

Table des matières

REMERCIEMENTS	7
TABLE DES MATIÈRES	11
INTRODUCTION GENERALE	15
INTRODUCTION GÉNÉRALE	17
PARTIE I: SOURCES DE RAYONNEMENT.....	23
Chapitre 1 : Source de rayonnement IR : Le laser impulsif Titane : Saphir	25
1.1 Système laser du CELIA et du LLC	25
1.2 Génération d'impulsions sub-10fs : La post-compression.....	28
1.2.1 Propagation d'une impulsion laser dans une fibre creuse.....	28
1.2.2 Post -Compression d'impulsions en régime sub-10fs : principe	44
1.2.3 Post -Compression d'impulsions en régime sub-10fs : résultats expérimentaux.....	47
1.3 Conclusion et perspectives.....	53
Chapitre 2: Source de rayonnement VUV : La génération d'harmoniques d'ordre élevé.	57
2.1 Génération d'harmoniques d'ordre élevé.....	58
2.1.1 Caractéristiques principales du rayonnement harmonique VUV.....	58
2.1.2 Principe expérimental de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.....	60
2.2 Modèle semi classique : Aspect microscopique	61
2.2.1 Régimes d'ionisation en présence d'un champ laser.....	62
2.2.2 Description du modèle.....	64
2.3 Accord de phase : Aspect macroscopique.....	72
2.3.1 Principe de l'accord de phase.....	72
2.3.2 Influence des densités atomiques et électronique.....	75
2.3.3 Distribution des vecteurs d'onde et réalisation de la condition d'accord de phase.....	76
2.3.4 Influence de l'absorption.....	77

2.4 Optimisation expérimentale des d'harmoniques d'ordre élevé au CELIA	78
2.4.1 Dispositif expérimental de génération et de détection harmonique	78
2.4.2 Paramètre d'optimisation : La pression.....	83
2.4.3 Paramètre d'optimisation: la position du foyer dans le gaz	85
2.5 Conclusion.....	87

PARTIE II: CONFINEMENT TEMPOREL DE LA GENERATION D'HARMONIQUE D'ORDRE ELEVE

93	
Chapitre 1 : Confinement temporel du rayonnement VUV harmonique	95
1.1 Génération d'harmoniques d'ordre élevé et degré d'ellipticité du fondamental..	96
1.2 Confinement temporel de la génération d'harmoniques et concept de porte temporelle d'ellipticité.....	98
1.3 Technique de création de la porte d'ellipticité.	100
1.4 Association de lames quart d'onde au CELIA.	101
1.4.1 Lame n°1 : Lame quart d'onde d'ordre multiple.....	101
1.4.2 Lame n°2: Lame quart d'onde d'ordre zéro.....	105
1.4.3 Définition de la durée de la porte d'ellipticité.....	107
1.4.4 Trajectoires électroniques.....	114
1.5 Conclusion.....	128
Chapitre 2 : Études expérimentales du confinement temporel VUV par porte d'ellipticité.	
.....	133
État de l'art.....	133
2.1 Étude de l'influence de porte d'ellipticité dans le domaine spectral.	135
2.1.1 Dispositif expérimental.	135
2.1.2 Observation spectrale du confinement harmonique.....	137
2.2 Étude de l'influence de la porte d'ellipticité dans le domaine temporel.....	140
2.2.1 Technique de corrélation croisée à deux couleurs.	140
2.2.2 Dispositif expérimental.	142
2.2.3 Mesure du confinement temporel.	144
2.3 Mesure de la durée de la porte d'ellipticité	147
2.3.1 Dispositif expérimental.	147
2.3.2 Mesure de τ_G en configuration porte étroite.	148
2.4 Conclusion.....	150

Chapitre 3 : Vers une unique impulsion VUV attoseconde.....	153
3.1 Association des techniques de porte d'ellipticité et de post-compression.	154
3.1.1 Dispositif expérimental.....	154
3.1.2 Expérience $\tau_0=9$ fs - $\delta\tau'=15,32$ fs.....	155
3.2 Conclusion.....	160
 PARTIE III: CARACTERISATION TEMPORELLE D'IMPULSIONS VUV ATTOSECONDES	163
Chapitre 1 : Technique de reconstruction du train d'impulsions VUV attosecondes ...	165
1.1 Introduction	165
1.2 Principe de la technique RABITT	167
1.3 Calcul de la différence de phase atomique $\Delta\phi_{at,q+1}$	169
1.4 Conclusion.....	171
Chapitre 2 :Train d'impulsions VUV attosecondes expérimentaux.....	175
2.1 Train attoseconde généré par une impulsion IR laser.....	175
2.1.1 Dispositif expérimental: SPACE RABITT.....	176
2.1.2 Reconstruction du profil temporel attoseconde.....	178
2.1.3 Conclusion.....	184
2.2 Train généré par une impulsion IR post-comprimée.....	185
2.2.1 Dispositif expérimental	185
2.2.2 Reconstruction du profil temporel attoseconde.....	186
2.3 Conclusion.....	190
CONCLUSION GENERALE	193
Table des illustrations.....	200
 BIBLIOGRAPHIE GENERALE	204

INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale

Actuellement la technologie liée aux sources de rayonnement IR femtoseconde est très bien connue et repose sur des systèmes utilisant des cristaux de Titane Saphir. Ces chaînes laser, devenues très courantes dans les laboratoires de recherche, permettent de délivrer des impulsions infrarouges (IR) très intenses (pouvant atteindre des éclairements de 10^{20}W/cm^2). Elles permettent également de délivrer des impulsions brèves pouvant aller jusqu'à des durées inférieures à 5 fs [Nisoli et al., 1997]. Ces sources ont démontré à plusieurs reprises leur capacité à sonder les phénomènes ultra rapides [Zewail et al., 2000] et ont en parallèle permis le développement de techniques de diagnostic temporel et spectral tel que le SPIDER (Spectral Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction). Grâce à ces sources IR, les chercheurs ont pu mettre en évidence des phénomènes non linéaires tels que l'ionisation multiphotonique ou l'ionisation au-dessus du seuil (ATI : Above Threshold Ionisation). La découverte du phénomène de la génération d'harmoniques d'ordre élevé [McPherson et al., 1987 ; Ferray et al., 1988] a ouvert la voix à l'utilisation de ces sources IR primaires pour l'obtention de sources VUV secondaires. Les études suivant cette découverte, ont permis de mieux connaître le processus de génération ainsi que les caractéristiques du rayonnement VUV de cette nouvelle source : Le spectre associé à cette source se présente sous la forme d'un peigne d'harmoniques impairs du fondamental dont les longueurs d'onde (énergie de photon) peuvent atteindre 1 nm (1 keV)[Seres et al., 2005]. Cette large gamme spectrale suppose que la source peut potentiellement produire des impulsions ultra-brèves [Farkas et al., (1992), Harris et al., (1993)]. De plus il a été démontré qu'elle possède une bonne cohérence spatiale et temporelle [Ditmire et al., (1996) ; Bellini et al., (1998), Salières et al., (1995), Le Derooff et al., (2000)].

Un pas a été franchi lorsqu'on a découvert [Antoine et al (1997)] que les harmoniques d'ordres élevés peuvent interférer constructivement pour générer dans le domaine temporel un train d'impulsions VUV attosecondes. Dès lors, la génération d'harmoniques d'ordre élevé est devenue un bon candidat en tant que source VUV pour l'observation de phénomènes dont la durée de vie est sub-femtoseconde. Les processus de dynamique électronique moléculaire tels que la photofragmentation [Itatani et al., 2004], ou atomique comme la relaxation de type Auger ou Coster-Kronig [Drescher et al., 2002], pourraient être étudié avec une telle source.

Pour envisager ces applications, il faut pouvoir contrôler le nombre d'impulsions attosecondes produites et connaître leurs caractéristiques spectrales et temporelles.

Ce travail de thèse s'inscrit donc dans ces thématiques de contrôle et de caractérisation des impulsions VUV attosecondes. Pour cela, nous avons donc, d'une part, implémenté les techniques expérimentales de post-compression d'impulsion IR et de reconstruction du train attoseconde par interférence à deux couleurs et d'autre part nous avons continué à développer la technique de confinement temporel harmonique en l'appliquant aux impulsions sub-10 fs.

- **Technique de post-compression.**

Le principe de cette méthode est de comprimer des impulsions laser IR d'une durée de 35 fs, issues d'un système Titane Saphir. Nous avons donc développé un dispositif expérimental de compression utilisant l'automodulation de phase dans une fibre creuse remplie de gaz rare, couplé à un système de compensation (miroir à dérive de fréquence négative) de la dispersion engendrée [Nisoli et al., (1997)].

Le but des expériences associées a été de produire des impulsions IR de l'ordre de 9 fs avec une énergie suffisante pour pouvoir générer des harmoniques.

- **Technique de confinement temporel harmonique.**

L'idée repose sur la grande dépendance de l'efficacité harmonique en fonction de l'état de polarisation de l'impulsion IR génératrice. Cette technique à pour principe de générer les harmoniques pendant une durée contrôlable qui permettrait donc de générer un nombre choisi d'impulsions attosecondes.

Des expériences, réalisées au CELIA par O. Tcherbakoff lors de ses travaux de thèse, ont démontré la faisabilité de cette technique pour des impulsions IR génératrices de 35 fs. Une partie des expériences réalisées pendant ma thèse avait pour but d'étendre cette technique aux impulsions post comprimées sub-10fs.

- **Technique de reconstruction du train attoseconde.**

Des diagnostics spectraux de l'émission VUV sont déjà présents au CELIA (spectromètre à temps de vol et spectromètre XUV à réseau en réflexion). Nous avons voulu développer un diagnostic temporel qui nous permettrait d'observer le train d'impulsions attosecondes généré. Nous avons mis en œuvre un interféromètre à deux couleurs (VUV-IR) qui permet de coupler un photon harmonique à un photon IR selon deux chemins quantiques ($\hbar\omega_q + \hbar\omega_0$) ou ($\hbar\omega_{q+2} - \hbar\omega_0$) lors de l'ionisation d'un gaz cible. Ces chemins quantiques interfèrent en fonction du délai IR-VUV. L'analyse du spectrogramme en délai des photoélectrons engendrés, permet de calculer les phases spectrales relatives des harmoniques. Connaissant ces phases, il est alors possible de reconstruire le train d'impulsions attosecondes associé au groupe d'harmoniques détectées.

Ce manuscrit est donc organisé en trois parties :

La première partie traite des sources de rayonnements IR et VUV qui ont été utilisées au cours de cette thèse.

Le chapitre 1 est consacré à la description du système laser IR du CELIA (Centre Lasers Intenses et Applications, Université Bordeaux1, France) qui délivre des impulsions de 35 femtosecondes ($1\text{fs}=10^{-15}\text{s}$) à une cadence de 1 kHz. Nous présentons également la description de la technique de « post compression » qui a permis le développement de la ligne laser sub-10fs.

Le chapitre 2 est consacré à la description de la source VUV obtenue par génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz rares. Nous nous appuyons dans un premier temps sur les modèles déjà développés pour décrire le processus de génération.

Nous présentons ensuite l'aspect expérimental de cette source de rayonnement VUV en décrivant les caractéristiques et les paramètres d'optimisation de ce signal.

La deuxième partie est dédiée au confinement temporel du signal VUV pour la production d'une impulsion attoseconde unique($1\text{as}=10^{-18}\text{s}$).

Le chapitre 1 présente la technique de « porte d'ellipticité » employée pour confiner le train d'impulsions attosecondes produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé. En parallèle, nous avons réalisé des calculs classiques de trajectoires électroniques dans le cas d'un champ laser de polarisation dépendante du temps. Ces calculs font l'objet d'un code classique intitulé « *e_motion* » qui permet aussi d'étudier le comportement des trajectoires en fonction de la phase absolue du champ.

Dans le chapitre 2, nous présentons une mesure temporelle et spectrale de ce confinement VUV en fonction de la durée de cette porte. Ces expériences nous ont permis de mesurer une durée VUV comparable à la prédiction théorique.

Le chapitre 3 présente deux expériences respectivement dans le domaine temporel et spectral utilisant les impulsions issues du système de post-compression, couplé à la technique de porte d'ellipticité. La première expérience met en évidence un contrôle clair de l'émission VUV par la technique de porte d'ellipticité compatible avec l'utilisation d'impulsions IR sub-10 fs. La seconde expérience met en évidence l'obtention d'un continuum spectral consistant avec l'émission d'une à deux impulsions attosecondes.

La troisième partie du manuscrit est dédiée à la caractérisation du train d'impulsions attosecondes via une technique d'interférométrie à deux couleurs VUV/IR. Cette technique nommée RABITT (Reconstruction of Attosecond harmonic Beating by Interference of Two-photon Transitions) a fait l'objet d'une campagne d'expérience menée au CELIA et au LLC (Lund Laser Center).

Introduction générale

Dans le chapitre 1, nous exposons le principe de la technique « RABITT » et nous présentons les dispositifs expérimentaux utilisés pour la caractérisation temporelle du train d’impulsions attosecondes VUV généré.

Dans le chapitre 2, nous présentons deux résultats expérimentaux d’interférométrie à deux couleurs obtenus en utilisant les lignes IR 35 et sub-10 fs (impulsions post-comprimées). Nous présentons notamment la mesure du déphasage harmonique, de la désynchronisation des temps d’émission harmoniques pour l’argon et le krypton, et la reconstruction des trains attosecondes associés.

Enfin, dans la conclusion générale, nous exposons une synthèse des résultats obtenus pendant cette thèse. Nous proposons des améliorations possibles, notamment par l’implémentation de nouveaux dispositifs expérimentaux et nous présentons quelques perspectives ouvertes par ce travail de thèse.

PARTIE I: SOURCES DE RAYONNEMENT

Chapitre 1 : Source de rayonnement IR : Le laser impulsional Titane : Saphir.

Au cours de ma thèse, j'ai eu l'opportunité d'utiliser deux systèmes lasers femtosecondes à haut taux de répétition (1 kHz): le laser du CELIA désormais baptisé AURORE et le laser du LLC (Lund Laser Center). Ces systèmes laser produisent des impulsions de 35 fs ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{ s}$) dans l'Infrarouge (IR) à des énergies respectives de 6 mJ et 2 mJ. Ils fonctionnent sur le principe d'amplification à dérive de fréquence utilisant des cristaux de Saphir dopés au Titane.

1.1 Systèmes laser du CELIA et du LLC.

La chaîne laser 1 kHz du CELIA, opérationnelle depuis 1999, a été développée par Vincent Bagnoud au cours de son travail de thèse [1]. Elle fournit actuellement aux utilisateurs une source de rayonnement IR (800 nm) dans le régime femtoseconde. Ce dispositif est utilisé au CELIA pour deux thématiques de recherche :

- La génération d'harmoniques d'ordres élevés et leurs applications.
- La production de rayonnement X par plasmas sur cible solide ou jet d'agrégat et leurs applications.

Sur les figures (1.1) et (1.2) sont représentés respectivement le schéma opérationnel d'Aurore ainsi que son architecture. L'oscillateur de cette chaîne a été développé au CELIA et est pompé par un laser Millenia à 527 nm. Cet oscillateur fonctionne en mode impulsif grâce au blocage de mode par « lentille à effet Kerr ». Pour pouvoir disposer en sortie de chaîne laser d'éclairements de 10^{14} à 10^{17} W/cm² compatibles avec l'observation de processus d'interaction en champ fort, on souhaite amplifier l'énergie de ces impulsions jusqu'à la dizaine de mJ. Afin d'éviter les problèmes d'endommagement des optiques qui surviendraient lors de l'amplification d'impulsions courtes, on a recours à la technique d'amplification à dérive de fréquence [2]. La cadence de 1 kHz en sortie de chaîne laser est imposée par le taux de répétition des lasers de pompe YLF.

Concrètement, les impulsions sont d'abord étirées temporellement jusqu'à 300 ps ($1\text{ps}=10^{-12}$ s) dans un étireur à réseau de type Öffner. Ces impulsions sont ensuite amplifiées à une énergie de 700 μJ dans un amplificateur régénératif. Des cellules de Pockels gèrent l'injection et l'extraction des impulsions dans l'amplificateur régénératif ainsi que le nettoyage du train d'impulsions pour garantir un bon contraste à l'échelle nanoseconde. L'amplification se poursuit ensuite dans deux et trois amplificateurs multi-passages pour les sorties basses et hautes énergies respectivement. Après compression de ces impulsions, assurée par un compresseur à réseaux plan, nous disposons d'impulsions de 35 fs à 2 mJ (ligne basse énergie) et 6 mJ (ligne haute énergie).

La chaîne laser du Lund Laser Center, utilisée dans ce travail, est basée sur le même principe qu'Aurore. Elle présente cependant une seule sortie, équivalente à la ligne basse énergie de Aurore. Elle délivre à 1 kHz des impulsions de ~35 fs à 815 nm avec une énergie totale par impulsion de 2 mJ.

En raison de la largeur spectrale du gain des cristaux de titane-saphir, en pratique la durée des impulsions en sortie de chaîne laser est limitée à 20 fs. Si l'on veut disposer d'impulsions plus courtes (sub-10fs) il faut développer un dispositif en sortie de chaîne laser qui permette d'élargir le spectre des impulsions et de les comprimer.

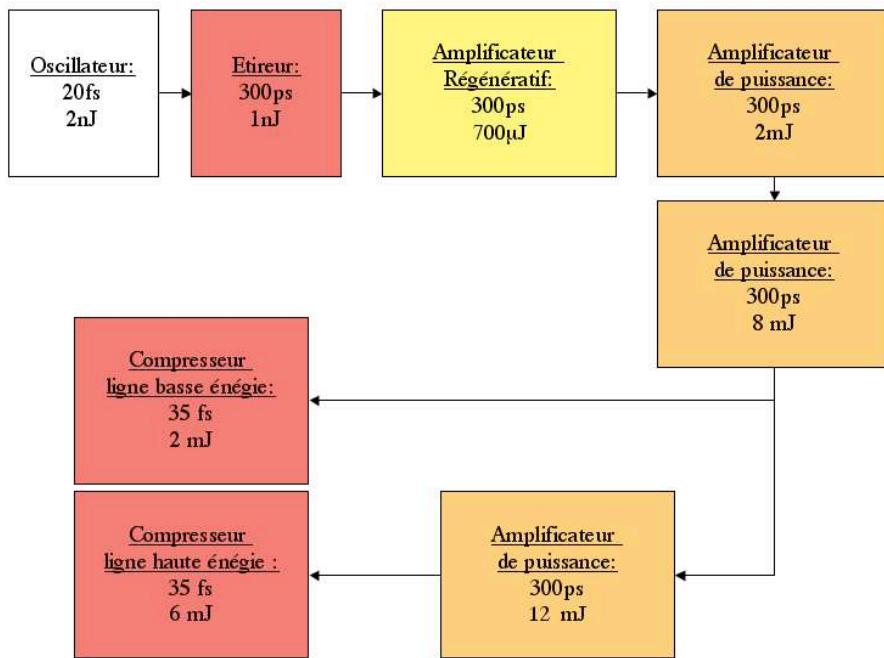


FIGURE 1.1 : SCHÉMA OPÉRATIONNEL DE LA CHAÎNE LASER kHz AURORE DU CELIA .

Chaîne laser kHz du laboratoire CELIA

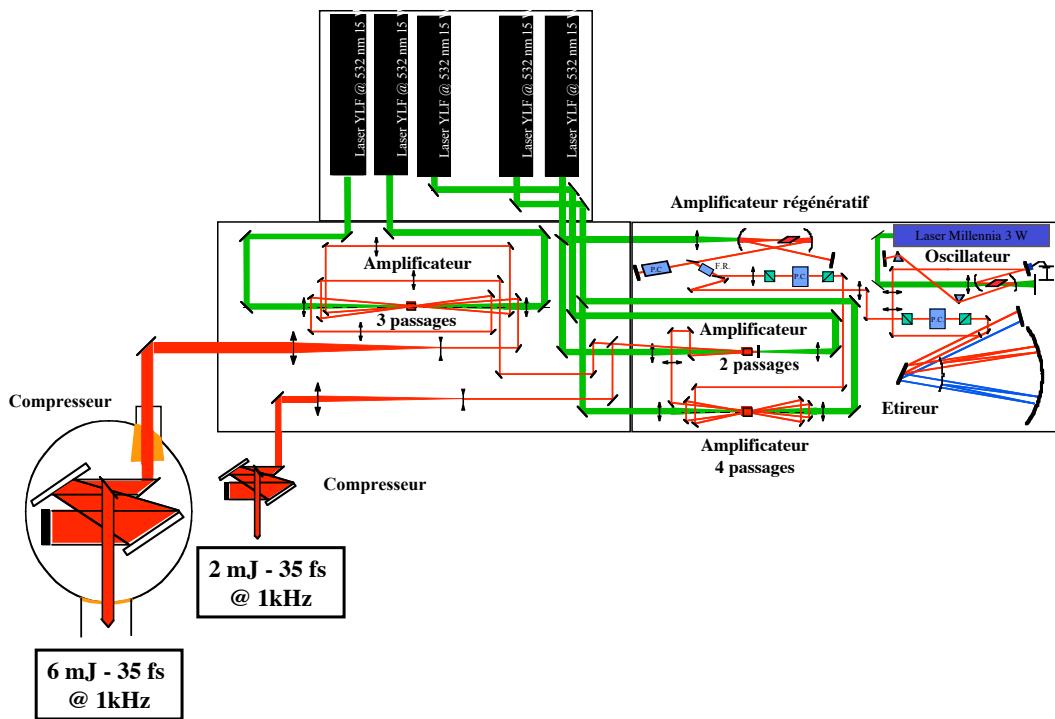


FIGURE 1.2 : ARCHITECTURE DE LA CHAÎNE LASER kHz AURORE DU CELIA.

1.2 Génération d'impulsions sub-10fs : La post-compression.

La génération efficace d'implusions XUV ultracourtes, permettant d'étudier des processus ultra-rapides, nécessite d'abord la production d'impulsions IR d'une durée inférieure à 10 fs et d'une énergie de quelques centaines de μ J. Les impulsions IR les plus courtes jamais produites ont une durée de 3,8 fs avec une énergie par impulsion de quelques μ J [3, 4]. Ces impulsions ultra-brèves restent cependant limitées en énergie. Au CELIA, nous avons eu besoin de produire des impulsions sub-10 fs pour générer des harmoniques d'ordres élevés. Nous avons donc mis en oeuvre un dispositif basé sur la technique de « post compression » développée par le groupe du Pr. M. Nisoli au Politecnico di Milano [3,4,5], qui peut être utilisé aussi bien en sortie de ligne basse énergie qu'en sortie de ligne haute énergie du laser Aurore. Cette compression est réalisée via un élargissement spectral par automodulation de phase dans une fibre creuse remplie de gaz rare, associée à une série de miroirs à dérive de fréquence négative (miroirs « chirpés »).

L'automodulation de phase permet d'élargir le spectre en créant des fréquences de part et d'autre de la fréquence centrale. On choisit pour cela de réaliser cet élargissement spectral dans les gaz rares car ils présentent une réponse instantanée de l'effet Kerr. De plus, leur éclairement de saturation élevé (10^{14} - 10^{15} W.cm $^{-2}$) permet d'injecter dans le dispositif des énergies de plusieurs millijoules. Pour produire des impulsions sub-10 fs, on utilise une fibre creuse (longueur et diamètre interne) pour exploiter l'effet de guidage nécessaire à l'obtention d'un élargissement spectral homogène supérieur à 100 nm.

Pour expliquer cette technique, nous allons donc nous intéresser aux modes de propagation d'une impulsion laser dans une fibre creuse remplie de gaz rare ainsi qu'aux processus ayant lieu lors de cette propagation.

1.2.1 Propagation d'une impulsion laser dans une fibre creuse.

Les impulsions issues de la source 1 kHz se propagent à travers une fibre creuse remplie de gaz rare (par exemple de l'argon). Pour des éclairements laser I_0 de l'ordre de 1.10^{13} W/cm 2 , différents effets entrent en jeu:

- La propagation d'impulsions laser dans la fibre (effet de guidage).
- L'automodulation de phase.
- La dispersion chromatique.

i) Modes de propagation dans une fibre creuse.

Le faisceau laser injecté dans la fibre creuse se propage selon les modes propres de la fibre. Ces modes transverses sont appelés modes hybrides EH_{mn} . Seuls les modes hybrides de type EH_{1n} permettent un bon couplage avec la polarisation linéaire incidente laser, mais le mode EH_{11} présente de plus une distribution spatiale d'éclairement proche d'un mode gaussien. Pour des diamètres de fibre suffisamment grands devant la longueur d'onde centrale du laser employé, une expression analytique du profil spatial transverse de ces modes hybrides peut être donnée [6]:

$$I_{1n}(r) = I_0 J_0^2 \left(\frac{\alpha_{1n} r}{a} \right) \quad (1.1)$$

Où J_0 désigne la fonction de Bessel de première espèce et d'ordre 0, α_{1n} la racine $n^{\text{ième}}$ de $J_0(r)$ et a le rayon interne de la fibre. La figure (1.3) présente le profil transverse des modes EH_{11} , EH_{12} , EH_{13} et EH_{14} calculés pour un rayon interne de fibre de 170 μm (anologue à la fibre utilisée en expérience).

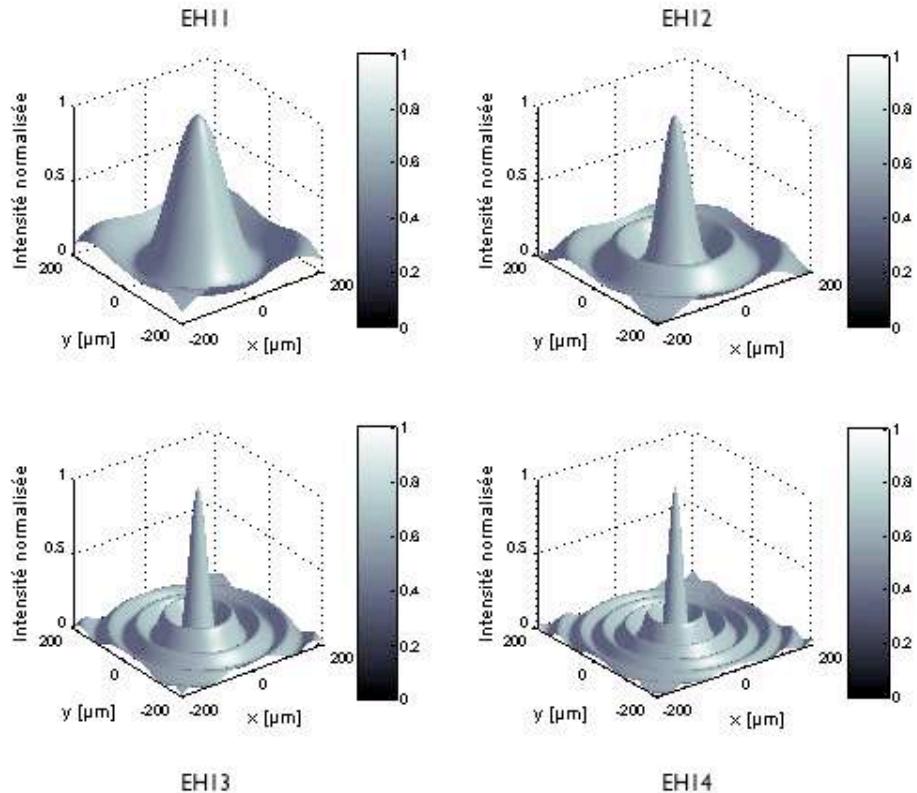


FIGURE 1.3: PROFILS TRANSVERSES DES MODES EH_{1n} ($n \in \{1 ; 2 ; 3 ; 4\}$) DE PROPAGATION DANS UNE FIBRE CREUSE (EN SILICE SF $n(SF) = 1.45843$) DE RAYON INTERNE $A = 170\mu\text{m}$.

Connaissant la distribution spatiale de ces modes, on peut alors calculer le taux de couplage C_{1n} entre un faisceau laser type gaussien et ces modes de propagation EH_{1n} , en fonction du rapport w_0/a où w_0 désigne le waist du faisceau gaussien :

$$C_{1n} = \frac{\left[\int_0^a e^{-\left(\frac{r}{\omega_0}\right)^2} J_0\left(\alpha_{1n} \frac{r}{a}\right) r dr \right]^2}{\left(\int_0^{+\infty} e^{-2\left(\frac{r}{\omega_0}\right)^2} r dr \right) \left(\int_0^{+\infty} J_0^2\left(\alpha_{1n} \frac{r}{a}\right) r dr \right)} \quad (1.2)$$

Ce taux de couplage représente le pourcentage d'énergie incidente laser qui est couplé dans le mode propre EH_{1n} de la fibre. La figure (1.4) présente ce couplage pour les modes hybrides EH_{11} , EH_{12} , EH_{13} et EH_{14} .

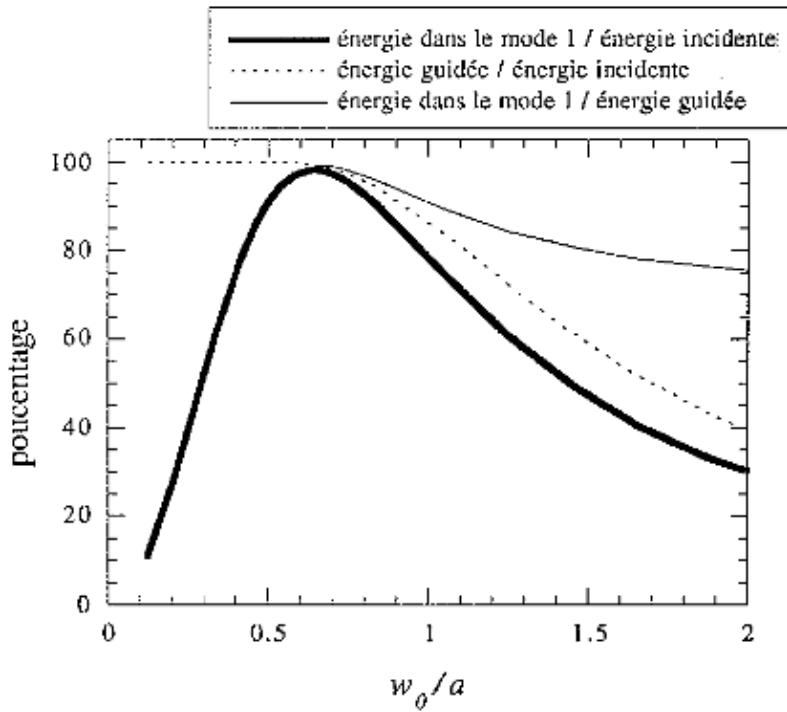


FIGURE 1.4 : COEFFICIENTS DE COUPLAGE ENTRE UN FAISCEAU LASER GAUSSIEN ET LE MODE EH11 DE PROPAGATION DANS UNE FIBRE CREUSE [7].

Le mode hybride fondamental EH₁₁ est celui qui présente le moins de perte au niveau du couplage [7, 8]. Il présente un taux de couplage maximum de ~98% pour un rapport w₀/a de l'ordre ~64%. On cherchera donc expérimentalement à optimiser ce mode de propagation.

Pour décrire la propagation de ce mode dans la fibre remplie de gaz, nous écrivons le champ laser sous la forme :

$$E(r,t) = A(z,t) \cdot G(x,y) \cdot e^{i(k_0 z - \omega_0 t)} \quad (1.3)$$

Où A (z, t) est l'enveloppe temporelle de l'onde, G (x, y) sa répartition spatiale dans le plan transverse, k₀ et ω₀ respectivement son vecteur d'onde et sa pulsation centrale.

L'équation de propagation d'une telle onde, dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, est donnée par :

$$(\Delta_{\perp} A) + \frac{\partial A}{\partial z} + \frac{\alpha}{2} A + i \cdot \frac{\beta_2}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial \xi^2} - \frac{\beta_3}{6} \frac{\partial^3 A}{\partial \xi^3} = i\gamma [|A|^2 A] \quad (1.4)$$

$\xi = t - \frac{z}{v_g}$ désigne le temps propre de l'impulsion dans son référentiel et v_g la vitesse de groupe

qui décrit la vitesse de l'enveloppe. Cette équation prend en compte l'automodulation de phase via le terme en $|A|^2 A$ qui permet d'élargir le spectre des impulsions injectées, la dispersion chromatique d'ordre 2 et 3 via les coefficients β_2 et β_3 qui peut être compensée par des miroirs à dérive de fréquence négative et l'effet d'atténuation au cours de la propagation via le coefficient α . Le terme de diffraction $\Delta_{\perp} A$ est ici négligé (propagation 1D).

ii) Automodulation de phase et élargissement spectral.

Si l'on considère les effets de dispersion et d'atténuation négligeables, l'équation de propagation (1.4) devient :

$$\frac{\partial}{\partial z} A = i\gamma |A|^2 A \quad (1.5)$$

Dans ce cas, on considère que l'éclairement laser est suffisamment important pour produire une « automodulation de phase ». Cet effet Kerr induit une dépendance de l'indice de réfraction du gaz avec l'éclairement laser $I(z, t)$. La phase de l'onde se propageant s'écrit :

$$\Phi_{nl}(z, t) = [n_r(\omega) + n_2 \cdot I(z, t)] \frac{\omega}{c} z \quad (1.6)$$

Si l'on se place dans le référentiel propre de l'onde l'écriture de cette phase se simplifie :

$$\Phi_{nl}(z, \xi) = n_2 \cdot I(z, \xi) \frac{\omega}{c} z \quad (1.7)$$

La valeur maximale de cette phase non linéaire étant donnée par :

$$\Phi_{nl}^{\max} = n_2 \cdot I(0, 0) \frac{\omega}{c} z \quad (1.8)$$

Une solution de l'équation d'onde (1.5) s'écrit :

$$E(z, \xi) = E(0, \xi) \cdot e^{i|E(0, \xi)|^2 \gamma z} \quad (1.9)$$

Où le paramètre de non linéarité γ est donné par : $\gamma = \frac{n_2 \omega_0}{c \pi \cdot a^2}$ avec a le rayon interne de la fibre.

L'automodulation de phase a pour effet d'induire une phase non linéaire dans le profil spectral de l'impulsion et de conserver le profil temporel :

$$I(z, \xi) = \frac{\epsilon_0 c}{2} |E(z, \xi)|^2 = \frac{\epsilon_0 c}{2} |E(0, \xi) \cdot e^{i\Phi_{nl}}|^2 = I(0, \xi) \quad (1.10)$$

Pour comprendre l'effet de l'automodulation de phase sur l'enveloppe spectrale on s'intéresse à la fréquence instantanée définie par :

$$\omega(\xi) = \omega_0 - \frac{\partial \Phi_{nl}}{\partial \xi} = \omega_0 - \gamma \cdot z \frac{\partial}{\partial \xi} I(0, \xi) \quad (1.11)$$

Cette fréquence instantanée varie donc au court du temps entre deux valeurs extrêmes autour

de la fréquence centrale : $\omega_0 \pm \Delta\omega_{\max}$ où $\Delta\omega_{\max} = \gamma z \left. \frac{\partial I(\xi)}{\partial \xi} \right|_{\max}$, ces deux valeurs étant obtenues

pour des pentes maximales de la fonction de phase non linéaire Φ_{nl} . Dans le cas d'un champ gaussien, on peut calculer facilement cette fréquence instantanée comme le montre la figure (1.5).

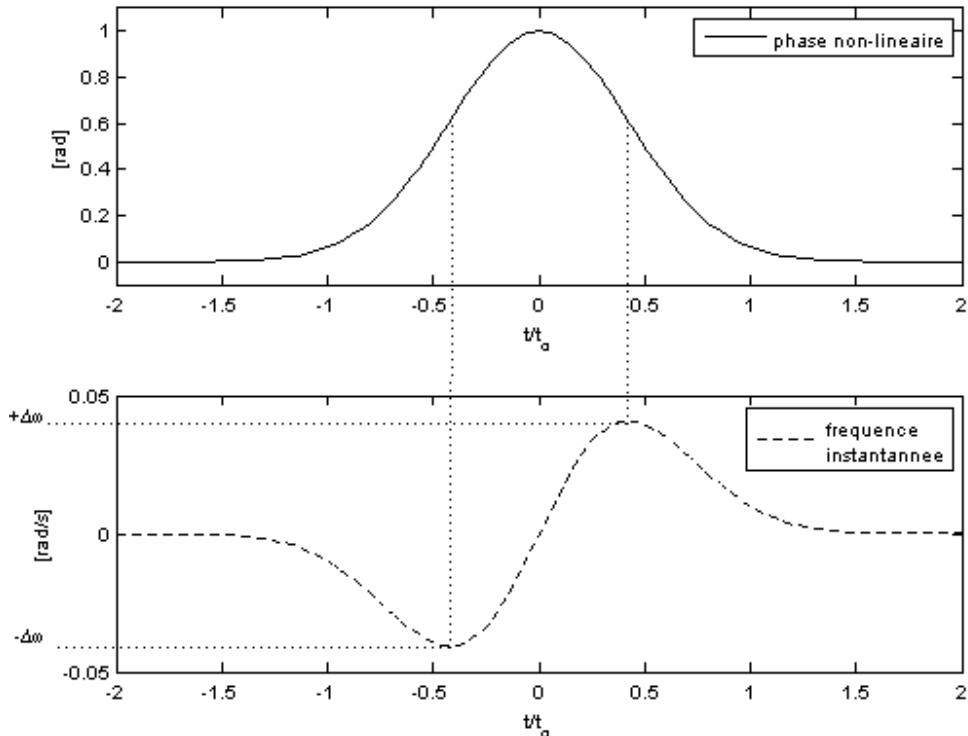


FIGURE 1.5 : PHASE NON LINÉAIRE Φ_{nl} DUE À L'AUTOMODULATION DE PHASE ET FRÉQUENCE INSTANTANÉE ω .

Cette figure montre qu'il existe deux points sur la courbe représentative de $\Phi_{nl}(t)$ possédant la même valeur de pente. Ces deux points correspondent à la même fréquence et peuvent interférer, ce qui introduit des cannelures dans les spectres. Mais surtout, elle montre que la fréquence instantanée présente une dérive qui n'est linéaire que pendant une fraction de la durée de l'impulsion. La non-linéarité de cette dérive de fréquence sur les ailes de l'impulsion limite la recompression.

Sur la figure (1.6) sont présentés quelques spectres calculés pour différentes valeurs arbitraires de cette phase non linéaire maximale, dans le cadre d'une propagation à une dimension. Ils correspondent à la propagation d'une impulsion laser de 35 fs à 800 nm ne subissant que l'effet de l'automodulation de phase.

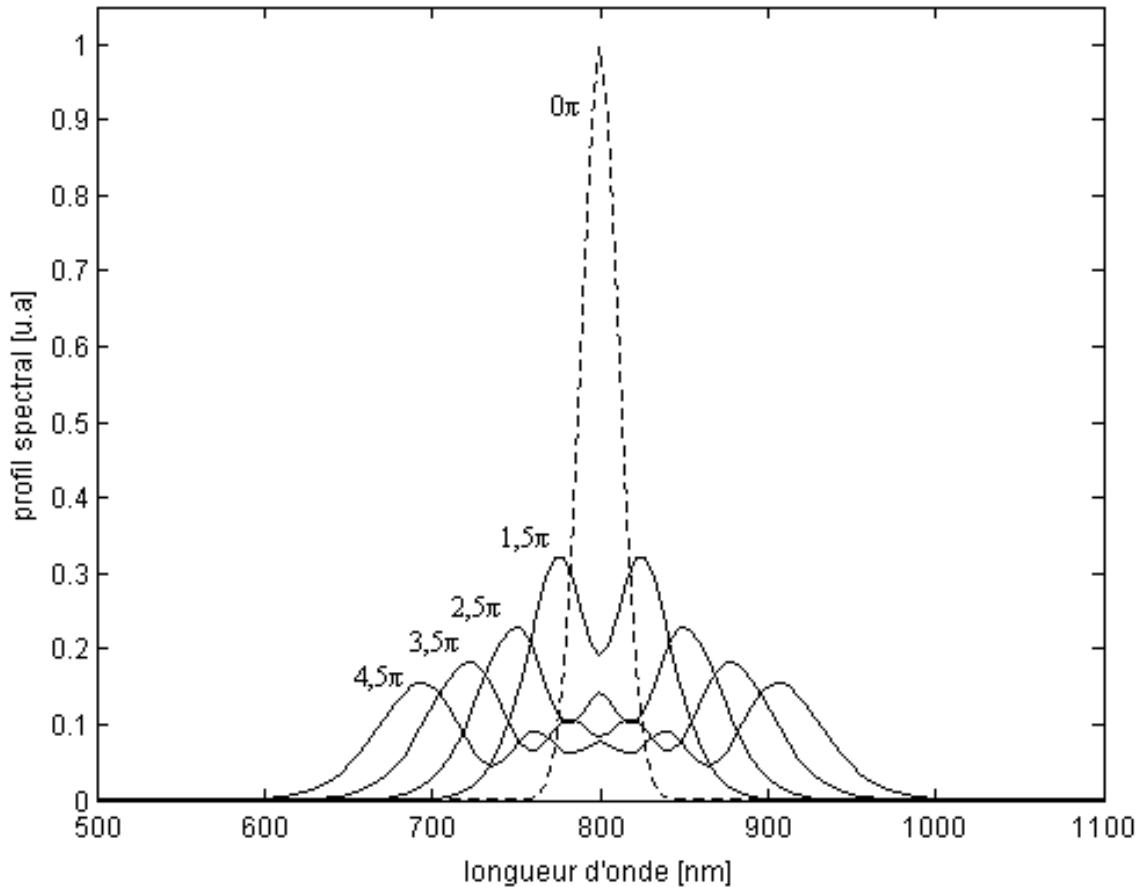


FIGURE 1.6 : SPECTRES D'UNE IMPULSION LASER DE 35 FS ÉLARGIE PAR AUTO MODULATION DE PHASE, POUR DIFFÉRENTES VALEURS DE LA PHASE NON LINÉAIRE MAXIMALE Φ_{nl}^{\max} .

On note que le spectre s'élargit au fur et à mesure que la valeur maximale de la phase non linéaire augmente. Cependant quelle que soit cette valeur, la dérive de fréquence instantanée n'est pas linéaire pendant toute la durée de l'impulsion. L'automodulation de phase seule ne suffit pas à produire des impulsions laser sub-10fs. Si l'on veut atteindre une telle durée, il faut linéariser cette dérive de fréquence : c'est le rôle que va jouer la dispersion chromatique.

iii) La dispersion chromatique.

La propagation d'impulsion dans un milieu est gouvernée au niveau macroscopique par l'équation d'onde suivante issue des équations de Maxwell :

$$\left[\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] E(r, t) = -\mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P(r, t) \quad (1.12)$$

Où $E(r, t)$ désigne le champ électrique macroscopique et $P(r, t)$ la polarisation induite par l'interaction champ électrique laser-milieu.

Cette polarisation se décompose suivant une partie linéaire et une partie non-linéaire :

$$P(r, \omega) = [P_L(r, \omega) + P_{NL}(r, \omega)] \quad (1.13)$$

Avec : Polarisation linéaire $P_L(r, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \cdot E(r, \omega)$

Polarisation non linéaire $P_{NL}(r, \omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \cdot E(r, \omega) \cdot E(r, \omega) + \epsilon_0 \chi^{(3)} \cdot E(r, \omega) \cdot E(r, \omega) \cdot E(r, \omega) + \dots$

Où ϵ_0 désigne la permittivité dans le vide, $\chi^{(q)}$ les tenseurs de susceptibilité d'ordre q et $E(r, \omega)$ la transformée de Fourier du champ $E(r, t)$.

Le terme linéaire décrit par $\chi^{(1)}$ est la susceptibilité d'ordre 1, elle décrit les phénomènes de dispersion due au milieu et d'absorption. Les ordres q supérieurs de susceptibilité traduisent les processus non linéaires comme la génération d'harmoniques pairs et impairs.

Dans le cas des gaz, la centro-symétrie du potentiel atomique conduit à des $\chi^{(q)}$ d'ordres pairs nuls. Dans le cas d'un champ laser polarisé linéairement, ces tenseurs de susceptibilité sont réduits à des scalaires. Ceci est valable si la polarisation du champ laser est conservée lors de la propagation, ce qui est assuré grâce à la symétrie du système.

La susceptibilité linéaire $\chi^{(1)}$ est reliée à l'indice de réfraction qui est dépendant de la fréquence ω du laser:

$$n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)} \quad (1.14)$$

Cet indice de réfraction est complexe : $n(\omega) = n_r(\omega) + i \cdot n_i(\omega)$; on peut donc écrire le champ en incluant ce terme de dispersion :

$$E(z, \omega) = E(0, \omega) \cdot e^{i\Phi_d(z, \omega)} \quad (1.15)$$

Où $E(0, \omega)$ désigne la transformée de Fourier du champ en entrée de fibre ($z=0$),

$\Phi_d(z, \omega) = \beta(\omega) \cdot z$ désigne le terme de phase liée à la dispersion

$\beta(\omega) = \frac{n_r(\omega) \cdot \omega}{c}$ étant la constante de propagation reliée à la partie réelle de l'indice de réfraction $n_r(\omega)$.

Mathématiquement, cette constante est développée en série de Taylor pour faire apparaître les coefficients de dispersion chromatique d'ordres supérieurs :

$$\beta(\omega) = \beta_0 + (\omega - \omega_0) \cdot \beta_1 + \frac{1}{2} (\omega - \omega_0)^2 \cdot \beta_2 + \frac{1}{6} (\omega - \omega_0)^3 \cdot \beta_3 + \dots \quad (1.16)$$

où $\beta_q = \frac{\partial^q \beta(\omega)}{\partial \omega^q} \Big|_{\omega=\omega_0}$ (1.17)

On peut alors expliciter les trois premiers coefficients β_1 , β_2 et β_3 :

$$\beta_1 = \frac{\partial \beta(\omega)}{\partial \omega} \Big|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{c} \left\{ \frac{dn_r(\omega)}{d\omega} \times \omega + n_r(\omega) \right\} \Big|_{\omega=\omega_0} = \frac{n_g}{c} = \frac{1}{v_g} \quad (1.18)$$

Où n_g et v_g désignent respectivement l'indice et la vitesse de groupe. On définit également la vitesse de phase v_ϕ qui décrit le mouvement des composants spectrales sous l'enveloppe :

$$v_\phi(\omega) = \frac{c}{n_r(\omega)} \quad \text{c'est à dire que} \quad \beta(\omega) = \frac{\omega}{v_\phi(\omega)}. \quad (1.19)$$

$$\beta_2 = \frac{\partial^2 \beta(\omega)}{\partial \omega^2} \Big|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{c} \left\{ \frac{d^2 n_r(\omega)}{d\omega^2} \times \omega + 2 \cdot \frac{dn_r(\omega)}{d\omega} \right\} \Big|_{\omega=\omega_0} = -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega} \Big|_{\omega=\omega_0} \quad (1.20)$$

$$\beta_3 = \frac{\partial^3 \beta(\omega)}{\partial \omega^3} \Big|_{\omega=\omega_0} = \frac{1}{c} \left\{ \frac{d^3 n_r(\omega)}{d\omega^3} \times \omega + 3 \cdot \frac{d^2 n_r(\omega)}{d\omega^2} \right\} \Big|_{\omega=\omega_0} \quad (1.21)$$

Le coefficient β_2 est appelé dispersion de vitesse de groupe (GVD: Group Velocity Dispersion), il s'exprime en $[\text{fs}^2/\text{m}]$. En fonction de son signe, différents comportements peuvent avoir lieu :

Si $\beta_2 > 0$, les composantes spectrales de haute fréquence ont une propagation plus lente que les composantes spectrales de basse fréquence. Les composantes spectrales présentent une dérive de fréquence positive (analogue à ce qui se passe dans un étireur).

