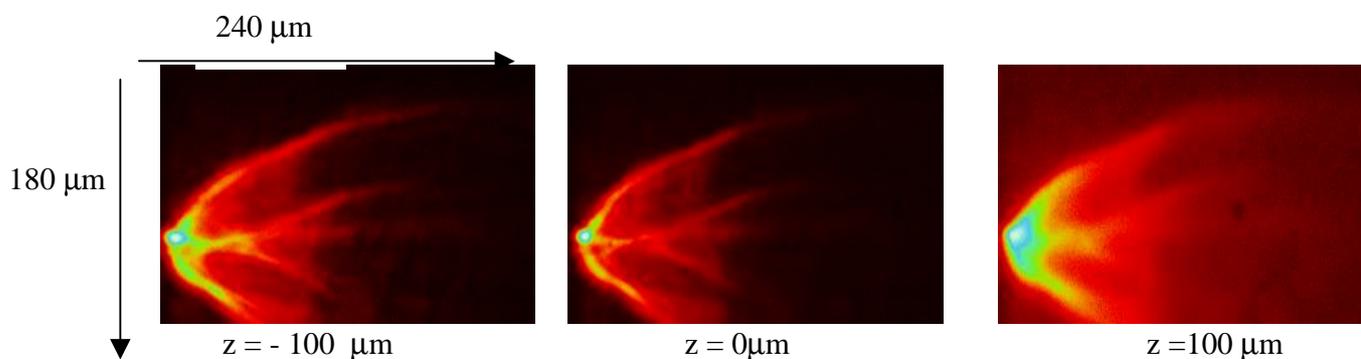


Figure 7.8 : Images du faisceau harmonique 100 microns avant le foyer, au foyer et 100 microns après.

La taille des taches harmoniques est déterminée par ajustement du profil d'intensité des images par une gaussienne, on s'intéresse ici à la largeur à mi-hauteur de l'intensité. La figure suivante montre cette procédure adaptée au meilleur foyer dans la direction horizontale puis verticale :

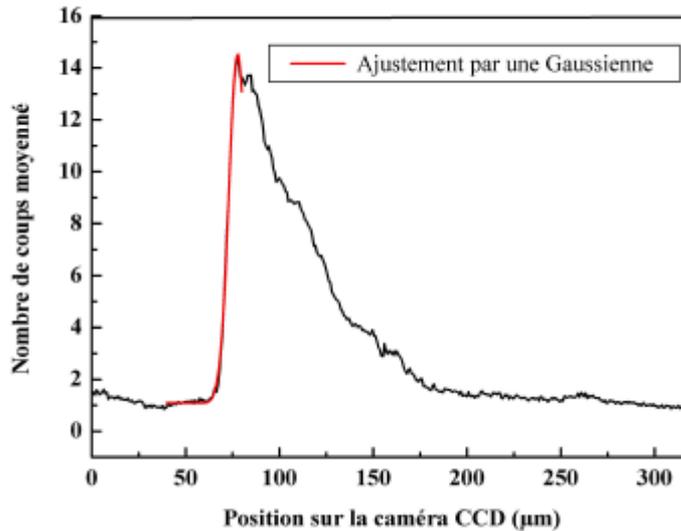


Figure 7.9 : Illustration de la calibration de la taille du foyer harmonique par ajustement du profil en intensité suivant l'axe horizontal.

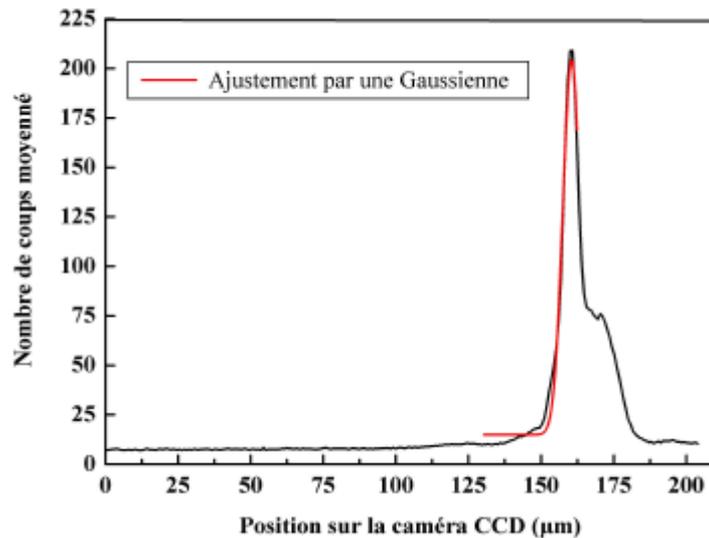


Figure 7.10 : Illustration de la calibration de la taille du foyer harmonique par ajustement du profil en intensité suivant l'axe vertical.

On constate que les deux directions ne sont pas strictement identiques, ceci était déjà visible sur les images brutes. La dimension horizontale du foyer est de 3,8 microns alors que la dimension verticale est de 2,9 microns. Cet écart est compatible avec l'angle entre la normale au cristal de YAG et le faisceau harmonique qui est de 45° . On peut considérer que les deux dimensions réelles dans le sens horizontal et vertical sont de 3 microns de diamètre à mi-hauteur. La surface transverse du foyer est alors de 7 microns carrés environ.

On observe également sur la figure 7.10, un léger astigmatisme provenant de l'extrême sensibilité du réglage de l'angle d'incidence sur le torique. Les dimensions minimales suivant chacune des directions horizontale et verticale ne sont pas observées pour la même valeur de z , comme le montre la figure suivante :

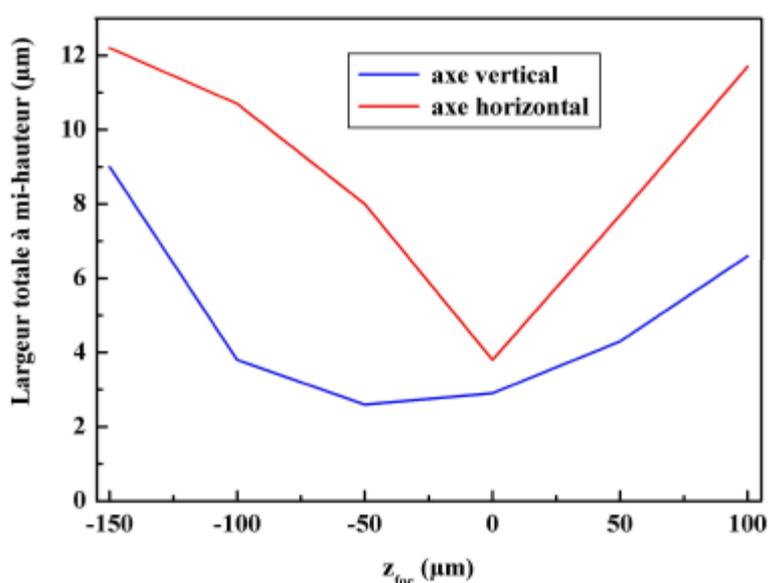


Figure 7.11 : Evolution de la largeur horizontale et verticale de la tache focale en fonction de la position z suivant l'axe de propagation.

L'écart observé entre les deux foyers est d'environ 50 microns.

7.3.3. Phénomène de saturation

Un autre effet qui pourrait justifier une taille de foyer légèrement inférieure à celle que nous avons mesurée est la saturation de la fluorescence du cristal de YAG induite par les harmoniques. Nous confirmons cette hypothèse en représentant sur la figure (7.12) l'évolution du nombre de coups intégrés sur toute l'image en fonction du paramètre z . On observe que pour le meilleur foyer, le nombre de coups intégrés est plus faible que pour des taches plus étendues. On s'attend au contraire à ce que le nombre de photons total compris dans le faisceau incident soit constant et que seule soit modifiée la façon dont ils sont répartis transversalement au voisinage du foyer. Cet effet est la signature d'un phénomène de saturation qui a tendance à surestimer la taille de la tache effective.