Si $\beta_2 < 0$, l'inverse se produit, les composantes de haute fréquence sont plus rapides que les composantes de basse fréquence, ce qui induit une dérive de fréquence négative (analogue à ce qui se passe dans un compresseur).

En considérant une impulsion gaussienne de durée initiale (FWHM) τ_0 , on obtient une impulsion telle que :

$$E(z, \xi) = A(z) \cdot e^{-2 \ln 2 \cdot \left(\frac{\xi}{\tau_{GVD}} \right)^2} \quad (1.22)$$

Où $A(z)$ désigne une amplitude décroissante avec z , telle que $A_{max} = A(0) = 1$, le paramètre de dispersion de l'impulsion au cours de la propagation est défini par :

$$\Gamma = \frac{\beta_2 z}{\tau_0^2} = \frac{z}{L_{disp}} \quad (1.23)$$

ainsi que la durée de l'impulsion subissant cette dispersion :

$$\tau_{GVD} = \tau_0 \sqrt{1 + \Gamma^2} \quad (1.24)$$

La longueur de dispersion L_{disp} correspondant à la longueur de propagation au bout de laquelle la durée de l'impulsion est multipliée par $\sqrt{2}$. Sur la figure (1.7) est présenté le calcul de l'évolution d'une impulsion laser de 35 fs lors de sa propagation dans l'argon à une pression de 500 mbar.

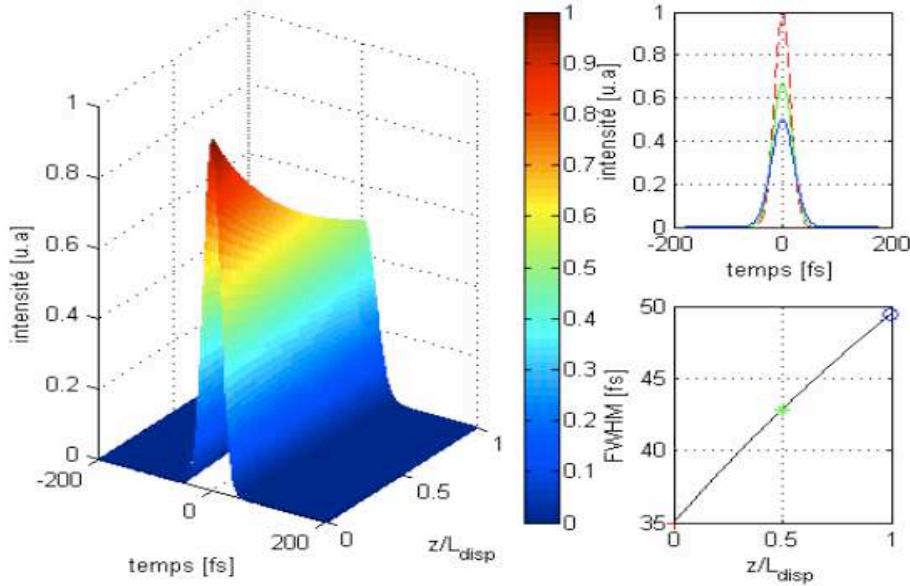


FIGURE 1.7 : ÉLARGISSEMENT TEMPOREL D'UN IMPULSION GAUSSIENNE DE 35 fs DUE À LA DISPERSION DE VITESSE DE GROUPE POUR UNE PRESSION D'ARGON DE 500 mbar ($\beta_2 \sim 6,28 \text{ fs}^2/\text{m}$).

On voit une augmentation claire de la durée de l'impulsion due à la dispersion de vitesse de groupe dans le milieu. Cette dispersion d'ordre 2 ne modifie pas le spectre associé à ce profil temporel :

$$I(z, \omega) = |E(z, \omega)|^2 = |E(0, \omega) \cdot e^{i\Phi_d(z, \omega)}|^2 = I(0, \omega) \quad (1.25)$$

La dispersion chromatique d'ordre 3 décrite par l'équation (1.21), peut être prise en compte dans les cas suivants :

- Si $\beta_2 \sim 0$: l'ordre 3 de dispersion régit alors la dispersion de vitesse de groupe.
- Si $\beta_2 \neq 0$ et que les impulsions utilisées sont très courtes ($\tau_0 < 1 \text{ ps}$), ce qui est notre cas ($\tau_0 = 35 \text{ fs}$).

Afin de connaître l'influence de l'ordre 3 de dispersion sur le profil temporel de l'impulsion, il faut calculer le champ :

$$E(z, \xi) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(0, \omega) \exp \left[\frac{i}{2} \beta_2 \omega^2 z + \frac{i}{6} \beta_3 \omega^3 z - i\omega\xi \right] d\omega \quad (1.26)$$

Pour une impulsion gaussienne, une solution analytique de l'équation (1.26) a été proposée sous forme de fonction d'Airy [9, 10]. Sur la figure (1.8) est représenté le profil temporel de notre impulsion gaussienne de 35 fs au cours de sa propagation pour une pression 500 mbar, d'argon c'est-à-dire dans le cas où $\beta_2=6,28 \text{ fs}^2/\text{m}$ et $\beta_3= -18,84 \text{ fs}^3/\text{m}$.

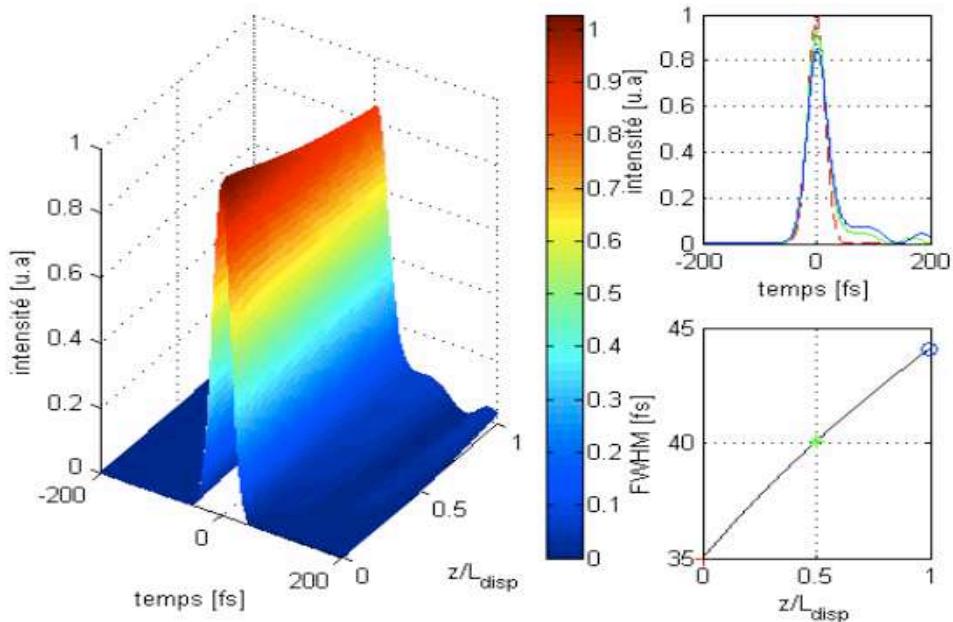


FIGURE 1.8 : ÉVOLUTION DU PROFIL TEMPOREL D'UNE IMPULSION GAUSSIENNE DE 35 fs DUE À LA DISPERSION D'ORDRE 2 ET 3 POUR UNE PRESSION D'ARGON DE 500 mbar.

Le profil initial de l'impulsion est présenté en courbe pointillée, au fur et à mesure de la propagation le profil devient asymétrique faisant apparaître des modulations temporelles. En fonction du signe de β_3 , la dissymétrie du profil est présente soit dans le front montant de l'impulsion, soit dans le front descendant (dans nos calculs, nous avons considéré $\beta_3 < 0$).

Pour produire des impulsions sub-10 fs il est nécessaire de combiner l'automodulation de phase à la dispersion chromatique. Pour cela, on choisira une longueur de fibre adéquate. Nous verrons dans la section (iv) comment choisir cette longueur optimale.

iv) Effets combinés.

Nous avons voulu regarder, dans cette partie, l'influence sur le spectre de l'effet combiné de l'automodulation de phase et de la dispersion. La figure (1.9) présente le profil spectral d'une impulsion laser initialement de 35 fs qui traverse une longueur de 80 cm d'argon à une pression de 500 mbar, en considérant l'automodulation de phase et les dispersions d'ordre 2 ($\beta_2 \sim 6,28 \text{ fs}^2/\text{m}$) et 3 ($\beta_3 \sim -18,84 \text{ fs}^3/\text{m}$).

L'automodulation de phase régit l'élargissement spectral en fonction de la valeur maximale de la phase non linéaire, mais quelle que soit cette valeur, le spectre présente une dissymétrie.

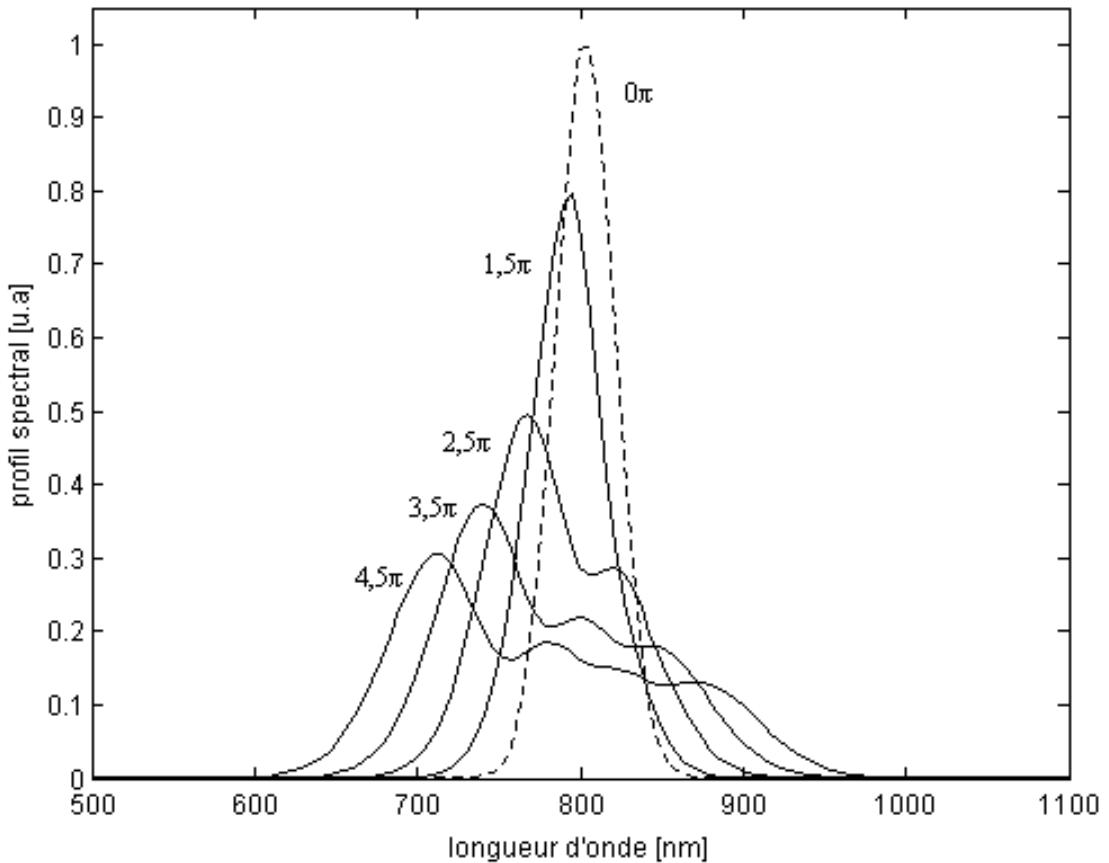


FIGURE 1.9 : PROFIL SPECTRAL D'UNE IMPULSION DE 35 fs SUBISSANT L'AUTOMODULATION DE PHASE ET LA DISPERSION D'ORDRE 2 ET 3, POUR DIFFÉRENTES VALEURS DE LA PHASE NON-LINÉAIRE MAXIMALE ϕ_{\max}^{nl}

En considérant le profil spectral calculé pour une valeur maximale de la phase non linéaire de 4.5π , nous avons représenté sur les figures (1.10) et (1.11), la fréquence instantanée et le profil de l'impulsion recomprimée pour les trois cas suivant :

- En ne considérant que l'automodulation de phase : courbe en pointillés.
- En considérant l'automodulation de phase et la dispersion d'ordre 2: courbe continue.
- En considérant l'automodulation de phase et les dispersions d'ordre 2 et 3 : courbe pointillée.

Lorsque l'on travaille avec l'automodulation de phase seule, le profil de l'impulsion laser recomprimée (en considérant un compresseur quadratique) présente des satellites qui peuvent être gênants pour les applications. En effet, une compression de type quadratique ne permet de compenser la dérive de fréquence qu'au centre du profil là où elle est linéaire et positive. La compensation n'étant pas efficace sur les ailes du profil, il apparaît donc des satellites même lorsque l'automodulation agit seule. Dans ce cas, la fréquence instantanée présente une linéarité peut étendue. Lorsque l'on ajoute l'effet de la dispersion d'ordre 2, les satellites présents dans le profil temporel sont atténués et la dérive de fréquence est plus linéaire. Mais lorsque l'on ajoute l'effet de la dispersion d'ordre 3, le profil temporel devient dissymétrique, la dérive de fréquence perd en linéarité et l'impulsion est plus longue. Pour pouvoir produire des impulsions laser sub-10 fs, il faudra donc coupler l'automodulation de phase à la dispersion d'ordre 2, qui permet d'obtenir des spectres larges qui ont une dérive de fréquence linéaire sur la majeure partie du profil temporel.

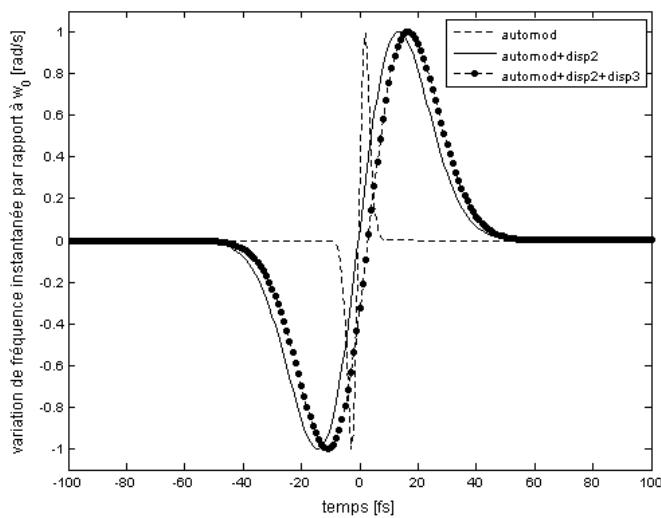


FIGURE 1.10 : VARIATION DE LA FRÉQUENCE INSTANTANÉE D'UNE IMPULSION LASER INITIALEMENT DE 35 fs (PAR RAPPORT A ω_0 PRIS POUR ORIGINE) SUBISSANT L'EFFET DE L'AUTOMODULATION DE PHASE SEULE (TIRETS), LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE ET DE LA DISPERSION D'ORDRE 2 (CONTINU) ET LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE ET DES DISPERSIONS D'ORDRE 2 ET 3 (POINT), POUR UNE PHASE NON LINÉAIRE MAXIMALE DE 4.5π .

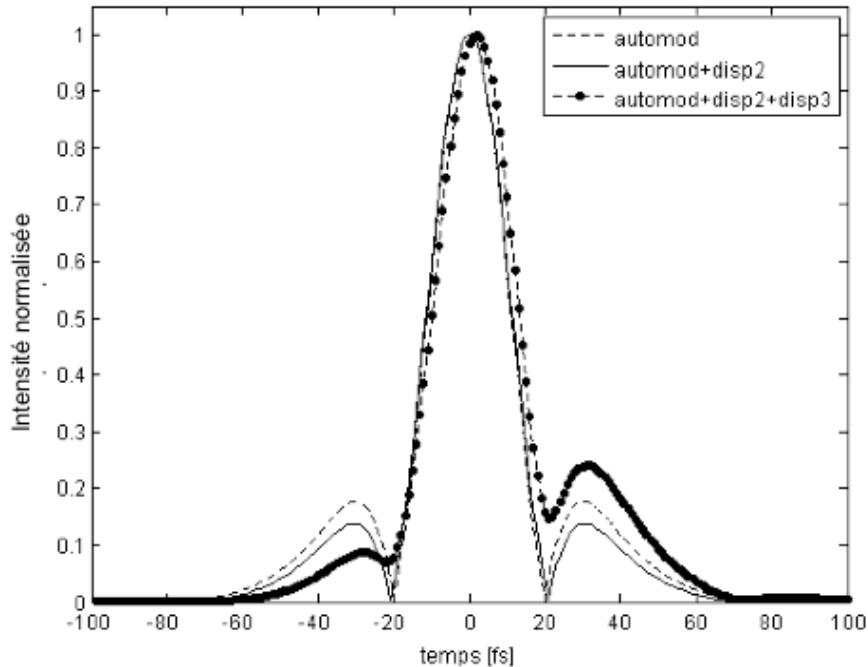


FIGURE 1.11 : PROFIL TEMPOREL D'UNE IMPULSION LASER INITIALEMENT DE 35 fs SUBISSANT L'EFFET DE L'AUTOMODULATION DE PHASE SEULE (TIRETS), LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE ET DE LA DISPERSION D'ORDRE 2 (CONTINU) ET LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE, ET DES DISPERSIONS D'ORDRE 2 ET 3 (POINTS), POUR UNE PHASE NON LINEAIRE MAXIMALE DE $4,5 \pi$.

Afin de comparer ces processus, on introduit usuellement deux longueurs caractéristiques, la longueur de dispersion L_{disp} et la longueur de non-linéarité L_{nl} [8] définie par :

$$L_{disp} = \frac{\tau_0^2}{|\beta_2|} \quad \text{et} \quad L_{nl} = \frac{\lambda}{2\pi n_2 I_0} \quad (1.27)$$

Où $n_2 = P[\text{bar}] \cdot 9.8 \cdot 10^{-24} [\text{m}^2/\text{W}]$ (cas de l'argon) à 800 nm, $n_2 = P[\text{bar}] \cdot 7.4 \cdot 10^{-25} [\text{m}^2/\text{W}]$ (cas du néon) à 800 nm, et où β_2 et β_3 sont calculés à partir des équations (1.20) et (1.21).

Dans le cas de l'argon et du néon, β_2 et β_3 , exprimés respectivement en $[\text{fs}^2/\text{m}]$ et $[\text{fs}^3/\text{m}]$, sont donnés par :

$$\beta_2(\text{Ar}) = 12,5689 \cdot P[\text{bar}] \quad \text{et} \quad \beta_2(\text{Ne}) = 12,5656 \cdot P[\text{bar}]$$

$$\beta_3(\text{Ar}) = -37,6928 \cdot P[\text{bar}] \quad \text{et} \quad \beta_3(\text{Ne}) = -37,6969 \cdot P[\text{bar}]$$

Les deux longueurs caractéristiques, L_{disp} et L_{nl} , sont reliées à l'automodulation de phase et la dispersion selon :

$$\tau_{\text{GVD}} = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{L_{\text{disp}}} \right)^2} \quad \text{et} \quad \Phi_{\text{nl}}^{\text{max}} = \frac{z}{L_{\text{nl}}} \quad (1.28)$$

La longueur de dispersion L_{disp} est définie (en ne considérant que le phénomène de dispersion) comme étant la longueur de propagation au bout de laquelle la durée de l'impulsion est multipliée par $\sqrt{2}$. La longueur L_{nl} liée à l'automodulation de phase, quant à elle, correspond à la longueur de propagation au bout de laquelle le spectre est deux fois plus large (en ne considérant que le phénomène d'automodulation de phase).

La longueur de fibre, déterminant quels processus entrent en jeu dans l'évolution de la durée de l'impulsion injectée, dépend des longueurs L_{disp} et L_{nl} . On définit alors les régimes de propagation suivant : Soit L_{fib} la longueur du milieu,

- $L_{\text{fib}} \ll L_{\text{nl}}$ et $L_{\text{fib}} \ll L_{\text{disp}}$: Ni la dispersion, ni l'automodulation de phase, n'ont un effet conséquent sur la durée de l'impulsion au cours de la propagation. Le profil temporel étant conservé, ce régime est souvent utilisé pour le transport de donnée par des fibres optiques présentant une très grande transmission.
- $L_{\text{fib}} \ll L_{\text{nl}}$ mais $L_{\text{fib}} \sim L_{\text{disp}}$: La durée de l'impulsion tout au long de sa propagation dans le milieu est gouvernée par la dispersion de vitesse de groupe. L'automodulation de phase est alors négligeable. Cela résulte en un élargissement temporel de l'impulsion.
- $L_{\text{fib}} \ll L_{\text{disp}}$ mais $L_{\text{fib}} \sim L_{\text{nl}}$: L'automodulation de phase est le processus dominant l'évolution de l'impulsion au cours de la propagation. Le spectre est élargi, mais les composantes fréquentielles créées par automodulation ne sont pas en phase (dérive de fréquence positive). La durée de l'impulsion n'est donc pas réduite.
- $L_{\text{fib}} \gg L_{\text{disp}}$ et $L_{\text{fib}} \gg L_{\text{nl}}$: Les deux processus entrent en jeu dans l'évolution de la durée l'impulsion au cours de la propagation. Si l'automodulation et la dispersion induisent des dérives de fréquence de signe opposé, la durée de l'impulsion est réduite.

L'effet recherché étant de coupler l'automodulation de phase à la dispersion, on définit une longueur optimale L_{opt} [8] de fibre donnée par :

$$L_{opt} = \sqrt{6L_{disp}L_{nl}} \quad (1.29)$$

Cette longueur correspond à la longueur de propagation au bout de laquelle l'action combinée de la dispersion et de l'automodulation de phase induit une dérive de fréquence positive et relativement linéaire sur la durée de l'impulsion, qui est compatible avec une bonne recompression temporelle de l'impulsion.

1.2.2 Post-Compression d'impulsions en régime sub-10fs : principe

Afin d'obtenir expérimentalement des impulsions sub-10 fs nous avons exploité la technique de compression par automodulation de phase dans une fibre creuse remplie de gaz rare. La figure (1.12) présente le dispositif expérimental utilisé à cet effet, en sortie de ligne basse énergie du laser Aurore.

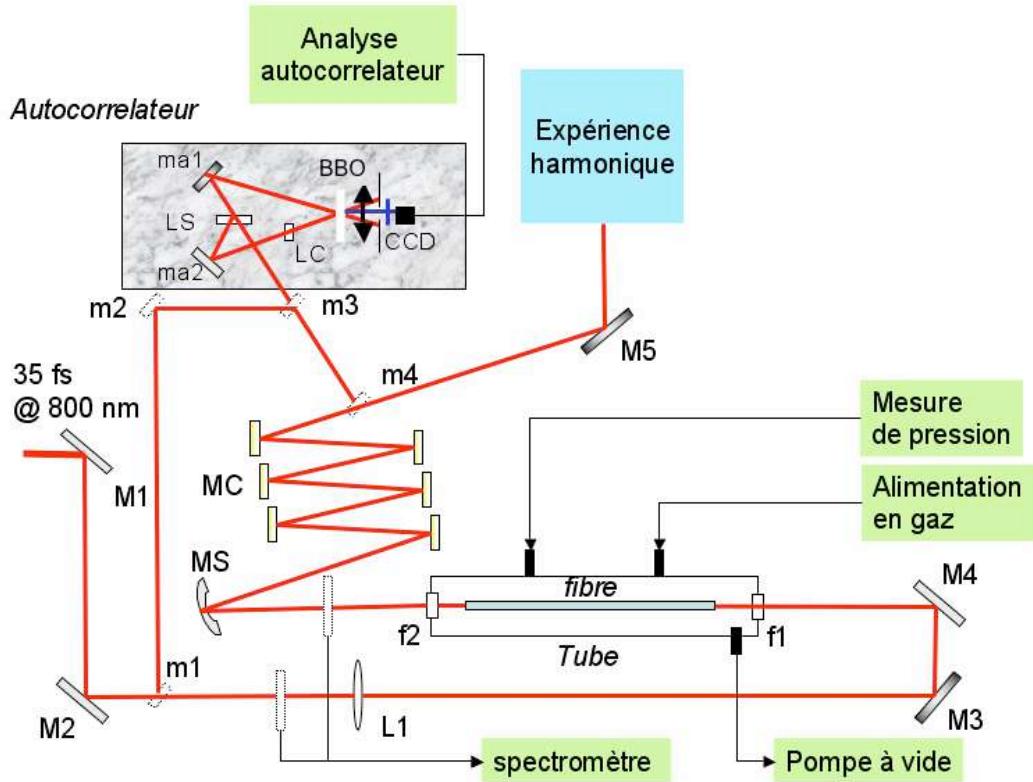


FIGURE 1.12 : DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE POST-COMPRESSION UTILISÉ AU CELIA POUR LA COMPRESSION D'IMPULSION LASER IR 35 fs EN RÉGIME SUB-10 fs.

Cette ligne basse énergie nous permet de disposer d'impulsions de 35 fs et d'une énergie maximale de 2 mJ. À l'aide des miroirs M1 et M2 ($\phi 50$), nous injectons ces impulsions dans notre dispositif de post-compression.

Afin de connaître la durée initiale de l'impulsion, nous utilisons les petits miroirs amovibles m1, m2 et m3 ($\phi 25$) qui permettent à tout moment de rediriger le faisceau laser vers l'autocorrélateur. Le dispositif de post-compression est constitué des éléments suivants :

Une lentille L1 de focale 1500 mm et un diaphragme permettent d'adapter la dimension du waist (w_0) du faisceau laser à l'entrée de la fibre (rayon $a=170 \mu\text{m}$) selon le critère $w_0/a \sim 64 \%$. De cette façon, nous optimisons le couplage laser dans le mode EH_{11} de la fibre. Les miroirs de repli M3 et M4 permettent de minimiser l'encombrement spatial du dispositif.

Typiquement, nous avons observé une transmission de 50 à 60 % de l'énergie laser en sortie de fibre. Ces pertes en transmission sont principalement dues à la qualité du couplage en entrée de fibre et à l'atténuation du mode EH_{11} lors de la propagation. Nous avons en effet testé plusieurs fibres de rayon interne $a=170\mu\text{m}$ et de même longueur qui ne nous donnaient pas la même transmission. L'atténuation due aux imperfections (rugosité interne du capillaire et propreté de la fibre) de l'interface cœur-gaine est ici négligeable. La longueur de la fibre est de 80 cm, cette longueur permet de se placer dans le régime où l'automodulation de phase gouverne l'évolution de l'impulsion au cours de sa propagation. Les longueurs caractéristiques L_{nl} et L_{disp} , peuvent être exprimées en fonction des paramètres utiles en expérience à savoir l'énergie laser en entrée E (en μJ) et la pression du gaz dans la fibre P_{gaz} (en mbar):

Dans le cas de l'argon et pour une impulsion de 35 fs:

$$\beta_2 \approx 12,6 \cdot [fs^2 / m] P_{(Ar)} \cdot \times 10^{-3} [mbar] \quad (1.30)$$

On a alors

$$L_{disp}[m] = \frac{97,5}{(P_{(Ar)}[bar])} \text{ et } L_{nl}[m] = \frac{40,5}{(P_{(Ar)}[bar]) \times E[\mu\text{J}]} \quad (1.31)$$

Dans notre expérience, nous avons fait varier la pression de l'argon de 200 à 1000 mbar et celle du néon de 500 à 2500 mbar. Les énergies d'entrée ont été respectivement fixées à 0,5 mJ pour l'expérience dans l'argon et 1,6 mJ pour l'expérience dans le néon. Ce qui induit les intervalles de longueurs caractéristiques suivants :

Expérience de post-compression dans l'argon :

$$L_{\text{disp}} \in [97-490] \text{ m} ; L_{\text{nl}} \in [8-40] \text{ cm} \text{ d'où } L_{\text{opt}} \in [7-34] \text{ m} \quad (1.32)$$

Expérience de post-compression dans le néon :

$$L_{\text{disp}} \in [38-195] \text{ m} \text{ et } L_{\text{nl}} \in [4-23] \text{ cm} \text{ d'où } L_{\text{opt}} \in [3-16] \text{ m} \quad (1.33)$$

Pour une longueur de fibre de 80 cm correspondant à celle utilisée expérimentalement, nous nous trouvons donc dans le cas où $L_{\text{fib}} \sim L_{\text{nl}}$ et $L_{\text{fib}} \ll L_{\text{disp}}$, qui correspondrait au régime où l'automodulation de phase domine l'évolution de l'impulsion au cours de la propagation. Il faut donc ajouter des miroirs à dérive de fréquence négative en sortie de fibre pour obtenir des impulsions sub-10fs.

Cette fibre est placée dans un tube présentant une arrivée de gaz qui assure l'alimentation de la fibre, une jauge de mesure de pression et un pompage permettant à tout moment de diminuer la pression dans la fibre.

Les fenêtres f1 et f2 (épaisseur 1 mm) sont en BK7 et sont placées suffisamment loin de l'entrée et de la sortie de la fibre pour que l'éclairement laser n'y induise pas d'effets non linéaires. En sortie de fibre, le faisceau divergent est collimaté à l'aide d'un miroir sphérique MS ($f = 500$ mm). Il permet également de diriger le faisceau vers une série de 6 miroirs à dérive de fréquence négative (« miroirs chirpés : MC). Les miroirs « chirpés » utilisés en simple passage, sont des miroirs Layertec dont les caractéristiques sont présentées en figure 1.13. Les quatre premiers miroirs ont une réflectivité supérieure à 99% sur la gamme spectrale 630-1010 nm et fonctionnent par paires (les miroirs doivent être utilisés deux par deux pour induire une phase spectrale plate) sur la largeur spectrale 720-900 nm. Les deux derniers miroirs ont une réflectivité supérieure à 99% sur la gamme spectrale 750-900 nm et fonctionnent en singleton (chaque miroir induit une phase spectrale plate) sur la largeur spectrale 750-900 nm. Ils induisent au total une dispersion de vitesse de groupe négative de $\sim 200 \text{ fs}^2$. Ils permettent de compenser la dispersion due à la fenêtre f2, ainsi que celle due à l'effet conjugué de l'automodulation de phase et de la dispersion de vitesse de groupe.

Le miroir m4 amovible permet d'intercepter le faisceau pour permettre une mesure de la durée de l'impulsion en sortie de post compression. On utilise un spectromètre à fibre optique pour mesurer le spectre initial en entrée de fibre ou final en sortie de fibre.

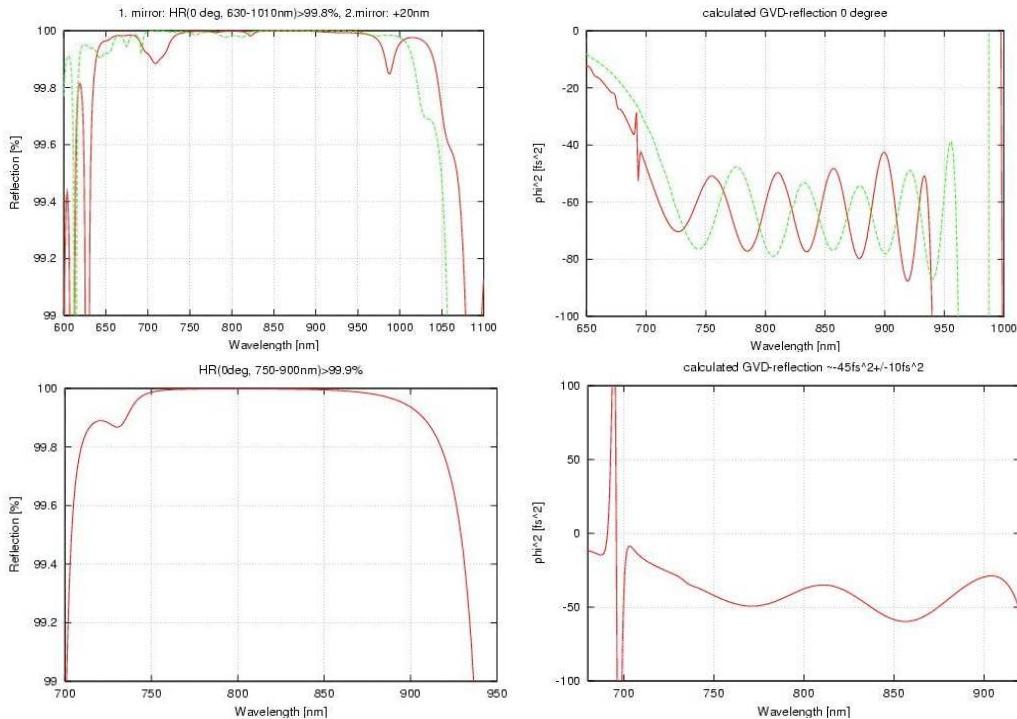


FIGURE 1.13 : CARACTÉRISTIQUES DES MIROIRS A DERIVE DE FREQUENCE NEGATIVE UTILISES POUR L'EXPERIENCE DE POST COMPRESSION DES IMPULSIONS LASER ISSUES D'AURORE.

1.2.3 Post -Compression d'impulsions en régime sub-10fs : résultats expérimentaux.

Comme nous avons pu le voir au travers des équations (1.31), les deux paramètres importants dans ces expériences de post-compression sont : la pression du gaz dans la fibre et l'énergie injectée. Cependant ces deux paramètres sont limités: On ne peut pas indéfiniment augmenter l'énergie injectée car on atteindrait très vite le seuil d'ionisation du gaz, ce qui aurait pour conséquence de ne plus élargir efficacement le spectre, de le décaler vers les longueurs d'ondes courtes où la compensation de dispersion et la réflectivité des miroirs chirpés est moins efficace (limitation ~750 nm), et ainsi d'augmenter les pertes.

Il faut donc se placer à des éclairements inférieurs à l'éclairement de saturation des gaz rares présenté en chapitre I.2 (tableau 2.1). De la même façon, on ne peut augmenter indéfiniment la pression de gaz car les fenêtres f1 et f2 risqueraient de rompre.

Souhaitant rester dans le régime où l'automodulation de phase prévaut pour que l'ajout de notre série de miroirs chirpés compense efficacement la dérive de fréquence, il faut maintenir L_{nl} dans une fourchette de longueur proche de celle de la fibre. Il faut donc trouver le bon compromis entre pression de gaz et énergie injectée.

i) Expérience de post-compression dans l'argon.

Dans cette série d'expériences, nous avons décidé de maintenir l'énergie à $500\mu\text{J}$ et d'étudier le comportement du spectre en fonction de la pression de gaz. De cette façon, nous limitons l'ionisation car l'éclairement à l'entrée de la fibre est fixé à $3.10^{13} \text{ W/cm}^2 \ll I_{SBI}(\text{Ar}) = 2.4.10^{14} \text{ W/cm}^2$, où $I_{SBI}(\text{Ar})$ désigne l'éclairement de saturation (éclairement de suppression de barrière de potentiel) de l'argon. Les conditions initiales de cette expérience sont présentées en figure (1.14). Le spectre initial a une largeur de 24 nm et la trace d'autocorrélation expérimentale de cette impulsion (FWHM 55 fs) permet de déterminer une durée initiale d'impulsion de 39 fs.

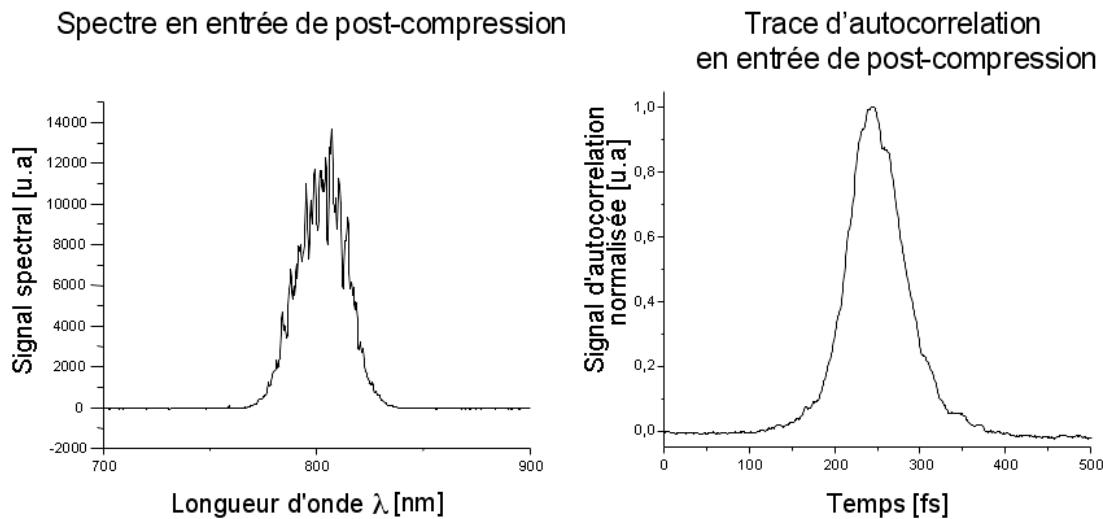


FIGURE 1.14 : CONDITIONS INITIALES D'EXPÉRIENCE DE POST-COMPRESSION DANS L'ARGON. L'IMPULSION INJECTÉE À UNE DURÉE (FWHM) DE 39 fs.

Nous avons mesuré en sortie de fibre une série de spectres expérimentaux présentés en figure (1.15). Ces spectres ont été acquis à la même énergie d'entrée soit $500 \mu\text{J}$ mais pour des pressions d'argon allant de 0 à 1005 mbar. On voit très distinctement l'élargissement du spectre au fur et à mesure que la pression de gaz augmente. Le spectre acquis à 807 mbar, présente une largeur de 142 nm. Tout au long de l'élargissement, on remarque une légère asymétrie des spectres qui peut être due aux effets de la dispersion d'ordre 3.

Nous avons également pu obtenir des spectres plus larges (jusqu'à 175 nm) comme le montre le spectre acquis à 1005 mbar, cependant notre système de miroirs chirpés ne permettait pas une compression proche de la limite de Fourier (5 fs). De plus à une telle pression, le mode en sortie de fibre devient très instable spatialement et le spectre est légèrement décalé vers les longueurs d'ondes courtes, ce qui indique que la densité d'électrons influence la propagation de l'impulsion dans la fibre. En nous maintenant à environ 150 nm nous assurons ainsi une bonne qualité spatiale du faisceau et une bonne transmission d'énergie laser.

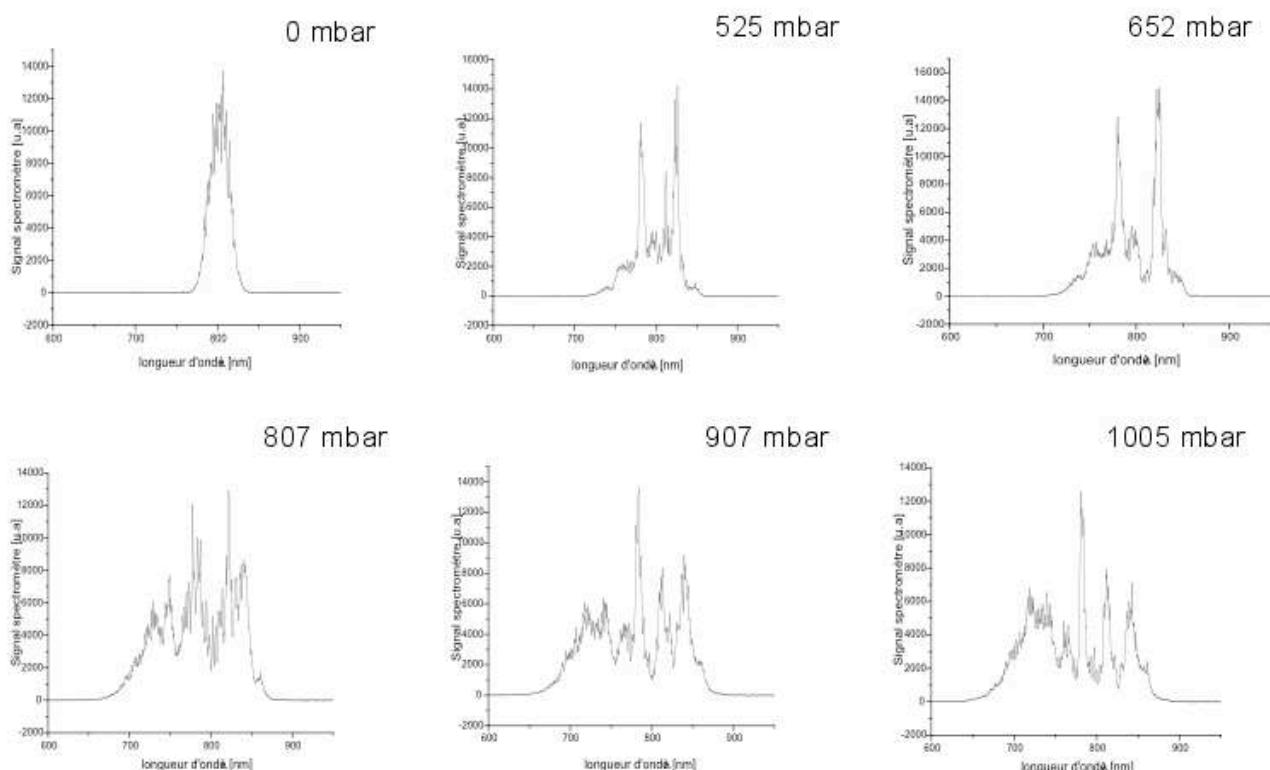


FIGURE 1.15 : SPECTRES EXPÉRIMENTAUX OBTENUS APRÈS ÉLARGISSEMENT SPECTRAL DANS UN CAPILLAIRE ($L_{\text{fib}}=80 \text{ cm}$ ET $A=170 \mu\text{m}$) REMPLI PAR UNE PRESSION P_{Ar} D'ARGON.

Pour améliorer la compensation, nous avons délibérément surcompensé la dérive de fréquence positive en ajoutant des miroirs chirpés en excès. En ajoutant sur le trajet du faisceau une lame de 1 mm de silice en double passage, nous induisons une dérive de fréquence positive (chirp positif) variable en fonction de l'orientation de cette lame.

Nous avons donc été en mesure d'élargir le spectre d'un facteur 6 (pour un élargissement de 142 nm) mais cela ne nous assure pas qu'un facteur identique sera obtenu temporellement, car la compensation de la dispersion par les miroirs chirpés associé à la lame de silice n'est pas parfaite. Cependant, grâce aux miroirs amovibles qui nous permettent de faire des mesures de durée par autocorrélation, nous avons pu comparer la durée en entrée et en sortie de système de post-compression comme le montre la figure (1.16).

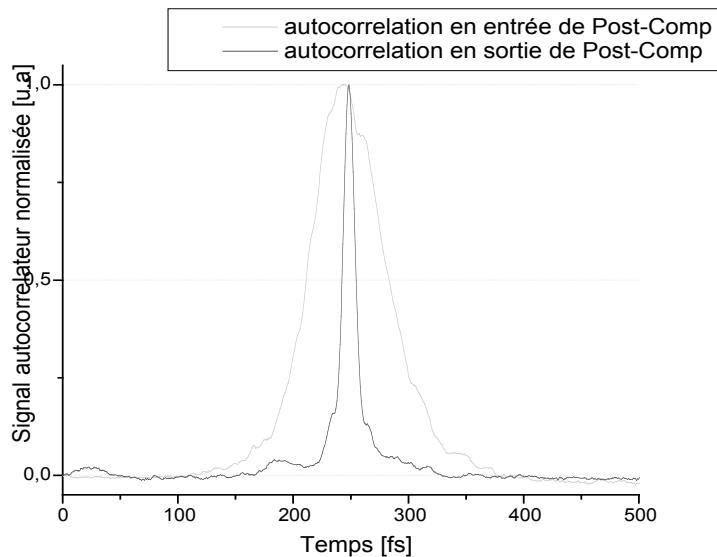


FIGURE 1.16: TRACE D'AUTOCORRELATION EN ENTRÉE (GRIS) ET EN SORTIE (NOIR) DE POST COMPRESSION POUR UNE PRESSION DE 807 mbar D'ARGON.

Les traces d'autocorrélation ont une durée respective de 68 fs (entrée) et 12 fs (sortie). Ceci correspond à une durée d'impulsion de 48 fs en entrée de post-compression et 9 fs en sortie de post-compression (déconvolution Gaussienne). Grâce à ce système, nous sommes donc en mesure de produire des impulsions sub-10 fs avec une énergie d'environ 210 μ J soit une transmission de tout le système de post-compression de $\sim 40\%$. Le facteur de compression temporelle dépend fortement de la durée initiale de l'impulsion, dans notre cas nous avons été capable d'atteindre un facteur 5.

Pour avoir une estimation de la compensation à induire à l'aide de notre série de miroirs chirpés couplé à la lame de silice en double passage, nous avons calculé la dérive de fréquence (chirp) introduit par le dispositif de la façon suivante :

$$GVD_{\text{tot}} = GVD_{\text{argon}} + GVD_{\text{FS}} * e_{\text{FS}} + GVD_{\text{BK7}} * e_{\text{BK7}} \quad (1.34)$$

Où GVD_{argon} , GVD_{BK7} et GVD_{FS} désignent respectivement les chirps non linéaires introduits par l'argon, la fenêtre de sortie (en BK7) d'épaisseur e_{BK7} , la lame de silice (1mm) en double passage ainsi que la lame compensatrice de l'autocorrelateur (1 mm de silice), le tout d'épaisseur e_{FS} .

Sachant que :

$GVD_{\text{FS}} = 36 \text{ fs}^2/\text{mm}$ et $e_{\text{FS}} = 3 \text{ mm}$ (2 mm+1mm), $GVD_{\text{BK7}} = 32 \text{ fs}^2/\text{mm}$ et $e_{\text{BK7}} = 1 \text{ mm}$ et que

$$GVD_{\text{argon}} = \frac{\omega_{nl}(t)}{\tau_0} = \left[\beta_2 \frac{2(L_{fib} / L_{disp})}{1 + (L_{fib} / L_{disp})^2} \cdot \frac{4 \ln 2 \cdot t}{\tau_0^2} \right] / \tau_0.$$

il vient :

$GVD_{\text{argon}} = 107 \text{ fs}^2$, $GVD_{\text{FS}} \cdot e_{\text{FS}} = 108 \text{ fs}^2$, $GVD_{\text{BK7}} \cdot e_{\text{BK7}} = 32 \text{ fs}^2$ et donc $GVD_{\text{tot}} = 247 \text{ fs}^2$.