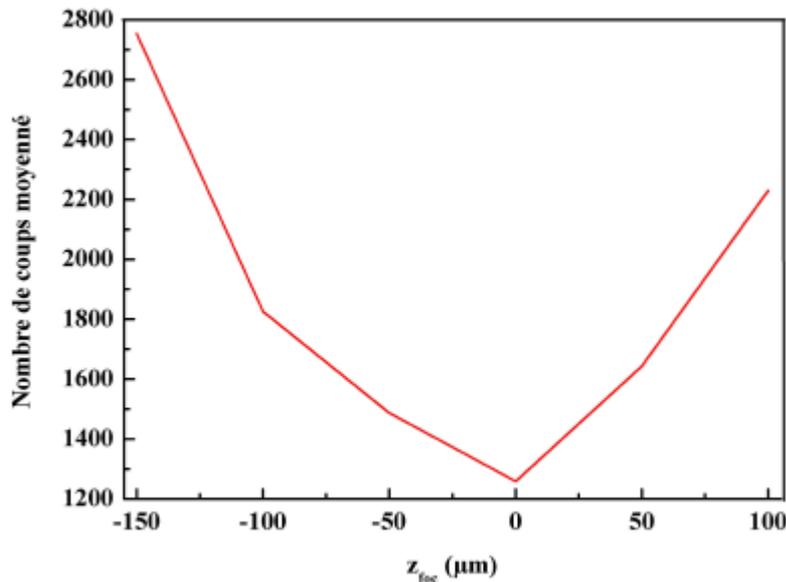


Figure 7.12 : Evolution du nombre total de coups intégrés sur toute l'image de la zone transverse du foyer en fonction de la coordonnée z sur l'axe de propagation.

7.3.4. Rapport de qualité de la focalisation des harmoniques

Les mesures précédentes permettent de conclure quant à la taille du foyer, mais un paramètre très important est la quantité d'énergie qui se trouve dans ce foyer, comparée à l'énergie totale incidente. Par analogie avec les faisceaux laser dont la focalisation est caractérisée par un rapport de Strehl (voir chapitre 2), on peut définir ici un rapport ρ caractérisant la focalisation des harmoniques : $\rho = \text{énergie dans la tache centrale} / \text{énergie totale}$.

Ce rapport ne doit cependant pas être confondu stricto sensu avec le rapport de Strehl, car pour un faisceau gaussien parfait, ρ ainsi défini vaut 50 % et non 1 comme c'est la définition pour le rapport de Strehl. Quoi qu'il en soit, dans notre cas ρ vaut 4 % seulement, car une grande partie du rayonnement harmonique n'est pas focalisable, même après diaphragmation. La première raison provient des effets d'aberration, la deuxième étant que le front d'onde des harmoniques n'est probablement pas plan, si l'on considère la complexité du phénomène de génération et les effets de propagation dans le milieu gazeux en cours d'ionisation (voir chapitre 3).

Ce facteur de qualité de focalisation permet toutefois d'estimer l'intensité au foyer de façon plus réaliste que la simple mesure de la taille de la tache focale.

7.4. Intensités réellement atteintes au foyer - perspectives

Les efforts de caractérisation précise de la zone focale nous permettent de déterminer les intensités maximales atteintes au foyer du miroir torique et de comprendre les paramètres limitant susceptibles d'être encore améliorés.

7.4.1. Cas de figure théorique

L'approche idéale de calcul de l'intensité focalisée consiste à prendre le nombre de photons maximum contenu dans tout le spectre harmonique. Dans le cas d'harmoniques générées dans l'argon, ce nombre s'élève à $3,5 \cdot 10^{10}$ photons par tirs. Il suffit alors de considérer que ces photons sont concentrés sur une tache de 7 microns carrés, pour atteindre une intensité maximale de $3 \cdot 10^{14}$ W/cm² si l'on considère que la durée des impulsions harmoniques est de 10 femtosecondes. La valeur de cette intensité est encore accrue si l'on imagine que les harmoniques interfèrent pour produire des trains d'impulsions attosecondes. Dans ce cadre d'étude, nos conditions d'optimisation de la génération d'harmoniques en configuration longue focale, donc avec une phase spatiale homogène sur tout le milieu et un accord de phase essentiellement unidimensionnel (voir chapitre 3) semblent en bon accord avec les conditions imposées par la référence [8] pour garantir un blocage en phase des harmoniques qui permette d'amener la durée des trains d'impulsions harmoniques à quelques centaines d'attosecondes. Cela ouvre la voie à une méthode simple pour améliorer encore les intensités crête. Avec les valeurs issues de la référence [5], qui correspondent à des conditions expérimentales proches des nôtres, on calcule que l'intensité atteinte par des trains d'impulsions de durée 250 attosecondes serait de $2 \cdot 10^{15}$ W/cm².