Sachant que nous compensons via les miroirs chirpés -200 fs^2 , la durée mesurée de l'impulsion à 8-9 fs est proche de la durée accessible par transformée de Fourier de ce spectre, soit 6 fs.

ii) Expérience de post-compression dans le néon.

Afin de disposer d'impulsions $\sim 10 \text{ fs}$ mais avec des énergies plus grandes (proche du mJ) en sortie de post-compression nous nous sommes intéressés au néon. Son éclairement de saturation plus élevé ($I_{\text{SBI}}(\text{Ne}) = 8,6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) nous permet d'envisager, pour la même géométrie de dispositif de post-compression, des énergies d'entrée 3 à 4 fois supérieures à celle utilisée pour les expériences dans l'argon, ce qui nous conduit à des énergies $\sim 1,5 \text{ mJ}$. Nous avons donc réalisé une campagne d'expérience de post-compression en sortie de ligne basse énergie d'Aurore. Les longueurs caractéristiques calculées pour le néon (1.33) nous indiquent qu'il est possible de travailler avec la même fibre. Nous avons pu ainsi mesurer les spectres en sortie de fibre pour une énergie d'entrée de 1,6 mJ et des pressions allant de 500 à 2500 mbar comme le montre la figure (1.17).

L'énergie par impulsion disponible en sortie de fibre est $\sim 800 \mu\text{J}$ et $580 \mu\text{J}$ après les miroirs chirpés. Ce qui induit une transmission totale du système $\sim 36\%$.

À une pression de 2,5 bar, le spectre est élargi à 80 nm correspondant à une impulsion limitée par Fourier à une durée de 12 fs. Nous obtenons donc dans le néon un facteur ~ 3 d'élargissement spectral.

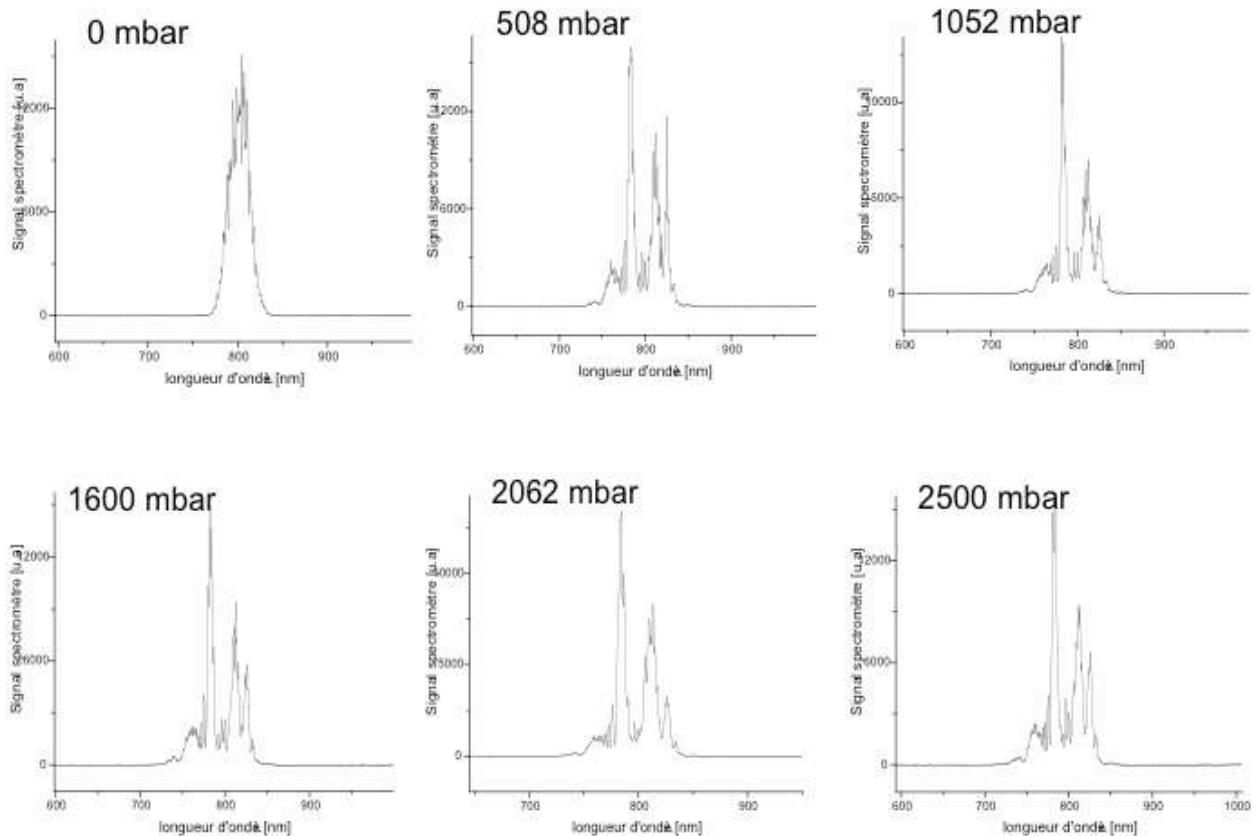


FIGURE 1.17 : SPECTRES EXPÉRIMENTAUX OBTENUS APRÈS ÉLARGISSEMENT SPECTRAL DANS LE NEON.

Afin d'optimiser la compensation de la dérive de fréquence positive, nous avons de nouveau surcompensé la dérive de fréquence négative et testé l'ajout de plusieurs lames. Nous avons pu mesurer ainsi des durées d'impulsion de 15 fs. Nous n'avons pas pu dans les mêmes conditions expérimentales alors accessibles (même fibre, même focale d'injection, pression et éclairement laser accessibles), atteindre les conditions optimales pour la production d'impulsion sub-10fs dans le néon. De plus, il a été plus difficile d'élargir le spectre obtenu dans le néon à 150 nm (à 800 nm : $n_2(\text{néon}) = 7,4 \cdot 10^{-25} [\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}] < n_2(\text{argon}) = 9,8 \cdot 10^{-24} [\text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}]$) en conservant une bonne qualité de faisceau en sortie de fibre.

Pour envisager d'atteindre les conditions optimales en utilisant le néon, il faudra modifier le dispositif en changeant la focale d'injection dans la fibre (pour avoir un éclairement crête plus important et induire un plus grand élargissement spectral) et utiliser de ce fait une autre taille de fibre pour optimiser le couplage. Le néon offre cependant beaucoup de potentiel pour produire des impulsions sub-10 fs avec des énergies de l'ordre de 1mJ.

Dans la suite des expériences utilisant des impulsions issues de la post compression, nous avons utilisé l'argon qui donnait alors de meilleurs résultats.

1.3 Conclusion et perspectives.

Nous avons développé une nouvelle ligne IR sub-10 fs qui permet d'utiliser des impulsions d'une durée de 8 fs et d'une énergie de $\sim 210 \mu\text{J}$ avec un système de post compression dans l'argon. Nous avons également à disposition des impulsions d'une durée de 15 fs et d'une énergie de $580 \mu\text{J}$ obtenue dans le néon. La post compression dans le néon offre cependant la perspective de produire des impulsions sub-10fs à $\sim 1 \text{ mJ}$ dans la mesure où, le néon ayant un éclairement de saturation plus élevé que l'argon, il est possible d'injecter près de 1,6 mJ dans la fibre sans risque d'ionisation. Nous retiendrons que le dispositif expérimental de post compression est fiable dans la mesure où l'énergie, la durée de l'impulsion post-comprimée et la qualité spatiale du mode, restent stables pendant plusieurs heures. La seule précaution à prendre en vue d'une utilisation de ces impulsions, reste de maintenir le pointé du laser afin d'optimiser le couplage laser-fibre. Pour cela il faut s'affranchir de toutes les fluctuations d'air au niveau du laser et avoir un dispositif d'alignement de la fibre précis. Les expériences dans l'argon et le néon nous ont permis de comprimer temporellement nos impulsions laser d'un facteur 5 et d'un facteur 2 respectivement. Ce facteur n'est limité que par le dispositif de compensation de la GVD (miroirs chirpés + lame compensatrice). Notons que le transport de ces impulsions sub-10fs vers les chambres de génération d'harmonique a nécessité une compensation supplémentaire (ajout de miroirs chirpés).

Pour pouvoir injecter encore plus d'énergie, une méthode alternative de compression sub-15fs a été proposée [11]. Elle consiste à effectuer l'automodulation de phase couplée à la dispersion dans des matériaux solides et à réaliser un filtrage spatial au foyer pour homogénéiser le mode. Elle a permis la compression d'impulsions, initialement d'une durée de 38 fs et d'une énergie de 1,5 mJ, à une durée de 14 fs avec une énergie de 0,5 mJ.

Même si la transmission du système est limitée à 35%, l'avantage de cette technique reste la possibilité d'injecter plusieurs mJ dans le système, elle sera donc plus adaptée à la future chaîne laser éclipse du CELIA, qui produira des impulsions de 30 fs et d'une énergie de 200 mJ à une cadence de 20 Hz.

Il est envisageable de s'intéresser à une autre méthode de compression basée sur la génération d'un filament dans des gaz rares. Cette technique développée à l'IQE-ETH Zurich par l'équipe du Pr. U. Keller, a permis de générer des impulsions d'une durée de 5,7 fs, d'une énergie de 380 μ J. Cette technique est basée sur les effets couplés de l'autofocalisation par effet Kerr et de la défocalisation due à l'ionisation. Outre le fait qu'elle n'est pas limitée en énergie d'injection, cette technique a l'avantage de permettre une bonne transmission en énergie soit 45% de l'ensemble du système [12].

Récemment une nouvelle méthode utilisant l'automodulation de phase dans les fibres creuses avec un gradient de pression a permis de générer des impulsions d'une durée de 10 fs. Ces impulsions d'une énergie de 5 mJ ont déjà pu être utilisé pour générer des harmoniques d'ordre élevé [13, 14].

- [1] Thèse de V. Bagnoud (1999)
“Etude et réalisation d'une chaîne laser femtoseconde kilohertz térawatt”
- [2] M. Pessot, P. Maine and G. Mourou *Opt. Com.* **62**, 419 (1987)
“1000 times expansion/compression of optical pulses for chirped pulse amplification”
- [3] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. D. Silvestri and O. Svelto. *Opt. Lett.* **28**, 1987-1989 (2003)
“Generation of 3.8 fs pulses from adaptative compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum”
- [4] M. Nisoli, S.D. Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania and F. Krausz. *Opt. Lett.* **22**, 522-524 (1997)
“Compression of high-energy laser pulses below 5fs”
- [5] M. Nisoli, S.D. Silvestri and O. Svelto. *Appl. Phys.* **68**, 2793-2795 (1996)
“Generation of a high energy 10fs pulses by a new pulse compression technique”
- [6] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer. *Bell Syst. Tech. J.* **July**, 1783 (1964)
“Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmissions and lasers”
- [7] These de F. Dorchies, *Ecole Polytechnique, Palaiseau, Paris* (1998).
“Etude du sillage laser : application à l'accélération d'électrons”
- [8] G. P. Agrawal.. *Third edition, Academic Press.* (2001)
“Non linear fiber optics”
- [9] W. J. Thominson, R. H. Stolen and C.V. Shank. *J. Opt. Soc. Am B* **1**, 139 (1984)
“Compression of optical pulses chirped by self-phase modulation in fibers”
- [10] Mitsunobu Miyagi and Shigeo Nishida. *Appl. Opt* **18**, 678 (1979)
“Pulse spreading in a single-mode fiber due to third-order dispersion”

- [11] E. Mével, O. Tcherbakoff, F. Salin and E. Constant. *J. Opt. Soc. Am. B* **20**, 105 (2002)
“Extracavity compression technique for high-energy femtosecond pulses”
- [12] C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert and U. Keller. *Appl. Phys. B* **79**, 673-677 (2004)
“Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation”
- [13] Akira Suda, Masatoshi Hatayama, Keigo Nagasaka and Katsumi Midorikawa. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 111116 (2005)
“Generation of sub-10-fs, 5-mJ-optical pulses using a hollow fiber with a pressure gradient”
- [14] Yu Oishi, Akira Suda, Katsumi Midorikawa and Fumihiko Kannari. *Rev. Sci. Instrum.* **76**, 093114 (2005)
“Sub-10 fs, multimillijoule laser system”

Chapitre 2: Source de rayonnement VUV : La génération d'harmoniques d'ordre élevé.

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un processus issu de l'interaction fortement non linéaire d'un gaz (atomique ou moléculaire) et d'un champ laser intense. Ce processus produit une source de rayonnement VUV impulsif qui présente entre autres l'avantage d'être cohérente temporellement et spatialement [1,2] et d'être peu divergente [3]. Il a été démontré [4] que la génération d'harmoniques d'ordre élevé résulte, dans le domaine temporel, en un train d'impulsions attosecondes ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). Afin d'explorer les dynamiques ultra brèves atomiques et moléculaires, une source de génération d'harmoniques d'ordres élevés a été construite au CELIA.

Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord quelques caractéristiques de la génération d'harmoniques d'ordres élevés ainsi que le principe expérimental de la génération.

Dans un deuxième temps, nous présentons, le modèle semi classique en trois étapes qui permet de comprendre l'aspect microscopique de la génération d'harmoniques. L'aspect macroscopique est ensuite présenté à travers la condition d'accord de phase. Enfin les paramètres d'optimisation du rayonnement VUV ainsi que les résultats caractéristiques de la génération d'harmoniques d'ordres élevés obtenus au CELIA sont exposés.

2.1 Génération d'harmoniques d'ordres élevés.

2.1.1 Caractéristiques principales du rayonnement harmonique VUV.

Caractéristiques spectrales et temporelles.

Le rayonnement harmonique se présente spectralement sous la forme d'un peigne dont chacune des composantes correspond à un ordre impair de la fréquence du fondamental ω_0 . Ce spectre, généré par une impulsion laser de 800 nm, peut s'étendre jusqu'à des énergies de 1,3 keV [5]. Il présente une zone spectrale d'intensité constante : « le plateau » et une zone où l'intensité spectrale diminue rapidement avec l'ordre harmonique : « la coupure ». Cette large gamme spectrale harmonique, allant du proche UV (la centaine de nanomètres) aux X mous (quelques nanomètres) [6], constitue une condition nécessaire à l'obtention d'impulsions ultra brèves attosecondes. En 1998 Bouhal et al [7] ont mesuré la durée d'un harmonique à environ 10 fs. Ils ont montré de cette façon que la génération d'harmoniques d'ordre élevé conduisait à la production d'impulsions VUV courtes. Les harmoniques d'ordre élevé ont permis en physique du solide de réaliser une étude spectroscopique et dynamique d'états de surface [8], ou encore l'étude spectroscopique des états excités de l'hélium [9]. Ces harmoniques ont également été utilisés pour suivre la relaxation d'électron chauds dans un isolant [10]. Des études théoriques et expérimentales [4,11] ont finalement démontré que le profil temporel d'un groupe harmoniques se présentait sous la forme d'un train d'impulsions sub-femtosecondes. L'étude de la cohérence temporelle de ces harmoniques a ensuite montré une désynchronisation harmonique mesurable à l'échelle attoseconde [12] qui peut être minimisée en jouant sur l'éclairement laser et le gaz générateur. Des impulsions de 130 as ont ainsi pu être générées et mesurées.

Caractéristiques spatiales.

La qualité spatiale du faisceau harmonique a fait l'objet d'études en champ lointain du profil spatial d'émission, mené par P. Salières et al., [13]. Ils ont démontré qu'en focalisant le faisceau laser avant le jet de gaz et en limitant l'ionisation, le faisceau harmonique présentait un profil spatial proche d'un profil Gaussien. Ceci implique que sous certaines conditions de génération (position du foyer par rapport au gaz, pression), il est possible de générer un faisceau harmonique avec une bonne cohérence spatiale. D'autres études ont permis de mettre en évidence un degré de cohérence spatiale assez important mais qui se dégrade si la pression de gaz est forte ou si l'on focalise après le milieu générateur [14, 15, 16]. Cette cohérence spatiale a été observée expérimentalement par interférométrie UVX [16] et a permis de sonder des milieux denses (plasmas) opaques au rayonnement IR [17].

Énergie harmonique.

L'efficacité de conversion du faisceau IR en faisceau harmonique représente le rapport de l'énergie harmonique sur l'énergie IR incidente:

$$\eta = \frac{N_g \times h\nu_q}{E_0} \quad (2.1)$$

où N_g désigne le nombre de photons harmoniques générés, $h\nu_q$ [eV] désigne l'énergie d'un photon harmonique ($h\nu_q = q h\nu_0$) et E_0 [eV] l'énergie IR incidente par impulsion.

Cette efficacité de conversion est typiquement comprise entre 10^{-5} et 10^{-6} pour les harmoniques générés dans l'argon, dans la gamme spectrale 45-55 nm et de 2.10^{-8} pour les harmoniques générés dans le néon dans la gamme spectrale 25-35 nm [18]. Ces harmoniques ont été générées par des impulsions IR laser de 60 fs et de 27 mJ par impulsion, qui ont permis d'obtenir des énergies harmoniques de quelques μJ par impulsion VUV. Grâce à ces énergies, la durée d'impulsions VUV a pu être mesurée par autocorrélation via l'ionisation de l'hélium à deux photons harmoniques [19, 20].

2.1.2 Principe expérimental de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Expérimentalement la génération d'harmoniques d'ordres élevés est obtenue en focalisant une impulsion IR laser courte et intense dans un gaz atomique ou moléculaire. L'interaction entre le milieu gazeux et le laser (typiquement l'éclairement laser utilisé est de quelques 10^{14} W/cm²) conduit à l'émission de photons dans la gamme VUV, dont la fréquence correspond à q (impair) fois la fréquence du fondamental :

$$hv_q = q hv_0 \quad (2.2)$$

La figure 2.1 présente un schéma expérimental type de génération d'harmoniques d'ordres élevés.

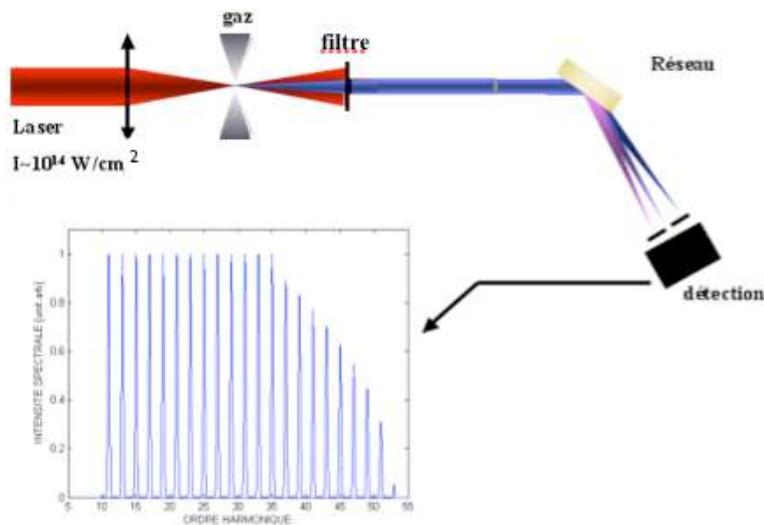


FIGURE 2.1 : SCHÉMA EXPÉRIMENTAL TYPE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS.

En plaçant un filtre en sortie de chambre de génération (généralement quelques centaines de nm d'aluminium) il est possible de s'affranchir du signal IR. Le réseau, en incidence rasante, permet d'analyser le spectre VUV détecté grâce à une caméra CCD, des galettes microcanaux (MCP) ou un photomultiplicateur (PM).

Un spectre idéalisé de génération d'harmoniques est présenté sur la même figure. On retrouve les deux zones caractéristiques du spectre : le « plateau » où l'intensité spectrale est quasi constante et la « coupure » où l'intensité spectrale décroît de plusieurs ordre de grandeurs avec l'ordre q harmonique. La décroissance constitue la « loi de coupure » énoncée par :

$$\hbar\omega_q \text{ [eV]} = I_p \text{ [eV]} + 3,17 U_p \text{ [eV]} \quad (2.3)$$

où I_p désigne le potentiel d'ionisation du gaz cible et U_p l'énergie pondéromotrice du laser.

Une troisième zone existe mais n'est pas représentée ici, elle correspond aux harmoniques basses qui voient leurs amplitudes décroître avec l'ordre harmonique.

Elle n'est en général pas visible dans les spectres mesurés car le filtre d'aluminium coupe ces harmoniques (un filtre de 200 nm d'aluminium transmet à partir de 18 eV coupant les harmoniques jusqu'à l'ordre 11).

Afin de comprendre ces différents aspects de l'émission harmonique, nous allons nous intéresser à l'aspect microscopique du processus à travers le modèle semi classique en trois étapes et à l'aspect macroscopique du processus à travers la description des conditions d'accord de phase.

2.2 Modèle semi classique : Aspect microscopique

Ce modèle a été proposé par P. B. Corkum [21] et permet de comprendre la génération d'harmoniques d'ordres élevés en trois étapes illustrées par la figure 2.2. Dans ce modèle, la première étape du processus consiste à créer un paquet d'onde électronique par ionisation de l'atome, sous l'action du champ laser qui abaisse la barrière de potentiel atomique.

Le paquet d'onde électronique est ensuite accéléré par le champ laser et gagne une certaine énergie cinétique. Lorsqu'il passe à proximité de l'ion parent, il peut se recombiner radiativement et permettre l'émission de photons harmoniques.

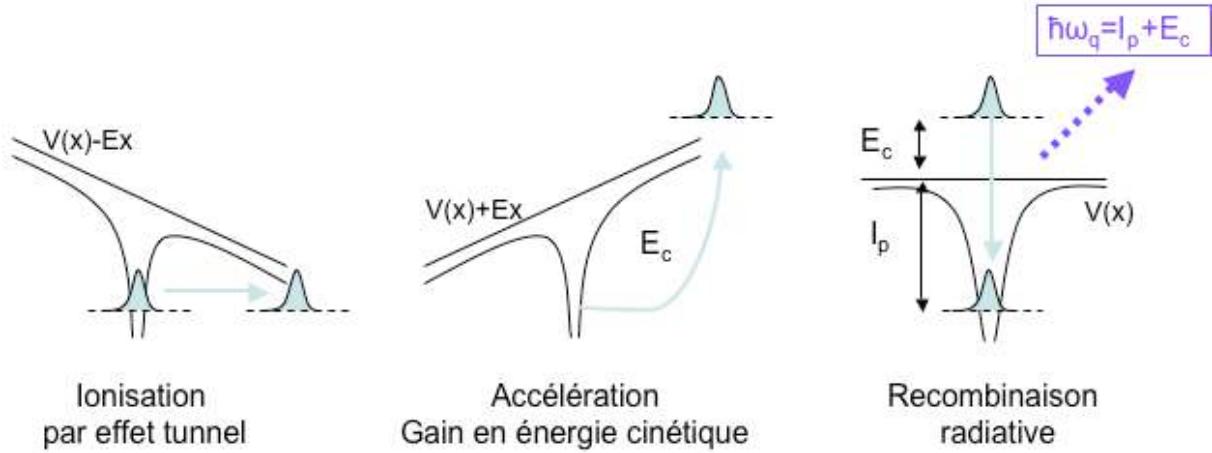


FIGURE 2.2 : MODÈLE SEMI-CLASSIQUE EN 3 ÉTAPES : IONISATION PAR EFFET TUNNEL, ACCÉLÉRATION DU PAQUET D'ONDE ELECTRONIQUE LIBRE PAR LE CHAMP LASER ET RECOMBINAISON RADIATIVE DE CE PAQUET D'ONDE ELECTRONIQUE.

2.2.1 Régimes d'ionisation en présence d'un champ laser.

Le processus d'ionisation en présence d'un champ laser peut être classé en trois régimes : l'ionisation multi photonique, l'ionisation par effet tunnel et l'ionisation par suppression de la barrière de potentiel. Pour plus de clarté, on considère ici l'ionisation d'un seul électron.

On peut séparer les régimes d'ionisation multiphotonique et tunnel à l'aide du paramètre de Keldysh [22] défini comme le quotient du temps que l'électron met à traverser la barrière de potentiel t_{tunnel} par rapport à la période optique laser T_0 , soit :

$$\gamma = \frac{t_{tunnel}}{T_0} \quad (2.4)$$

si $\gamma \ll 1$ alors $t_{tunnel} \ll T_0$, le champ laser possède une grande amplitude et une fréquence peu élevée. La barrière de potentiel est fortement abaissée par le champ laser, et l'électron dispose alors de suffisamment de temps pour la traverser. Ceci correspond au régime d'ionisation par effet tunnel.

Si $\gamma \gg 1$ ou encore $t_{\text{tunnel}} \gg T_0$, le champ laser possède une faible amplitude et une fréquence élevée. L'électron n'a pas le temps de traverser la barrière de potentiel avant que celle-ci ne soit modifiée. L'ionisation ne se fait pas par effet tunnel mais par un autre mécanisme (ionisation multiphotonique).

La probabilité que l'électron soit ionisé par effet tunnel reste liée à la hauteur et la durée de la barrière de potentiel. Elle dépend donc de l'énergie potentielle d'ionisation I_p et de l'énergie pondéromotrice du laser. Le paramètre de Keldysh est donc aussi défini par :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2Up}} \quad (2.5)$$

Pour un champ oscillant laser donné par $E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t)$ où E_0 désigne l'amplitude du champ et ω_0 sa pulsation, l'énergie pondéromotrice est donnée par :

$$Up = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_0^2} \quad (2.6)$$

Où m_e et e sont respectivement la masse et la charge de l'électron. On peut réécrire Up en fonction de l'éclairement laser I_0 , soit :

$$Up[eV] = 9,33 \lambda_0^{-2} [\mu m^2] I_0 [10^{14} W / cm^2] \quad (2.7)$$

Si $\gamma \ll 1$ c'est-à-dire si $I_p \ll Up$, alors l'ionisation par effet tunnel ou l'ionisation par suppression de barrière (si l'amplitude du champ laser est suffisamment importante et basse fréquence) peuvent avoir lieu.

Nous pouvons donc calculer l'éclairement laser pour lequel la barrière de potentiel est complètement abaissée de sorte que l'électron peut s'échapper librement [23]:

$$I_{BSI}[W / cm^2] = 3,8 \cdot 10^9 \frac{Ip^4[eV]}{Z^2} \quad (2.8)$$

Où Z représente l'état de charge de l'ion (si l'ion est ionisé une fois $Z=+1$, deux fois $Z=+2$ etc..).

Dans le tableau 2.1 sont présentés les éclairages de suppression de barrière ou « éclairement de saturation » pour les gaz rares utilisés en expérience pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Atome	I_p [eV]	I_{BSI} [W/cm ²]
He	24,587	$1,4.10^{15}$
Ne	21,564	$8,2.10^{14}$
Ar	15,759	$2,3.10^{14}$
Kr	13,999	$1,5.10^{14}$
Xe	12,130	$8,2.10^{13}$

TABLEAU 2.1 : ÉCLAIREMENT LASER CONDUISANT À L'IONISATION D'UN ÉLECTRON PAR SUPPRESSION DE BARRIÈRE DE POTENTIEL.

Pour des éclairements laser typiquement de 10^{13} W/cm², la barrière de potentiel est abaissée et l'ionisation par effet tunnel peut avoir lieu à condition que l'oscillation du champ laser soit suffisamment lente.

2.2.2 Description du modèle.

Nous allons détailler les trois étapes du modèle de P.B.Corkum afin de comprendre comment la génération d'harmoniques d'ordres élevés se produit. L'approche quantique du modèle de Lewenstein *et al.*, [24], n'est pas détaillée ici, mais ce modèle nous permet d'introduire la notion de famille de trajectoires quantiques.

i) 1^{er} étape : Ionisation par effet tunnel

Ce régime d'ionisation se produit lorsqu'un électron peut traverser la barrière de potentiel Coulombienne abaissée par le champ électrique laser.

Le taux d'ionisation par effet tunnel peut être alors calculé d'après le modèle ADK [25] pour un champ laser linéairement polarisé :

$$W_{lin}[s^{-1}] = \left(\sqrt{\frac{3\omega_t}{2\pi\omega_s}} \times \omega_s |C_{n^*l^*}|^2 \times G_{lm} \times \left[\frac{4\omega_s}{\omega_t} \right]^{2n^*-m-1} \times \exp \left[\frac{-4\omega_s}{3\omega_t} \right] \right) \quad (2.9)$$

avec :

$$\omega_s[s^{-1}] = \frac{I_p}{\hbar} ; \omega_t[s^{-1}] = \frac{qE_0(t)}{\sqrt{2mI_p}} ; G_{lm} = \frac{(l+|m|)!(2l+1)}{|m|!(l-|m|)!} 2^{-|m|} ; |C_{n^*l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^*\Gamma(n^*+l^*+1)\Gamma(n^*-l^*)}$$

$$\text{et } n^* = Z \sqrt{\frac{I_p^H}{I_p}} .$$

Où Z désigne l'état de charge de l'ion parent, $I_p^H = 13,6 \text{ eV}$ le potentiel d'ionisation de l'hydrogène et $E_0(t) = E_0 \cos(\omega_0 t)$ le champ électrique laser.

L'état initial de l'électron étant $|nlm\rangle$, où n , l et m sont respectivement les nombres quantiques principaux, angulaire et magnétique.

Cette formulation du taux d'ionisation est valable pour des champs dit subatomiques soit : $E_0 \ll \frac{E_a Z^3}{16n^{*4}}$ et $n^* \gg 1$; où E_a désigne l'unité atomique de champ électrique soit $5,1.10^{11} \text{ V.m}^{-1}$. Cependant pour $n^* \sim 1$, l'équation (2.9) donne aussi de bons résultats [26].

Ce taux d'ionisation est maximal lorsque le champ électrique laser est maximal et dépend du gaz utilisé et de l'éclairement laser donné par :

$$I_0[W.cm^{-2}] = \frac{(1+\varepsilon) \times (E_{\max}[V.cm^{-1}])}{2Z_0[\Omega]} \quad (2.10)$$

où E est la valeur maximale du champ électrique, $Z_0 = 377 \Omega$ l'impédance dans le vide et ε l'ellipticité du champ (si $\varepsilon = 0$ la polarisation du champ est linéaire, si $\varepsilon = 1$ le champ est polarisé circulairement). La figure 2.3 présente le taux d'ionisation par effet tunnel pour l'argon, le néon et l'hélium en fonction de I_0 dans le cas d'une polarisation laser linéaire (trait plein) et circulaire (pointillé).

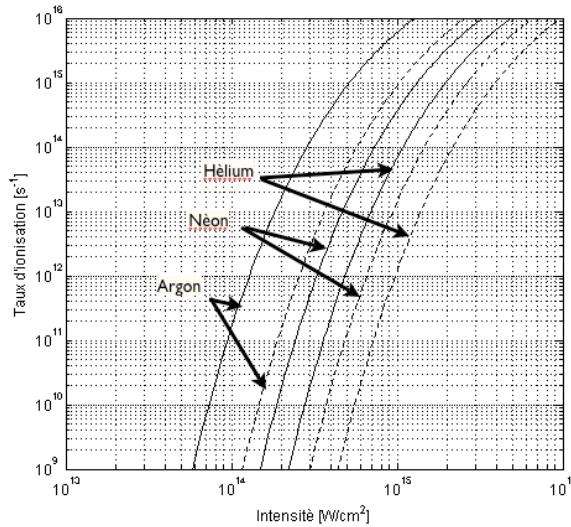


FIGURE 2.3 : TAUX D'IONISATION W_{TUNNEL} DE L'ARGON, LE NÉON ET L'HÉLIUM PAR UN CHAMP LASER D'ELLIPTICITÉ $\epsilon=0$ (TRAIT PLEIN) ET $\epsilon=1$ (POINTILLÉ).

Il est donc possible d'ioniser efficacement par effet tunnel les trois gaz pour des éclairements compris entre 2.10^{14} et 10^{15} W/cm². Le processus est plus efficace en polarisation linéaire qu'en polarisation circulaire. En polarisation circulaire, la barrière reste abaissée pendant tout le cycle optique, alors qu'en polarisation linéaire elle n'est abaissée qu'aux instants où le champ passe par un extremum. Mais pour un même éclairement laser, l'équation 2.10 montre bien que la valeur maximale du champ en polarisation linéaire ($\epsilon=0$) est $\sqrt{2}$ fois plus élevée qu'en polarisation circulaire ($\epsilon=1$). Donc si l'on moyenne la probabilité d'ionisation sur une période optique, l'ionisation en polarisation linéaire est plus efficace qu'en polarisation circulaire.

ii) **2^{ème} étape :Accélération de l'électron libéré dans le champ électrique laser.**

Une fois le paquet d'onde électronique libéré, les trajectoires électroniques peuvent être décrites en effectuant les hypothèses suivantes :

- l'électron ne subit plus l'attraction Coulombienne due à l'ion parent, seul le champ électrique laser influe sur sa trajectoire (électron libre dans le champ laser)
- l'ion parent est insensible au champ laser (ion immobile en x=0).

- La vitesse de l'électron libéré est initialement nulle : $v(t_i) = 0 \text{ m.s}^{-1}$ où t_i désigne l'instant de libération de l'électron dans le continuum. Ceci signifie que l'on considère que l'électron perd toute son énergie potentielle en traversant la barrière de potentiel.

Cet instant t_i reste crucial pour la 3^{ème} étape du modèle car il détermine à lui tout seul les trajectoires futures de l'électron et donc les conditions de la recombinaison radiative.

Dans le cadre de l'approximation de l'enveloppe lentement variable, on peut décrire le champ électrique laser par :

$$\vec{E}(t) = E_0(t) \times \left[\cos(\omega_0 t + \varphi) \vec{e}_x + \varepsilon \sin(\omega_0 t + \varphi) \vec{e}_y \right] \quad (2.11)$$

On peut alors calculer la vitesse de l'électron subissant un tel champ et sa trajectoire :

vitesse

$$\vec{v}(t) = \frac{e}{m_e \omega_0} \cdot \left\{ \begin{array}{l} \left[E_0(t) \sin(\omega_0 t + \varphi) - E_0(t_i) \sin(\omega_0 t_i + \varphi) \right] \vec{e}_x \\ - \varepsilon \left[E_0(t) \cos(\omega_0 t + \varphi) - E_0(t_i) \cos(\omega_0 t_i + \varphi) \right] \vec{e}_y \end{array} \right\} \quad (2.12)$$

trajectoire

$$x(t_i) = y(t_i) = 0$$

$$x(t) = \frac{-e}{m\omega_0^2} \cdot [E_0(t) \cos(\omega_0 t + \varphi) - E_0(t_i) \cos(\omega_0 t_i + \varphi)] - \frac{e \cdot E_0(t_i)}{m\omega_0} \cdot (t - t_i) \sin(\omega_0 t_i + \varphi)$$

$$y(t) = \frac{-e\varepsilon}{m\omega_0^2} \cdot [E_0(t) \sin(\omega_0 t + \varphi) - E_0(t_i) \sin(\omega_0 t_i + \varphi)] + \frac{e\varepsilon E_0(t_i)}{m\omega_0} \cdot (t - t_i) \cos(\omega_0 t_i + \varphi) \quad (S1)$$

Si l'on considère un champ polarisé linéairement ($\varepsilon=0$) ce système d'équations se ramène à la seule équation de position $x(t)$ que l'on peut tracer en fonction des phases de naissance de l'électron dans le continuum.

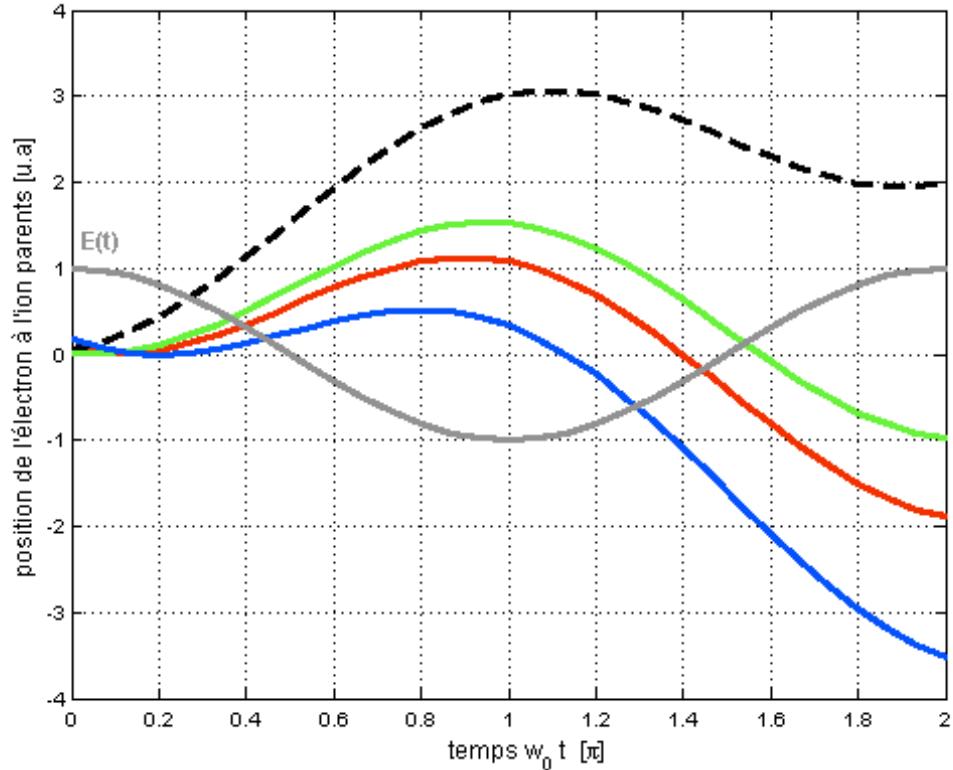


FIGURE 2.5: TRAJECTOIRES POSSIBLES D'UN ÉLECTRON LIBRE DANS LE CHAMP LASER EN FONCTION DE SES INSTANTS DE NAISSANCE (PHASE DE NAISSANCE $\omega_0 t_i$) DANS LE CONTINUUM : TRAJECTOIRES (POINTILLE) OU L'ÉLECTRON NE RETOURNE PAS A L'ION PARENT (SUPPOSE IMMOBILE EN POSITION 0), TRAJECTOIRE DE LA COUPURE (ROUGE), TRAJECTOIRE COURTE DU PLATEAU (BLEU) ET TRAJECTOIRE LONGUE DU PLATEAU (VERT).

On distingue alors quatre types de trajectoires qui correspondent à trois domaines de phases ($\omega_0 t_i$) de naissance de l'électron dans le continuum, comme illustré dans la figure 2.5 :

- i) Les trajectoires (pointillés) pour lesquelles l'électron ne revient pas à proximité de l'ion parent supposé immobile à la position $x=0$. Ces trajectoires ne conduisent pas à l'émission de photons harmoniques.
- ii) La trajectoire (rouge) où l'électron est libéré dans le continuum à l'instant de naissance $\omega_0 t_i = 0.1 \pi$. Cette trajectoire correspond à celle où l'électron acquiert un maximum d'énergie cinétique à l'instant de retour. Cette trajectoire conduit à l'émission de photon harmonique dans la coupure.

À partir de la trajectoire de la coupure ont défini deux familles de trajectoires conduisant à l'émission de photons harmoniques dans la région du plateau.

- iii) Les trajectoires (bleu) pour lesquelles un retour de l'électron est possible mais pour un temps d'évolution de l'électron dans le continuum plus court que celui de la trajectoire de la coupure (rouge) : Cette famille de trajectoires est appelée «trajectoire courte».
- iv) Les trajectoires (vert) pour lesquelles un retour de l'électron est possible mais pour un temps d'évolution de l'électron dans le continuum plus long que celui de la trajectoire de la coupure (rouge) : Cette famille de trajectoires est appelée «trajectoire longue».

iii) 3^{ème} étape : Recombinaison radiative de l'électron avec l'ion parent.

Lors de son passage en $x=0$, l'électron possède une probabilité non nulle de se recombiner radiativement avec l'ion parent. Le photon émis a une énergie de $\hbar\omega_q = I_p + E_c$, où E_c est l'énergie cinétique de l'électron au moment de la recombinaison. La figure 2.6 présente cette énergie cinétique de l'électron en fonction d'une part de ces phases de naissance dans le continuum ($\omega_0 t_i$) et d'autre part en fonction de ces phases de retour ($\omega_0 t_r$) vers l'ion parent.

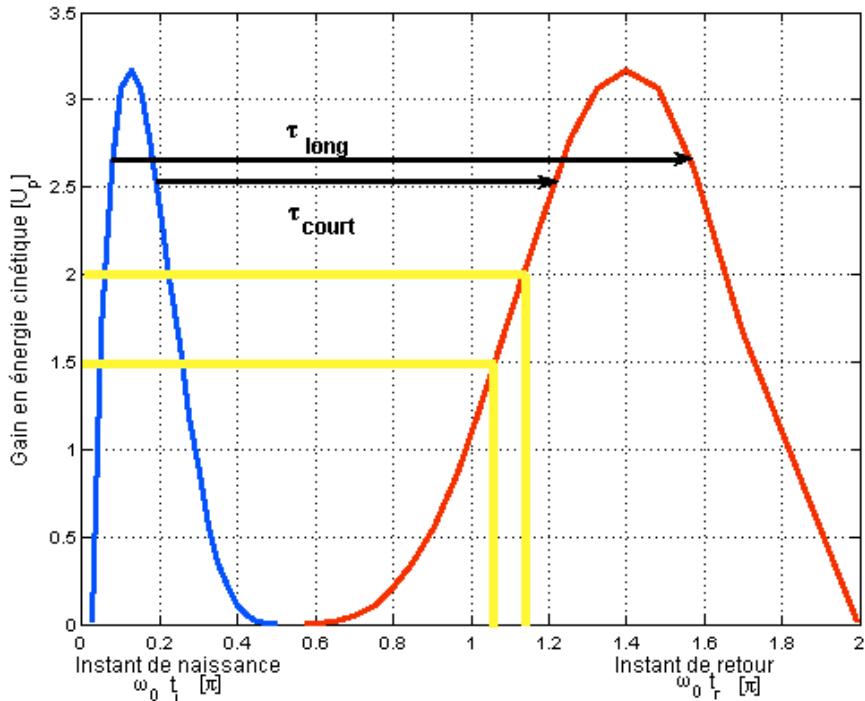


FIGURE 2.6: ÉNERGIES CINÉTIQUES ACQUISES PAR L'ÉLECTRON A L'INSTANT DE RETOUR EN FONCTION DES PHASES DE NAISSANCES $\omega_0 t_i$ (BLEU) DE L'ÉLECTRON DANS LE CONTINUUM ET DE CES PHASES DE RETOUR $\omega_0 t_r$ (ROUGE) A L'ION PARENT.

En prenant par exemple une gamme d'énergie cinétique comprise entre 1.5 et 2 U_p , on voit clairement que les temps de retour correspondant à cette gamme ne sont pas les même ce qui signifie que les harmoniques émises à ces énergies ne seront pas émises au même instant. Ce modèle met donc en évidence l'existence d'une dispersion des temps de retour de l'électron à l'ion parent ce qui traduit une désynchronisation des instants d'émission harmonique. De plus, le calcul de l'énergie cinétique maximale au moment du retour de l'électron à l'ion parent est de 3,17 U_p . Ce modèle permet donc de retrouver la loi de coupure initialement établie à partir du modèle TDSE. Si l'on regarde maintenant la durée $\tau_{i,r} = |t_i - t_r|$ de l'évolution de l'électron dans le continuum, on retrouve clairement deux catégories de chemins conduisant à la même énergie cinétique: les chemins dit « courts » et « longs » caractérisés respectivement par leur durée τ_{court} et τ_{long} . Ces deux types de chemins correspondent aux deux familles de trajectoires électroniques conduisant à la recombinaison radiative de l'électron vues précédemment. Pour la trajectoire courte, l'énergie cinétique décroît avec l'instant d'ionisation, tandis que pour la trajectoire longue, l'énergie cinétique augmente avec l'instant d'ionisation.

L'ionisation se produisant périodiquement tous les demi-cycles optiques, pour chacune des deux familles de trajectoires, la recombinaison et donc l'émission VUV, pourra avoir lieu deux fois par cycle optique.

Ce modèle ne permettant pas de calculer le champ harmonique, seule une approche purement quantique permet d'apporter une réponse à cette attente.

Dans les modèles quantiques, on souhaite décrire l'interaction d'un atome unique soumis à un champ électromagnétique laser fort qui permet la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Pour calculer le champ harmonique, il faut évaluer le moment dipolaire à l'origine de la génération d'harmoniques. Les éléments de matrice dipolaire d'interaction s'écrivent :

$$d(t) = \langle \psi(x, t) | x | \psi(x, t) \rangle \quad (2.13)$$

Ces éléments matriciels nécessitent la connaissance de la fonction d'onde électronique $\psi(x, t)$ qui peut être calculée en résolvant l'équation de Schrödinger dépendante du temps notée TDSE pour « Time Dependent Schrödinger Equation ».

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\psi(x, t)\rangle = (H_0 + H_{\text{int}}(t)) |\psi(x, t)\rangle \quad (2.14)$$

où H_0 et $H_{\text{int}}(t)$ désignent respectivement l'Hamiltonien atomique et l'Hamiltonien d'interaction. Cette méthode permet de résoudre cette équation en supposant que seul un électron pourra interagir avec le champ laser. Cette approximation notée SAE pour « Single Active Electron » permet de s'affranchir notamment des effets d'interaction Coulombienne électron-électron, qui compliquent très rapidement l'écriture de l'équation de Schrödinger et sa résolution, en considérant un électron libre et un électron « gelé » sur une orbitale. Généralement cette méthode ne donne pas de solution analytique et demande la mise en œuvre de résolution numérique, par exemple en développant la fonction $\psi(x, t)$ sur une base de fonctions B-spline [27].

Un autre modèle quantique propose une solution analytique de $d(t)$ en faisant l'approximation du champ fort notée SFA pour « Strong Field Approximation ». Cette Solution proposée par M. Lewenstein *et al*, en 1994 [24], fait trois hypothèses importantes :

- L'atome est ionisé par effet tunnel
- Seul l'état initial et les états du continuum sont considérés.
- Une fois dans le continuum, l'électron libéré ne subit pas les effets du potentiel atomique : $U_p \gg I_p$.

Ce modèle permet de retrouver les résultats déduits du modèle semi-classique. Il met de plus en évidence un comportement linéaire de la phase atomique harmonique, notée $\varphi_{at,i}$ avec l'éclairement laser.

$$\varphi_{at,i}(x, y, z, t) = -\alpha_i I(x, y, z, t) = \frac{-Up\tau_i}{\hbar} \quad (2.15)$$

avec $i=c$ pour la coupure et $i=\{1; 2\}$ pour le plateau (τ_1 et τ_2 correspondant respectivement à τ_{court} et τ_{long}).

Cette phase atomique est reliée à l'action accumulée par le paquet d'onde électronique lors de son trajet dans le continuum. Concrètement, plusieurs chemins quantiques contribuent à la génération des harmoniques du plateau, mais deux chemins sont prépondérants {1; 2} [24]. On définit donc deux phases atomiques pour ces harmoniques. Dans la zone de la coupure, ces deux chemins convergent en un seul {c}, une seule phase atomique est donc définie pour les harmoniques de la coupure.