Cette approche est bien entendue très éloignée des réalités expérimentales, de nombreux facteurs viennent limiter ces intensités crête très attractives.

7.4.2. Cas de figure concret

En premier lieu, nous devons prendre en compte la transmission des filtres aluminium qui est d'environ 20 % vers 30 nm. La réflectivité du miroir est elle aussi limitée à environ 40 % pour un angle d'incidence de 6°. Ces deux paramètres limitants semblent assez incontournables compte tenu de nos conditions expérimentales. Les deux suivants, que sont la transmission du diaphragme et le rapport de qualité de focalisation, semblent être potentiellement améliorables par une nouvelle géométrie de focalisation ou l'utilisation de systèmes optiques sans aberrations, avec éventuellement un contrôle du front d'onde harmonique par les conditions de génération ou le contrôle actif du front d'onde infrarouge en amont. Pour l'heure, ils valent 15 et 4% respectivement. Cela donne pour les intensités focalisées expérimentales $I=1,4 \cdot 10^{11}$ W/cm² pour des impulsions de 10 fs, et $I=10^{12}$ W/cm² pour des trains attosecondes.

Ces intensités sont bien moindres que les « valeurs théoriques » et permettent d'expliquer pourquoi nous n'avons à ce jour pas encore observé d'effet d'optique non linéaire dans le domaine XUV en remplaçant le cristal de YAG par des matériaux divers connus pour avoir des propriétés non linéaires dans le domaine visible. Les valeurs des constantes non linéaires dans le domaine XUV sont pour l'instant pratiquement inconnues tant expérimentalement que théoriquement, et ne sont en particulier pas tabulées.

7.5. Conclusion du chapitre

Nous avons présenté dans ce chapitre une étude originale et complète de la focalisation d'un faisceau harmonique par un miroir torique. L'utilisation d'une telle optique permet de concentrer toutes les harmoniques du spectre et n'introduit pas d'allongement de la durée d'impulsion, contrairement aux optiques diffractives, plus couramment utilisées. Nous avons ainsi

pu mettre en évidence les facteurs expérimentaux qui limitent les intensités maximales atteintes de telle sorte que l'obtention d'intensités focalisées dans la gamme des 10^{13} - 10^{14} W/cm² semble un objectif raisonnable à relativement court terme. Ces valeurs sont suffisantes d'après les prédictions théoriques pour commencer à observer de nouveaux processus physiques dans cette gamme spectrale [7].

7.6. Références du chapitre 7 :

- [1] Descamps et al., PRA **64**, 031404 (2001)
- [2] Kobayashi et al., Opt. Lett. **23** (1998)
- [3] Thèse de doctorat de l'université Paris XI de J.F. Hergott (17 Septembre 2001)
- [4] Schnürer et al., Applied Physics B, **70**, 227 (2000)
- [5] Paul et al., Science **292**, 1689 (2001)
- [6] J. Burcher, « Les combinaisons optiques », Editions de la revue Théorique et instrumentale, page 309, (1967)
- [7] Milosevic et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 093905 (2002)
- [8] M. Gaarde et K. Schaffer, PRL **89**, 213901 (2002)

8. Conclusion

Ce travail de thèse s'inscrit après une série d'articles publiés en 1999 qui affirment avoir atteint la limite d'absorption pour l'efficacité de conversion du processus de génération d'harmoniques. Certains auteurs utilisent une configuration de propagation guidée pour le laser infrarouge (référence [1]), ce qui leur assure des conditions homogènes d'accord de phase mais requiert des intensités laser assez peu élevées donc une réponse atomique relativement faible. D'autres, au contraire, utilisent une configuration de forte focalisation du laser dans un milieu gazeux à très haute pression (référence [2]), la réponse atomique est alors très importante, mais l'accord de phase n'est que transitoire, tant d'un point de vue spatial que temporel, ce qui limite les efficacités de conversion.

Depuis, d'autres équipes dont la nôtre (référence [3]), ont mis en évidence des efficacités de conversion supérieures d'au moins un ordre de grandeur aux valeurs publiées à cette époque. Nous avons par exemple mesuré expérimentalement une efficacité de conversion de $(3\pm 1)\cdot 10^{-5}$ dans l'argon vers 30 nm et de près de 10^{-7} dans le néon vers 13 nm. Le point commun entre toutes ces expériences est la « focalisation douce » du laser, autorisée par l'énergie des lasers de pompe infrarouges qui ne cesse de croître, de même que le taux de répétition de ces lasers.

En effet, la focalisation forte requise pour des lasers d'énergie moindre induit une forte phase de focalisation sur le laser et dégrade l'accord de phase entre le laser et le rayonnement harmonique produit. En outre, la zone d'interaction est très réduite tant transversalement que longitudinalement. Une focalisation douce du laser, donc un accroissement de la zone focale est obtenu de diverses manières : d'une part, par l'utilisation de lentilles de plus grandes focales, (jusqu'à 5 m pour les références [4] et [5]) et d'autre part par l'effet d'auto focalisation du faisceau dû probablement à l'ionisation du milieu. Les zones d'interaction obtenues peuvent atteindre le cm (jusque 10 cm dans le cas de la dernière expérience du RIKEN au Japon), avec toutefois une énergie suffisante pour garantir une réponse atomique élevée. La technique que nous avons utilisée pour notre part est une diaphragmation du faisceau qui permet d'étendre la zone focale et de diminuer l'intensité jusqu'à ce que le maximum de signal harmonique soit produit au maximum de l'impulsion laser et non sur le front montant. Nous avons étudié de façon complète les effets de ce dispositif ainsi que l'énergie du laser incident sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés et obtenu un très bon accord entre notre modèle et les expériences que nous avons réalisées.

La configuration « longue focale » nous a alors permis d'étudier de façon plus approfondie l'accord de phase et le rôle qu'y jouent les deux principaux chemins quantiques, en mettant pour la première fois en évidence des franges de Maker présentant un fort contraste (jusque 100 pour l'harmonique 25 dans l'argon). La période de ces franges, quand elle est visible, nous permet d'évaluer précisément la longueur de déphasage, c'est-à-dire la distance dans le milieu gazeux séparant deux points émettant un rayonnement harmonique déphasé de π , donc qui interféreront destructivement. Cette mesure nous a alors permis de trouver les conditions qui permettent de garantir que la longueur de déphasage est bien plus grande que la longueur de notre milieu. Ces conditions sont une cellule placée plusieurs millimètres après le foyer du laser. La phase atomique du deuxième chemin quantique peut dans ce cas jouer un rôle positif pour l'accord de phase et retarder le moment dans l'impulsion pour lequel on observera la plus forte émission harmonique.

Cette « configuration longue focale », que nous nous sommes attachés à décrire le plus complètement possible, tant du point de vue expérimental que théorique, est donc une configuration très efficace du point de vue du nombre de photons harmoniques produits. Elle se situe entre les deux configurations extrêmes présentées en début de cette conclusion, en garantissant à la fois un accord de phase homogène sur de grandes distances et une réponse atomique élevée grâce au fait que l'accord de phase peut être maintenu pour des taux d'ionisation assez importants. Cette propriété est liée à l'accroissement notable des distances de Rayleigh des lasers et au rôle majeur que joue le deuxième chemin quantique dans l'accord de phase, y compris sur l'axe de propagation du laser.