2.3 Accord de phase : Aspect macroscopique

Jusqu'ici, nous n'avons considéré que la réponse de l'atome unique, or la génération d'harmoniques d'ordres élevés, résulte de la réponse macroscopique du milieu dans le volume d'interaction. Le champ harmonique total résultant de l'interaction des champs émis par chaque dipôle atomique, il est donc dépendant des phases relatives des différents dipôles atomiques. Les paramètres macroscopiques entrent donc en jeu pour minimiser cette différence de phase et atteindre « l'accord de phase ».

2.3.1 Principe de l'accord de phase.

A l'échelle macroscopique, le champ harmonique total peut être décrit (à une dimension) par :

$$E_q \propto \int d_q(z) \exp(i\varphi(z)) dz \quad (2.16)$$

où $\varphi(z)$ représente la différence de phase entre le faisceau harmonique et la polarisabilité non linéaire induite par le faisceau fondamental soit:

$$\varphi(z) = (k_q - qk_1)z + \varphi_{at} \quad (2.17)$$

où k_q et k_1 sont les vecteurs d'onde respectifs du champ harmonique et du champ laser fondamental et φ_{at} la phase atomique harmonique décrite dans l'équation (2.15).

La condition d'accord de phase s'écrit donc :

$$k_q = qk_1 + qk_{geo}(r, z) + K(r, z) \quad (2.19)$$

où :

Le vecteur d'onde associé au faisceau fondamental s'écrit :

$$k_1 = k_1^0 + k_{geo} \quad (2.20)$$

Le vecteur d'onde associé au faisceau harmonique est donné par :

$$k_q \sim \frac{n_q q \omega_0}{c} \quad (2.21)$$

$K(r, z)$ est le vecteur d'onde associé au gradient de phase atomique soit :

$$K = \nabla \varphi_{at}(r, z) = -\alpha_i \nabla I(r, z) \quad (2.22)$$

k_{geo} est le vecteur d'onde associé à la focalisation du faisceau laser qui correspond au gradient de la phase de Gouy soit :

$$k_{geo}(r, z) = \nabla \Phi_{gouy}(r, z) \quad (2.23)$$

Si l'on regarde l'évolution d'un faisceau Gaussien pendant sa propagation, lors de son passage au point focal, il acquiert une phase supplémentaire appelée phase de Gouy [28]. Cette phase illustre le fait que le faisceau est convergent avant le foyer puis divergent après. Pour un faisceau gaussien, cette phase est décrite par :

$$\Phi_{gouy}(r, z) = -\arctan\left(\frac{2z}{b}\right) \quad (2.24)$$

où b est le paramètre confocal donné par : $b = \frac{2\pi\omega_0^2}{\lambda} = 2z_R$, où z_R désigne la longueur de Rayleigh.

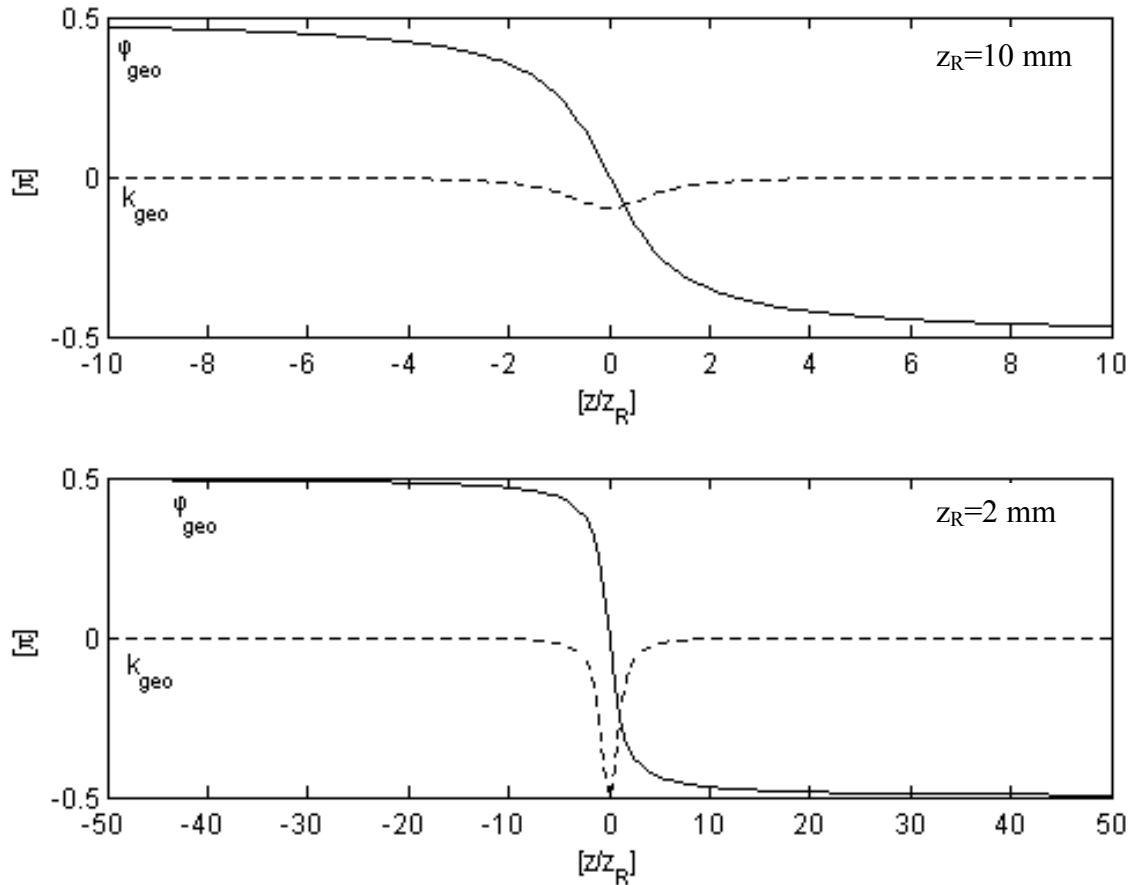


FIGURE 2.7: PHASE DE GOUY ϕ_{GOUY} (LIGNE CONTINUE EXPRIMEE EN π RAD) D'UN FAISCEAU GAUSSIEN ET SA DÉRIVÉE PAR RAPPORT À Z (LIGNE POINTILLE K_{geo} EXPRIME EN MM^{-1}) EN FONCTION DE SA DISTANCE AU POINT FOCAL (FOYER EN $Z/z_R=0$).

Le vecteur d'onde fondamental k_1 est donc modifié par cette phase et devient $k_1 + k_{geo}$ avec :

$$k_{geo} = \frac{d}{dz}(\Phi_{GOUY}(z)) = \frac{-1}{z_R \left[1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2 \right]} \quad (2.25)$$

La figure (2.7) présente la phase de Gouy et sa dérivée pour deux valeurs de la longueur de Rayleigh. La variation de vecteur d'onde k_{geo} est négative quels que soient z et z_R . En valeur absolue, cette variation est maximale au foyer mais elle peut être réduite pour des longueurs de Rayleigh grandes ($|k_{geo}|$ diminue quand z_R augmente).

2.3.2 Influence des densités atomiques et électroniques.

Le milieu générateur (gaz rare) induit une dispersion atomique qui modifie l'indice de réfraction du milieu. Le désaccord de phase introduit par cette dispersion est donné par:

$$\Delta k_q^{at} = k_q^{at} - qk_1^{at} = \frac{[\alpha_q^{at} - \alpha_0^{at}]q\omega_0 N_{at}}{2c} \quad (2.26)$$

où α_0^{at} exprimé en $[\text{cm}^3]$ est la polarisabilité statique du gaz rare, α_q^{at} la polarisabilité dynamique et N_{at} exprimée en $[\text{atome.cm}^{-3}]$ est la densité atomique du gaz rare.

Comme l'énergie associée aux photons harmoniques est supérieure au seuil d'ionisation de l'atome, la polarisabilité dynamique α_q^{at} est négative alors que la polarisabilité statique α_0^{at} est positive donc le désaccord de phase dû à la dispersion atomique est orienté selon la direction opposée au vecteur d'onde harmonique k_q , c'est à dire que Δk_q^{at} est négatif.

Si le milieu n'est pas ionisé, on peut donc trouver une pression qui permet d'augmenter la valeur de Δk^{at} et ainsi de compenser la désaccord de phase géométrique k_{geo} de telle sorte que l'accord de phase soit obtenu.

Si le milieu atomique est ionisé alors il faut prendre en compte la dispersion induite par la densité électronique :

$$\Delta k_q^{el} = k_q^{el} - qk_1^{el} = \frac{(q^2 - 1)\omega_p^2}{2cq\omega_0} \quad (2.27)$$

où ω_p désigne la pulsation plasma définie par :

$$\omega_p^2 = \frac{e^2 N_e}{m_e \epsilon_0} \quad (2.28)$$

Où N_e désigne la densité électronique, e la charge d'un électron, m_e sa masse et ϵ_0 la permittivité dans le vide.

Le vecteur Δk_q^{el} est orienté selon la direction du vecteur d'onde harmonique k_q . Si l'on tient compte du désaccord de phase atomique et électronique, il est possible sous certaines conditions de pression et d'éclairement laser d'aboutir à un accord de phase sur l'axe de propagation.

2.3.3 Distribution des vecteurs d'onde et réalisation de la condition d'accord de phase.

On considère maintenant, que l'éclairement laser I_0 n'induit pas d'ionisation et que le milieu générateur est dilué. Dans ces conditions la dispersion due aux atomes et aux électrons est négligeable. L'accord de phase dépend donc du vecteur d'onde $K(r,z)$ associé au gradient de la phase atomique du dipôle et à $k_{geo}(r,z)$ associé à la phase de Gouy :

$$\Delta k_q = k_q - qk_1 = k_q - qk_1^0 - qk_{geo}(r,z) = K(r,z) \quad (2.29)$$

Où z représente la position relative du foyer laser par rapport au milieu générateur et r la coordonnée radiale transverse. Pour $z < 0$, $k_{geo}(r,z)$ est convergent et pour $z > 0$, $k_{geo}(r,z)$ est divergent.

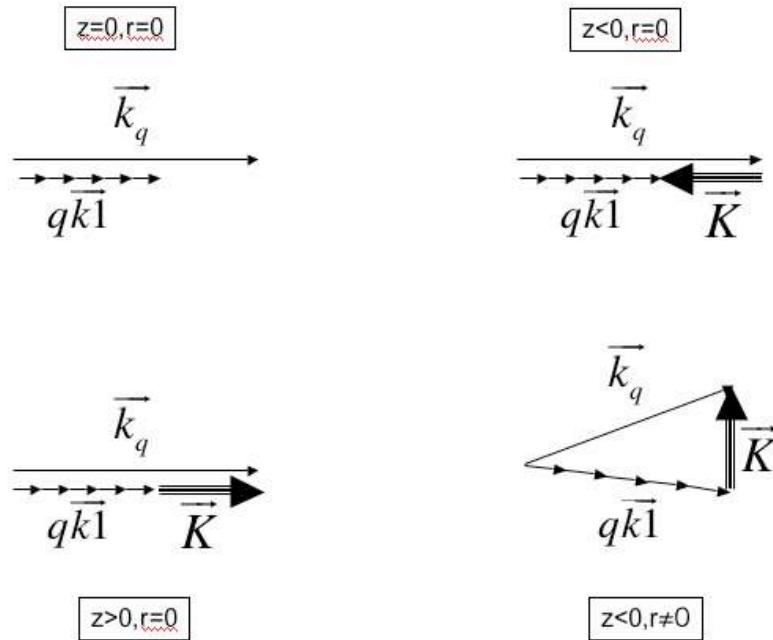


FIGURE 2.8 : DIAGRAMME DES VECTEURS D'ONDES IMPLIQUES DANS LA GEOMETRIE DE L'ACCORD DE PHASE EN FONCTION DE LA POSITION RELATIVE FOYER-MILIEU.

En fonction du signe de z et r , le vecteur K change d'orientation comme illustré en figure 2.8 :

- Si $z=0$ et $r=0$: le vecteur d'onde K est nul. Le désaccord de phase est dû au vecteur d'onde associé à la phase de Gouy k_{geo} . Dans le cas d'un faisceau gaussien, la condition d'accord de phase devient : $\Delta k_q \sim \frac{2q}{b}$.
- Si $z<0$ (focalisation après le milieu) et $r=0$: le vecteur d'onde K est orienté selon la direction opposée à k_q . La condition d'accord de phase n'est pas obtenue et la génération d'harmonique est donc moins efficace.
- Si $z>0$ (focalisation avant le milieu) et $r=0$: le vecteur d'onde K est orienté selon la direction de k_q . La condition d'accord de phase a lieu sur l'axe ($r=0$) et l'émission harmonique se construit sur l'axe de propagation (accord de phase colinéaire). Pour des milieux générateurs fins, le chemin quantique court τ_1 est alors dominant car il remplit la condition d'accord de phase [29].
- Si $z<0$ (focalisation après le milieu) et $r \neq 0$: le vecteur d'onde K est orienté hors axe. La condition d'accord de phase peut avoir lieu mais de façon non colinéaire. Dans ce cas, le faisceau harmonique présente une distribution spatiale annulaire et plus la valeur de la phase atomique est importante, plus le faisceau est divergent. Le chemin quantique long τ_2 est alors prépondérant [29].

Dans le cas où un désaccord de phase subsiste, on définit la longueur de cohérence L_{coh} par :

$$L_{coh} = \left| \frac{\pi}{\Delta k_q} \right| \quad (2.30)$$

Elle correspond à la longueur de milieu sur laquelle le champ harmonique s'est construit efficacement.

2.3.4 Influence de l'absorption.

L'efficacité de l'émission harmonique dépend également de l'absorption de ce rayonnement par le milieu générateur. Elle dépend de la longueur du milieu et de la section efficace d'absorption du milieu. On définit alors la longueur d'absorption L_{abs} comme étant la longueur au bout de laquelle le rayonnement harmonique est atténué d'un facteur $1/e$.

Cette longueur s'exprime en fonction de la section efficace d'absorption à un photon σ_{abs} (en barn) et de la densité atomique du milieu gazeux [31]:

$$L_{\text{abs}}(\lambda) = [\sigma_{\text{abs}}(\lambda) \cdot n_{\text{at}}]^{-1} \quad (2.31)$$

En général, pour les gaz rares que nous utilisons en expérience, la section efficace d'absorption à un photon est plus grande pour les harmoniques basses que pour les harmoniques hautes. Pour des pressions de gaz hautes, l'absorption constituera donc un facteur limitant, pour des pressions basses en revanche l'absorption jouera un rôle négligeable et l'efficacité de conversion en photons harmoniques ne sera limitée que par l'accord de phase.

Dans le cadre de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, Constant et al [31] et Mével et al [32] ont établi des conditions sur la longueur d'absorption, qui permettent d'optimiser l'efficacité de conversion des photons IR en photons harmoniques :

$$L_{\text{abs}} < \frac{L_{\text{coh}}}{5} \quad \text{et} \quad L_{\text{abs}} < \frac{L_{\text{milieu}}}{3} \quad (2.32)$$

Où L_{milieu} désigne la longueur du milieu générateur et L_{coh} désigne la longueur de cohérence du rayonnement harmonique.

2.4 Optimisation expérimentale des harmoniques d'ordres élevés au CELIA.

La section précédente a permis de mieux comprendre le processus de génération et de mettre en évidence l'importance d'optimiser l'accord de phase pour améliorer l'efficacité harmonique. Nous présentons ici différentes études expérimentales faisant varier les paramètres importants pour l'optimisation harmonique tels que la pression et la position du foyer.

2.4.1 Dispositif expérimental de génération et de détection harmonique

Le dispositif expérimental du CELIA permettant la génération d'harmoniques d'ordres élevés et son système de détection sont présentés en figure (2.9).

Il est constitué d'une chambre de génération d'harmonique et d'un spectromètre XUV formé d'un miroir torique (MT) de focale 1000 mm, d'un réseau plan de diffraction (R) de 470 traits/mm dont la déviation D est de 153°.

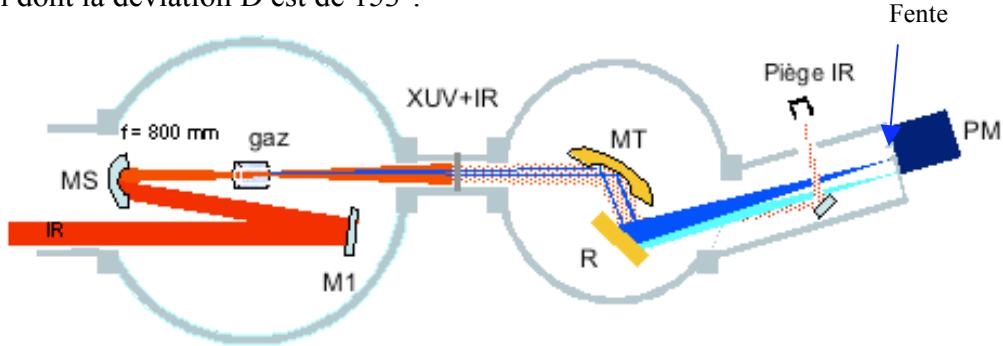


FIGURE 2.9: DISPOSITIF EXPERIMENTAL DE GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS.

La détection se fait en sortie de système à l'aide d'un photomultiplicateur (PM) et d'une fente réglable de 20-50 μm . La configuration (2f/2f) du système permet une visualisation directe de la zone d'interaction. Le faisceau IR (ici non post-comprimé) est focalisé par un miroir sphérique (MS) de focale 800 mm, dans une cellule en silice de 15 mm de long et de 400 μm de diamètre interne. Cette cellule est alimentée en gaz et une jauge de pression permet de connaître la pression en amont de la cellule tout au long de l'expérience. En sortie de chambre d'harmonique (\sim à 70 cm de la cellule), un filtre d'aluminium de 200 nm d'épaisseur peut être inséré sur le trajet du faisceau IR si l'on souhaite s'en affranchir. Le faisceau harmonique est collecté par le miroir torique (MT) et diffracté par le réseau (R) vers le détecteur. Ceci permet d'analyser spectralement les harmoniques selon l'angle de rotation du réseau. Si on ne filtre pas le faisceau IR, il est également collecté par le miroir torique, puis il est réfléchi par le réseau selon l'ordre 0. De cette manière, il est dévié selon un angle qui permet de le piéger afin qu'il n'affecte pas le système de détection. Un diaphragme est généralement placé en entrée de chambre d'harmonique pour optimiser le signal, il permet d'optimiser l'accord de phase, en diminuant l'effet dû au gradient de phase de Gouy et en réduisant l'éclairement laser pouvant être à l'origine de l'ionisation du milieu générateur.

Les figures (2.10 a, b et c) présentent des spectres harmoniques générés respectivement dans le krypton ($I_0=1,8 \cdot 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$), l'argon ($I_0=1,8 \cdot 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) et le néon ($I_0=5,5 \cdot 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$).

Les différents éclairements lasers étant obtenus en ajustant la taille du faisceau dans la zone d'interaction (diaphragme placé sur la ligne laser) et l'énergie laser injectée (cube polariseur et lame demi-onde disposée avant le compresseur). Nous avons optimisé les harmoniques du plateau en jouant sur la position du foyer par rapport au centre de la cellule et la pression de gaz dans la cellule. Les pressions optimales typiquement obtenues étant de 30 mbar pour l'argon, 20 mbar pour le krypton et 80 mbar pour le néon. La longueur d'onde laser est de 805 nm et l'énergie IR incidente est de 1,5 mJ pour l'argon et le krypton et de 1,7 mJ pour le néon.

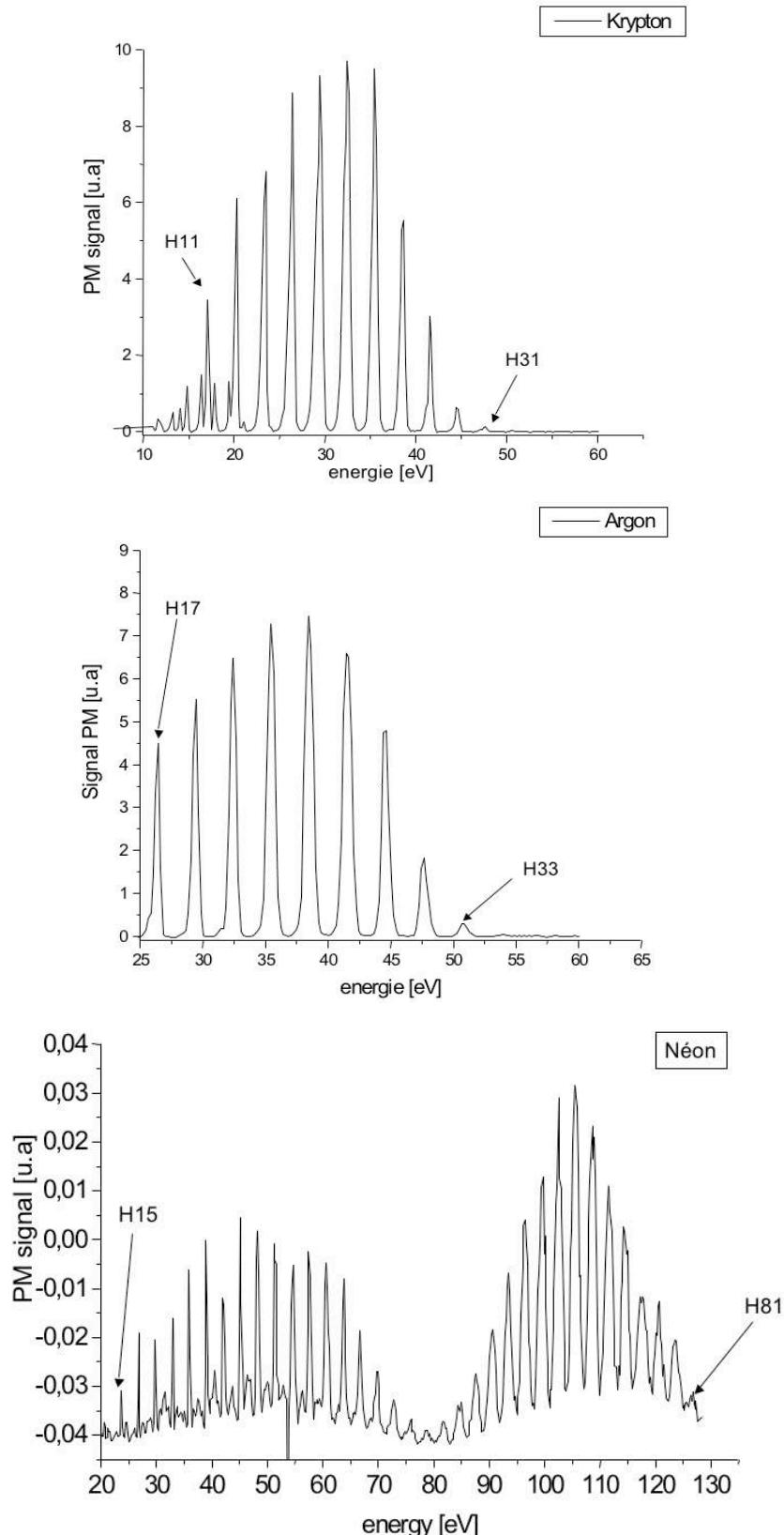


FIGURE 2.10: SPECTRES HARMONIQUES GÉNÉRÉS DANS LE KRYPTON, L'ARGON ET LE NÉON.

Les spectres d'harmoniques générés dans l'argon et le krypton présentent les harmoniques H11 à H33 et H17 à H31 respectivement. Pour le néon, on est capable de générer jusqu'à l'harmonique H81 car si le potentiel d'ionisation est haut, les atomes peuvent être soumis à de grandes valeurs d'éclairement. Cependant si l'on augmente l'éclairement laser au-delà de l'éclairement de suppression de barrière appelé aussi éclairement de saturation, le nombre de photons harmoniques sature [33]. La présence d'électrons libres (ionisation du milieu) introduit comme nous l'avons vu un désaccord de phase et une déplétion de la population électronique dans l'état fondamental rendant moins efficace la génération d'harmoniques.

Ces spectres expérimentaux présentent l'allure attendue d'un plateau et d'une coupure dans le cas des harmoniques générés dans le krypton et l'argon. Cependant pour les harmoniques générés dans le néon, le spectre est convolué à la courbe d'efficacité du réseau de diffraction. Le signal est faible autour de 80 eV qui est précisément là où l'efficacité de diffraction du réseau est la plus faible comme le montre la figure (2.11).

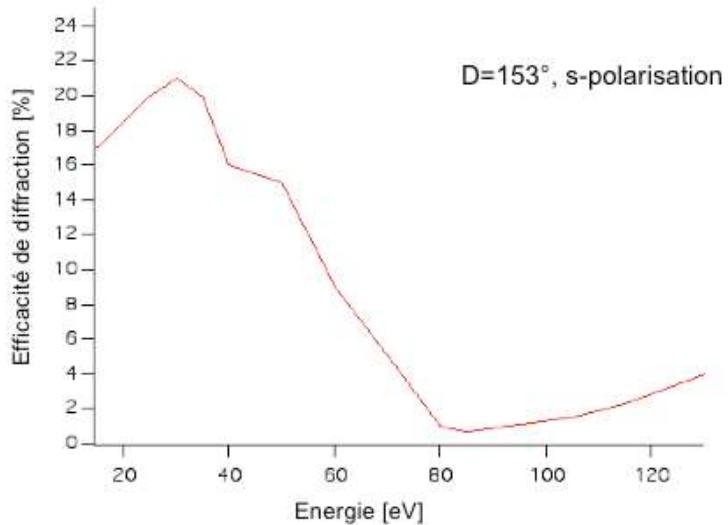


FIGURE 2.11 : EFFICACITÉ DE DIFFRACTION DU RÉSEAU PLAN JOBIN-YVON DU SPECTROMÈTRE XUV DU CELIA, CALCULÉE POUR UN ANGLE DE DÉVIATION DE 153°.

La loi des réseaux en réflexion étant donnée par :

$$\sin i + \sin r = a m \lambda \quad (2.32)$$

Où i et r désignent l'angle d'incidence et de réflexion par rapport à la normale au réseau (l'angle de déviation est donné par $D=i-r\sim 153^\circ$), a le nombre de traits/mm, m l'ordre de diffraction et λ la longueur d'onde du rayonnement.

Il est plus pratique de l'exprimer selon l'angle θ d'orientation du réseau par rapport au faisceau incident pour étalonner les spectres mesurés:

$$\sin(\theta-\theta_0)=\frac{am\lambda}{\cos\frac{D}{2}} \quad (2.33)$$

où θ_0 désigne l'angle de l'ordre 0 centré sur le détecteur.

2.4.2 Paramètre d'optimisation : La pression

Dans cette expérience nous avons fait l'acquisition de spectres harmoniques pour différentes valeurs de pression. Nous nous sommes intéressés à la variation du signal intégré sur une harmonique donnée en fonction de la pression dans la cellule. Le signal intégré sous une harmonique étant proportionnel au nombre de photons harmonique produits. Les figures (2.12) et (2.13) présentent le résultat de cette étude respectivement pour les harmoniques H17 et H29 dans l'argon et l'harmonique H69 dans le néon.

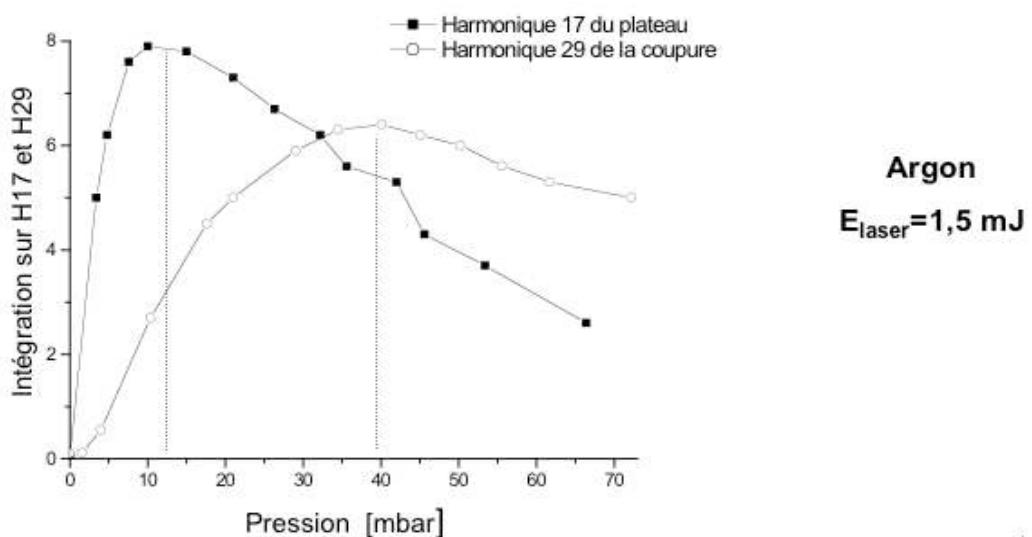


FIGURE 2.12 : ETUDE DE VARIATION DU NOMBRE DE PHOTONS HARMONIQUES GÉNÉRÉS DANS L'ARGON (H17 ET H29) EN FONCTION DE LA PRESSION DE GAZ DANS LA CELLULE.

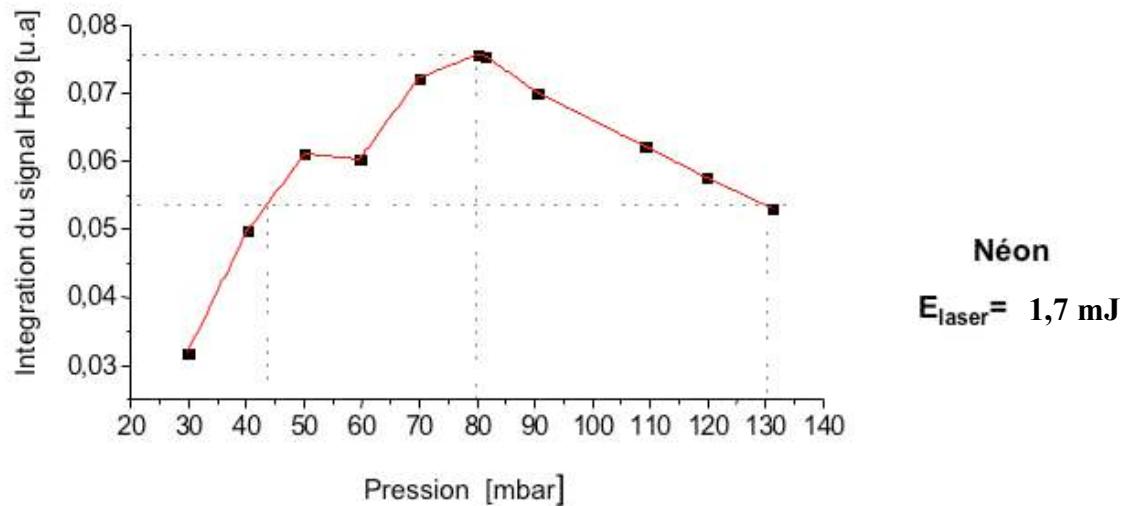


FIGURE 2.13: ETUDE DE VARIATION DU NOMBRE DE PHOTONS HARMONIQUES GÉNÉRÉS DANS LE NEON (H69) EN FONCTION DE LA PRESSION DE GAZ DANS LA CELLULE.

L'expérience dans le néon a été réalisée à une énergie laser de 1,7 mJ. En regardant le signal intégré sous l'harmonique 69, nous montrons une claire dépendance du signal intégré en fonction de la pression. Ce signal est optimum à ~ 80 mbar et décroît rapidement pour des pressions allant jusqu'à 130 mbar.

Dans le cas de l'argon, nous avons regardé le comportement du signal intégré des harmoniques H17 et H29 en fonction de la pression à une énergie laser fixée à 1.5 mJ. On retrouve un optimum du signal en fonction de la pression pour H17 et pour H29 mais les conditions d'optimisation de ces deux harmoniques diffèrent. Le signal intégré de H17 est optimum à une pression relativement basse $\sim p_1=12$ mbar tandis que le signal intégré de H29 est maximal à $\sim p_2=38$ mbar. Toujours dans le cas de l'argon, nous présentons en figure (2.14) le spectre harmonique acquis pour les deux pressions de gaz trouvées (12 mbar et 38 mbar).

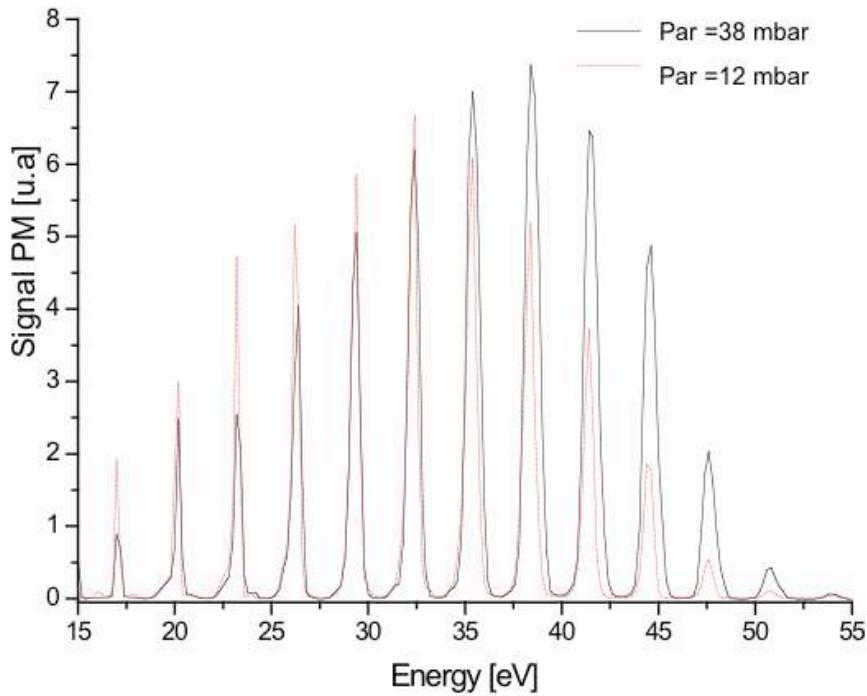


FIGURE 2.14: SPECTRE HARMONIQUE OBTENU DANS L'ARGON POUR DEUX PRESSIONS : 12 MBAR (POINTILLÉ) OPTIMISE LES HARMONIQUES DU PLATEAU ET 38 MBAR (CONTINU) OPTIMISE LES HARMONIQUES DE LA COUPURE.

On voit très clairement qu'à 12 mbar les harmoniques du plateau [15-35 eV] sont optimisées, alors qu'à 38 mbar ce sont les harmoniques de la coupure [>35 eV] qui sont optimisées. Les longueurs d'absorption de l'harmonique 21 (32,5 eV) à 12 et 38 mbar étant respectivement de 3 mm et 1 mm, à basse pression, l'efficacité de génération des harmoniques du plateau est moins limitée par l'absorption, ce qui permet d'optimiser le signal de ces harmoniques.

2.4.3 Paramètre d'optimisation: la position du foyer dans le gaz

Dans cette expérience, nous avons généré des harmoniques dans l'argon à une pression optimale de 12,3 mbar pour l'optimisation de l'harmonique H17 et de 37,4 mbar pour l'optimisation de l'harmonique H29, l'énergie par impulsion IR étant de 1,5 mJ. Le signal intégré sous les harmoniques est présenté en figure (2.15) en fonction de la position du point focal par rapport au milieu de la cellule, situé en $z=0$. La longueur de Rayleigh $z_R=16$ mm (waist $w_0=65 \mu\text{m}$) est comparable à la longueur de la cellule (15 mm). L'éclairement au foyer ($2,8 \cdot 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$) induit que les harmoniques H17 et H29 sont générés dans le plateau.

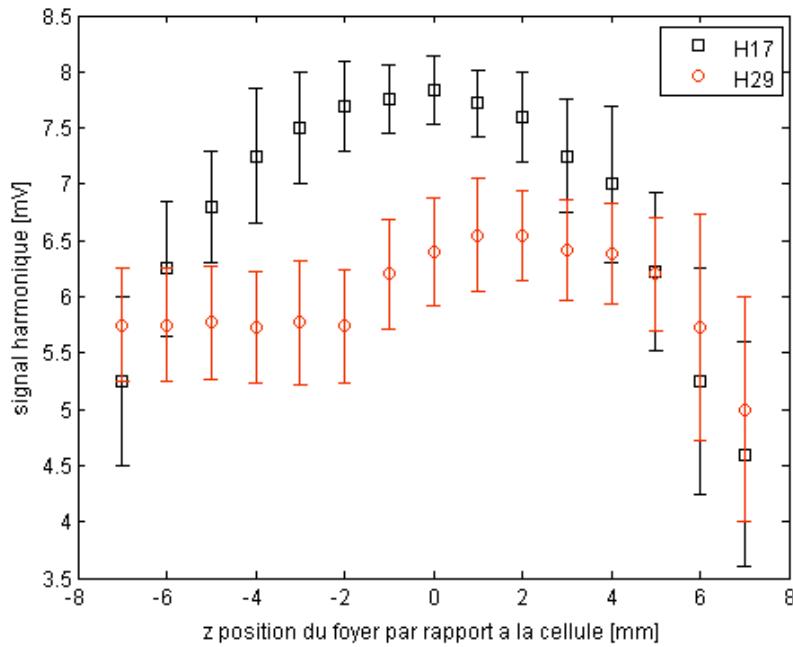


FIGURE 2.15: EVOLUTION DU SIGNAL INTÉGRÉ DE H17 ET H29 GÉNÉRÉ DANS L'ARGON EN FONCTION DE LA POSITION RELATIVE FOYER-MILIEU DE CELLULE (MILIEU DE CELLULE EN $z=0$).

Le paramètre z correspond à la position de la cellule par rapport au foyer laser. La position référence $z=0$ correspond à la situation où le milieu de la cellule coïncide avec le foyer laser. Pour $z<0$, on focalise après le milieu de la cellule (le faisceau est convergent dans la zone d'interaction) et pour $z>0$, on focalise dans la partie avant de la cellule (le faisceau est divergent dans la zone d'interaction). Le trou de pompage différentiel de diamètre 3 mm est placé à ~ 1 m de la sortie de la cellule. La dimension du faisceau à cette distance étant de ~ 5

mm ($w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$ pour un faisceau Gaussien), ce trou ne laisse passer que la partie

centrale du faisceau. On peut donc considérer que l'on observe uniquement la trajectoire courte de ces harmoniques du plateau. De façon générale, plus on focalise loin dans la cellule plus le signal chute, car comme nous l'avons vu précédemment la condition d'accord de phase colinéaire est de moins en moins optimisée. Lorsque l'on focalise dans la partie avant de la cellule, on arrive à trouver une position qui permet d'avoir la condition d'accord de phase pour les harmoniques H17 et H29. Ces positions correspondent à des maxima observés ($z=-2$ mm pour H29 et $z=0$ mm pour H17) lorsque l'on focalise proche du centre de la cellule.

2.5 Conclusion.

La source de rayonnement VUV du CELIA se base sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz rares. Ce processus de génération est désormais bien modélisé au niveau microscopique, via un modèle semi classique très intuitif proposé par P. B. Corkum [21]. L'approche quantique proposée par M. Lewenstein [24] permet en plus de calculer le spectre harmonique associé au dipôle d'interaction champ laser-atome et de montrer l'existence de deux trajectoires quantiques à l'origine des harmoniques du plateau. La condition d'accord de phase macroscopique repose sur l'optimisation de la réponse de l'atome unique et sur l'optimisation des paramètres macroscopiques (éclairement de saturation, dimension du faisceau en entrée, nature du gaz, pression, position du foyer).

- [1] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer and M. Hutchinson. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4756 (1996)
"Spatial coherence measurements of soft x-ray radiation produced by high-order-harmonic generation"
- [2] M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hansch, A. L'Huillier and C. G. Wahlström. *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998), n°2, 297.
"Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses"
- [3] S. Kazamias, D. Douillet, C. Valentin, Th Lefrou, G. Grillon, G. Mulot, F. Augé, P. Mercère, Ph. Zeitoun and Ph. Balcou. *Eur. Phys. J. D* **90** (2003), n°19, 193901.
"Optimisation of the focused flux of high harmonics"
- [4] Ph. Antoine, D. B. Milosevic, A. L'Huillier, M. B. Gaarde, P. Salières and M. Lewenstein. *Phys. Rev. A* **56**, (1997), n°6, 4960.
"Generation of attosecond pulses in macroscopic media"
- [5] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, Ch. Streli, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi and Ch. Spielmann, F. Krausz. *Nature* **443** (2005), 596.
"Coherent kiloelectronvolt X-ray emission from laser-driven atoms"
- [6] Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kann, M. Lenzner, P. Wobrauschek and F. Krausz. *Science* **278** (1997), 661.
"Generation of coherent X-rays in the water window using 5 femtosecond laser pulses"
- [7] A. Bouhal, R. Evans, G. Grilon, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller and D. Von Der Linde. *J. Opt. Soc. Am. B* **14** (1997), n°4, 950.
"Cross-correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high-order harmonics"

- [8] F. Quéré, S. Guizard, Ph. Martin, G. Petite, H. Merdji, B. Carré, J-F. Hergott, and L. LeDéroff. *Phys. Rev. B* **61**, 9883–9886 (2000).
“Hot-electron relaxation in quartz using high-order harmonics”
- [9] R. Haight and D. R. Peale. *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3979–3982 (1993).
“Antibonding state on the Ge(111):As surface: Spectroscopy and dynamics”
- [10] J. Larsson, E. Mével, R. Zerne, A. L’Huillier, C. G. Wahlström and S. Svanberg. *J. Phys. B.* **28**, (1995).
“Two-colour time resolved spectroscopy of helium using high-order harmonics”
- [11] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini. *Science* **292**, 1689 (2001).
“Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation”
- [12] Y. Mairesse, A. Bohan, L. J. Fransinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovacěv, R. Taeib, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini and P. Salières. *Science* **302** (2003), 1540.
“Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays”
- [13] P. Salières, A. L’Huillier and M. Lewenstein *Phys. Rev. lett* **74**, 3776 (1995)
“Coherence control of high-order harmonics”
- [14] L. Le Déroff, P. Salières and B. Carré. *Opt. Lett.* **23**, 1544 (1998)
“Beam-quality measurement of a focused high-order-harmonic beam.”
- [15] L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux and D. Phalippou. *Phys. Rev. A* **61**, 43802 (2000)
“Measurement of the degree of spatial coherence of high-order-harmonics using a fresnel-mirror interferometer”

- [16] C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L’Huillier and C-G. Wahlström. *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999)
“Temporal coherence of high-order-harmonics”
- [17] D. Descamps, C. Lyngå, J. Norin, A. L’Huillier, C. G. Wahlström, J.F. Hergott, H. Merdji, P. Salières, M. Bellini and T. W. Hänsch. *OPT. Lett* **25** (2000), n°2, 135.
“Extreme ultraviolet interferometry measurements with high-order harmonics”
- [18] J. F. Hergott, M Kovacěv, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Salières and B. Carré. *Phys. Rev. A* **66**, 21801 (2002)
“Extreme-ultraviolet high order harmonic pulses in the microjoules range”
- [19] Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa and S. Watanabe. *Opt. Lett.* **23** (1998), n°1, 64.
“27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics”
Y. Kobayashi, T. Ohno, T. Sekikawa, Y. Nabekawa and S. Watanabe. *Appl. Phys. B.* **70** (2000), 389.
“Pulse width measurement of high-order harmonics by autocorrelation”
- [20] N. A. Papadogiannis, L. A. A. Nikolopoulos, D. Charalambidis, G. D. Tzakiris, P. Tzallas and K. Witte. *Phys. Rev. Lett.* **90** (2003), 133902.
“Two-photon ionization of He trough a superposition of higher harmonics”
- [21] P. B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.*, **71** (13), 1994–1997 (1993)
“Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”
- [22] V. Keldysh. *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965)
“Ionization in the field of strong electromagnetic wave”
- [23] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2212–2215 (1989)
“Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field”

- [24] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier and P. B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993), n°3, 1994.
“Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields”
- [25] M.V. Ammosov, N.B. Delone and V. P. Krainov *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191 (1986)
“Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field”
- [26] T. Auguste, P. Monot, L.A. Lompré, G. Mainfray and C. Manus. *J. Phys. B* **25**, 4181- 4194 (1992).
“Multiply charged ions produced in noble gases by a 1 ps laser pulse at $\lambda=1053$ nm”
- [27] P. Lambropoulos, P. Maragakis and E. Cormier. *Laser. Phys.* **8**, 625 (1998)
“Atoms in short, intense laser pulses: a review of recent progress in ab initio approaches”
- [28] L. G. Gouy, *C. R. Acad. Sci. Paris* **110**, 1251 (1890)
- [29] P. Salières, A. L'Huillier and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
“Coherence control of high-order-harmonics ”
- [30] J. A. R. Samson and W.C. Stolte. *Journal of Electron Spectroscopy* **123** (2002), 265.
“Precision measurement of the total photo-ionization cross-sections of He, Ne, Ar and Xe”
- [31] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mèvel, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin and P. Agostini. *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999), n°8, 1668.
“Optimizing high-harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment”
- [32] E. Mèvel, E. Constant, D. Garzella, P. Breger, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin and P. Agostini. *ICOMP VIII* (2000), 373.
“Optimizing high-harmonic generation in absorbing gases”

- [33] C. G. Wahlström, S. Borgström, J. Larsson and S. G. Pettersson. *Phys. Rev. A.* **51** (1995), n°1, 585.

“High-order harmonic generation in laser produced ions using a near- infrared laser”

PARTIE II: CONFINEMENT TEMPOREL DE LA GENERATION D'HARMONIQUE D'ORDRES ELEVES

Chapitre 1 : Confinement temporel du rayonnement VUV harmonique.

Etat de l'art

En terme de durée d'impulsion, les lasers actuels IR couplés à des systèmes de post-compression permettent au mieux de délivrer des impulsions de ~ 3 fs [1]. Dans cette gamme de fréquence, les impulsions sont limitées par la période du champ laser IR. Or, pour étudier les dynamiques électroniques au cœur même de l'atome, dont l'échelle caractéristique de temps est de 150 as (temps de révolution électronique sur la première orbite de Bohr), il faut développer des sources d'impulsions VUV qui permettraient d'atteindre des durées sub-femtosecondes. Actuellement deux sources de rayonnement offrent la possibilité de disposer d'un spectre compatible avec l'émission d'impulsions attosecondes VUV : L'effet Raman stimulé [2] qui n'est pas étudié dans cette thèse et la génération d'harmoniques d'ordres élevés à laquelle nous nous sommes intéressés.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé se traduit dans le domaine temporel par l'émission d'un train d'impulsions VUV dans le régime attoseconde.

Pour utiliser ces impulsions VUV dans le cadre de la caractérisation des temps de relaxation électronique réels, il faut pouvoir les manipuler et contrôler leur nombre. Pour des temps de relaxation électronique de ~ 150 as, la production d'une unique impulsion attoseconde est nécessaire.

Pour cela nous nous sommes intéressés aux techniques de confinement temporel de l'émission VUV. Une première technique consiste à générer des harmoniques d'ordres élevés à l'aide d'une impulsion laser déjà ultra-brève (5fs) et à sélectionner spectralement la région de la coupure [3,4,5]. Cette technique a permis de générer une impulsion VUV attoseconde isolée, de 250 as [6]. Afin de produire une impulsion de quelques centaines d'attosecondes, il faut disposer d'un large spectre harmonique. C'est dans cette perspective qu'une autre technique basée sur la forte dépendance des harmoniques avec l'état de polarisation du fondamental, a été proposée par P. B. Corkum *et al.*, [7]. Cette technique permet de contrôler continûment le nombre d'impulsions attosecondes générées sans faire de sélection préalable d'une partie du spectre harmonique (plateau et coupure) [8]. De cette façon, en utilisant les harmoniques du plateau, on accède à des gammes spectrales différentes de celles qui sont obtenues par sélection spectrale de la coupure, et l'on reste peu sensible aux fluctuations d'intensité (intensité spectrale constante dans le plateau).

1.1 Génération d'harmoniques d'ordres élevés et degré d'ellipticité du fondamental.

Dans le cas d'impulsions de durée supérieure à 10 fs, l'état de polarisation du champ laser est généralement bien décrit par le degré d'ellipticité noté ϵ et définie par :

$$\epsilon = \frac{\min|E_+, E_-|}{\max|E_+, E_-|} \quad (1.1)$$

où E_+ et E_- ont des directions perpendiculaires et permettent d'écrire le champ E sous la forme :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= \vec{E}_- \sin(\omega_0 t) + \vec{E}_+ \cos(\omega_0 t) \\ \vec{E}_+ \cdot \vec{E}_- &= 0 \end{aligned} \quad (1.2)$$

On distingue alors trois cas :

- Si $\epsilon=0$, l'onde laser est polarisée linéairement selon sa composante principale E_+
- Si $\epsilon=1$, E_+ et E_- ont le même module et l'onde laser est alors polarisée circulairement.
- Si $\epsilon \in [0 ; 1]$ c'est-à-dire si E_+ et E_- ont des modules différents et sont en quadrature de phase, l'onde laser est alors elliptiquement polarisée [9].

Nous avons relevé le signal harmonique produit par une impulsion laser en fonction de son degré d'ellipticité. Ces mesures ont été faites à l'aide de notre spectromètre VUV qui dans le cas de signaux faibles permet d'avoir une meilleure efficacité de conversion des photons en photo-électrons comparée à celle du temps de vol.

La figure (1.1) présente l'amplitude des harmoniques 15, 21 et 27 générés dans le krypton par une impulsion laser de 35 fs en fonction de son degré d'ellipticité ϵ . L'état de polarisation laser étant modifié à l'aide d'une lame quart d'onde d'ordre zéro dont on change l'orientation. La dispersion due à l'épaisseur de la lame est pré-compensée par le compresseur pour obtenir une durée d'impulsion proche de la limite de Fourier dans la zone d'interaction.

Lorsqu'un axe propre de la lame est orienté selon la polarisation laser, l'impulsion est polarisée linéairement et $\epsilon=0$. Le signal harmonique est alors maximal quel que soit l'ordre harmonique.

Dès que l'on s'écarte de cette valeur, l'impulsion est polarisée elliptiquement et $\epsilon \neq 0$. Le signal harmonique décroît alors rapidement, ceci quel que soit l'ordre harmonique. Pour une ellipticité comprise entre 0,1 et 0,2, le signal des harmoniques 15, 21 et 27 décroît de ~50% ce qui traduit une forte dépendance du signal harmonique avec l'état de polarisation du fondamental. Des dépendances similaires et encore plus fortes avaient déjà été observées dans le Néon [10]. Elles s'expliquent facilement par le modèle classique en trois étapes. Comme nous l'avons vu, l'ionisation par effet tunnel est sensible à l'état de polarisation du fondamental, mais c'est lors de la phase d'accélération du paquet d'onde électronique dans le continuum que l'état de polarisation du champ fondamental joue un grand rôle : si la polarisation du champ laser est linéaire, alors le paquet d'onde électronique a une trajectoire rectiligne et une probabilité de retourner à l'ion parent maximale deux fois par cycle optique.

Si la polarisation du champ laser est elliptique ou circulaire, la trajectoire du paquet d'onde électronique ne rencontre plus l'ion parent et la probabilité associée à la recombinaison décroît lorsque le degré d'ellipticité augmente. Elle reste cependant non nulle car la fonction d'onde transverse électronique reste étendue.

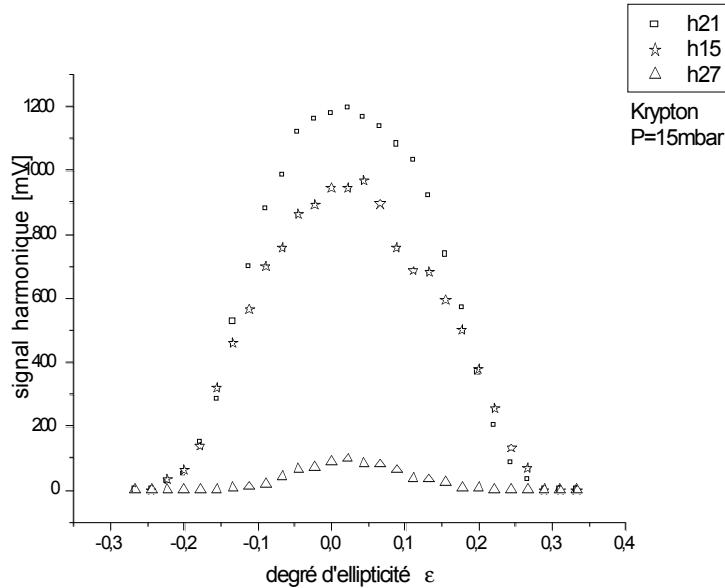


FIGURE 1.1 : EVOLUTION DU SIGNAL HARMONIQUE EXPÉRIMENTAL EN FONCTION DU DEGRÉ D'ELLIPTICITÉ DU FONDAMENTAL POUR LES HARMONIQUES H15, H21 ET H27 GÉNÉRÉES PAR UNE IMPULSION DE 35 FS DANS LE KRYPTON.

1.2 Confinement temporel de la génération d'harmoniques et concept de porte temporelle d'ellipticité.

Comme nous l'avons vu, l'efficacité de génération des harmoniques d'ordres élevés dans les gaz rares est maximale en polarisation linéaire et décroît très rapidement lorsque la polarisation tend vers une configuration circulaire. P. B. Corkum *et al.*, ont donc eu l'idée d'utiliser cette propriété pour confiner temporellement l'émission harmonique. L'idée consiste à générer les harmoniques pendant une durée de quelques cycles optiques. On va donc élaborer une technique qui permet de moduler temporellement l'état de polarisation du fondamental au cours de la durée de l'impulsion de telle sorte que le champ laser soit linéairement polarisé pendant une durée τ_G inférieure à la durée de l'impulsion laser τ_0 [11].

Le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés ne pouvant avoir lieu que pendant cette fenêtre temporelle, l'émission VUV harmonique est confinée dans une enveloppe dont la durée est de l'ordre de τ_G . Sur la figure (1.2) est représenté le principe de cette technique. Dans le cas standard, où l'impulsion laser est linéairement polarisée ($\epsilon(t)=0$), on s'attend à un spectre d'harmoniques usuel qui dans le domaine temporel se traduit par l'émission d'un train d'impulsions attosecondes contenu dans une enveloppe de durée $\sim\tau_0$.

Si maintenant on module temporellement l'état de polarisation de l'impulsion laser de telle sorte qu'elle soit linéairement polarisée pendant une durée inférieure à la durée de l'impulsion laser génératrice, on s'attend d'une part à élargir les harmoniques, et d'autre part à réduire la durée de l'enveloppe VUV et réduire ainsi le nombre d'impulsions attosecondes émises.

On crée de cette façon une porte temporelle dans le profil de l'impulsion, de durée τ_G , pendant laquelle l'émission d'impulsions attosecondes est permise. Si celle-ci est inférieure à un demi-cycle optique IR et si l'on sélectionne par accord de phase un des chemins quantiques (en positionnant le foyer avant du milieu générateur ou par sélection spatiale) on s'attend à obtenir un continuum spectral (élargissement des harmoniques tels qu'elles se recouvrent) correspondant à une enveloppe VUV sub-cycle où une seule impulsion attoseconde subsisterait.

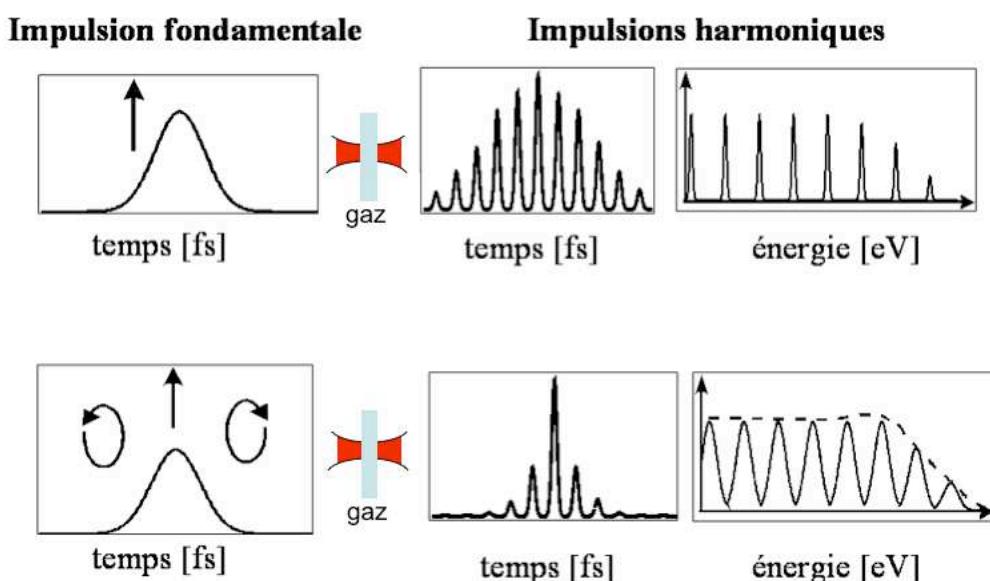


FIGURE 1.2 : PRINCIPE DU CONFINEMENT TEMPOREL DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUE D'ORDRES ÉLEVÉS PAR VARIATION TEMPORELLE DE L'ETAT DE POLARISATION FONDAMENTAL.

1.3 Technique de création de la porte d'ellipticité.

Afin de créer la porte d'ellipticité, il existe différentes techniques. La première technique utilisait des impulsions laser longues ~ 100 fs qui traversent une lame de BK7 [12]. La modulation temporelle de l'ellipticité est obtenue par automodulation dans cette lame. L'ajout d'une lame de quartz biréfringent, dont les axes propres sont orientées à 45° de la polarisation laser initiale, permet de séparer le champ laser en deux composantes orthogonales (selon les axes de la lame) et décalés temporellement. En contrôlant l'orientation de cette lame selon ces deux degrés de liberté transverses (angle d'orientation de la lame par rapport à l'axe transverse vertical et angle d'orientation de la lame par rapport à l'axe transverse horizontal), on contrôle le délai temporel entre les composantes orthogonales du champ ainsi que leurs phases. On peut ainsi créer une porte, correspondant à la zone où les composantes se recouvrent temporellement, dans laquelle l'impulsion est polarisée linéairement.

Comme cette technique repose sur un effet non linéaire, la porte d'ellipticité est très sensible aux fluctuations d'intensité laser. Elle requiert donc une bonne stabilité de l'éclairage laser. C. Altucci *et al.*, [12] ont pu ainsi mesurer directement la dérive de fréquence des harmoniques.

Une deuxième technique consiste à utiliser un interféromètre de Michelson pour produire deux répliques de l'impulsion laser initiale décalées d'un délai τ variable. Sur chaque bras de l'interféromètre, une lame $\lambda/4$ d'ordre zéro (traversée deux fois) est utilisée pour que les champs associées aux deux impulsions soient polarisés linéairement et orthogonalement. L'ajout d'une troisième lame $\lambda/4$ d'ordre zéro en sortie de Michelson permet de transformer les polarisations linéaires en circulaire et vice-versa. En contrôlant le délai τ introduit par l'interféromètre, on contrôle la durée de la porte. Cette technique utilisée par M. Kovacēv et al., [13] a permis de mettre en évidence un élargissement des harmoniques qui constitue une signature du confinement temporel harmonique. Elle nécessite cependant une bonne stabilité mécanique du dispositif.

1.4 Association de lames quart d'onde au CELIA.

Au CELIA nous avons décidé de développer une technique basée sur l'utilisation de deux lames quart d'onde constituées de matériau biréfringent [11].

Cette technique a l'avantage d'être peu dépendante des fluctuations en intensité ou des fluctuations mécaniques et reste facile à mettre en œuvre. Elle repose uniquement sur l'orientation des axes propres de ces lames. Par convention, nous choisissons de définir l'ensemble de ces orientations par rapport à l'orientation de la polarisation initiale du fondamental.

1.4.1 Lame n°1 : Lame quart d'onde d'ordre multiple.

Lorsqu'une impulsion laser incidente linéairement polarisée traverse une lame quart d'onde multi-ordre, le champ électrique laser se divise pour se propager selon les deux axes propres de la lame (supposés ici orientés à 45° de l'axe de polarisation laser initial).

Comme le montre la figure (1.3), les projections du champ sont alors décalées l'une par rapport à l'autre d'un délai $\delta\tau$ dépendant de l'épaisseur de la lame et des indices de groupe propres aux axes de la lame.

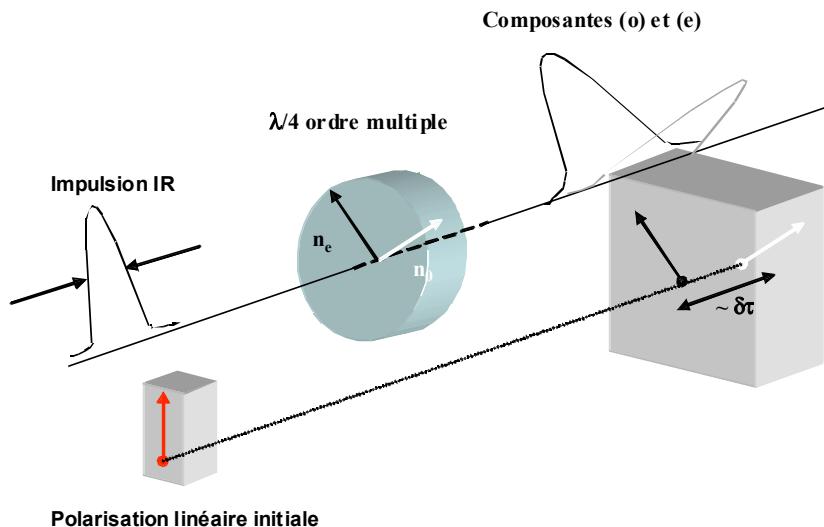


FIGURE 1.3 : ACTION DE LA LAME QUART D'ONDE MULTI ORDRE SUR LE CHAMP LASER INITIALEMENT POLARISÉ LINÉAIREMENT.

Si l'on considère un champ en :

$$E = E_0(t) \cdot \cos(\omega_0 t) \quad (1.2)$$

Les projections du champ sur les axes propres de la lame (axe ordinaire (o) et extraordinaire(e)) sont données par :

$$E_e = E_0 \left(t + \frac{\delta\tau}{2} \right) \cdot \cos(\alpha) \cdot \cos(\omega_0 t + \phi_e) \quad (1.2a)$$

$$E_o = E_0 \left(t - \frac{\delta\tau}{2} \right) \cdot \sin(\alpha) \cdot \cos(\omega_0 t + \phi_o) \quad (1.2b)$$

Où α désigne l'angle d'orientation des axes de la lame par rapport à l'axe de polarisation laser initiale.

Le délai entre ces deux enveloppes introduit par la lame dépend de son épaisseur e et des indices de groupe selon les axes ordinaire et extraordinaire (n_{go}, n_{ge}):

$$\delta\tau = (n_{go} - n_{ge}) \left(\frac{e}{c} \right) \quad (1.3)$$

Les deux champs sont déphasées par la lame multi ordre de :

$$\delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda_0} (n_o - n_e) \quad (1.4)$$

où n_o et n_e sont les indices de phase de la lame. La lame étant quart d'onde, le déphasage introduit est égal à $(2n+1)\pi/2$ avec n entier.

Le degré d'ellipticité après traversée de cette lame, qui correspond au rapport des amplitudes est donc donné par :

$$\varepsilon(t) = \frac{E_0 \left(t - \frac{\delta\tau}{2} \right)}{E_0 \left(t + \frac{\delta\tau}{2} \right)}, \text{ pour } t > 0 \quad (1.5a)$$

$$\varepsilon(t) = \frac{E_0 \left(t + \frac{\delta\tau}{2} \right)}{E_0 \left(t - \frac{\delta\tau}{2} \right)}, \text{ pour } t < 0 \quad (1.5b)$$

Sur la figure (1.4), nous présentons le profil temporel d'une impulsion laser qui a traversé la lame n°1 (pointillé) ainsi que l'évolution de son degré d'ellipticité ($\epsilon(t)$ continu) au cours de sa durée.

Ces calculs ont été réalisés pour une impulsion laser initialement polarisée linéairement ($\epsilon=0$), supposée Gaussienne, limitée par transformée Fourier et d'une durée de $\tau_0=10$ fs. Le délai introduit par la lame est de $\delta\tau=10$ fs. L'impulsion en sortie présente donc un profil temporel relativement plat dont la durée est approximativement de $\tau_0+\delta\tau \sim 20$ fs. Pour $\delta\tau \sim \tau_0$, l'éclairement crête en sortie de lame correspond à la moitié de l'éclairement crête initial.

Le degré d'ellipticité ϵ initialement nul devient dépendant du temps ce qui traduit que l'état de polarisation de l'impulsion laser varie au cours de sa durée ($\tau_0+\delta\tau$).

On en déduit que l'impulsion laser, après traversée de lame n°1, est polarisée linéairement ($\epsilon=0$) sur le front montant et descendant du profil temporel et transite vers une polarisation circulaire ($\epsilon=1$) au centre du profil temporel.

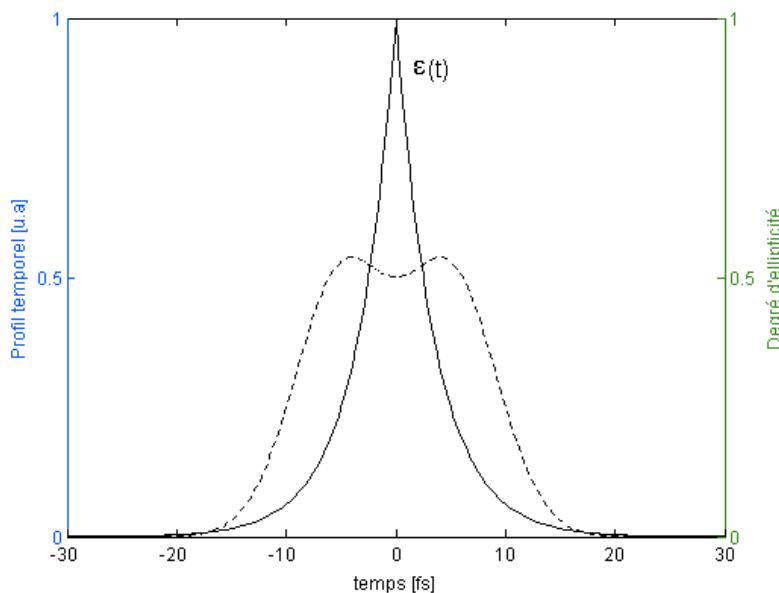


FIGURE 1.4 : PROFIL D'INTENSITÉ D'UNE IMPULSION IR (10 FS) EN SORTIE DE LAME QUART D'ONDE MULTI ORDRE (POINTILLE) INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS ET EVOLUTION DE SON DEGRE D'ELLIPTICITÉ AU COURS DU TEMPS (CONTINU) POUR $\alpha=45^\circ$.

Pour la suite, on fixera $\alpha=45^\circ$, cependant on montre facilement que si $\alpha \neq 45^\circ$, les composantes ordinaire et extraordinaire n'ont pas la même amplitude. Le profil temporel est alors asymétrique et la porte d'ellipticité n'est pas localisée au centre du profil.

Dans le cadre de nos expériences, il faut aussi envisager le cas où la longueur d'onde laser ne correspond pas à la longueur d'onde pour laquelle la lame n°1 est $\lambda/4$.

C'est-à-dire que le déphasage introduit par cette lame ne sera pas exactement égal à $\pi/2$. L'effet de cette chromaticité sur le degré d'ellipticité est important sur les ailes du profil et reste négligeable au centre du profil. Cependant, en contrôlant l'angle d'incidence laser par rapport à l'axe d'orientation vertical transverse (axe y) de la lame, on peut contrôler ce déphasage et l'ajuster à $\pi/2$. En modifiant l'angle d'incidence, on modifie l'épaisseur de la lame et on se déplace sur l'ellipsoïde des indices, de telle sorte qu'elle soit $\lambda/4$ à la longueur d'onde laser λ_0 . Le déphasage en fonction de l'angle d'incidence est donné par :

$$\delta\varphi = \frac{2\pi e}{\lambda_0} \left[n_e \sqrt{1 - \sin^2 i} \left\{ \frac{\sin^2 \alpha}{n_e^2} + \frac{\cos^2 \alpha}{n_o^2} \right\} - n_0 \sqrt{1 - \frac{\sin^2 i}{n_0^2}} \right] \quad (1.6)$$

où e désigne l'épaisseur de la lame, n_o et n_e les indices ordinaire et extraordinaire de la lame, α l'angle d'orientation des axes de la lame, i l'angle d'incidence comme indiqué en figure (1.5) et λ_0 la longueur d'onde centrale du laser.

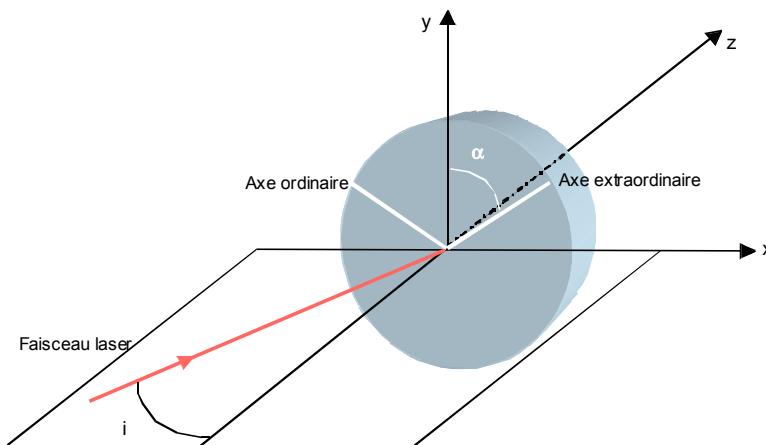


FIGURE 1.5 : ORIENTATION DE LA LAME QUART D'ONDE MULTI-ORDRE.

Pour la lame de quartz utilisée en expérience ($e=1,05$ mm) et α fixé à 45° , la lame reste quart d'onde à 800 nm si $i < 20^\circ$. Si la longueur d'onde laser est de 815 nm, cette lame est quart d'onde pour $i \sim 65^\circ$. On orientera donc la lame de façon à ce qu'elle soit quart d'onde à la longueur d'onde centrale utilisée.

1.4.2 Lame n°2 : Lame quart d'onde d'ordre zéro.

Ce que nous souhaitons obtenir correspond à une impulsion linéairement polarisée au centre du profil et circulairement ou elliptiquement de part et d'autre. Nous avons donc ajouté une lame quart d'onde d'ordre zéro afin d'inverser l'état de polarisation.

On définit β l'angle d'orientation de cette seconde lame par rapport à l'orientation de la polarisation laser initiale comme illustré en figure (1.6).

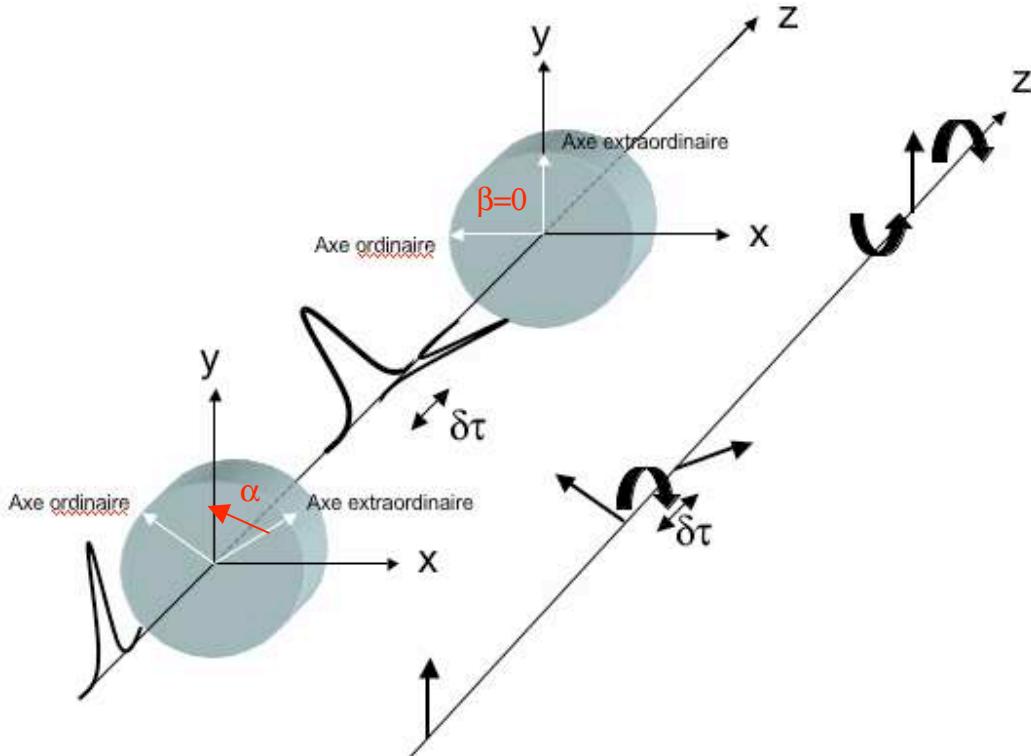


FIGURE 1.6 : ACTION COUPLÉE DE LA LAME N°1 ET 2 SUR LE CHAMP LASER INITIALEMENT POLARISÉ LINÉAIREMENT.

Pour les mêmes conditions initiales précédentes ($\tau_0=10$ fs = $\delta\tau$), nous avons calculé le profil temporel (pointillé) de l'impulsion qui traverse les deux lames ainsi que l'évolution de son degré d'ellipticité (continu).

Sur la figure (1.7) on peut voir que le profil de l'impulsion est conservé après traversée de la lame n°2 et que le degré d'ellipticité $\epsilon(t)$ est modifié. C'est-à-dire que l'impulsion est polarisée circulairement puis elliptiquement sur le front montant et descendant du profil ($\epsilon \neq 0$) et transite vers une polarisation linéaire au centre du profil temporel de l'impulsion ($\epsilon=0$).

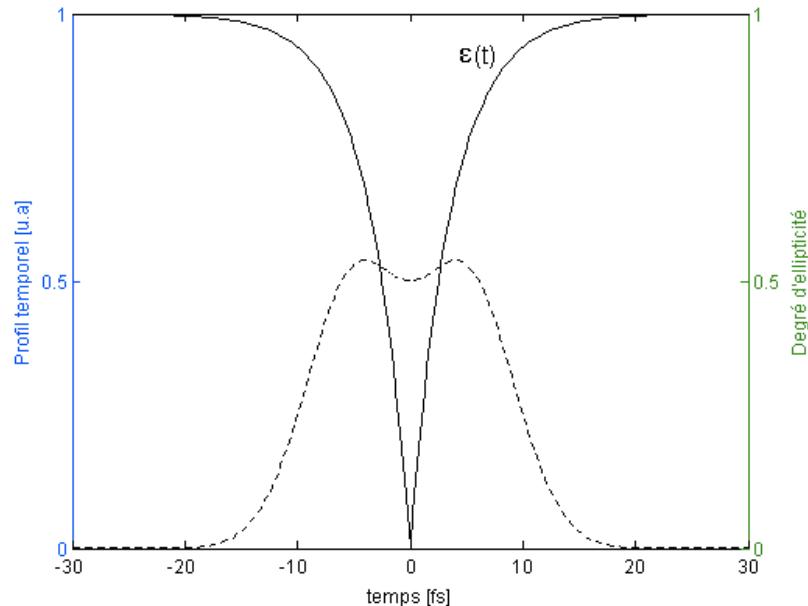


FIGURE 1.7 : PROFIL D'INTENSITÉ D'UNE IMPULSION IR (10 FS) EN SORTIE DU SYSTÈME DE LAMES QUART D'ONDE (POINTILLE) INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS ET EVOLUTION DE SON DEGRE D'ELLIPTICITÉ AU COURS DU TEMPS (CONTINU) POUR $\alpha=45^\circ$ ET $\beta=0^\circ$.

Le cas $\beta=0^\circ$ est particulier dans la mesure où le degré d'ellipticité $\epsilon(t)$ est égal à 1 en début et fin de profil. Pour $\beta \neq 0^\circ$ le degré $\epsilon(t)$ est inférieur à 1 au début et à la fin du profil, c'est-à-dire que l'impulsion est polarisée elliptiquement sur le front montant et descendant du profil temporel et n'atteint jamais une configuration circulaire. Au centre du profil, la polarisation reste linéaire quelle que soit la valeur de β .

L'ajout de la second lame a donc pour effet d'inverser l'état de polarisation en sortie de la lame d'ordre multiple et ainsi de créer une fenêtre dans le profil temporel de durée variable inférieure à τ_0 où le champ laser est linéairement polarisé.

En jouant sur α , on contrôle la position de la porte dans le profil temporel final et en variant β , on contrôle continûment la durée de cette porte d'ellipticité. Le degré d'ellipticité reste indépendant de la chromaticité de la lame car les lames d'ordre zéro sont quart d'onde sur une grande gamme spectrale. De plus, expérimentalement, nous avons toujours pris soin d'avoir des impulsions limitées par Fourier dans la zone d'interaction.

De cette façon, à tout instant, la fréquence instantanée correspond à la fréquence de la porteuse, ce qui nous permet de considérer que la chromaticité due à la lame est négligeable. Il reste à définir la durée de cette porte qui constitue la condition nécessaire à la mise en pratique de la technique de confinement temporel des harmoniques.

1.4.3 Définition de la durée de la porte d'ellipticité.

On définit la durée de la porte d'ellipticité τ_G comme étant la durée pendant laquelle $\varepsilon(t) \leq \varepsilon_c$ où ε_c désigne l'ellipticité critique pour laquelle le signal harmonique diminue d'un facteur deux.

Pour $\alpha=45^\circ$ et β quelconque, le degré d'ellipticité en sortie du système de lames est décrit par:

$$\varepsilon(t) = \tan \left[\frac{1}{2} \arcsin \left(\frac{\left(E_0(t - \frac{\delta\tau}{2}) \right)^2 - \left(E_0(t + \frac{\delta\tau}{2}) \right)^2}{\left(E_0(t - \frac{\delta\tau}{2}) \right)^2 + \left(E_0(t + \frac{\delta\tau}{2}) \right)^2} (\cos 2\beta) \right) \right] \quad (1.7)$$

Ce degré d'ellipticité permet de connaître qualitativement la nature de la polarisation, en revanche elle ne donne aucune indication sur la direction de la polarisation, si celle-ci reste linéaire ou de l'orientation du grand axe de l'ellipse décrite par le vecteur champ pour une polarisation elliptique. On définit donc l'angle d'orientation du grand axe de l'ellipse par rapport à l'orientation initiale de la polarisation laser par $\gamma(t)$ qui en sortie du système est donné par :

$$\gamma(t) = \beta + \frac{1}{2} \arctan \left[\left(\frac{\left(E_0(t - \frac{\delta\tau}{2}) \right)^2 - \left(E_0(t + \frac{\delta\tau}{2}) \right)^2}{2 \left(E_0(t - \frac{\delta\tau}{2}) \right) \cdot \left(E_0(t + \frac{\delta\tau}{2}) \right)} \right) \sin(2\beta) \right] \quad (1.8)$$

Notons qu'une configuration « référence » existe, elle correspond au cas où les lames posséderaient un de leurs axes propres confondus avec l'axe de polarisation initiale ($\alpha=\beta=0$).

Le profil temporel initial est alors transmis sans modification et reste linéairement polarisé pendant toute sa durée τ_0 . Cette configuration de porte est nommée « sans porte ».

Cette nomination reste valable si l'on pré-compense la dispersion additionnelle introduite par les lames. On distingue alors trois catégories de portes illustrées en figure (1.8), dans chaque cas, on a représenté le profil temporel (pointillé), l'orientation du grand axe $\gamma(t)$ (point), l'ellipticité $\epsilon(t)$ (continu) et l'ellipticité critique ϵ_c (traits-points) :

- 1er cas : α est fixé à 45° et $\beta=45^\circ$, le profil temporel est modifié par la première lame puis est conservé par la seconde lame. En sortie du système, l'impulsion est polarisée linéairement pendant toute la durée du profil, égale à la largeur à mi-hauteur (FWHM) du profil temporel, et maximale τ_G^{\max} . Cependant son axe de polarisation initialement à 0° bascule de 90° . Dans cette configuration, il n'y a pas de modulation d'ellipticité, l'impulsion initiale voit son profil modifié mais pas son état de polarisation. Par abus de langage, nous appelons cette configuration « porte large ».
- 2^{ème} cas : α est fixé à 45° et $\beta=0^\circ$, on se trouve dans la configuration où la durée de la porte est minimale τ_G^{\min} (définie par l'équation (1.7)) et où l'orientation de l'axe de la grande ellipse reste inchangée tout au long de la durée du profil. Nous avons appelé cette dernière configuration « porte étroite »
- 3^{ème} cas : α est fixé à 45° et $\beta \in]0^\circ ; 45^\circ [\cup]45^\circ ; 90^\circ [$, nous nous trouvons dans le cas de portes intermédiaires dont les durées τ_G sont supérieures à τ_G^{\min} . L'orientation de l'axe de la grande ellipse initialement orientée selon β bascule de 90° .

Pour des impulsions supposées gaussiennes et α fixé à 45° , la durée de la porte peut être calculée en fonction de la durée initiale τ_0 , du délai $\delta\tau$ et du degré d'ellipticité critique ε_c [14] :

$$\tau_g = \frac{\tau_0^2 \varepsilon_c}{\ln 2 \cdot \delta\tau |\cos(2\beta)|} \quad (1.9)$$

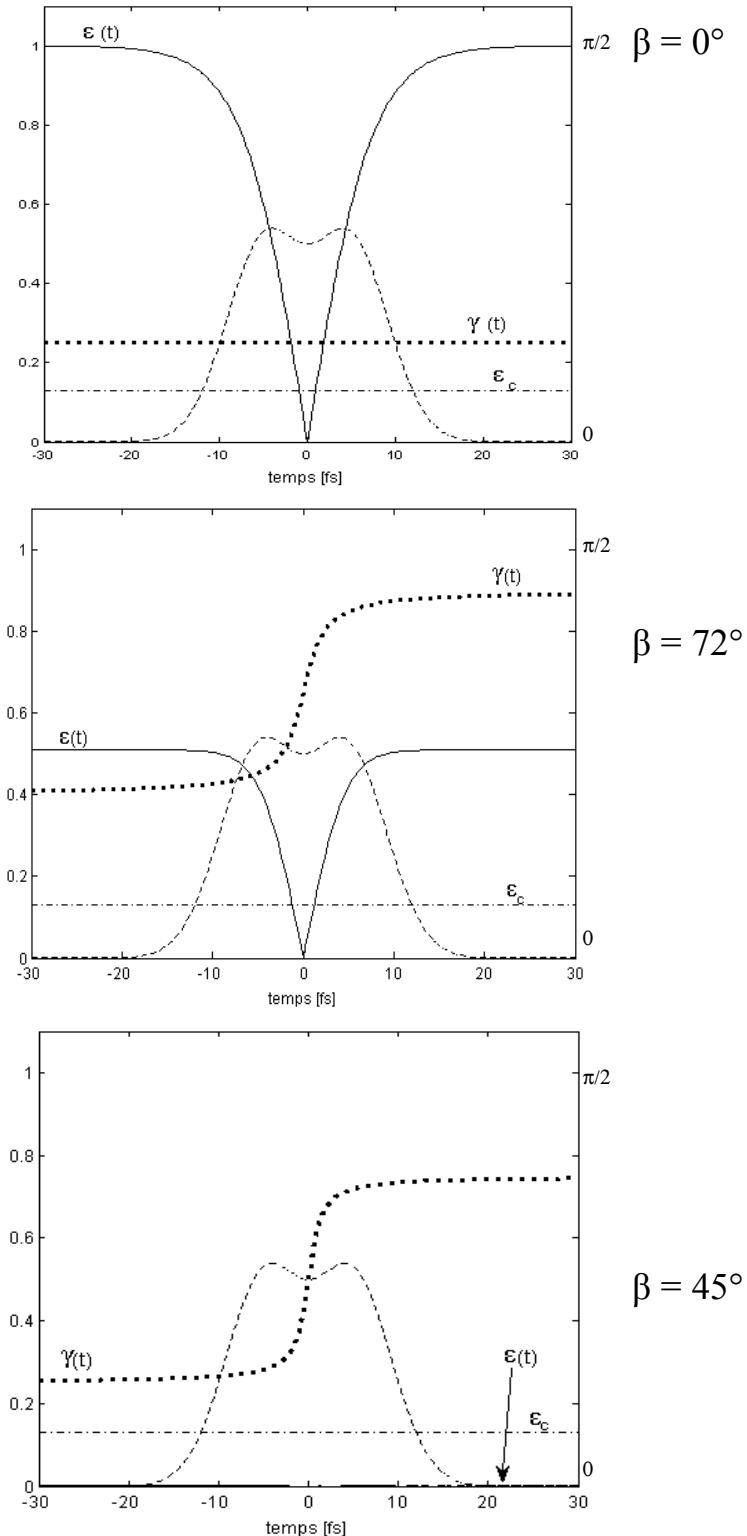
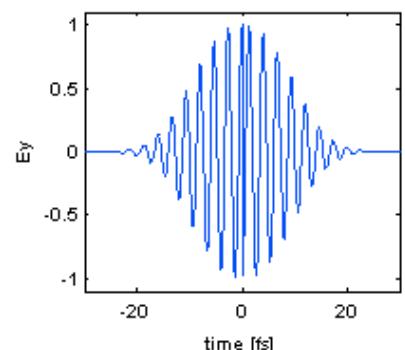
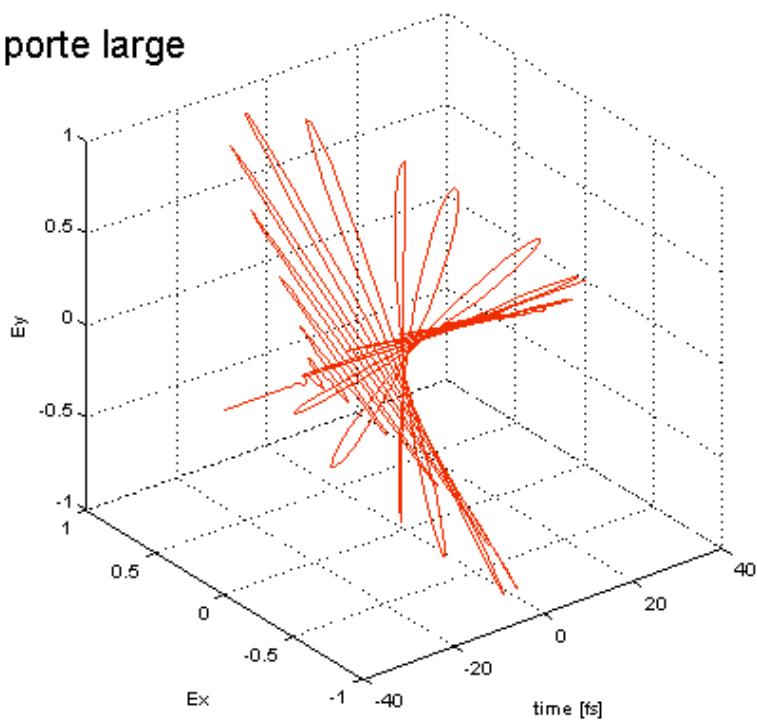


FIGURE 1.8 : PROFIL D'INTENSITÉ D'UNE IMPULSION IR (10 FS) EN SORTIE DU SYSTEME DE LAME QUART D'ONDE (POINTILLE) INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS ET EVOLUTION DE SON DEGRE D'ELLIPTICITÉ ET DE L'ORIENTATION DU GRAND AXE DE POLARISATION AU COURS DU TEMPS : $\alpha = 45^\circ$ ET $\beta = [0^\circ; 72^\circ; 45^\circ]$. $\beta = 0^\circ$ CORRESPOND A LA CONFIGURATION PORTE ETROITE ; $\beta = 72^\circ$ CORRESPOND A UNE PORTE INTERMEDIAIRE ET $\beta = 45^\circ$ CORRESPOND A LA CONFIGURATION PORTE LARGE.

Pour avoir une idée de l'évolution du champ en sortie du système de lames, nous l'avons représenté en trois dimensions (x,y,t) sur la figure (1.9) en configuration large ($\beta=45^\circ$) et étroite ($\beta=0^\circ$). On retrouve pour la configuration large que la polarisation est toujours linéaire mais pivote très rapidement à l'approche du centre du profil pour basculer de 90° . Dans le cas de la configuration porte étroite on retrouve que le champ n'est polarisé linéairement que pendant un bref instant proche du centre du profil. En amont il est polarisé circulairement et elliptiquement avec une hélicité positive (ellipticité dextrogyre), en aval il est polarisé elliptiquement puis circulairement avec cette fois ci une hélicité négative (ellipticité lévogyre). C'est donc lors de ce changement d'hélicité que le champ peut être considéré comme quasi-linéaire.

porte large



porte étroite

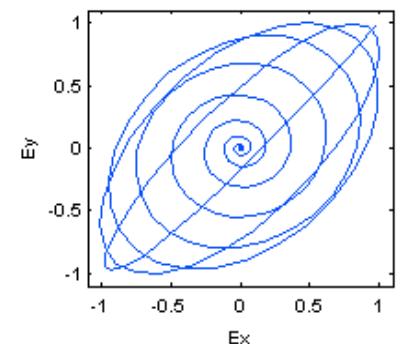
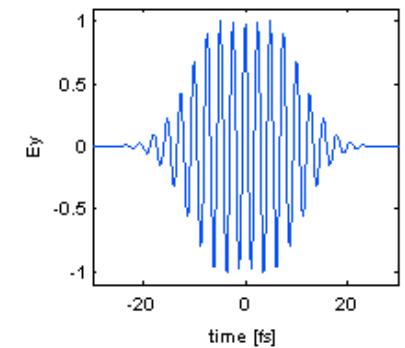
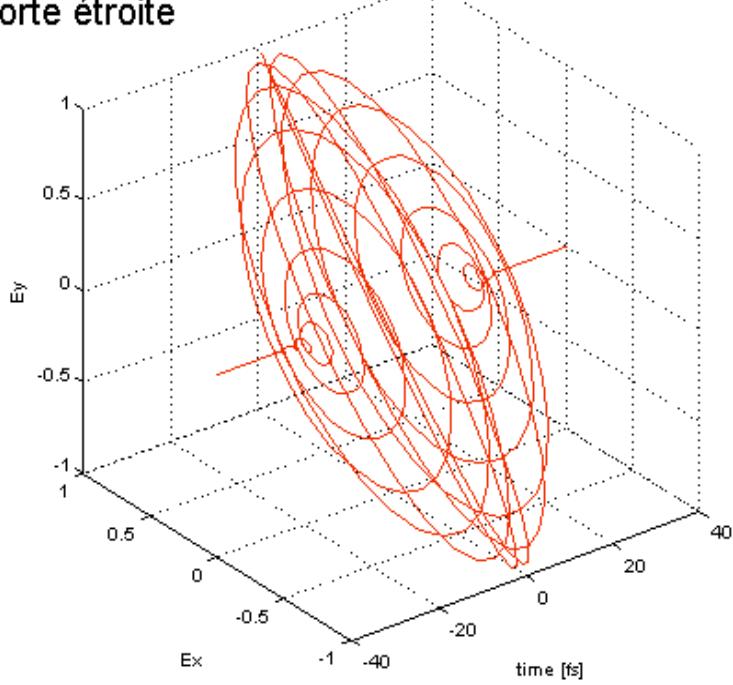


FIGURE 1.9 : CHAMP ELECTRIQUE LASER (IMPULSION DE DURÉE 10FS) EN SORTIE DU SYSTEME DE LAMES QUART D'ONDE INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS EN CONFIGURATION PORTE LARGE ET PORTE ÉTROITE.

Sur la figure (1.10), nous présentons la durée de la porte calculée en fonction de la valeur de l'angle β , pour une impulsion initialement de 10 fs et un délai dû à la 1^{ère} lame de 10 fs.

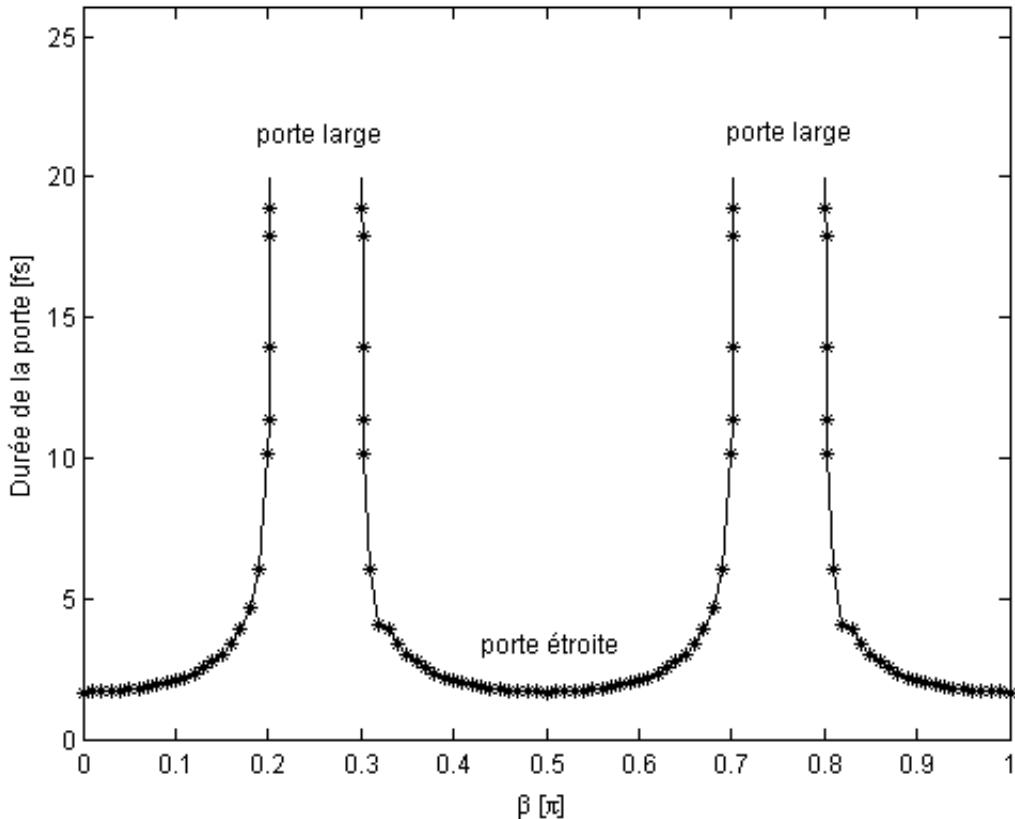


FIGURE 1.10 : DURÉE DE LA PORTE D' ELLIPTICITÉ EN FONCTION DE L'ANGLE DE LA SECONDE LAME PAR RAPPORT À LA PREMIÈRE LAME : α FIXÉ À 45° ET $\beta \in [0 ; \pi]$

Pour $\beta=\pi/4$ [π] τ_g diverge, cela correspond à la configuration « porte large ». Pour $\beta=0$ [π] cette durée est minimale τ_g^{\min} et correspond à la configuration « porte étroite ». En contrôlant l'orientation de la seconde lame, on contrôle donc la durée de la porte. En contrôlant cette durée et si l'éclairage laser dans la porte est suffisant pour générer des harmoniques, on peut contrôler le confinement temporel des harmoniques.