Un total contrôle du rayonnement harmonique implique que l'on puisse contrôler la longueur d'onde des harmoniques qui normalement est un sous-multiple impair de la longueur d'onde instantanée du laser. Cette propriété est très importante pour les applications. Nous avons montré qu'un contrôle de la phase spectrale du laser de pompe réalisé au moyen d'une boucle d'optimisation basée sur un algorithme génétique permettait une accordabilité quasi parfaite du rayonnement harmonique. La configuration haute énergie laser et propagation libre permet cette accordabilité par l'implication des processus d'ionisation et de phase atomique dans la variation temporelle de la phase des harmoniques. Les formes d'impulsion optimisées peuvent être très irrégulières et n'auraient probablement pas pu être trouvées manuellement. L'algorithme génétique converge assez rapidement et il faut moins de 10 minutes pour obtenir la forme de spectre désirée.

Nous concluons cette thèse sur une manière originale de mesurer la taille de la zone focale d'un faisceau harmonique focalisé par un miroir torique de courte focale (8 cm). Les diamètres obtenus sont de 3 à 4 microns au maximum et permettent d'atteindre dès à présent des éclaircissements au foyer dans la gamme des 10^{11} à 10^{13} W/cm². Des efforts supplémentaires dans la conception optique du système de focalisation et le contrôle du front d'onde harmonique aboutiraient à un gain d'au moins un ordre de grandeur sur les précédentes valeurs. Ce travail ouvre donc la possibilité d'obtenir de hautes intensités focalisées dans le domaine XUV et avec des durées d'impulsion probablement très courtes [6], de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes (1 as = 10^{-18} s).

Nous démontrons donc l'intérêt et la fiabilité de la source harmonique en vue d'expériences d'optique non-linéaire dans la gamme spectrale XUV, d'après les prédictions théoriques, les intensités atteintes sont tout juste suffisantes pour observer des transitions en couches internes des atomes par absorption de deux photons dans la gamme 20-30 nm [2], [7]. La spécificité des harmoniques en termes de durée d'impulsion fait d'elles la seule source XUV intense de résolution temporelle si précise qu'on peut également imaginer étudier le mouvement des électrons sur leur orbite atomique.

8.1. Références

- [1] Bartels et al., Science, **297**, 376 (2002)
- [2] Schnürer et al. Phys. Rev. Lett. **83**, 722 (1999)
- [3] Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D (2002)
- [4] Hergott et al., Phys. Rev. A (2002) (Rapid Communications)
- [5] Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)
- [6] M. Gaarde et K. Schaffer, PRL à paraître (2002)
- [7] Milosevic et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 093905 (2002)