Pour des durées de porte d'ellipticité inférieures à un demi-cycle optique (1,33 fs à 800 nm), il est difficile de définir proprement la polarisation laser dans la porte. Si l'on veut comprendre ce qui se passe lorsque l'on utilise une telle porte, il faut regarder les trajectoires électroniques que peut emprunter un électron libéré dans un tel champ laser.

1.4.4 Trajectoires électroniques.

Nous avions vu dans le cadre du modèle en trois étapes, que l'on peut calculer les trajectoires électroniques dans le cas d'un champ constamment polarisé linéairement ($\epsilon(t)=0$). Si maintenant le degré d'ellipticité évolue au cours du temps, on peut toujours calculer de la même manière ces trajectoires électroniques ainsi que l'énergie cinétique associée. Ces calculs font l'objet du code classique « e_motion ».

Il prend pour hypothèse de base que l'électron est libéré sans vitesse initiale dans le continuum, qu'il ne subit que les effets du champ laser (les effets dû au potentiel Coulombien ne sont pas pris en compte) et que l'ion parent est insensible à ce champ laser (ion supposé immobile localisé à la position 0.).

i) Calcul:

L'étude que nous avons réalisée considère des impulsions laser type gaussienne, limitées par Fourier et d'une durée de 10 fs. La porte est toujours en configuration « porte étroite » et sa position coïncide avec le maximum de l'enveloppe temporelle. Le champ laser initial est décrit par :

$$E=E_0(t) \cdot \cos(\omega_0 t + \varphi_{cep}) \quad (1.10)$$

où l'enveloppe $E_0(t)$ est considérée lentement variable (l'enveloppe varie lentement par rapport aux oscillations du champ sous l'enveloppe : $\tau_0 \sim 5$ cycles optiques) et φ_{cep} désigne la phase absolue du champ laser par rapport à l'enveloppe. Cette phase traduit le fait qu'un maximum du champ laser peut ne pas coïncider ($\varphi_{cep} \neq 0$) avec le maximum de l'enveloppe temporelle c'est-à-dire avec la position de la porte.

Le degré d'ellipticité étant décrit par l'équation (1.7), nous calculons les positions $x(t)$ et $y(t)$ de l'électron libéré selon le système (S1), ceci reste une approximation des positions $x(t)$ et $y(t)$. En tout logique pour des impulsions sub-10 fs, l'approximation de l'enveloppe lentement variable n'est plus valable et la loi fondamentale de la dynamique doit être intégrée numériquement :

$$x(t) = \frac{-e}{m\omega_0^2} \cdot [E_0(t) \cos(\omega_0 t + \varphi) - E_0(t_i) \cos(\omega_0 t_i + \varphi)] - \frac{eE_0(t_i)}{m\omega_0} \cdot (t - t_i) \sin(\omega_0 t_i + \varphi) \quad (S1)$$

$$y(t) = \frac{-e\epsilon(t_i)}{m\omega_0^2} \cdot [E_0(t) \sin(\omega_0 t + \varphi) - E_0(t_i) \sin(\omega_0 t_i + \varphi)] + \frac{e\epsilon(t_i)E_0(t_i)}{m\omega_0} \cdot (t - t_i) \cos(\omega_0 t_i + \varphi)$$

On calcule alors la coordonnée radiale $r(t) = \sqrt{x(t)^2 + y(t)^2}$. On considère que l'électron recombine avec l'ion parent lorsque $r(t)$ est minimale.

Ce modèle purement qualitatif ne permet pas de mettre en évidence les effets d'élargissement spatial du paquet d'onde électronique pendant la durée de la trajectoire. La probabilité de recombinaison électronique à l'ion parent étant reliée au recouvrement spatial de la fonction d'onde de l'électron lié à l'atome et de la fonction d'onde de l'électron libre, plus le paquet d'onde s'élargit, plus la probabilité de recombinaison est faible. Il faut donc en tenir compte dans nos calculs. Dans le cas du Néon ($I_p=21.56$ eV), un électron de valence, se trouvant initialement sur une orbitale 2p, puis libéré dans le continuum « voit » une charge effective $Z^* = \sqrt{I_p \cdot 2n^2}$ (Effet d'écran). L'élargissement spatial moyen de sa fonction d'onde [15] est

alors donné par $r_0 = \frac{3n^2 - l(l+1)}{2Z^*}$ et on peut calculer la dispersion du paquet d'onde électronique (supposé Gaussien) suivant :

$$\delta r \propto \frac{\tau \cdot \sqrt{2}}{r_0} \approx 0,712 \cdot \tau \text{ [nm]}$$

où τ désigne la durée de la trajectoire électronique et $\frac{\sqrt{2}}{r_0}$ désigne le coefficient de dispersion

spatial de la fonction d'onde électronique. Pour le néon, ce coefficient de dispersion spatial électronique vaut $0,712$ [nm.fs $^{-1}$]. Pour l'argon, on trouve un coefficient de dispersion spatiale électronique de $0,25$ [nm.fs $^{-1}$], ce qui implique que, dans l'argon, ces effets de dispersion sont moins importants. Nous avons choisi de représenter sur nos trajectoires cet élargissement spatial sous forme de barre d'erreur dans le cas du néon.

Notons que dans tous les calculs qui suivent, les trajectoires $r(t)$ ne sont pas exprimées en fonction du temps t mais en fonction de la phase $\omega_0 t$ et devraient être notées en toute rigueur

$r(\omega_0 t)$. Cette phase est pour un cycle optique égale à 2π , c'est à dire qu'un demi-cycle optique IR est ici représenté par une phase de π .

Cette phase constitue notre base de temps (abscisse) et ne doit pas être confondue avec la phase $\omega_0 t_i$ de naissance de l'électron dans le continuum ou la phase $\omega_0 t_r$ de retour correspondant à la recombinaison de l'électron par l'ion parent.

ii) Influence de la porte sur les trajectoires électroniques :

Dans ces calculs, la phase absolue du champ est supposée nulle. La porte d'ellipticité, dont le centre coïncide avec le centre de l'enveloppe temporelle, est centrée sur un maximum du champ laser.

Nous avons calculé les trajectoires électroniques sur six demi-périodes optiques $\omega_0 t \in [-3\pi ; 3\pi]$ et pour trois phases de naissance de l'électron dans le continuum $\omega_0 t_i$ respectivement égales à 0.04π [π] (chemin long), 0.1π [π] (coupure) et 0.25π [π] (chemin court). Les phases de naissance des chemins long et court ont été choisies pour correspondre à la même énergie cinétique de retour soit $1,5 U_p$ dans le cas d'une polarisation linéaire. L'évolution du degré d'ellipticité $\epsilon(t)$ est calculée pour une durée d'impulsion initiale τ_0 et un délai $\delta\tau$ égaux à 10 fs. La porte, en configuration étroite, est solidaire du maximum de l'enveloppe temporelle ($\omega_0 t=0$). Sur la figure (1.11), nous avons représentées les trajectoires correspondant au chemin long, à la coupure et au chemin court (continu). Les trajectoires correspondant à la configuration « porte large » sont représentées en pointillé et constituent nos trajectoires de référence car elles représentent les trajectoires obtenues pour une polarisation linéaire et un profil temporel identique à celui de la configuration « porte étroite ».

Nous y avons également représenté l'évolution du degré d'ellipticité $\epsilon(\omega_0 t)$ sur ces six demi-périodes optiques (continu), la composante principale du champ laser $E_x(\omega_0 t)$ (trait continu) et la composante transverse du champ laser $E_y(\omega_0 t)$ (trait pointillé), après traversée des lames. Sur les trajectoires, apparaissent des « barres verticales » qui correspondent à l'élargissement spatial de la fonction d'onde électronique du premier minimum de la trajectoire $r(\omega_0 t)$ (retour au voisinage de l'ion parent).

Dans le cas particulier du chemin long et pour une phase de naissance de $-3\pi+0.04\pi$ et $-2\pi+0.04\pi$ (2^{ème} demi-cycle optique), on voit apparaître deux minima correspondants à la première et la seconde approche de l'électron. Lors du second passage, l'électron semble se rapprocher d'avantage de l'ion parent (localisé en $r=0$). Il aurait donc une probabilité plus grande de se recombiner avec l'ion parent lors de son second passage. Ceci est aussi visible pour la coupure. Cependant, le temps d'évolution de l'électron dans le continuum est bien plus grand lors de la seconde approche, le paquet d'onde électronique a donc un élargissement spatial plus important et la probabilité que l'électron se recombine lors de son second passage reste faible.

De plus, en supposant que l'électron se recombine lors de son deuxième passage, l'énergie cinétique maximale qu'il pourrait atteindre reste inférieure à $2 U_p$ et ne peut donc pas être comparée à une trajectoire recombinant lors de la première approche dont l'énergie cinétique maximale est atteinte à la coupure et vaut $3,17 U_p$.

Il apparaît clairement que seules les trajectoires à proximité du centre de la porte permettent une recombinaison efficace. Les caractéristiques exactes des trajectoires dépendent de nombreux paramètres, mais des tendances globales peuvent être observées :

- Pour une trajectoire existant avant le centre de la porte ($\omega_0 t_i < 0$) et pour une phase de naissance ($\omega_0 t_i \in [-3\pi, -\pi[$) loin de la porte d'ellipticité ($\epsilon(t) > \epsilon_c$), l'électron s'éloigne de l'ion : la polarisation étant elliptique, la trajectoire diverge et il n'y a pas de recombinaison possible.
- Pour une trajectoire existant après le centre de la porte ($\omega_0 t_i > 0$) et pour une phase de naissance ($\omega_0 t_i \in [\pi, 3\pi[$) loin de la porte d'ellipticité ($\epsilon(t) > \epsilon_c$), l'électron s'éloigne de l'ion parent : la polarisation est de plus en plus elliptique, la trajectoire diverge et il n'y a donc pas de recombinaison possible.
- Pour une trajectoire existant juste avant le centre de la porte, $\omega_0 t_i \in [-\pi, 0]$, la polarisation devient de plus en plus linéaire. La trajectoire présente alors un minimum qui peut se traduire par une recombinaison de l'électron avec l'ion parent.

- Pour une trajectoire existant juste après le centre de la porte, $\omega_0 t_i \in [0, \pi]$, la polarisation est de plus en plus elliptique. L'électron s'éloigne donc de l'ion parent (situé en $r=0$). Dans ce cas, la trajectoire présente également un minimum mais celui ci est moins prononcé que dans le cas précédent.

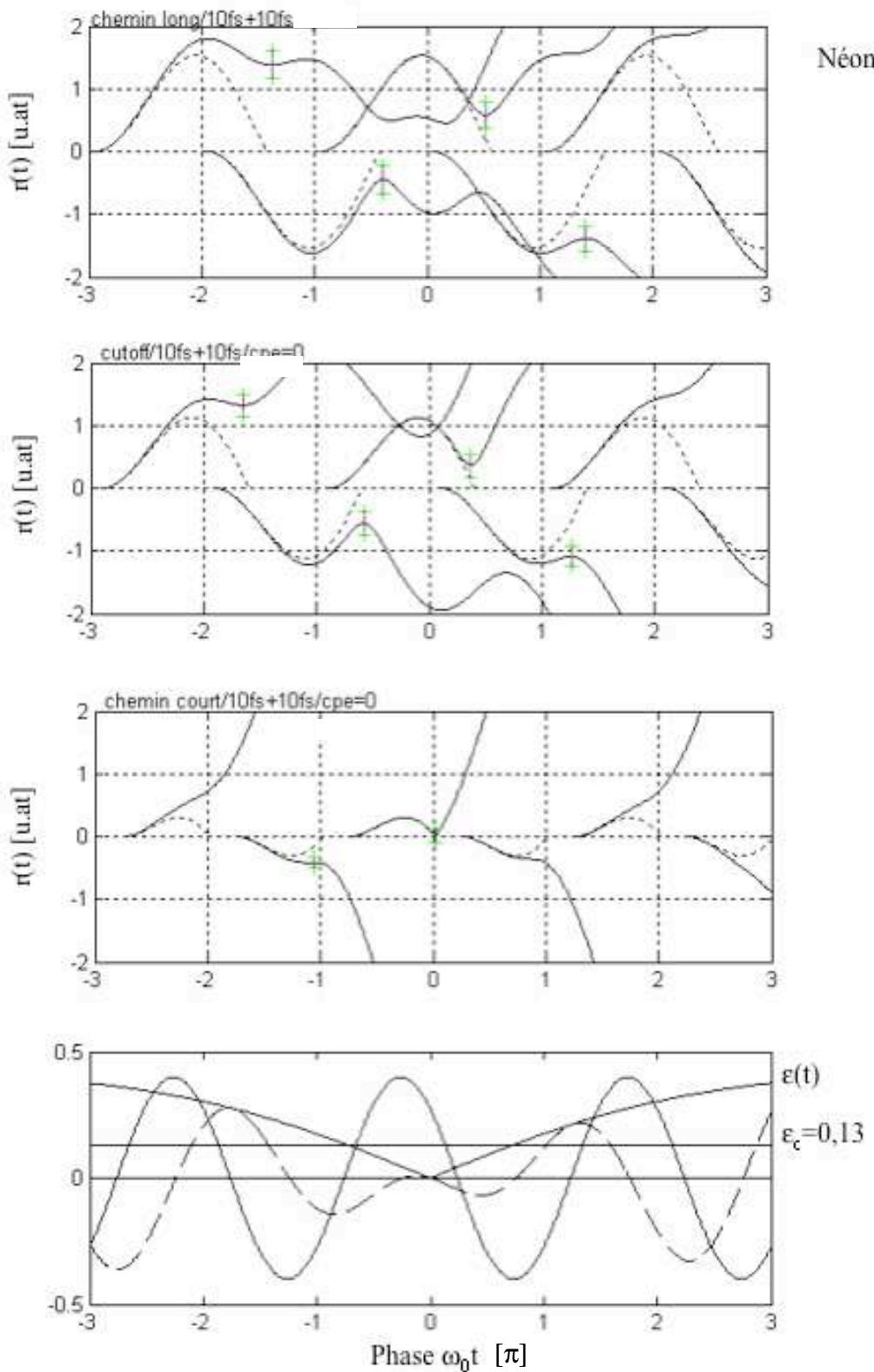


FIGURE 1.11: TRAJECTOIRES ÉLECTRONIQUES CALCULEES POUR LE CHEMIN LONG, LA COUPURE ET LE CHEMIN COURT, GENÈRE PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 fs ET UNE PORTE D'ELLIPTICITÉ DE DÉLAI $\delta\tau=10$ fs EN CONFIGURATION PORTE ETROITE (CONTINU) ET PORTE LARGE (POINTILLE). LA DISPERSION DU PAQUET D'ONDE ELECTRONIQUE (BARRES D'ERREURS) ET ICI PRIS EN COMPTE.

Un électron libéré en dehors de la durée de la porte ne pourra donc pas se recombiner à son ion parent. Mais s'il est libéré pendant la durée de la porte d'ellipticité, alors sa probabilité de recombiner augmente. Dans ce cas, une asymétrie des trajectoires est clairement visible de part et d'autre du centre de la porte. Elle montre que même si l'électron est libéré dans le continuum à un instant de naissance inclu dans la durée de la porte d'ellipticité ($\varepsilon(t) < \varepsilon_c$), il n'aura pas la même probabilité de recombinaison à l'ion parent comparé au cas où la polarisation est linéaire.

La durée de la porte d'ellipticité pour un délai de 10 fs est proche d'un demi-cycle optique tout en restant supérieur ($\tau_G = 1,87$ fs).

En considérant uniquement les trajectoires proches de la porte ($\omega_0 t_i \in [-\pi; \pi]$), nos calculs montrent que le chemin long et la coupure conduisent à deux retours tandis que le chemin court conduit à un unique retour. Si l'on ne fait aucune sélection de trajectoire, on se retrouve donc dans une configuration hybride en accord avec l'émission d'une à deux impulsions attosecondes. On peut donc se demander si en réduisant la durée de la porte, on peut induire une unique recombinaison quel que soit le chemin quantique. On pourrait ainsi utiliser l'ensemble du spectre harmonique du plateau harmonique à la zone de coupure pour la production d'une impulsion attoseconde unique.

iii) Influence de la durée de la porte sur les trajectoires électroniques :

Dans ces calculs la phase absolue du champ laser est toujours supposée nulle. La porte d'ellipticité est centrée en $\omega_0 t = 0$.

Nous avons calculé les trajectoires électroniques correspondant au chemin long, à la coupure et au chemin court, pour deux valeurs de délai $\delta\tau = 10$ fs ($\tau_G = 1,87$ fs) et $\delta\tau' = 15,32$ fs ($\tau_G = 1,22$ fs). Ces délais ont été choisis pour montrer l'influence de la durée de la porte quand elle franchit la barrière du demi-cycle optique (1,33 fs à 800 nm). De plus ces délais correspondent aux portes utilisées lors de la campagne expérimentale sur le confinement harmonique présenté, dans les chapitres II.2 et II.3. Sur la figure (1.12), sont représentées ces trajectoires calculées avec un délai $\delta t = 10$ fs (continu) et un délai $\delta t' = 15,32$ fs (traits). Les trajectoires références (pointillé) correspondant à la configuration « porte large ».

Nous observons que quelle que soit la demi-période optique où l'électron est émis, la trajectoire électronique tend à s'éloigner de la position de l'ion parent ($r=0$) lorsque le délai initialement de $\delta\tau=10$ fs passe à $\delta\tau'=15,32$ fs. De plus, pour les trajectoires les plus sensibles à la porte ($\omega_0 t_i \in [-\pi, \pi]$) l'asymétrie est encore plus marquée avec le délai $\delta\tau'$. Ceci est consistant avec le fait que la porte soit plus courte que dans le cas $\delta\tau=10$ fs.

Dans le cas du chemin long et de la coupure, l'asymétrie n'est pas assez importante pour induire une unique recombinaison. Pour les trajectoires correspondant au chemin court, l'asymétrie éloigne les trajectoires autres que celle qui recombinait dans le cas $\delta\tau=10$ fs. On peut donc considérer que la configuration où une unique recombinaison semble possible est ici conservée.

Dans ces conditions, pour atteindre un régime proche de l'émission d'une unique impulsion attoseconde compatible avec l'utilisation de tout le spectre harmonique, il est nécessaire de sélectionner les trajectoires. Si on sélectionne, par exemple le chemin court et la coupure, alors quel que soit le délai ($\delta\tau$ et $\delta\tau'$), le chemin court conduirait à une unique recombinaison tandis que la coupure conduirait à deux recombinaisons possibles. On s'attend donc à obtenir un continuum spectral sur la zone du plateau consistant avec l'émission d'une unique impulsion attoseconde, et l'on s'attend à observer des modulations dans la zone de la coupure consistant avec l'émission de deux impulsions attosecondes.

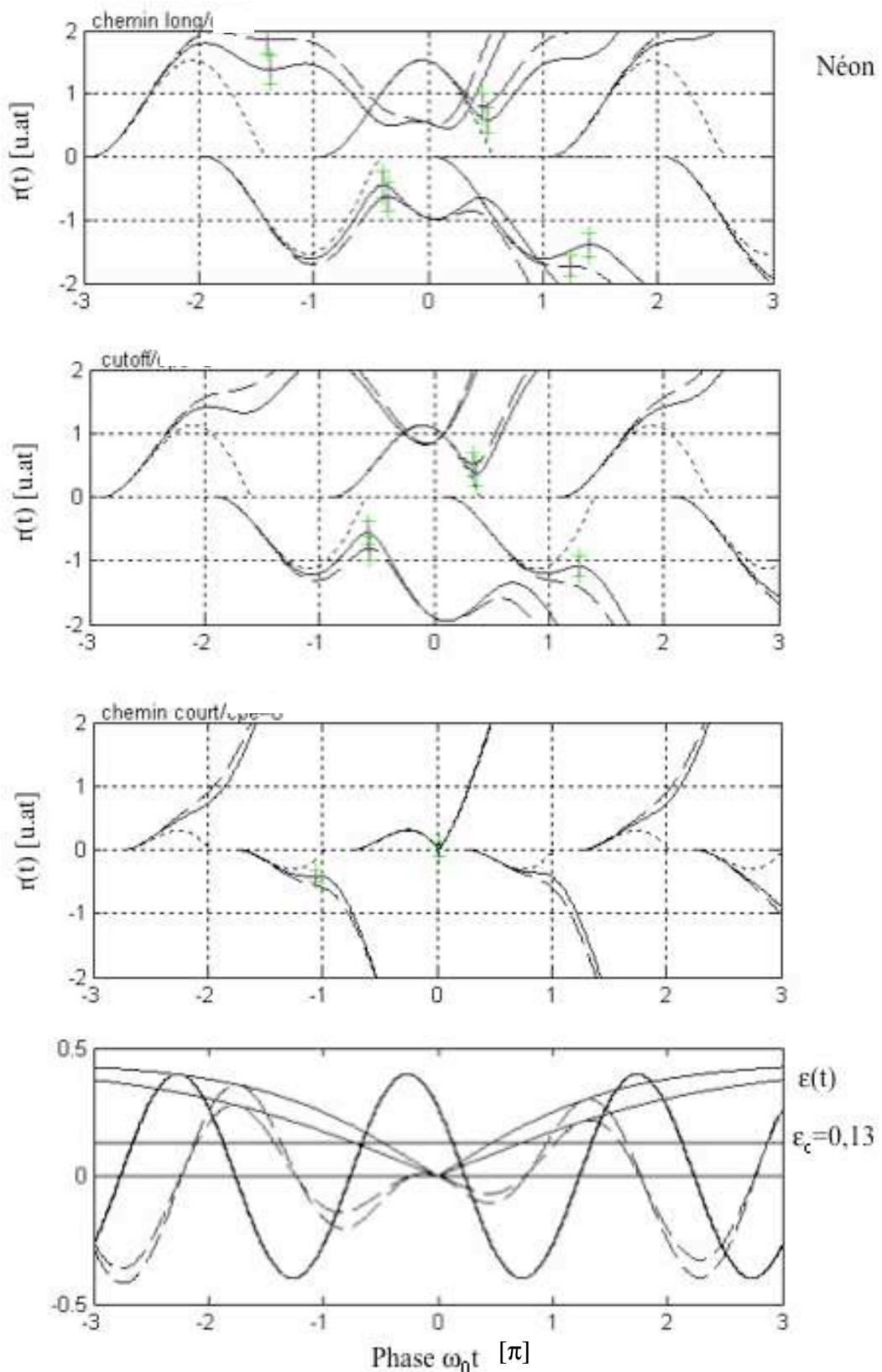


FIGURE 1.12: TRAJECTOIRES ÉLECTRONIQUES CALCULEES POUR LE CHEMIN LONG, LA COUPURE ET LE CHEMIN COURT, GENERÉES PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 fs ET UNE PORTE D'ELLIPTICITÉ DE DÉLAIS $\delta\tau=10$ fs (CONTINU) ET $\delta\tau'=15,32$ fs (TRAIT).

Nous avons vu que seules les trajectoires émises proche du centre de la porte permettent une recombinaison efficace. L'influence de la porte sur les trajectoires est asymétrique de part et d'autre du centre de la porte et plus la porte est courte plus cette asymétrie est importante. Pour induire une unique recombinaison dans la coupure, il faudrait accentuer cette asymétrie. Pour cela on peut créer une porte encore plus courte ($\delta\tau > 15,32$ fs) mais l'on induirait un profil temporel fortement creusé et le risque serait donc d'avoir un éclairement dans la porte insuffisant pour produire des harmoniques. Une autre solution consisterait à conserver la même porte (position en $\omega_0 t = 0$ et $\delta\tau$ ou $\delta\tau'$) et à décaler l'ensemble des trajectoires par rapport à celle-ci en changeant la phase absolue.

Ceci est possible en jouant sur la valeur de la phase absolue laser, il faut donc comprendre l'influence de cette phase sur les trajectoires. De plus, en supposant cette phase absolue nulle, nous réalisions jusqu'ici une hypothèse supplémentaire qui ne correspond pas à la réalité expérimentale.

iv) Influence de la phase absolue sur les trajectoires électroniques :

Nous avons fait une étude du comportement des trajectoires électroniques en fonction de la phase absolue laser sur trois demi-cycles optiques ($\omega_0 t \in [-2\pi ; \pi]$) correspondant aux trajectoires les plus sensibles à la porte d'ellipticité. Pour chaque demi-cycle optique et pour chaque catégorie de chemin (chemin long, coupure et chemin court), nous avons calculé les trajectoires en faisant varier la phase absolue laser sur $[-\pi/4 ; \pi/4]$ par pas de $\pi/16$. Cette étude a été réalisée en considérant des impulsions de 10 fs et pour les deux délais $\delta\tau = 10$ fs et $\delta\tau' = 15,32$ fs. Les figures (1.13, 1.14, 1.15) présentent les trajectoires calculées en fonction de φ_{cep} , correspondant respectivement au chemin long, à la coupure et au chemin court.

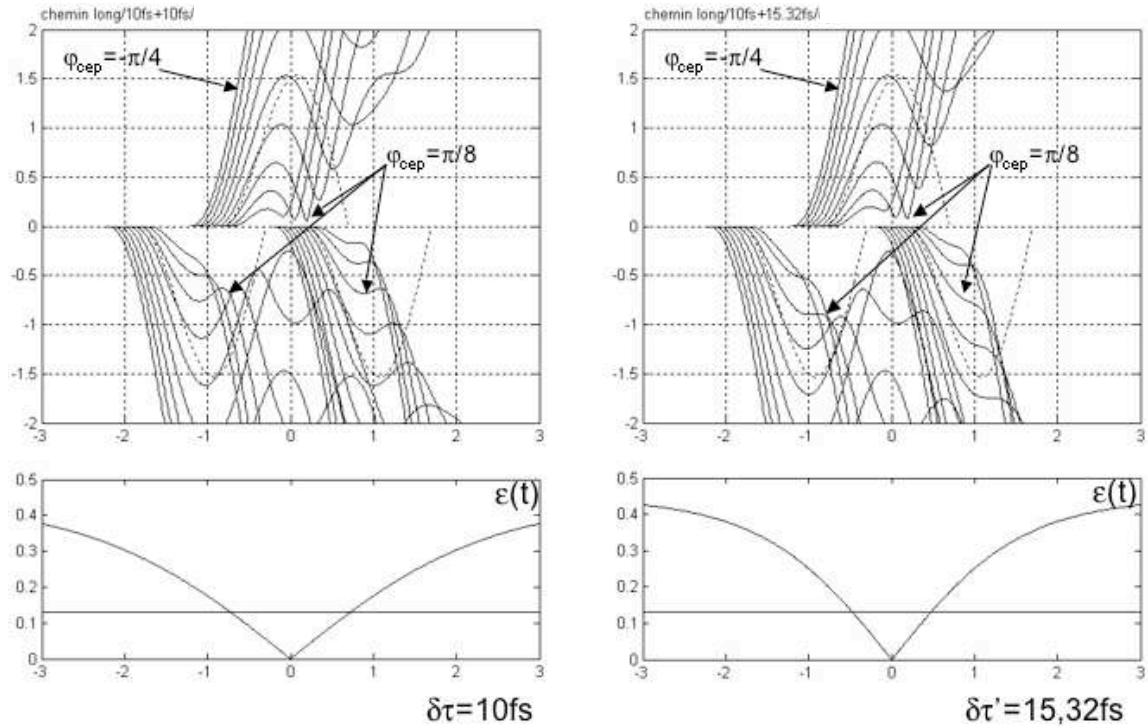


FIGURE 1.13: TRAJECTOIRES ÉLECTRONIQUES CORRESPONDANT AU CHEMIN LONG, EN FONCTION DE LA PHASE ABSOLUE LASER, INDUITES PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 fs ET UNE PORTE D'ELLIPTICITÉ POUR DES DÉLAIS $\delta\tau=10$ fs (GAUCHE) ET $\delta\tau'=15,32$ fs (DROITE).

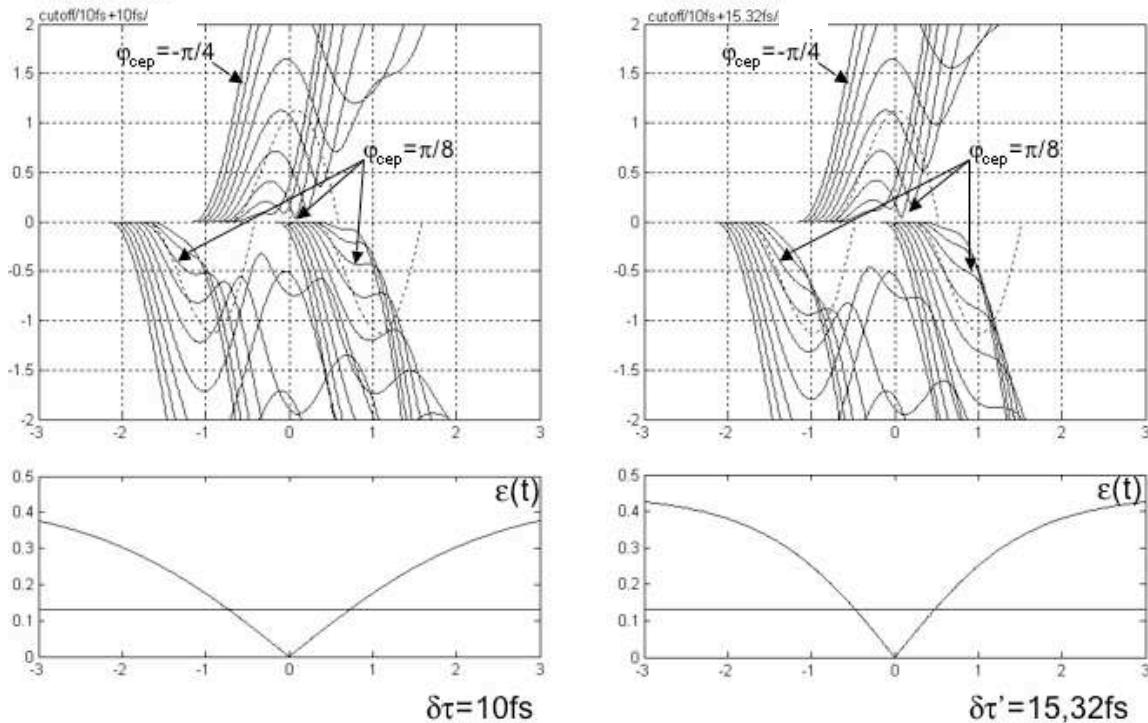


FIGURE 1.14 : TRAJECTOIRES ÉLECTRONIQUES CORRESPONDANT A LA COUPURE, EN FONCTION DE LA PHASE ABSOLUE LASER, INDUITES PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 fs ET UNE PORTE D'ELLIPTICITÉ POUR DES DÉLAIS $\delta\tau=10$ fs (GAUCHE) ET $\delta\tau'=15,32$ fs (DROITE).

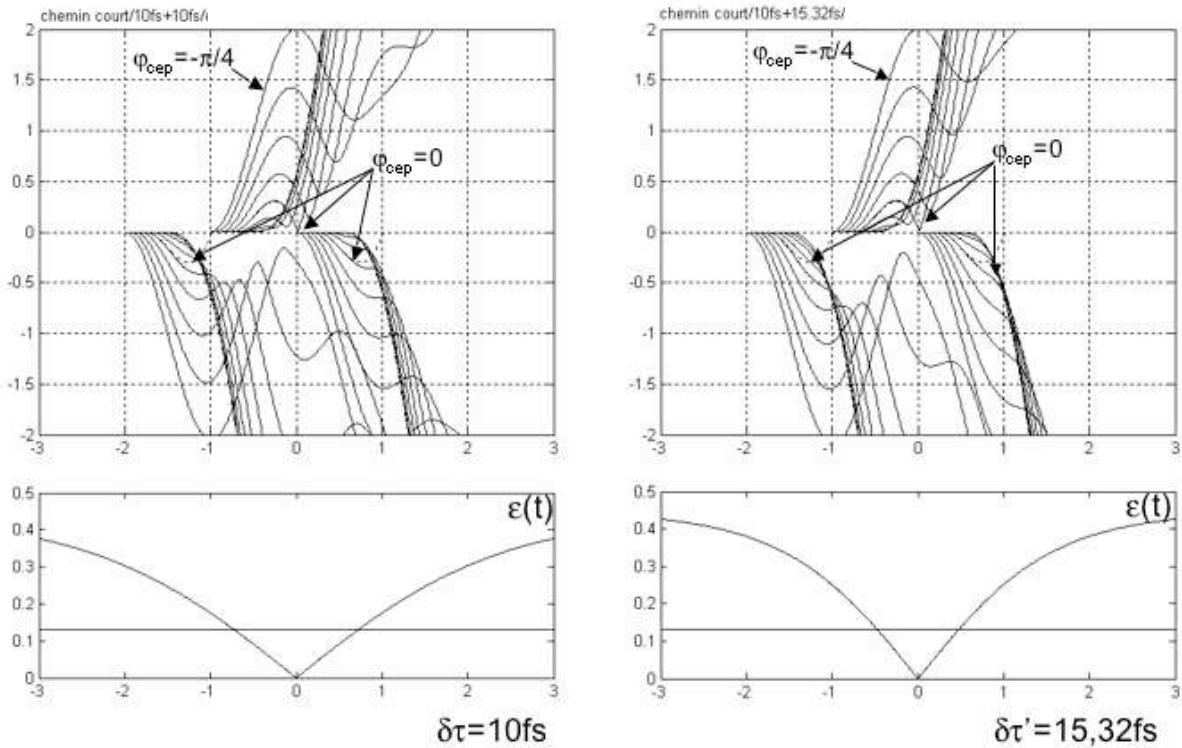


FIGURE 1.15 : TRAJECTOIRES ÉLECTRONIQUES CORRESPONDANT AU CHEMIN COURT, EN FONCTION DE LA PHASE ABSOLUE LASER, INDUITES PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 fs ET UNE PORTE D'ELLIPTICITÉ POUR DES DÉLAIS $\delta\tau=10$ fs (GAUCHE) ET $\delta\tau'=15,32$ fs (DROITE).

Quelle que soit la catégorie de chemin quantique, la trajectoire qui semble le plus se reprocher de la position de l'ion parent est celle présente dans le demi-cycle optique où $\omega_0 t \in [-\pi ; 0]$. Pour ces trajectoires, la distance de l'électron à l'ion parent est dépendante de la phase absolue et si elles admettent un minimum, il n'est pas localisé à la même phase $\omega_0 t$ qu'en polarisation linéaire. Ce qui signifie que l'efficacité de recombinaison ainsi que la durée des trajectoires sont dépendantes de la phase absolue φ_{cep} . Comme dans nos calculs nous avons choisi de faire varier la phase absolue par pas de $\pi/16$, il semble qu'une variation de la phase absolue sur 0,1 rad (ie jitter expérimental) reste importante pour l'efficacité de recombinaison et la durée de la trajectoire.

Dans le cas du chemin long et de la coupure, nous avions vu que si $\varphi_{cep}=0$, alors deux recombinaisons étaient possibles lorsque l'on utilisait une porte dont le délai était $\delta\tau=10$ fs ou $\delta\tau'=15,32$ fs. Sur la figure (1.13 et 1.14), quel que soit le délai et pour une même valeur de phase absolue égale à $\pi/8$, le chemin long et la coupure induisent une unique recombinaison.

À cette valeur de phase, le chemin court peut conduire à un retour vers l'ion parent. Mais son efficacité de recombinaison, n'est alors pas optimisée. La figure (1.15) montre en effet que le chemin court présente un minimum plus prononcé dans le cas d'une phase absolue nulle.

Dans ces conditions :

- si l'on bloque la phase absolue $\varphi_{cep} = 0$, on obtient un seul retour possible pour le chemin court et deux retours possibles pour la coupure et le chemin long. Cette configuration induit une ou deux impulsions attosecondes en fonction de délai ($\delta\tau$ ou $\delta\tau'$) employé.
- si l'on bloque la phase absolue $\varphi_{cep} = \pi/8$, on peut soit sélectionner le chemin long et la coupure, soit sélectionner le chemin court et la coupure. Dans les deux cas, on devrait pourvoir produire une unique impulsion attoseconde même avec un délai $\delta\tau=10$ fs.

Il n'existe donc pas de phase absolue qui permettrait de produire une impulsion unique attoseconde sans faire de sélection spectrale. Un compromis est nécessaire.

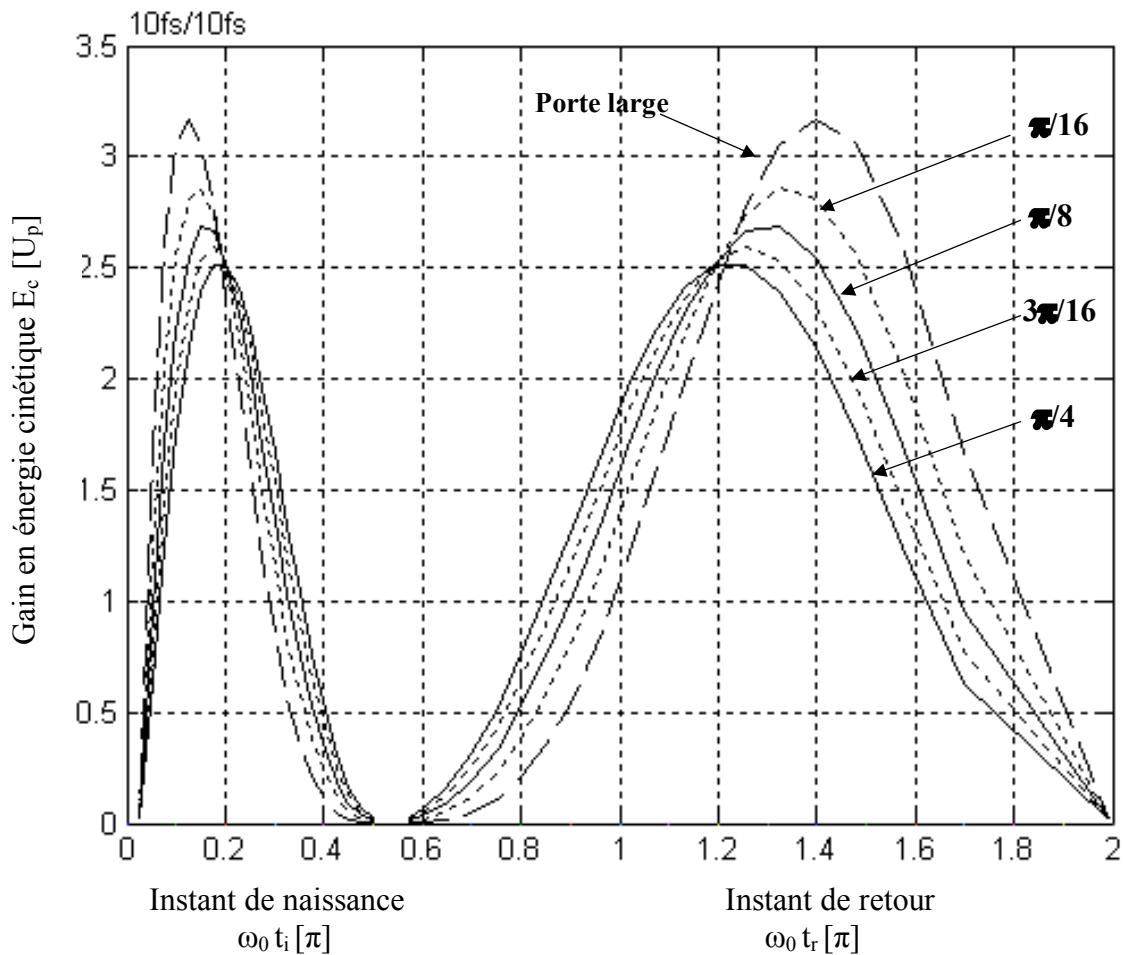
Pour rendre compte de l'effet de la phase absolue laser φ_{cep} sur l'ensemble des chemins quantiques, nous avons calculé le gain en énergie cinétique en fonction des temps de naissance $\omega_0 t_i \in [0,01\pi, 0,6\pi]$ et en fonction des temps de retour $\omega_0 t_r$ pour des phases absolues φ_{cep} permettant une recombinaison soit $\pi/16$; $\pi/8$ et $\pi/4$. Cette distribution du gain en énergie cinétique est représentée sur la figure (1.16). La distribution en énergie cinétique « référence » (trait) correspond à la configuration « porte large ». On retrouve le fait qu'en fonction de la valeur de φ_{cep} , la coupure a lieu à des phases de retour différentes (la durée de la trajectoire dépend de φ_{cep}). Mais on observe également que l'énergie cinétique de coupure n'est plus égale à $3,17 U_p$ et qu'elle varie en fonction de φ_{cep} . En modifiant φ_{cep} de 0.1 rad on devrait donc observer une modification de la position de la coupure sur le spectre harmonique.

Lorsque la phase absolue évolue de $\frac{\pi}{16}$, la position du cut-off dans l'espace des phases de

retour évolue en moyenne de $\frac{1}{50}$ de période optique soit $\sim 53,2$ as. Ce qui pour un « jitter » de

0.1 rad (limite actuelle des dispositif de stabilisation de la phase absolue laser) correspond à un jitter temporel de $\sim 26,6$ as.

Ceci implique que si l'on produit une unique impulsion attoseconde en prenant soin d'utiliser des impulsions laser de 10 fs et un délai $\delta\tau \sim 15,32$ fs, de sélectionner uniquement le chemin court ou le chemin long et la coupure, et de stabiliser la phase absolue (jitter de 0,1 rad), la durée de l'impulsion que l'on pourra produire sera limitée à $\sim 26,6$ as. Si on accumule le signal sur plusieurs tirs alors la résolution temporelle accessible sera limitée à $\sim 26,6$ as.



FIGURE(1.16) : GAIN EN ENERGIE CINÉTIQUE (EN UNITÉ U_p) DE L'ELECTRON EN FONCTION DE LA PHASE ABSOLUE LASER .L'IMPULSION LASER A UNE DURÉE DE 10 fs ET LA PORTE D'ELLIPTICITÉ EST CRÉÉE POUR UN DÉLAI $\delta\tau=10$ fs.

1.5 Conclusion

Nous avons vu qu'il est possible de créer, à l'aide de deux lames quart d'onde, une impulsion qui voit son ellipticité évoluer au cours de sa durée. Cette modulation temporelle de l'ellipticité permettrait de confiner la génération d'harmoniques d'ordre élevé à une durée inférieure au cycle optique IR. Nous nous basons sur ce système de lames pour simuler une création de porte temporelle dans le profil d'une impulsion brève ($\sim 10\text{fs}$) pendant laquelle l'émission VUV harmonique est permise. Lorsque la durée de la porte devient de l'ordre d'un demi-cycle optique, il devient difficile de définir l'état de polarisation du champ laser dans la porte. Pour comprendre comment cette porte d'ellipticité peut agir sur la génération d'harmoniques et donc sur notre train d'impulsions attosecondes, nous avons étudié théoriquement et dans le cadre classique le comportement des trajectoires électroniques. Cette étude a été menée pour trois catégories de chemins quantiques (chemin long, coupure et chemin court).

Ces calculs mettent en évidence l'importance de deux paramètres : La durée de la porte et la valeur de la phase absolue du champ laser. Seules les trajectoires au voisinage du centre de la porte, peuvent donner lieu à une recombinaison efficace. Nous montrons que cette influence est asymétrique de part et d'autre du centre de la porte et plus la porte est étroite, plus cette asymétrie est importante. Nous montrons également que l'efficacité de recombinaison et la durée des trajectoires dépendent de la phase absolue du champ laser.

Le calcul de la dispersion de l'énergie cinétique acquise par l'électron en fonction des instants de naissance et de retour de l'électron, montre un déplacement de l'énergie de la coupure qui devrait être visible dans le spectre harmonique en fonction de la valeur de la phase absolue.

Dans le cas d'une phase absolue nulle, pour une impulsion de 10 fs et une porte de 1,87 fs ($\tau_G > 1,33 \text{ fs}$) et 1,22 fs ($\tau_G < 1,33 \text{ fs}$), nous montrons que le chemin long et la coupure conduisent à deux recombinaisons de l'électron à l'ion parent, tandis que le chemin court conduit à une unique recombinaison.

En contrôlant la phase absolue, nous montrons qu'après sélection de la coupure et du chemin court ou long, il serait possible de générer une unique impulsion attoseconde même avec une porte de 1,87 fs. Sous certaines conditions de phase absolue, la technique de porte d'ellipticité conduisant à une impulsion attoseconde unique est compatible avec l'ensemble du spectre harmonique. Nous montrons également qu'une variation de cette phase absolue de 0.1 rad (analogue au « jitter » de stabilisation expérimental de cette phase) induit un jitter sur les temps d'émission harmoniques de ~26,6 as.

- [1] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri, and O. Svelto. *Opt. Lett.* **28** 1987-1989 (2003)
“Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum”
- [2] A. V. Sokolov, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin, and S. E. Harris. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 562-565
“Raman Generation by Phased and Antiphased Molecular States”
- [3] K.J. Schafer and C. Kulander. *Phys. Rev. Lett.* **78**(1997), 638.
“High harmonic generation from ultrafast pump lasers.”
- [4] I. P. Christov, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn. *Phys. Rev. Lett.* **78** (1997), 1251.
“High-harmonic generation of attosecond pulses in the single-cycle regim.”
- [5] C. Kan, N. H. Burnett, C. E. Capjack and R. Rankin. *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997), 2971.
“Coherent xuv generation from gases ionization by several cycle optical pulses.”
- [6] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, Bammer, F. A. Scrinzi, TH. Westerwalbesloh, U. Keleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz. *Nature* **427** (2004), 817.
“Atomic transient recorder”.
- [7] P. B. Corkum, N. H. Bett and M. Y. Ivanov. *Opt. Lett* **19**, 1870 (1993)
“Subfemtosecond pulses.”
- [8] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge and E. Constant. *PRA* **68**, 043804 (2003)
“Time-gated high-order harmonic generation.”
- [9] J. D. Jackson, *ed DUNOD*.
“Electromagnétisme classique”.