9. Bibliographie générale classée par ordre alphabétique d'auteur

- Agostini et al., IEEE J. Quantum Electron. **QE-4**, 667 (1968), *chapitre 3*.
Albert et al., Optics Letters, **25** 1, 52 (2000), *chapitre 6*.
Ammosov, Delone et Krainov (ADK) JETP **64**, 1991 (1986), *chapitre 3*.
- Balcou et al., J. Phys. B **25**, 4467 (1992), *chapitre 5*.
Balcou et al., Phys. Rev. A, **47** 1447 (1993), *chapitre 4*.
Balcou et al., Phys. Rev. A **55**, 3204 (1997), *chapitre 3*.
Balcou et al., J. Phys. B, **32**, 2973 (1999), *chapitre 3*.
Bartels et al., Nature, **406** 164 (2000), *chapitre 6*.
Bartels et al., Science, **297**, 376 (2002), *chapters 2 et 3*.
Burcher, «les combinaisons optiques», Editions de la revue Théorique et instrumentale, page 309, (1967), *chapitre 7*.
- Chang et al., Phys. Rev. Lett., **79**, 2967 (1997), *chapitre 1*.
Chang et al., Phys. Rev. A Rapid Communications **58**, R30, (1998), *chapitre 6*.
Chériaux et al., Optics Letters, **21** 414 (1996), *chapitre 2*.
Christov et al., Phys. Rev. Lett., **86** 5458 (2001), *chapitre 6*.
Constant et al. Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999), *chapters 2 et 4*.
Corkum et al., Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993), *chapitre 3*.
- Delfin et al., J. Phys. B **32** 5397 (1999), *chapitre 4*.
Delone et al., Physics Uspekhi **41**, 469 (1998), *chapitre 3*.
Descamps et al., PRA **64**, 031404 (2001), *chapters 5 et 7*.
Ditmire et al., Phys. Rev. A, **51** R902 (1995), *chapitre 1*.
Dorrer et al., Optics Letters, **24**, n°21 (1999), *chapitre 2*.
Durfée et al., Phys. Rev. Lett. **83** 2187 (1999), *chapitre 4*.
- Gaarde et Schafer, PRL **89**, 213901 (2002), *chapitre 7*.
- Haroutunian, thèse de doctorat de l'école Polytechnique (2001), *chapitre 3*.
Hergott, thèse de doctorat de l'université Paris XI (17 Septembre 2001), *chapitre 7*.
Hergott et al., Phys. Rev. A **66**, 021801(R) (2002), *chapters 2 et 3*.
- Ilkov et al., J. Phys. B **25**, 4005 (1992), *chapitre 3*.
- Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D, sur le site de edpscience (septembre 2002), *chapitre 5*.
Kobayashi et al., Opt. Lett. **23** (1998), *chapitre 7*.
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), *chapitre 3*.
- Leblanc, Thèse de doctorat de l'école Polytechnique (1993), *chapitre 2*.
Lee et al., Phys. Rev. Lett. **87**, 243902 (2001), *chapitre 6*.
Lewenstein et al., Phys. Rev. A, **49**, 2117 (1994), *chapitre 3*.

Lewenstein et al., Phys. Rev. A, **52**, 4747 (1995), *chapitre 3*.
L'Huillier et al., Phys. Rev. Lett. **68** 166 (1992), *chapitre 4*.
L'Huillier et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 774 (1993), *chapitre 1*.
Lompré et al., J. Opt. Soc. Am. **7**, 754 (1990), *chapitre 1*.

Milosevic et al., Phys. Rev. Lett. **88**, 093905 (2002), *chapitre 7*.
Müller et al., Phys. Rev. Lett., **81**, 1207 (1998), *chapitre 3*.

New and Ward, Phys. Rev. Lett. **19**, 556 (1967), *chapitre 1*.

Paul et al., Science **292**, 1689 (2001), *chapitre 7*.

Reintjes et al., Phys. Rev. Lett. **37**, 1540 (1977), *chapitre 1*.
Reitze et al., Compte rendus de la conférence Ultrafast 2002, *chapitre 6*.
Roos et al., J. Phys.B., **34** (2001), *chapitre 6*.
Rundquist et al. Science, **280**, 1412 (1998), *chapitre 2*.

Salières et al., Phys. Rev. Lett. **81**, 5544 (1998), *chapitre 6*.
Salin et al., Optics Letters, **23** , 718 (1998), *chapitre 2*.
Schnürer et al. Phys. Rev. Lett. **83**, 722 (1999), *chapitre 2*.
Schnürer et al., Applied Physics B, **70**, 227 (2000), *chapitre 7*.
Siegman, Lasers (the university of California, 1986) chapitres 17 et 18, *chapitre 5*.

Taïeb et al., Phys. Rev. Lett. **87** (2001), *chapitre 3*.
Takahashi et al., Phys. Rev. A **66**, 021802 (2002) (Rapid Communications), *chapitre 2*.
Tamaki et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999), *chapitres 2 et 3*.
Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000), *chapitres 2, 3 et 5*.
Tyson, « Adaptive optics engineering handbook », (Marcel Dekker, Inc., 2000) 123, *chapitre 2*.

Verluse et al., Optics Letters, **25** 8, 575 (2000), *chapitre 6*.
Verluse et al. J. Opt. Soc. Am. B, **17** 1, 138 (2000), *chapitre 6*.

Wahlström et al., Phys. Rev. A, **48**, 4709 (1993), *chapitres 1, 3 et 6*.

ANNEXES