- [10] K. S. Budil, P. Salières, A. L'Huillier, T. Ditmire and N. D. Perry. *Phys. Rev. A.* **48** (1993), n°5, 3437.
“Influence of ellipticity on harmonic generation”
- [11] E. Constant. *PhD thesis, Faculté des Sciences à l'Université de Sherbrooke, Québec, Canada* (1997).
“Champs laser intenses ultracourts : Application à la mesure et création d’impulsions attosecondes et à l’imagerie de paquets d’ondes moléculaires par explosion coulombienne.”
- [12] C. Altucci, C. Delfin, L. Roos, M. B. Gaarde, A. L’huillier, I. Mercer, T. Starczewski and C. G. Wahlström. *Phys. rev. A* 58, 3934 (1998).
“Frequency-resolved time-gated high-order harmonics.”
N. A. Papadogiannis, G. Nersisyan, E. Goulielmakis, M. Decros, M. Tatarakis, E. Hertz, L. A. A. Nikolopoulos and D. Charalambidis. *Proceeding SPIE* (2003).
- [13] M. Kovacěv, Y. Mairesse, E. Priori, H. Merdji, O. Tcherbakoff, P. Montchicourt, P. Breger, E. Mével, E. Constant, P. Salières, B. Carré et P. Agostini. *The Européan Physical journal D* **26**, 79, (2003).
“Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating.”
- [14] V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mével and E. Constant. *Appl. Phys. B* **78**, 879-884 (2004).
“Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental”
- [15] Bethe and Salpeter . Springer-Velag, Berlin 1957
“Quantum mechanics of one and two electron atoms”

Chapitre 2 : Études expérimentales du confinement temporel VUV par porte d'ellipticité.

État de l'art

L'influence de la porte d'ellipticité sur la durée de l'émission VUV a fait l'objet au préalable de la thèse d'Olivier Tcherbakoff [1]. Lors de cette thèse, Olivier Tcherbakoff a développé et implémenté la technique de porte d'ellipticité utilisant des lames biréfringentes. Lors d'une campagne d'expériences utilisant des impulsions laser usuelles (35 fs) et visant à démontrer la faisabilité de la porte d'ellipticité en tant que technique de confinement temporel harmonique, O. Tcherbakoff *et al* [1] ont observé une modification claire du spectre harmonique avec la durée de la porte. Pour des harmoniques produits dans l'argon à basse pression et faible intensité, ils ont mis en évidence une augmentation de la largeur spectrale des harmoniques de la coupure et un rétrécissement de celle des harmoniques du plateau, lorsque l'on passe de la configuration « porte large » à « porte étroite ».

Le comportement spectral des harmoniques de la coupure est consistant avec un confinement temporel de l'émission VUV harmonique. Mais pour les harmoniques du plateau, l'interprétation du rétrécissement spectral repose sur la compétition entre le confinement temporel qui tend à élargir les harmoniques et l'effet des phases atomiques dipolaires différentes selon le chemin quantique court ou long, qui peut tendre à limiter l'élargissement spectral harmonique. Dans les conditions expérimentales de pression et d'éclairement laser utilisées, le chemin quantique long est prépondérant [2]. Ce chemin conduit à une forte contribution de la phase intrinsèque du dipôle atomique pouvant masquer l'effet du confinement temporel et induire un rétrécissement spectral de la largeur de ces harmoniques. Une seconde expérience en collaboration avec le groupe harmonique du SPAM (Service des Photons, Atomes et Molécules) au CEA-Saclay, utilisant un interféromètre de Michelson et des lames quart d'onde d'ordre zéro, a confirmé la signature spectrale du confinement harmonique pour des conditions expérimentales différentes [3]. Un élargissement spectral de la largeur des harmoniques du plateau a été mis en évidence en sélectionnant le chemin quantique court et en choisissant des conditions expérimentales permettant de s'affranchir de l'élargissement des harmoniques dû au dipôle atomique.

Afin de corroborer ces études spectrales, nous avons voulu mettre en évidence une signature de ce confinement directement dans le domaine temporel [4,5]. Cette étude a permis d'établir une validation des observations faites dans le domaine spectral, validant ainsi la technique de porte d'ellipticité pour des impulsions IR (~ 30 fs). Cependant la résolution temporelle du système expérimental ne nous a pas permis d'établir une mesure de la durée de la porte d'ellipticité.

Dans ce chapitre, nous présentons, une étude expérimentale du confinement harmonique visant à étendre la technique à des impulsions laser sub-10fs. On souhaite relier les observations faites dans le domaine spectral à une mesure de la durée de la porte d'ellipticité directement dans le domaine temporel. Nous procérons donc à une première campagne d'expériences qui utilise des impulsions sub-10 fs issues de la post-compression pour générer les harmoniques et nous regardons l'effet de la durée de la porte sur le spectre harmonique. Les observations spectrales du confinement harmonique en utilisant des impulsions post-comprimées, nous dirigent vers une seconde étude, qui cible l'observation d'une signature du confinement temporel harmonique dans le domaine temporel.

2.1 Étude de l'influence de porte d'ellipticité dans le domaine spectral.

Nous avons réalisé au Lund Laser Center (LLC) en collaboration avec l'équipe de A. L'Huillier, une campagne d'expériences utilisant des impulsions de 9 fs pour mettre en évidence un effet du confinement temporel sur la largeur spectrale des harmoniques et pour caractériser son évolution en fonction de la durée de la porte.

2.1.1 Dispositif expérimental.

Pour ces expériences, nous avons directement utilisé les impulsions IR produites par le laser du LLC. Nous disposons d'impulsion de $\tau_0=35$ fs et d'une énergie (après compresseur) de 2 mJ à 1 kHz. Ces impulsions sont comprimées à 9 fs par post-compression dans une fibre creuse remplie d'argon et sont utilisées pour générer les harmoniques. On souhaite ici observer la signature spectrale du confinement de ces harmoniques à l'aide de notre porte d'ellipticité. Pour créer la porte d'ellipticité, nous avons utilisé deux lames de quartz biréfringent ($n_o=1,5384$ et $n_e=1,5473$ à 800 nm) respectivement d'ordre multiple et d'ordre zéro. La première lame caractérisée par son épaisseur $e_1=1,05\text{mm}$ et ces indices de groupe $n_{go}=1,5544$ et $n_{ge}=1,5639$, introduit donc un délai de $\delta\tau = 10,65$ fs. Ce délai induit un profil temporel relativement plat après traversée des deux lames qui nous permet de réduire l'effet de la phase atomique du dipôle. Comme nous l'avons vu dans la partie I, cette phase atomique s'écrit :

$$\phi_{di}^{at}(x, y, z, t) = -\alpha_i I(x, y, z, t) \quad (2.1)$$

avec $i=c$ pour la coupure et $i=\{1;2\}$ respectivement pour les chemins court et long conduisant aux harmoniques du plateau.

Et la fréquence instantanée associée est définie par :

$$\omega_{di}^{at}(x, y, z, t) = -\frac{\partial \phi_{di}^{at}}{\partial t} = \alpha_i \frac{\partial I(x, y, z, t)}{\partial t} \quad (2.2)$$

avec pour le chemin court $\alpha_1 \sim 1$ [10^{-14} cm 2 /W] ; pour le chemin long $\alpha_2 \sim 25$ [10^{-14} cm 2 /W] et pour la coupure $\alpha_c \sim 12$ [10^{-14} cm 2 /W].

L'effet de la phase intrinsèque du dipôle atomique est donc plus important pour le chemin long que pour le chemin court. En utilisant un profil plat on diminue l'effet dû à cette phase sur tous les chemins (long, court et coupure) et en sélectionnant le chemin quantique court pour le plateau, on devrait s'affranchir de cette contribution sur l'ensemble du spectre harmonique qui pourrait masquer l'effet du confinement temporel dû à la porte d'ellipticité.

Afin de s'affranchir également des effets d'ionisation du milieu générateur qui pourrait également induire un élargissement spectral harmonique et un décalage du spectre vers les courtes longueurs d'onde, nous travaillons avec des pressions de gaz basses de l'ordre de 20 mbar pour l'argon et des éclairements modérés.

En sortie de porte d'ellipticité, le faisceau est focalisé, par un miroir sphérique de focale $f=800$ mm, dans une cellule. Cette cellule est constituée d'un tube métallique, vertical, de 3 mm de diamètre interne, percée de deux orifices de 500 μm de diamètre interne. Ce tube est recouvert d'une couche de téflon qui va être perforé lors du passage du faisceau laser. Ce tube est placé après le foyer pour sélectionner le chemin court, et est alimenté en argon pour générer les harmoniques. En sortie de chambre d'harmonique, nous avons utilisé un spectromètre à temps de vol pour détecter les spectres harmoniques comme décrit en figure (2.1).

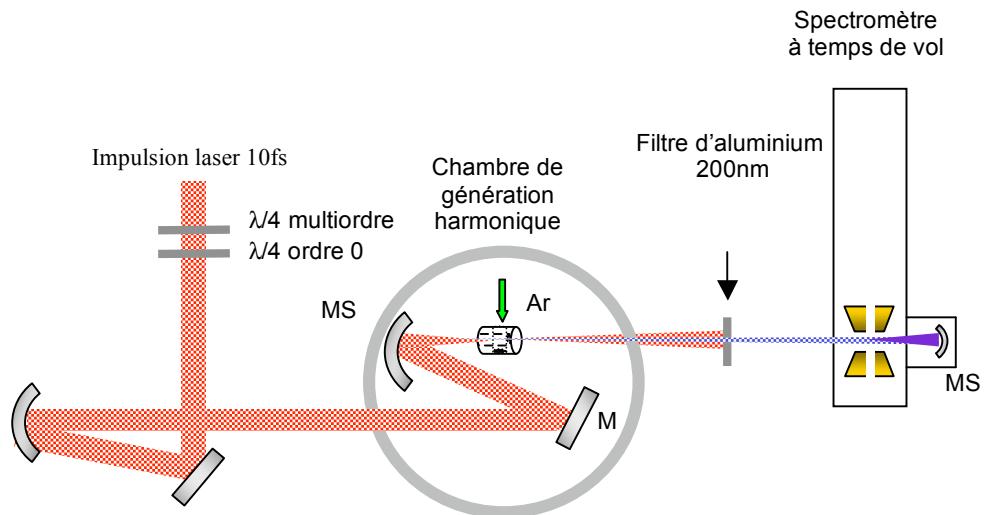


FIGURE 2.1 : DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL POUR L'ÉTUDE DE L'INFLUENCE SUR LE SPECTRE HARMONIQUE DE LA PORTE D'ELLIPTICITÉ.

Pour vérifier que les impulsions sont limitées par transformée de Fourier, nous avons utilisé un miroir sphérique pour focaliser le faisceau dans l'air. Une lame de silice équivalente au hublot d'entrée de la chambre de génération a été placée sur le trajet du faisceau. On règle le compresseur de façon à obtenir un plasma dans l'air le plus intense possible. Nous utilisons ensuite un autocorrélateur, équivalent à celui utilisé pour la post-compression, qui est disponible en entrée de chambre d'harmonique et qui permet de vérifier la durée de l'impulsion.

L'expérience consiste donc à fixer l'angle α à 45° de la polarisation laser initiale et à faire varier l'angle β pour étudier le comportement du spectre harmonique en fonction de la durée de la porte d'ellipticité.

2.1.2 Signature spectrale du confinement harmonique.

Nous avons étudié la réponse spectrale des harmoniques générés dans l'argon ($P \sim 20$ mbar) par une impulsion laser post-comprimée à 9 fs et d'une énergie de $300 \mu\text{J}$, en fonction des trois configurations de porte : « sans porte », « porte large » et « porte étroite ». Un spectre des harmoniques 13 à 23 est présenté en figure (2.2). La largeur des harmoniques générés en configuration porte large par des impulsions de 35 fs étaient typiquement de 300 meV, ici comme l'impulsion laser génératrice est ultra-brève (~ 10 fs), les harmoniques générés en configuration porte large sont plus larges que ce que nous avions pu observer [1], avec en moyenne une largeur de 0,7 eV.

Concernant l'amplitude des harmoniques, elle est en général maximale en configuration « sans porte » et décroît lorsque l'on passe à une configuration « porte large » puis « porte étroite ». Ceci est dû à l'éclairement crête IR qui décroît d'un facteur 2 lorsque l'on passe d'une configuration « sans porte » à une configuration « porte large ». Même si en configuration « porte étroite » l'éclairement crête diminue également d'un facteur 2, le confinement temporel par modulation d'ellipticité impose dans cette configuration une perte supplémentaire d'un facteur 2 sur l'amplitude harmonique.

Cependant, quel que soit l'ordre harmonique, on voit clairement un élargissement spectral lorsque l'on passe de la configuration porte large à porte étroite.

Afin de connaître la variation de cette largeur spectrale en fonction de la configuration de porte, nous avons relevé la largeur spectrale des harmoniques 15 et 17 en fonction de l'angle β c'est-à-dire en fonction de la durée de la porte (figure 2.3). Dans les conditions expérimentales, cette porte varie de $\tau_G^{\max} \sim 20$ fs en configuration porte large à $\tau_G^{\min} = 1,87$ fs en configuration porte étroite.

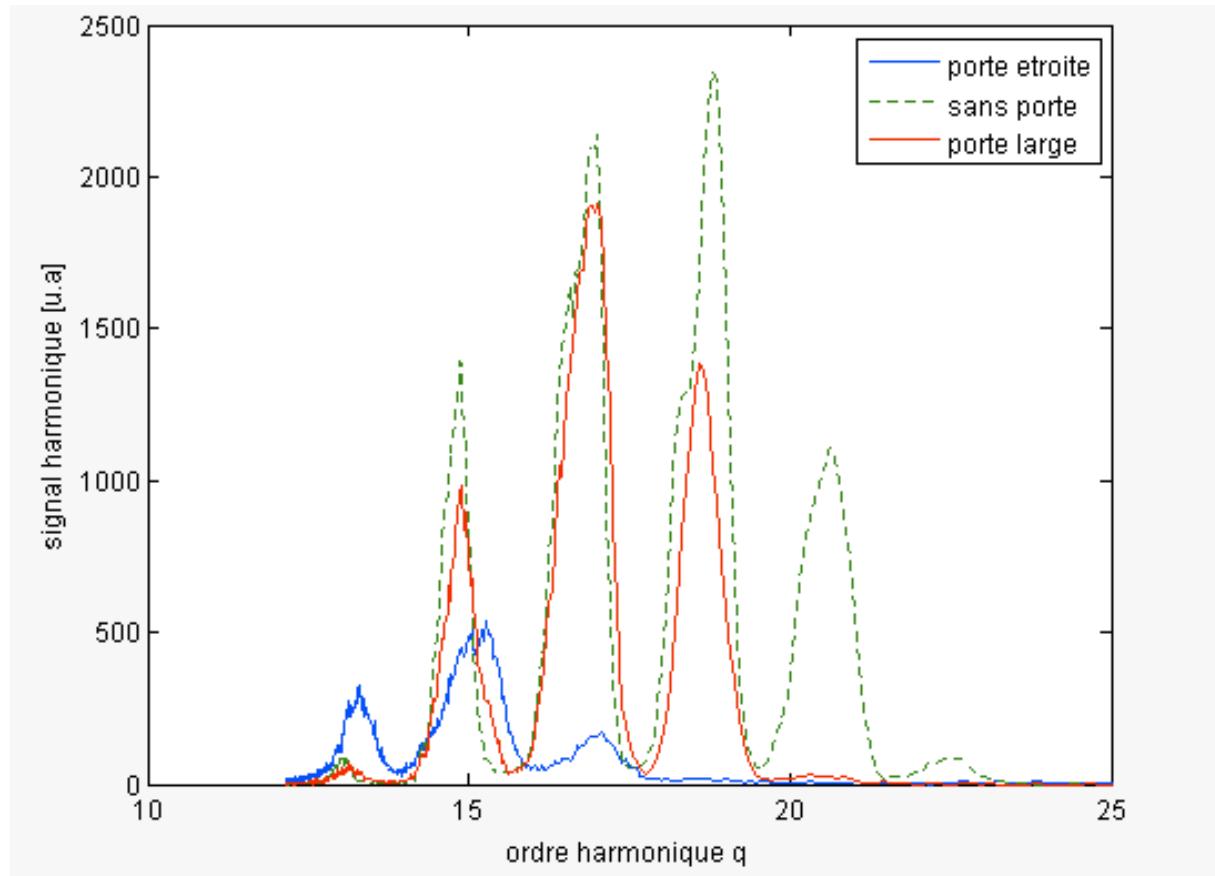


FIGURE 2.2 : SPECTRE HARMONIQUE GÉNÉRÉ DANS L'ARGON PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 fs ET UNE PORTE D'ELLIPTICITE ($\delta\tau=10$ fs) EN CONFIGURATION SANS PORTE, PORTE LARGE ET PORTE ÉTROITE.

Sur la gamme d'énergie du spectre détecté, la résolution de notre spectromètre à temps de vol est comprise entre 0,03 eV pour l'harmonique H13 et 0,07 eV pour l'harmonique H23.

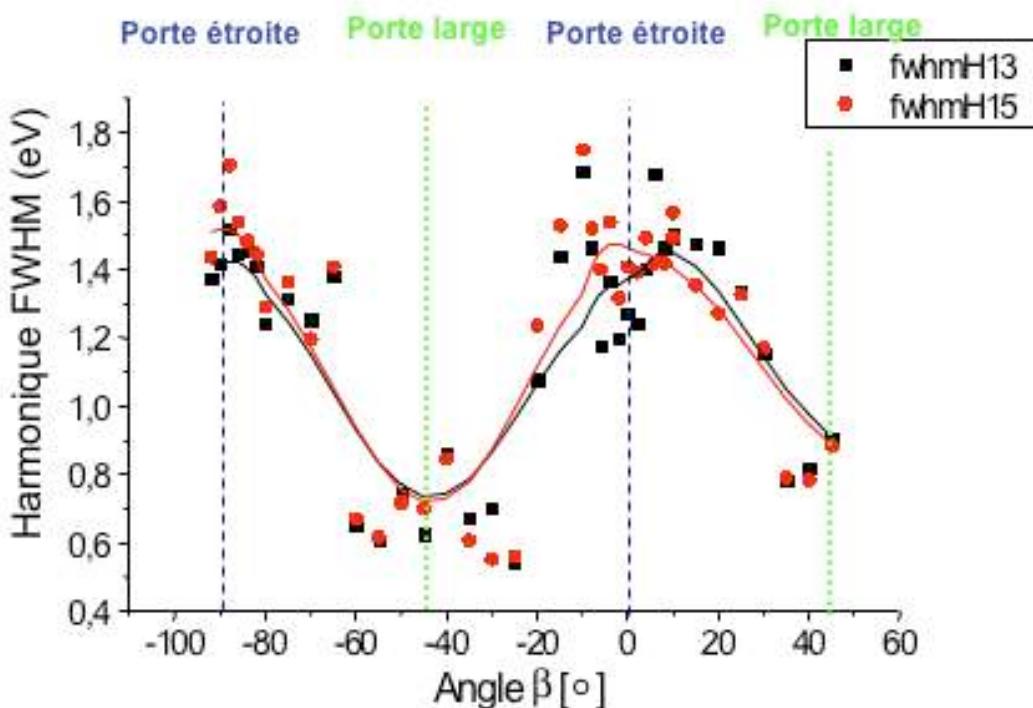


FIGURE 2.3 : ÉVOLUTION CONTINUE DE LA LARGEUR DES HARMONIQUES H15 ET H17 EN FONCTION DE β .

Il apparaît clairement qu'en contrôlant expérimentalement l'angle β , on contrôle la largeur spectrale des harmoniques avec une périodicité de 90° : En configuration porte large les harmoniques ont une largeur moyenne de 0,7eV, alors qu'en configuration porte étroite les harmoniques ont une largeur moyenne de 1,5 eV.

La porte d'ellipticité réduisant d'un facteur 2 l'éclairement maximum laser, on réduit de plus l'éventuel élargissement spectral des harmoniques, dû à l'ionisation du milieu génératrice. Lorsque l'on tourne la lame quart d'onde, on fait varier la durée de la porte d'ellipticité sans modifier ni le profil temporel ni l'éclairement maximal. On reste donc dans les conditions où les effets de l'ionisation sont réduits et influent peu sur le profil spectral. L'élargissement observé en porte étroite est donc vraiment dû au confinement temporel.

En utilisant des impulsions laser courtes (~ 10 fs), on retrouve bien une évolution spectrale harmonique compatible avec un confinement temporel dû à la porte d'ellipticité. La technique de porte d'ellipticité semble donc compatible avec l'utilisation d'impulsions post-comprimées sub-10 fs.

2.2 Étude de l'influence de la porte d'ellipticité dans le domaine temporel.

L'observation d'un élargissement spectral des harmoniques ne prouve pas qu'un confinement temporel de l'émission harmonique à lieu, cette observation constitue seulement une condition nécessaire. Pour compléter cette étude, nous avons utilisées des impulsions lasers génératrices de 35 fs et nous avons réalisé une étude de l'influence de porte d'ellipticité dans le domaine temporel par corrélation croisée à deux couleurs [6,7,8]. Cette technique, disponible au LLC, permet de mesurer la durée moyenne de deux harmoniques consécutifs.

2.2.1 Technique de corrélation croisée à deux couleurs.

La méthode consiste à mesurer un signal dépendant du recouvrement temporel entre le faisceau VUV harmonique et un faisceau laser IR. Ce recouvrement dépend du délai entre les deux impulsions et peut s'écrire :

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{VUV}(t) I_{IR}(t - \tau) dt \quad (2.3)$$

où $I_{VUV}(t)$ et $I_{IR}(t)$ désignent les profils temporels de l'impulsion VUV harmonique et IR et τ le délai entre les deux impulsions. Il est possible alors de déterminer la durée de l'émission VUV connaissant le signal $S(\tau)$ et le profil temporel IR de référence. La résolution temporelle est dans ce cas limitée par la précision avec laquelle on connaît l'impulsion de référence.

Pour mesurer le signal $S(\tau)$ on réalise le recouvrement spatio-temporel des deux impulsions dans un milieu non linéaire. Dans notre cas on réalise ce recouvrement dans un gaz qui va être ionisé par l'absorption simultanée de photons IR et VUV. Comme le montre la figure (2.4), deux cas de figure se présentent :

- S'il n'y a pas de recouvrement temporel IR-VUV, le spectre de photoélectrons présente des pics correspondant aux harmoniques.
- Si le recouvrement temporel VUV-IR a lieu, des structures apparaissent entre les harmoniques. Ces pics satellites appelés bandes latérales d'ordre $q+1$ en français (BL_{q+1}) ou « side band » en anglais (SB_{q+1}) ont une distribution temporelle $S_{BL}(\tau)$ directement corrélée à la distribution temporelle des impulsions IR et VUV (cf (2.3)). On suppose ici des éclairements faibles qui nous placent dans le régime perturbatif où un seul photon IR est absorbé ou émis et que ces transitions ne sont sensibles qu'aux propriétés des harmoniques les plus proches [9].

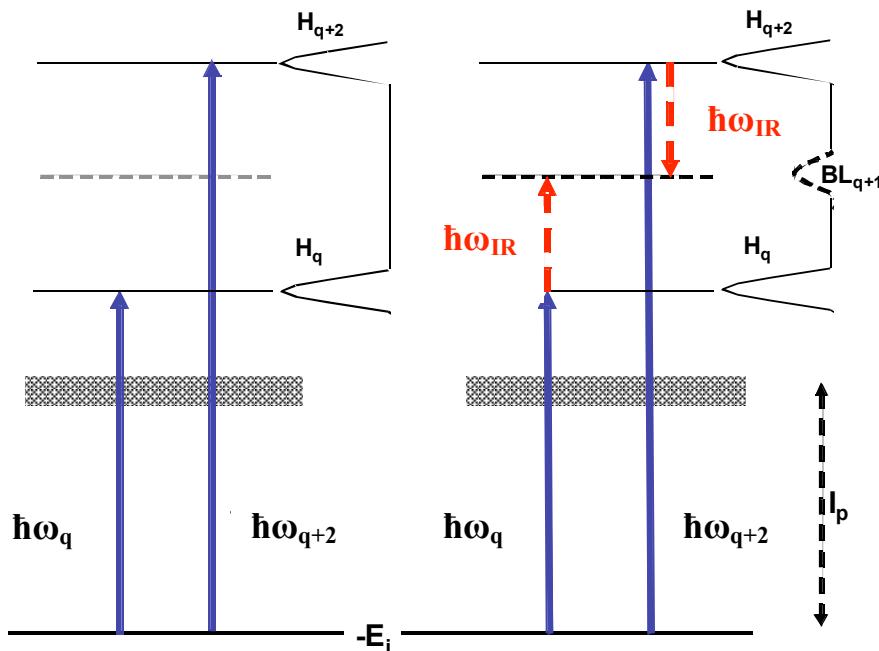


FIGURE 2.4 : IONISATION AU-DESSUS DU SEUIL PAR DES PHOTONS HARMONIQUES $\hbar\omega_q$ ET $\hbar\omega_{q+2}$ (A) ET HABILLAGE PAR ABSORPTION OU EMISSION D'UN PHOTON IR $\hbar\omega_{IR}$ (B) CONDUISANT À L'APPARITION D'UNE BANDE LATÉRALE INTER-HARMONIQUE BL_{q+1} .

En mesurant la durée de ces traces temporelles de corrélation croisée $BL_{q+1}(\tau)$ on peut remonter à la durée moyenne des harmoniques H_q et H_{q+2} par déconvolution. Dans le cas d'une déconvolution gaussienne et en supposant que les différentes contributions sont indépendantes, la durée moyenne de l'émission VUV est donnée par :

$$\tau_{VUV} = \sqrt{\tau_{BL}^2 - \tau_{IR}^2 - \tau_{geo}^2} \quad (2.4)$$

Où τ_{BL} , τ_{IR} et τ_{geo} désignent respectivement la durée (FWHM) de la trace de corrélation croisée, la durée (FWHM) des impulsions IR et une durée de correction due à la géométrie de recouvrement spatial VUV-IR.

La technique expérimentale consiste donc à mesurer ce spectre de photoélectrons en fonction du délai τ entre les deux impulsions et à analyser les traces de corrélation croisée.

2.2.2 Dispositif expérimental.

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser cette expérience de corrélation croisée VUV-IR est présenté en figure (2.5). Nous avons utilisé le laser titane saphir du Lund Laser Center qui délivre des impulsions IR de 35 fs à 815 nm et à un taux de répétition de 1 kHz. Ce laser nous permet de disposer d'une énergie totale de 2 mJ analogue à la ligne basse énergie de AURORE. On divise alors le faisceau en deux bras de même énergie (1 mJ) grâce à une lame séparatrice (LS) 50/50 pour construire les deux bras de notre interféromètre.

Un premier bras est dirigé vers une ligne à retard variable, qui permettra le contrôle du recouvrement temporel des impulsions, puis il traverse notre système de lames quart d'onde afin de moduler l'ellipticité de ces impulsions IR « longues » (35 fs).

Ces impulsions sont alors focalisées pour générer les harmoniques d'ordres élevés par un miroir sphérique (MS1) de focale 500 mm dans une cellule de 3 mm de long, alimentée d'argon ($P_{Ar} = 30$ mbar). Nous avons pris la précaution de compenser la dispersion due à l'épaisseur des différents matériaux par un pré-réglage du compresseur. De cette façon, les impulsions sont limitées par Fourier dans la zone d'interaction. Nous utilisons également un filtre d'aluminium de 200 nm d'épaisseur en sortie de chambre d'harmonique, qui nous permet de nous affranchir du signal IR résiduel et qui coupe dans le spectre harmonique les harmoniques d'ordre inférieur à 11.

Le second bras est envoyé dans un système de post-compression, analogue à celui développé au CELIA, constitué d'une fibre creuse remplie d'argon et d'une succession de miroirs à dérive de fréquence négative. En sortie de post-compression nous disposons d'impulsions IR de 12 fs (durée caractérisée par spider) et d'une énergie de 300 μ J.

Les faisceaux VUV et IR sont alors tous deux focalisés par le même miroir sphérique en or (MS) de focale 200 mm dans la zone sensible d'un spectromètre à temps de vol de type bouteille magnétique (pression de $1,1 \cdot 10^{-4}$ mbar d'argon).

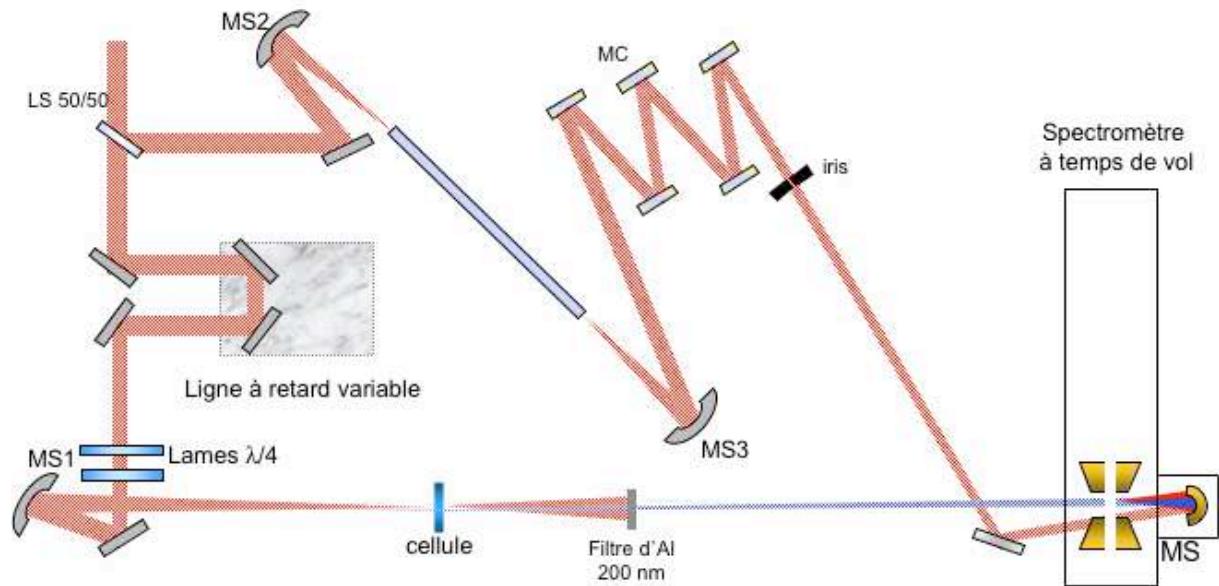


FIGURE 2.5 : DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE CORRELATION CROISÉE À DEUX COULEURS.

Pour vérifier que le recouvrement spatial des deux faisceaux a bien lieu on insère un miroir avant l'entrée du spectromètre à temps de vol. Ce miroir dirige les deux faisceaux vers une lentille de focalisation qui permet « d'imager » le recouvrement.

Dans le spectromètre à temps de vol, ce recouvrement se fait selon une géométrie non colinéaire qui induit un angle de l'ordre de $3,5^\circ$ entre le faisceau IR et VUV. La durée, liée à la différence de chemins optiques, due à la non colinéarité des faisceaux, est donnée par :

$$\tau_{geo} = \frac{L}{C} (1 - \cos \theta) \quad (2.5)$$

où $L=2$ mm désigne la longueur de la zone sensible du spectromètre. Ainsi on calcule un τ_{geo} de 12,4 fs dont il faut tenir compte dans nos calculs de durée moyenne harmonique.

2.2.3 Mesure du confinement temporel.

Nous avons mesuré les spectres de photoélectrons en fonction du délai τ entre les impulsions VUV et IR pour les trois configurations: « sans porte », « porte large » et « porte étroite ». On obtient alors une cartographie en énergie et en délai comme présenté en figure (2.6). Sur cette « carte » on distingue des lignes continues qui apparaissent quelle que soit la valeur du délai. Elles correspondent aux photoélectrons émis par ionisation par les photons harmoniques gaz contenu dans la zone sensible du spectromètre à temps de vol. Nous sommes donc en mesure de détecter de l'harmonique 13 à 23. Pour certaines valeurs du délai qui correspondent au recouvrement temporel des deux impulsions, on voit apparaître les bandes latérales BL_{14} à BL_{22} entre chaque harmonique.

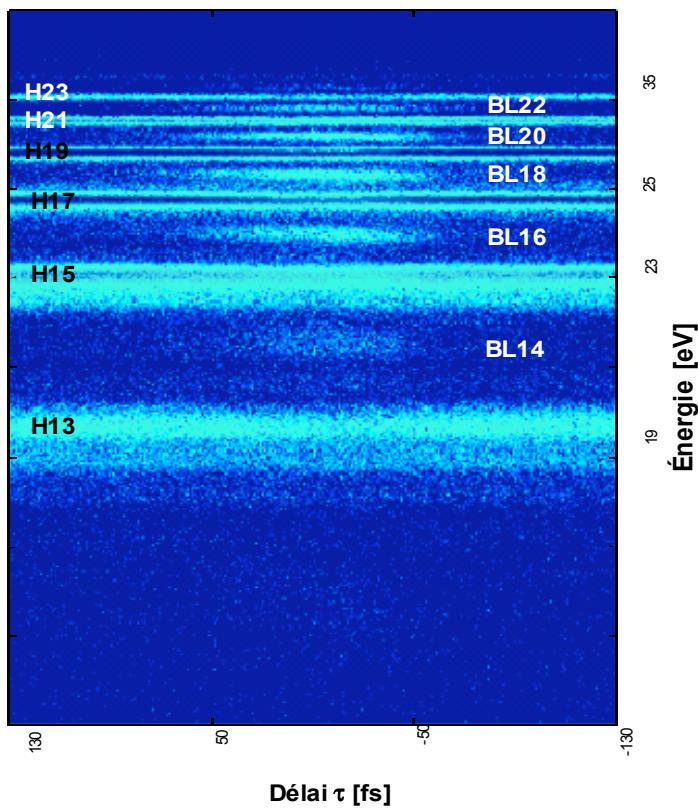


FIGURE 2.6 : SPECTRE DE PHOTOÉLECTRONS EN FONCTION DE LEUR ENERGIE ET DU DÉLAI ENTRE LES IMPULSIONS VUV ET IR. LES LIGNES CONTINUES INDÉPENDANTES DU DÉLAI CORRESPONDENT AUX HARMONIQUES 13 À 21 DE L'ARGON. LORSQUE LES IMPULSIONS SE RECOUVRENT TEMPORELLEMENT DES BANDES LATÉRALES (BL) APPARAISSENT ENTRE LES STRUCTURES HARMONIQUES.

Si on intègre ces bandes latérales par rapport à l'énergie, on obtient les traces de corrélation croisée dépendantes du délai τ pour une configuration de porte d'ellipticité donnée. La figure (2.7) présente la trace de corrélation croisée de BL_{20} en fonction de la configuration de porte [5]. La trace de corrélation croisée en configuration porte étroite est centrée sur la trace en configuration porte large, ce qui correspond bien à la présence de la porte d'ellipticité dont la position n'est pas modifiée lorsque l'on passe d'une porte étroite à large et vice-versa. En revanche en configuration sans porte, la trace de corrélation croisée est décalée de ~ 16 fs par rapport aux traces précédentes, ce qui correspond à la moitié du délai introduit par la porte d'ellipticité. De plus, on voit très clairement que plus la porte d'ellipticité est étroite, plus la trace de corrélation croisée est étroite. La durée (FWHM) de la trace est de 57 fs en configuration porte large, 43 fs en configuration sans porte et de 28 fs en configuration porte étroite. Ce qui, compte tenu de l'équation (2.4), permet de calculer une durée moyenne des harmoniques 19 et 21 respectivement de 54 fs en porte large, 39 fs en configuration sans porte et de 20 fs en configuration porte étroite. On gagne donc un facteur 2 de confinement temporel entre la configuration sans porte et porte étroite. L'estimation de la durée harmonique moyenne est d'autant plus sensible à l'estimation de τ_{res} et τ_{IR} , que la porte est étroite ; ce qui induit qu'il est fort probable que nous confinons la durée moyenne des harmoniques H19 et H21 en dessous de 20 fs mais que notre résolution temporelle limite ne nous permet pas de mesurer le confinement maximal.

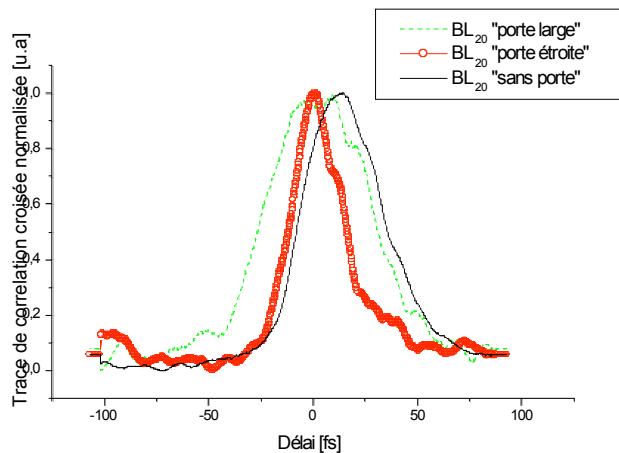


FIGURE 2.7 : TRACES DE CORRELATION CROISEE DE LA BANDE LATERALE BL20 SITUEE ENTRE LES HARMONIQUES H19 ET H21 EN CONFIGURATION « SANS PORTE » (CONTINU), « PORTE LARGE » (POINTILLÉ) ET « PORTE ÉTROITE » (CERCLE)

Sur la figure (2.8) est représentée la durée (FWHM) de toutes les traces de corrélations croisées détectées qui suivent toutes le même comportement que BL_{20} en fonction de la configuration de la porte. Nous sommes donc en mesure d'observer le confinement temporel des harmoniques à l'aide de notre système de porte d'ellipticité sur une gamme spectrale ~ 15 eV.

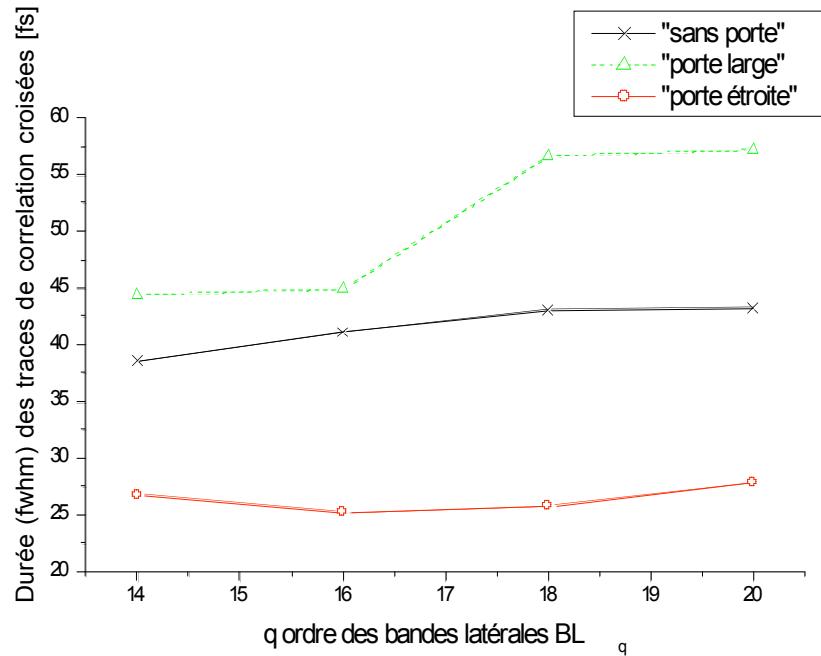


FIGURE 2.8 : DURÉE (FWHM) DES TRACES DE CORRELATIONS CROISÉES CORRESPONDANT AUX BANDES LATÉRALES BL_{14} À BL_{20} EN CONFIGURATION « SANS PORTE » (CONTINU-ÉTOILE), « PORTE LARGE » (POINTILLÉ -TRIANGLE) ET « PORTE ÉTROITE » (CONTINU-CERCLE).

Nous avons donc réussi à mettre en évidence, pour la première fois dans le domaine temporel, que la porte d'ellipticité permet de confiner l'émission harmonique. Cette étude montre dans les domaines spectral et temporel que la porte d'ellipticité constitue une méthode de confinement temporel VUV harmonique.

Nous avons pu montrer qu'il était possible de confiner d'un facteur 2 l'émission harmonique en passant de la configuration « sans porte » à « porte étroite ». Théoriquement, un tel système nous permettrait d'atteindre un confinement de 7 fs en porte étroite [10], compte tenu des données expérimentales, ce qui induit un facteur 5 de confinement. Ces résultats sont cependant encourageants dans la mesure où même si nous sommes limités par notre résolution expérimentale, ce confinement temporel s'applique à l'ensemble des harmoniques détectés.

Nous pourrions donc confiner le signal harmonique d'un facteur supérieur à 2 mais pour le détecter il faut améliorer notre résolution expérimentale. Cette résolution étant ici principalement limitée par la non colinéarité des faisceaux et la durée de la sonde IR. Une possible amélioration du système consistera à utiliser des faisceaux IR et VUV colinéaires et à réduire la durée de la sonde IR.

2.3 Mesure de la durée de la porte d'ellipticité.

2.3.1 Dispositif expérimental.

Nous avons voulu mesurer la durée de la porte τ_G en configuration « porte étroite » afin de la comparer à la valeur calculée. Pour cela le dispositif expérimental a été modifié afin de travailler en géométrie colinéaire. Comme le montre la figure (2.9), un miroir concave (MSC) percé laisse passer le faisceau harmonique mais réfléchit le faisceau IR post-comprimé. La concavité du miroir a été choisie pour faire coïncider la divergence du faisceau IR à celle du faisceau harmonique et ainsi assurer un bon recouvrement spatial des foyers dans la zone sensible du spectromètre à temps de vol. De plus, un miroir torique (MT) en incidence rasante a été installé. Il permet de focaliser les deux faisceaux dans la zone sensible du spectromètre à temps de vol et d'augmenter la reflectivité VUV par rapport au système précédent. Les impulsions IR incidentes ont une durée de 45 fs et le système de lames introduit un délai $\delta\tau = 30$ fs, la durée de la porte en configuration « porte étroite » est donc de 11,4 fs. Les impulsions sondes IR issues de la post-compression ont une durée de 9 fs et une énergie de 300 μJ .

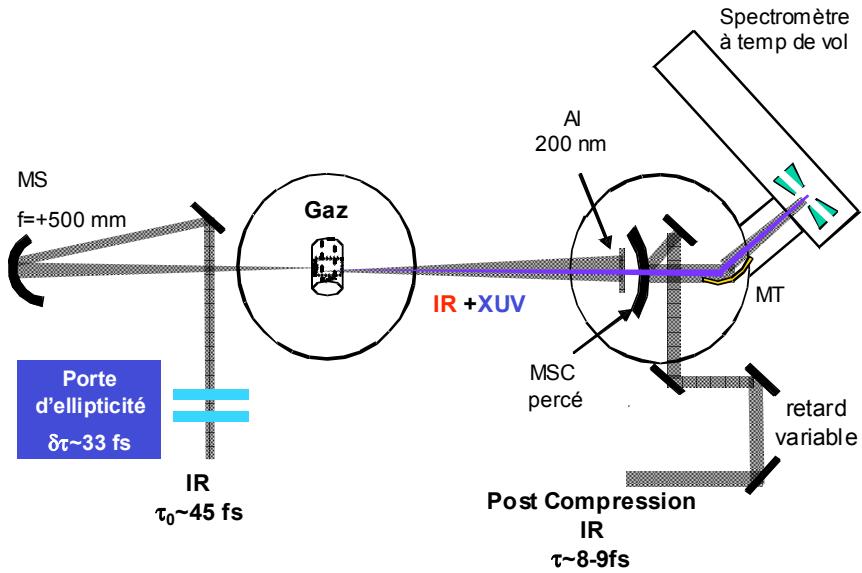


FIGURE 2.9 : DISPOSITIF DE CORRELATION CROISÉE À DEUX COULEURS EN GÉOMÉTRIE COLLINÉAIRE.

2.3.2 Mesure de τ_G en configuration porte étroite.

La figure (2.10) représente l'évolution du spectre de photoélectrons obtenu en fonction du délai τ pour une porte en configuration « étroite ». On retrouve en lignes continues indépendamment du délai, les harmoniques 13 à 25 de l'argon. Lorsque le recouvrement temporel est atteint, les bandes latérales BL_{16} à BL_{24} apparaissent. En figure (2.11) nous présentons les traces de corrélations croisées en configuration « sans porte » (cercle), « porte large » (carré) et « porte étroite » (triangle), de la bande latérale BL_{18} située entre les harmoniques 17 et 19 [11,12]. La trace correspondant à la configuration « sans porte » est décalée par rapport aux deux autres, car le zéro de référence du moteur introduisant un délai variable entre les deux bras de l'interféromètre n'a pas été conservé à la même position. À partir de la durée (FWHM) de ces traces, on en déduit une durée moyenne des harmoniques 17 et 19 de 18 fs avec la configuration « sans porte », 34 fs en « porte large » et de 11,5 fs en « porte étroite ». Dans ces conditions expérimentales, la théorie prévoit une durée de porte étroite de 11,4 fs. Ceci signifie qu'en améliorant notre résolution temporelle nous avons pu réaliser pour la première fois, une mesure directe de la durée de la porte en configuration porte étroite comparable à la prédition théorique.

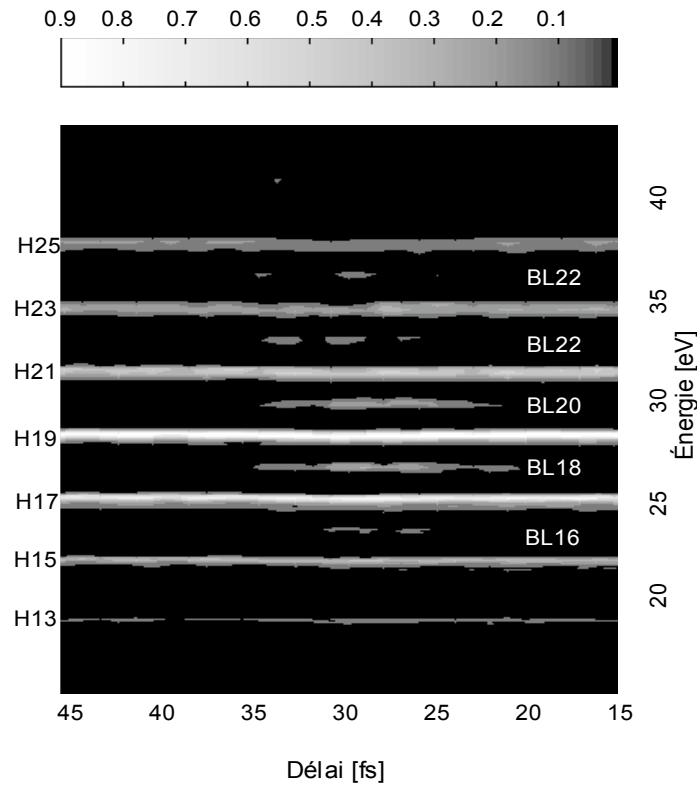


FIGURE 2.10 : SPECTRE DE PHOTOÉLECTRONS EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR.

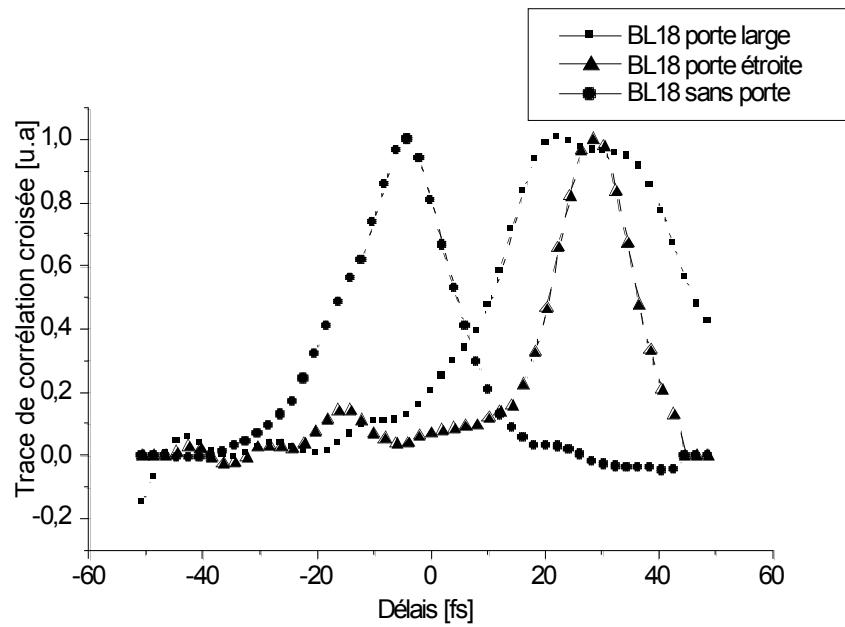


FIGURE 2.11 : TRACES DE CORRELATIONS CROISÉES CORRESPONDANT A LA BANDE LATÉRALE BL18 EN CONFIGURATION « SANS PORTE » (CERCLE), « PORTE LARGE » (CARRÉ) ET « PORTE ÉTROITE » (TRIANGLE).

2.4 Conclusion.

La porte d'ellipticité est une technique prometteuse pour confiner temporellement le signal harmonique. En se basant sur l'association de lames quart d'onde et en utilisant des impulsions laser (35-40 fs), nous avons observé une signature expérimentale de ce confinement dans les domaines spectral et temporel. Forts de ces travaux, nous avons étendu la technique à des impulsions laser sub-10 fs. L'étude du confinement, dans le domaine spectral, nous a permis d'observer un élargissement de la largeur des harmoniques qui constitue une condition nécessaire au confinement temporel. Pour compléter cette étude spectrale, nous avons réalisé une étude temporelle par corrélation croisée IR-VUV en géométrie colinéaire. Cette géométrie permet d'avoir une résolution temporelle suffisante pour mesurer la durée du confinement temporel harmonique. Cependant dans cette géométrie, les traces de corrélation croisée observées ne présentaient pas d'oscillations dues aux interférences IR-VUV permettant de caractériser la structure attoseconde de l'émission, ce qui signifie que la stabilité mécanique n'était pas suffisante pour voir ces oscillations. Les fluctuations mécaniques engendrées par la longueur des bras de l'interféromètre ($>2\text{m}$) peuvent être à l'origine de cette perte de stabilité. Il se peut aussi que la post-compression, faisant partie d'un des bras de l'interféromètre, provoque un jitter de phase entre l'impulsion sonde post-comprimée et l'impulsion VUV. Pour améliorer la stabilité interférométrique, on pourra créer l'impulsion sonde par post-compression à l'extérieur de l'interféromètre. Cette expérience a permis de faire, pour la première fois à notre connaissance, une mesure directe de la durée de la porte en configuration « porte étroite » en accord avec la valeur calculée pour des conditions analogues aux conditions expérimentales.

Cette technique nécessite une durée d'impulsion sonde suffisamment courte pour sonder le signal VUV même en « porte étroite ». C'est la raison pour laquelle une expérience analogue utilisant aussi des impulsions sub-10 fs pour la génération d'harmoniques, n'a pas été réalisée.

- [1] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge and E. Constant. *Phys. Rev. A.* **68**, 43804 (2003).
“Time-gated high-order harmonic generation”
- [2] M. B. Gaarde, F. Salin, E. Constant, Ph Balcou, K. J. Schafer, K. C. Kulunder and A. L’Huillier. *Phys. Rev. A.* **59** (1999), n°2, 1367
“Spatiotemporal separation of high harmonic radiation into two quantum path components”
- [3] M. Kovacěv, Y. Mairesse, E. Priori, H. Merdji, O. Tcherbakoff, P. Montchicourt, P. Breger, E. Mével, E. Constant, P. Salières, B. Carré et P. Agostini. *The Européan Physical journal D* **26**, 79, (2003).
“Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating”
- [4] R. López-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L’Huillier, O. Tcherbakoff, A. Zaïr, E. Mével and E. Constant. *Phys. Rev. A.* **69** (2004), 053811.
“Time-resolved ellipticity gating of high-order harmonic emission”
- [5] A. Zaïr, O. Tcherbakoff, E. Mével, E. Constant, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L’Huillier. *Appl. Phys. B.* **78**, 869 (2004).
“Time-resolved measurement of high order harmonics confined by polarization gating”
- [6] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, A. Bouhal, G. Grillon, A. Antonetti and A. Mysyrowicz. *J. Opt. Soc. Am. B.* **13** (1995), n°1, 197.
“Cross-Correlation measurements of femtosecond extreme ultraviolet high-order harmonics”

- [7] T. E. Glover, R. W. Schoenein, A. H. Chin and C. V. Shank. *Phys. Rev. Lett.* **76** (1996), n°14, 2468.
“Observation of laser assisted photoelectric effect and femtosecond high order harmonic radiation.”
- [8] A. Bouhal, R. Evans, G. grilon, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller and D. Von Der Linde. *J. Opt. Soc. Am. B* **14** (1997), n°4, 950.
“Cross-correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high-order harmonics”.
- [9] V. Véniard, R. Taïeb and A. Maquet. *Phys. Rev. A* **54** (1996), n°1, 721.
“Phase dependence of (N+1) IR-XUV photoionization of atoms with higher harmonics.”
- [10] V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mével and E. Constant. *Appl. Phys. B* **78**, 879 (2004).
“Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental.”
- [11] A. Zaïr, I. J. Sola, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, E. Cormier, K. Varjù, J. Mauritsson, D. Descamps, V. strelkov, A. L’Huillier, E. Mével and E. Constant. *J. Phys. IV France* **127**, 91 (2005).
“Contrôle de la génération d’harmoniques d’ordres élevés par modulation de l’ellipticité du fondamental”
- [12] I. J. Sola, A. Zaïr, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, K. Varjù, E. Cormier, J. Mauritsson, A. L’Huillier, V. strelkov, E. Mével and E. Constant. *Submitted to PRA* (2005).
«Temporal and spectral studies of high-order harmonics generated by polarization-modulated infrared fields»

Chapitre 3 : Vers une unique impulsion VUV attoseconde.

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la production d'une unique impulsion VUV attoseconde. Nous avons vu dans le chapitre II.1, qu'en utilisant des impulsions sub-10 fs et des lames introduisant un délai de 10 fs ou 15,32 fs, on pouvait approcher une configuration compatible avec l'émission d'une unique impulsion attoseconde, sous réserve de sélectionner un chemin quantique pour les harmoniques du plateau et sous certaines conditions de phase absolue. Pour valider cette possibilité, nous avons observé dans le domaine spectral, les caractéristiques de l'émission VUV, pour les mêmes conditions de durée d'impulsion et de délai.

3.1 Association des techniques de porte d'ellipticité et de post-compression.

Dans cette campagne d'expériences, nous avons directement fait varier temporellement l'ellipticité d'impulsions post-comprimées à 9 fs et nous souhaitons observer une signature spectrale du confinement temporel lorsque l'on passe de l'émission de deux impulsions attosecondes à une seule. Nous avons donc introduit, via notre paire de lames $\lambda/4$, un délai $\delta\tau$ de 15,32 fs, qui conduit à une porte étroite dont la durée est de 1,22 fs. D'après nos calculs, on se trouve dans la situation où une ou deux impulsions VUV attosecondes sont émises, selon la valeur de la phase absolue. Celle-ci n'étant pas stabilisée, les spectres mesurés résultent d'une moyenne sur toutes les phases absolues.

3.1.1 Dispositif expérimental.

La technique de post-compression au CELIA nous permet de disposer d'impulsions IR de 9-10 fs avec une énergie d'environ 210 μ J. Après traversée des lames, ces impulsions génèrent des harmoniques dans une cellule de 15 mm de long et de diamètre interne 400 μ m, remplie d'argon ($P_{Ar}=30$ mbar). Nous mesurons le spectre harmonique produit à l'aide de notre spectromètre XUV comme le montre la figure (3.1). Ce spectromètre présente l'avantage d'avoir une meilleure efficacité de détection par rapport au spectromètre à temps de vol et permet donc d'observer des spectres harmoniques d'amplitude très faible. De plus, pour des énergies comprises entre 20 et 35 eV (H13 à H23), la résolution de ce spectromètre étant comprise entre 0,02 eV et 0,06 eV, elle est meilleure que celle du spectromètre à temps de vol.

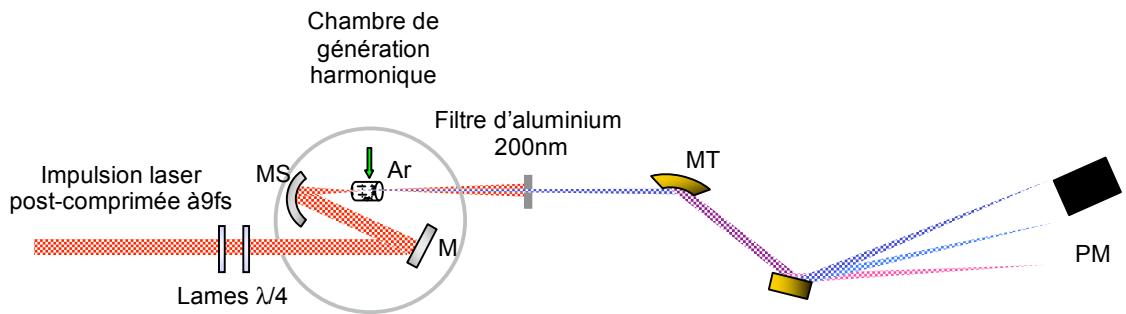


FIGURE 3.1: DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.

Le choix du mode de détection est ici crucial car en configuration « porte large » avec un délai de 15,32 fs, on perd 50% de l'éclairement laser. En configuration « porte étroite » seulement $\sim 15\%$ de l'éclairement maximal IR peut contribuer à la génération d'harmoniques (figure 3.2).

3.1.2 Expérience $\tau_0=9$ fs - $\delta\tau'=15,32$ fs.

Pour des impulsions laser de 9 fs et un délai de 15,32 fs, le profil ne peut plus être considéré comme quasi plat ce qui signifie que l'on risque d'être sensible aux effets de phase de dipôle atomique en porte large. Cependant, en configuration « porte étroite », la durée de la porte est inférieure à un demi-cycle optique et l'éclairement dans la porte peut être considéré comme constant (cf figure (3.2)).

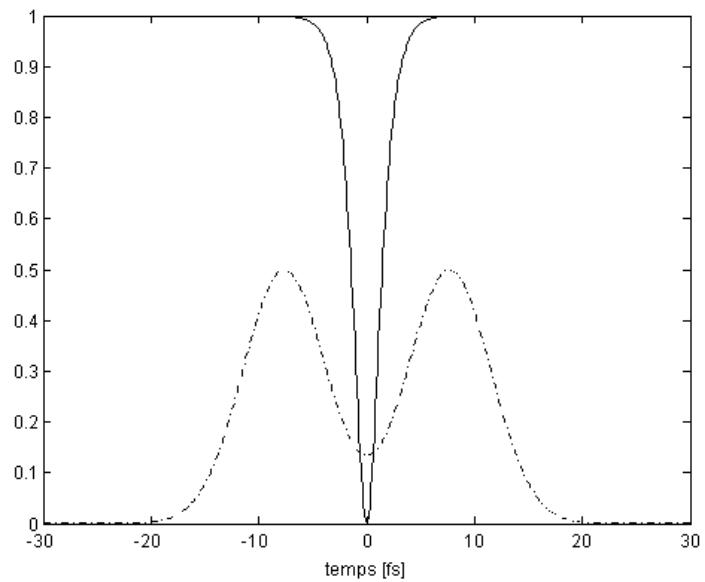


FIGURE 3.2 : PROFIL TEMPOREL (CONTINU) ET DEGRÉ D'ELLIPTICITÉ (POINTILLÉ) D'UNE IMPULSION IR DE 9 FS AYANT TRAVERSÉ LE SYSTÈME DE LAMES QUART D'ONDE INTRODUISANT UN DÉLAI $\delta\tau'=15,32$ FS.

Les spectres présentés en figure (3.3) correspondent aux harmoniques 21 à 35 en configuration « porte large » (en haut) et « porte étroite » (en bas). Ces spectres ont été normalisés en nombre de photons par rapport au spectre en configuration « sans porte ».

Les facteurs de normalisation étant de ~ 6 pour le spectre correspondant à la porte « large » et ~ 125 pour le spectre correspondant à la porte « étroite ».

L'absence d'harmoniques en dessous de l'ordre 21 est due à l'absorption de ces harmoniques basses dans la cellule de gaz (pour une pression d'argon de 30 mbar l'harmonique 19 est absorbée sur une longueur de 5,5 mm de gaz). De plus, lorsque l'on utilise la porte d'ellipticité, on supprime la contribution des fronts montant et descendant de l'impulsion IR, qui sont à l'origine de l'émission des harmoniques basses.

Lorsque l'on passe de la configuration « large » à « étroite », les harmoniques s'élargissent et forment un quasi-continuum spectral d'environ 10 eV. Ce résultat concorde avec les résultats obtenus par Z. Chang *et al* [1]. Il reste cependant quelques structures harmoniques visibles.

Nous avons également regardé l'influence de la durée de l'impulsion IR post comprimée sur l'obtention d'un quasi-continuum. Pour cela nous avons changé la durée de l'impulsion de 9 fs à 10,5 fs. Le spectre harmonique passe alors du quasi-continuum à un spectre harmonique bien défini. La transition entre quasi-continuum et spectre harmonique est brutale et pour une faible augmentation de la durée de l'impulsion IR, la génération de deux impulsions attosecondes devient l'événement le plus fréquent [2].

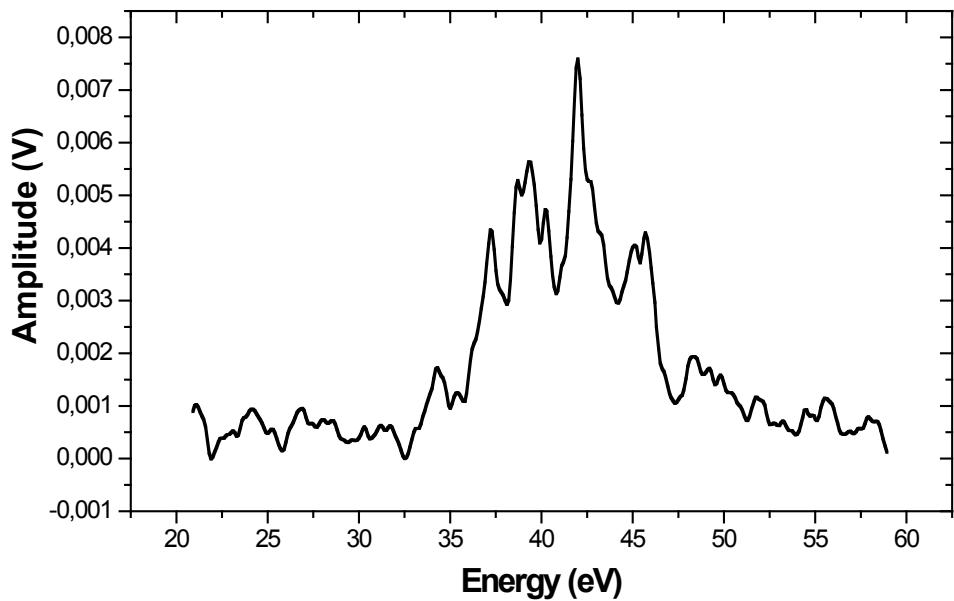
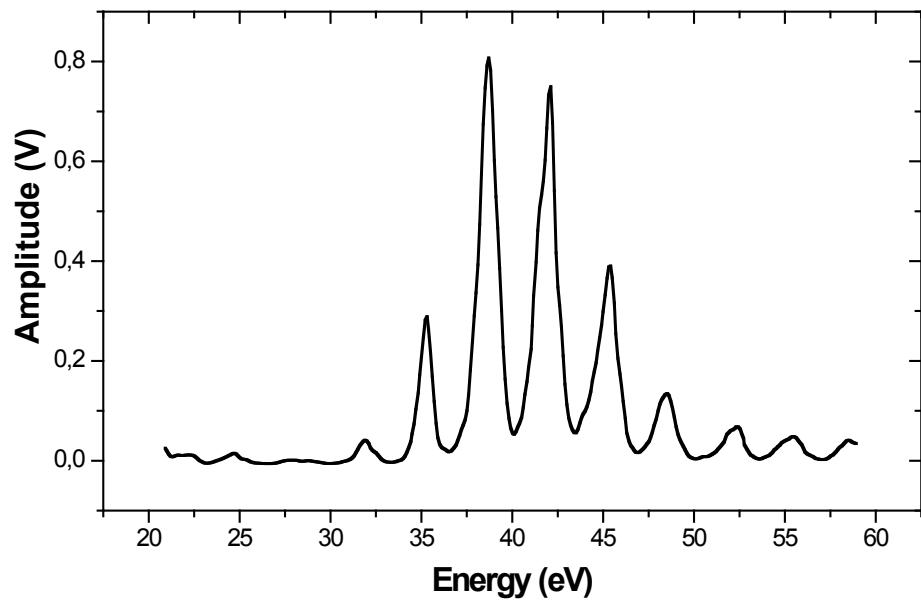


FIGURE 3.3 : (HAUT) SPECTRE HARMONIQUE EN CONFIGURATION « PORTE LARGE ».

(BAS) SPECTRE HARMONIQUE EN CONFIGURATION « PORTE ETROITE ».

Comme nous effectuons l'acquisition des spectres harmoniques sur environ 10000 tirs laser, on peut considérer que la phase absolue varie aléatoirement. Or nous avions vu dans nos calculs que même pour une variation de $\pi/16$ (de l'ordre du jitter des systèmes de stabilisation de la phase absolue usuelle) les trajectoires électroniques y sont sensiblement modifiées. On peut donc considérer que ce quasi-continuum résulte de la moyenne de tous les spectres allant du spectre discret, compatible avec l'émission de deux impulsions VUV dans le régime attoseconde, au spectre continu compatible avec l'émission d'une impulsion attoseconde isolée [2].

Afin de valider cette hypothèse, nous avons effectué une modélisation des spectres XUV et des trains d'impulsions attosecondes générés selon les conditions expérimentales ($\tau_0=9$ fs, $\delta\tau=15$ fs). Cette modélisation, effectuée par V. Strelkov selon [3], considère la réponse de l'atome unique. Elle prend en compte l'influence du champ Coulombien dû à l'ion parent sur le paquet d'onde électronique et l'évolution de ce dernier pour une polarisation laser quelconque. Ce modèle prend en compte les taux d'ionisation et la population de l'état fondamental à l'instant d'ionisation et à l'instant d'émission VUV. Sur plan macroscopique, ce modèle prend en compte les effets d'accord de phase et de réabsorption des harmoniques basses par le milieu générateur. Les calculs ont été réalisés pour une impulsion de durée initiale de 10 fs et pour une pression d'argon de 40 mbar. La figure (3.4) présente le spectre XUV calculé en configuration « sans porte », pour un éclairement de $1,6 \cdot 10^{15}$ W/cm². Ce spectre représente une moyenne des spectres calculés pour des phases absolues comprises entre 0 et $\pi/2$. Les harmoniques sont alors clairement visibles. La figure (3.5) présente le spectre XUV calculé en configuration « porte étroite » (délai de 15 fs) et pour un éclairement de $3,3 \cdot 10^{14}$ W/cm². Ce spectre représente également la moyenne des spectres calculés pour des phases absolues comprises entre 0 et $\pi/2$. On obtient alors un quasi-continuum spectral d'environ 10 eV qui présente des structures harmoniques comparables à celles observées expérimentalement. On retrouve donc par le calcul que la non-stabilité de la phase absolue dans nos expériences est à l'origine du quasi-continuum observé lors du confinement temporel. Pour estimer de quelle manière la phase absolue joue sur le train d'impulsion attosecondes, nous avons calculé ce train pour quatre valeurs de phases {0 ; $\pi/4$; $\pi/2$; $3\pi/4$ }, présenté en figure (3.6).

Le nombre d'impulsions attosecondes produites est alors différent. Pour $\varphi_{cep}=0$ et $\pi/4$, deux impulsions d'amplitudes comparables sont théoriquement générées, tandis que pour $\varphi_{cep}=\pi/2$ et $3\pi/4$, une impulsion principale entourée de deux impulsions satellites sont théoriquement générées. Ces satellites ont une amplitude négligeable devant l'amplitude de l'impulsion principale ($< 10\%$ de l'amplitude de l'impulsion principale), on considère donc que pour ces valeurs de phases une seule impulsion attoseconde est générée. La phase absolue du champ joue donc un rôle majeur dans le nombre de recombinaisons possibles pendant la durée de la porte. Il devient donc important pour l'obtention d'une impulsion attoseconde unique d'étudier l'influence de la phase absolue du champ sur la génération de continuum harmonique.

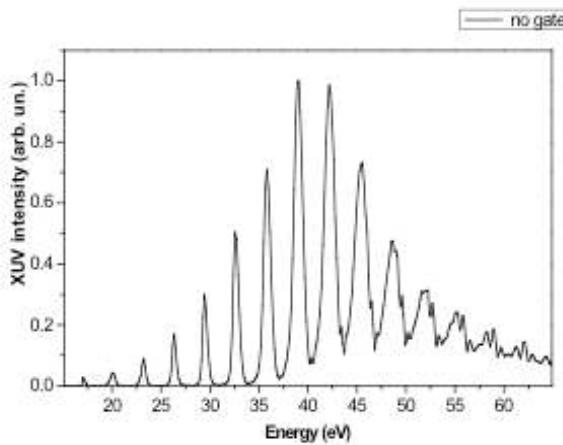


FIGURE 3.4 : SPECTRE VUV HARMONIQUE EN CONFIGURATION « SANS PORTE » POUR UNE IMPULSION GENERATRICE DE 10 FS, UNE PRESSION D'ARGON DE 40 MBAR ET UN ECLAIREMENT DE $1,6 \cdot 10^{15}$ W/CM².

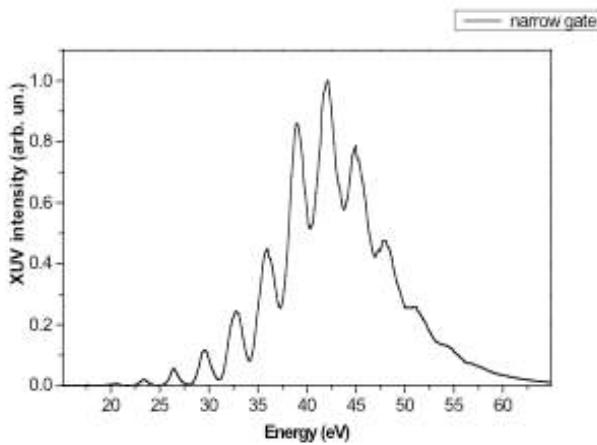


FIGURE 3.5 : SPECTRE VUV HARMONIQUE EN CONFIGURATION « PORTE ETROITE» POUR UNE IMPULSION GENERATRICE DE 10 FS, UNE PRESSION D'ARGON DE 40 MBAR ET UN ECLAIREMENT DE $3,3 \cdot 10^{14}$ W/CM².

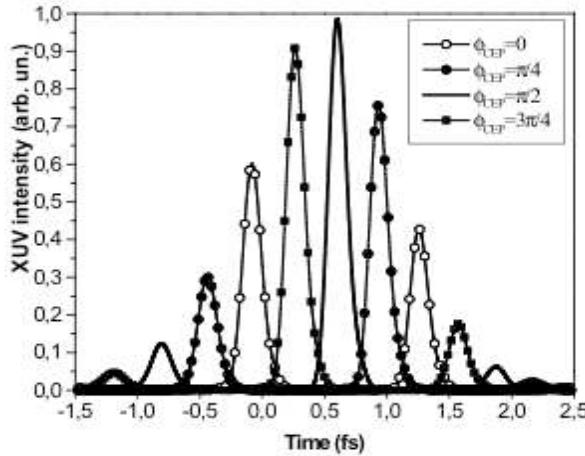


FIGURE 3.6 : TRAIN ATTOSECONDE CALCULÉ EN CONFIGURATION « PORTE ÉTROITE » RESPECTANT LES CONDITIONS EXPÉRIMENTALES POUR QUATRE VALEURS DE LA PHASE ABSOLUE DU CHAMP LASER. POUR $\varphi_{\text{CEP}} = 0$ (DISQUE BLANC) DEUX IMPULSIONS ATTOSECONDES SONT THÉORIQUEMENT ÉMIS, POUR UNE $\varphi_{\text{CEP}} = \pi/2$ (CONTINU), UNE IMPULSION ATTOSECONDE UNIQUE EST THÉORIQUEMENT PRODUITE.

De plus, les calculs de train attoseconde conformément aux conditions expérimentales, prévoient des durées d'impulsions attosecondes de 130-180 as en configuration « sans porte » et de 160-200 as en configuration « porte étroite » (selon la valeur de la phase absolue). Il semble donc que la porte d'ellipticité en induisant un confinement temporel de l'enveloppe VUV, n'induit pas une augmentation conséquente de la durée des impulsions attosecondes.

3.2 Conclusion.

Nous avons pour la première fois au CELIA et au LLC réussi à conjuguer deux techniques importantes dans notre domaine de recherche : la post-compression et la porte d'ellipticité. Cette combinaison nous a permis d'étudier l'évolution du spectre harmonique lorsque la durée de la porte est inférieure à un demi-cycle optique. Nous avons mis en évidence l'élargissement harmonique vers un quasi-continuum spectral. Les calculs reproduisant les spectres, montrent que dans le domaine temporel, l'émission s'effectue sous la forme d'une à deux impulsions VUV attosecondes. La production d'une impulsion attoseconde unique reste cependant très liée à la condition de phase absolue du champ laser.

Il apparaît donc nécessaire d'implémenter un dispositif de stabilisation de la phase absolue, afin de pouvoir produire des impulsions attosecondes isolées, de façon stable et reproductible.

- [1] Z. Chang, *Phys. Rev. A.* **71**, 023813 s2005d (2005)
- [2] I. J. Sola, A. Zaïr, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, K. Varjù, E. Cormier, J. Mauritsson, A. L'Huillier, V. Strelkov, E. Mével and E. Constant. *Submitted to PRA* (2005).
“Temporal and spectral studies of high-order harmonics generated by polarization-modulated infrared fields”
- [3] V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mèvel and E. Constant. *Appl. Phys. B.* **78**, 879 (2004).
“Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental”
- [4] A. Zaïr, I. J. Sola, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, E. Cormier, K. Varjù, J. Mauritsson, D. Descamps, V. Strelkov, A. L'Huillier, E. Mével and E. Constant. *J. Phys. IV France* **127**, 91 (2005).
“Contrôle de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par modulation de l'ellipticité du fondamental”
- [5] A. Baltuska, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch, F. Krausz. *Nature* **421**, 611 (2003)

PARTIE III: CARACTERISATION TEMPORELLE D'IMPULSIONS VUV ATTOSECONDES

Chapitre 1 : Technique de reconstruction du train d'impulsions VUV attosecondes.

1.1 Introduction.

L'ensemble du travail réalisé jusque là, montre que nous pouvons contrôler la durée du processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés avec la porte d'ellipticité. Nous pouvons alors estimer la durée de l'émission VUV. Dans le cas d'une porte étroite en dessous d'un demi-cycle optique, nous avons observé la signature spectrale correspondant à l'émission d'une ou deux impulsions VUV attosecondes. Mais nous ignorons toujours expérimentalement l'allure de ces impulsions et leurs durées. Nous avons donc orienté nos travaux vers une caractérisation temporelle du train d'impulsions attosecondes.

Cette caractérisation temporelle du train constitue en effet une étape cruciale pour l'utilisation de ces impulsions et l'avancement des sciences ultra-rapides. La plupart des techniques de caractérisation temporelle du train attoseconde sont des extensions dans le domaine VUV des techniques expérimentales utilisées dans le domaine IR à l'échelle femtoseconde. La première méthode consiste en un autocorrélateur VUV qui nécessite le filtrage de certaines harmoniques. Par transition à deux photons VUV, il est possible d'induire l'ionisation d'atome d'hélium. En analysant le nombre d'ions produits en fonction du délai entre les deux impulsions VUV, on en déduit leur durée. Cette technique a permis de mesurer des impulsions de 780 as [1]. Elle repose cependant sur la condition d'avoir une intensité VUV suffisante. En effet, nous avons vu que le confinement réduit le nombre de photons de façon significative, ce qui ne nous permet pas pour le moment de réaliser une autocorrelation. Cependant, dans cette perspective, nous avons réalisé un prototype qui a été testé dans l'infra-rouge [2].

Une seconde méthode basée sur le schéma d'une caméra à balayage, utilise le fait que l'énergie cinétique des photoélectrons ionisés par l'impulsion VUV en présence d'un champ laser, est dépendante de la phase du champ laser à l'instant de la photoionisation. En fonction du délai entre les impulsions IR et VUV, le spectre de photoélectron se décale en énergie cinétique et permet d'estimer la durée de l'impulsion VUV.

Cette technique a permis de mesurer la durée d'une unique impulsion VUV à 250 as [3,4]. Elle repose sur une sélection spectrale des harmoniques de la coupure et nécessite un dispositif de stabilisation de la phase absolue du champ laser.

Une troisième technique basée sur la corrélation croisée à deux couleurs en géométrie colinéaire permet d'estimer la durée d'un train d'impulsions attosecondes. Cette méthode a permis pour la première fois de reconstruire un train VUV d'impulsions de 250 as [5]. Récemment cette technique a permis de mettre en évidence une désynchronisation des harmoniques du plateau qui limite la durée minimale des impulsions présentes dans le train [6]. En effet pour une trajectoire donnée et pour un paquet d'onde électronique ionisé à un instant de naissance donné, la recombinaison de ses différentes composantes ne se fait pas au même instant de retour. Il y a donc dispersion des temps d'émissions t_e des harmoniques et l'impulsion VUV présente une dérive de fréquence.

Au CELIA nous avons décidé de développer cette technique plus connue sous le nom de « RABITT » (Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two photon Transitions) [7] qui permet de travailler avec l'ensemble du spectre harmonique détectable.

1.2 Principe de la technique RABITT.

Nous avons vu précédemment que la corrélation croisée à deux couleurs permettait dans une géométrie colinéaire d'avoir accès à la durée de l'enveloppe VUV avec une bonne résolution temporelle (femtoseconde). La technique RABITT nécessite l'observation d'oscillations de l'amplitude des bandes latérales et donc une bonne stabilité interférométrique. Concrètement ces bandes latérales résultent de l'habillage des harmoniques H_q et H_{q+2} par absorption ou l'émission d'un photon IR. L'amplitude de ces bandes latérales qui dépendent du délai entre l'émission harmonique et le laser peut donc s'écrire sous la forme :

$$A_{BL}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} (A_{abs} + A_{em}) dt \right|^2 \quad (1.1)$$

avec :

$$\begin{aligned} A_{abs} &= \sum_n \frac{\langle f | e \cdot r | n \rangle \cdot \langle n | e \cdot r | i \rangle}{E_n - E_i - q\omega} \cdot E_0(t - \tau) \cdot E_q(t) \cdot e^{i \cdot I_p \cdot t} = A_{abs,q} e^{-i\varphi_{abs,q}} E_0(t - \tau) \cdot E_q(t) \cdot e^{i \cdot I_p \cdot t} \\ A_{em} &= \sum_n \frac{\langle f | e \cdot r | n \rangle \cdot \langle n | e \cdot r | i \rangle}{E_n - E_i - (q+2)\omega} \cdot E_0^*(t - \tau) \cdot E_{q+2}(t) \cdot e^{i \cdot I_p \cdot t} = A_{abs,q+2} e^{-i\varphi_{abs,q+2}} E_0^*(t - \tau) \cdot E_{q+2}(t) \cdot e^{i \cdot I_p \cdot t} \end{aligned} \quad (1.2)$$

où i, n, f désignent les états initial, intermédiaire et final de la transition à deux photons.

E_i , E_n et E_f leurs énergies.

E_0 , E_q et E_{q+2} , les amplitudes complexes des champs laser et harmoniques d'ordre q et $q+2$ tels que :

$$\begin{aligned} E_0(t) &= A_0(t) \exp[-i(\omega_0 t + \varphi_0)] \\ E_q(t) &= A_q(t) \exp[-i(q\omega_0 t + \varphi_q)] \\ E_{q+2}(t) &= A_{q+2}(t) \exp[-i((q+2)\omega_0 t + \varphi_{q+2})] \end{aligned} \quad (1.3)$$

τ désigne le délai entre les impulsions IR et VUV et I_p le potentiel d'ionisation du gaz ionisé en présence des deux champs.

Ce modèle repose sur deux hypothèses de base :

- la variation d'amplitude harmonique reste négligeable lorsque l'on passe de l'harmonique q à $q+2$.
- l'impulsion IR est limitée par Fourier c'est-à-dire que φ_0 est constant.

Dans ces conditions le signal de corrélation croisée est décrit par :

$$A_{BL}(\omega, \tau) \propto M \left| \int_{-\infty}^{+\infty} A_0(t - \tau) A_q(t) \exp[-i.(q+1) \cdot \omega_0 t - \varphi_{BL,q}] dt \right|^2 \quad (1.4)$$

avec

$$A_{BL}(\omega, \tau) \propto \cos(2\omega_0\tau + \Delta\varphi_{BL,q+1}) \quad (1.5)$$

où M désigne les éléments de matrices complexes de transition à deux photons permettant de peupler le niveau de la bande latérale selon les deux chemins quantiques et où la phase $\Delta\varphi_{BL,q+1}$ est donnée par :

$$\Delta\varphi_{BL,q+1} = \varphi_q - \varphi_{q+2} + \Delta\varphi_{at,q+1} \quad (1.6)$$

$\varphi_q - \varphi_{q+2}$ correspondant à la différence de phase entre les harmoniques consécutives d'ordre q et $q+2$ et $\Delta\varphi_{at,q+1} = \varphi_{at,q} - \varphi_{at,q+2}$ la différence entre leurs phases atomiques [8].

Les phases atomiques $\varphi_{at,q}$ et $\varphi_{at,q+2}$ correspondent aux phases acquises par les électrons photo ionisés selon les deux chemins quantiques (absorption d'un photon harmonique d'ordre q et d'un photon IR ou absorption d'un photon harmonique d'ordre $q+2$ et émission d'un photon IR) qui permettent de peupler la bande latérale BL_{q+1}

Il apparaît alors qu'en déterminant $\Delta\varphi_{BL,q+1}$, on en déduit facilement la différence de phase entre les harmoniques q et $q+2$.

Le profil temporel du train attoseconde peut être alors reconstruit en réalisant la somme des composantes spectrales (harmoniques) et en prenant en compte leurs différences de phase

$\varphi_q - \varphi_{q+2}$:

$$I_{APT}(t) = \left| \sum_q A_q \exp[-i(q\omega_0 t + \varphi_q)] \right|^2 \quad (1.7)$$

1.3 Calcul de la différence de phase atomique $\Delta\varphi_{at,q+1}$.

Cette différence de phase peut être calculée numériquement par l'intégration de l'équation de Schrödinger dépendante du temps pour des photoélectrons créés dans l'argon (détection expérimental faite dans l'argon). Ces calculs sont similaires à ceux effectués par E. Toma et H. G Muller et ont fait l'objet d'une application du code TDSE développé par E. Cormier au CELIA.

Dans le cas de l'argon, le niveau fondamental présente une symétrie P, il y a donc 3 sous niveaux magnétiques. Les transitions à deux photons qui respectent les règles de sélection des transitions dipolaires électriques sont donc les suivantes :

Règles de sélection : $\Delta l = \pm 1$ et $\Delta m = 0$

Transition	$(1,0) \rightarrow (1,0)$	$(1,1) \rightarrow (1,1)$	$(1,-1) \rightarrow (1,-1)$	$(1,0) \rightarrow (3,0)$	$(1,1) \rightarrow (3,1)$	$(1,-1) \rightarrow (3,-1)$
$(l_i, m_i) \rightarrow (l_f, m_f)$						
(l_i, l_n, l_f)	$(1;0;1)$ $(1;2;1)$	$(1;2;1)$	$(1;2;1)$	$(1;2;3)$	$(1;2;3)$	$(1;2;3)$

TABLEAU 1.1 : TRANSITIONS DIPOLAIRES ÉLECTRIQUES À DEUX PHOTONS.

La probabilité totale de transition sera donc la somme des probabilités de transitions liées à ces six chemins quantiques possibles.

La différence de phase atomique est alors calculée à partir des éléments de matrice de transition. Cette phase est représentée en figure (1.1) en fonction de l'ordre de la bande latérale, dans le cadre de nos calculs (carré) pour les bandes latérales d'ordre 12 à 24. Le résultat obtenu à partir des éléments de matrices de Muller *et al.*, [7] y est également représenté (cercle) mais pour les bandes latérales d'ordre 12 à 18. Ceci nous permet d'avoir une base de comparaison et de valider notre calcul pour des bandes latérales d'ordre supérieur à 18. Pour les bandes latérales 12 à 18, nous constatons qu'aux barres d'erreurs près les deux calculs sont en accord.

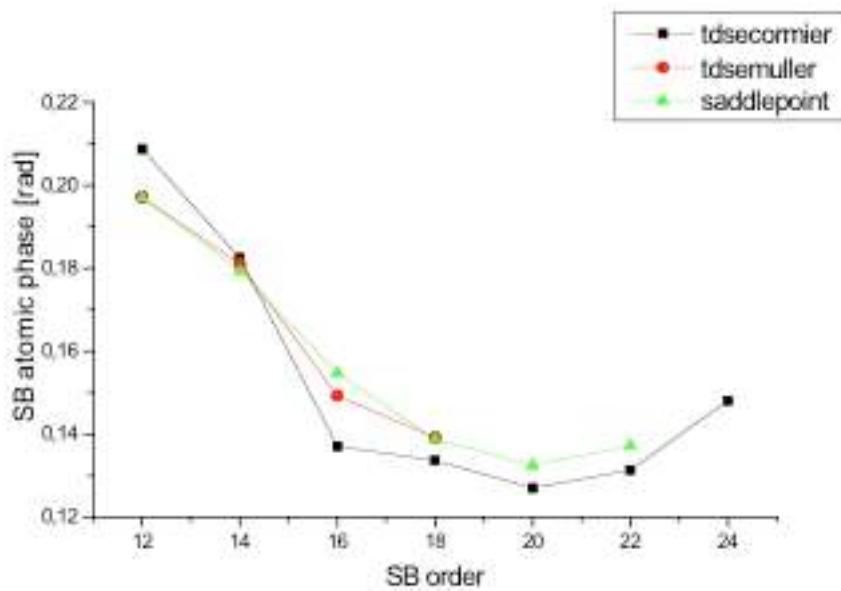


FIGURE 1.1 : PHASE ATOMIQUE CALCULÉE À PARTIR DE L'ARTICLE [7] (CERCLE) ET À PARTIR DU CODE DE RÉSOLUTION DE L'ÉQUATION DE SCHRODINGER DÉPENDANTE DU TEMPS DEVELOPPE AU CELIA.

Chapitre III.1: Technique de reconstruction du train d'impulsions VUV attosecondes

De plus en faisant varier cette phase de plus de 10%, nous n'avons pas observé de changement critique des trains d'impulsions attosecondes reconstruits par la méthode RABITT. D'autres valeurs de cette différence de phase atomique ont été calculé par Y. Mairesse *et al.*, [6] d'une part dans l'argon et d'autre part dans le néon. Les résultats que nous obtenons dans l'argon coïncident avec leurs calculs.

1.4 Conclusion.

Cette technique de reconstruction du train attoseconde repose donc sur l'observation expérimentale d'oscillations d'amplitude de bande latérale et requiert expérimentalement d'obtenir une bonne stabilité interférométrique. Pour analyser ces oscillations, nous avons développé un programme d'analyse désormais disponible au CELIA. Ce programme se base sur la détermination de $\Delta\phi_{BL,q}$, via un « fit » du signal $BL_{q+1}(\tau)$ mesuré, par une fonction oscillante de la forme $A+B \cos(2\omega_0\tau - \Delta\phi_{BL,q})$.

- [1] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte and G. D. Tsakiris. *Nature* **426**, 267 (2003).
“Direct observation of attosecond light bunching”
- [2] E. Constant, E. Mével, A. Zaïr, V. Bagnoud and F. Salin. *Journal de physique IV*, 537 (2001).
“Toward sub-femtosecond pump probe experiments: a dispersion less autocorelator with attoseconde resolution”
- [3] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. B. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krauzs. *Nature* **414**, 509 (2001).
“Attosecond metrology”
- [4] R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker, Ch. Spielmann, M. Kitzler, A. Scrinzi, M. Weiland, Th. Westrewalbesloh, U. Kleinrberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krauz. *Science* **297**, 1144 (2002).
“Steering attosecond electron wave packets with light”
- [5] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini. *Science* **292**, 1689 (2001).
“Observation of a train of attosecond pulses from hight harmonic generation”
- [6] Y. Mairesse, A. Bohan, L. J. Fransinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Montchicourt, P. Breger, M. Kovacëv, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini and P. Salières. *Science* **302**, 1540 (2003).
“Attosecond synchronisation of high-harlonic soft x-rays”
- [7] H. G. Muller. *Appl. Phys. B.* **74**, S17 (2002).
“ Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transition”

- [8] V. Véniard, R. Taïeb and A. Maquet. *Phys. Rev. A* **54** (1996), n°1, 721.
“Phase dependence of (N+1) IR-XUV photoionization of atoms with higher harmonics.”

Chapitre 2 : Trains d'impulsions VUV attosecondes expérimentaux.

Nous allons présenter les résultats de deux campagnes d'expériences sur la caractérisation du train attoseconde produit par la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Lors de ces expériences nous avons exploré l'utilisation de deux dispositifs expérimentaux permettant le recouvrement VUV-IR en géométrie colinéaire avec une stabilité interférométrique suffisante pour nous permettre d'extraire des traces « RABITT ».

2.1 Train attoseconde généré par une impulsion IR laser.

Lors de cette expérience réalisée au CELIA, nous avons utilisé un dispositif expérimental proche de celui présenté en référence [1]. Cette campagne constitue une première démarche vers la construction d'un dispositif de diagnostic temporel de notre source VUV harmonique.

2.1.1 Dispositif expérimental : SPACE RABITT

Le dispositif expérimental utilisé au CELIA est représenté en figure (2.1). Je l'ai baptisé SPACE RABITT pour « Spatial Profil shearing And temporal delay Control for Evolved RABITT measurement ».

Pour le mettre en œuvre nous avons utilisé la ligne basse énergie d'AURORE qui permet de disposer d'impulsions de 40 fs avec une énergie de 2 mJ. Le faisceau est dirigé vers une petite lame (L1) de silice, d'une épaisseur de 5 mm et d'un diamètre de 5 mm, inférieur à la section du faisceau diaphragmé par un iris de 9 mm de diamètre. Lorsque le faisceau a traversé cette lame, il est divisé en deux parties : une partie centrale retardée par la traversée de la lame et une partie annulaire qui ne traverse pas la lame et donc qui n'est pas retardée. L'énergie par impulsion contenue dans la partie centrale est alors de 1,2 mJ ($I_0=1,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$) tandis que celle disponible dans la partie annulaire est de 0.8 mJ . La partie centrale du faisceau est utilisée pour générer des harmoniques et la partie annulaire est utilisée comme sonde IR pour les caractériser. Les deux faisceaux co-propageants sont alors focalisés par une lentille de focale 800 mm dans une cellule de 15 mm de long remplie de krypton ($P_{kr}=12 \text{ mbar}$). Un filtre d'aluminium (200nm) ayant le diamètre de la partie centrale est supporté par une lame percée (L2) d'épaisseur 5 mm. Il permet de nettoyer la partie centrale du rayonnement IR tandis que la lame externe compense le retard introduit par (L1) sur la partie annulaire. La détection des harmoniques se fait alors à l'aide d'un spectromètre à temps de vol (TOF). Un diaphragme placé en entrée de chambre d'harmonique permet de contrôler l'énergie contenu dans la partie annulaire. Lorsque l'on sélectionne avec le diaphragme uniquement la partie centrale du faisceau, nous observons la génération des harmoniques 13 à 21. Lorsque l'on sélectionne la partie centrale et une partie annulaire dont l'énergie est forte (1mJ), le signal harmonique disparaît. Ce qui montre que le faisceau annulaire peut affecter le milieu (ionisation) mais ne génère pas efficacement d'harmoniques, qui ne sont générés que par la partie centrale. Lorsque l'on sélectionne la partie centrale et une partie annulaire de faible énergie (0,8 mJ), on détecte de nouveau les harmoniques. On peut donc considérer que la partie annulaire (0,8 mJ), qui passe en premier dans la cellule de gaz, traverse la cellule en perturbant peu le milieu générateur. Cette perturbation reste de plus indépendante du délai τ entre les deux impulsions.

Le délai temporel τ est induit par la lame (L1) et dépend de l'orientation de cette lame selon l'axe vertical z c'est-à-dire en fonction de l'angle d'incidence i du faisceau laser sur la lame ainsi que des caractéristiques de la lame (n indice de la silice, e épaisseur de la lame):

$$\tau = \frac{e}{c} \left[\sqrt{n^2 - \sin^2 i} - n + 1 - \cos i \right] \quad (2.1)$$

La déviation maximale angulaire que l'on pouvait réaliser sur la lame L1 sans couper le faisceau, correspond à 11° . C'est-à-dire que le délai maximum introduit par la lame correspond à ~ 47 fs. Ce délai ne nous permet pas de voir les traces « RABITT » entières si on utilise des impulsions initialement de 40 fs, mais dans la perspective d'utiliser ce système avec des impulsions sub-10 fs ce délai reste suffisant.

En sortie de chambre d'harmonique le faisceau annulaire IR et le faisceau central harmonique traversent une lame de silice (L2) complémentaire de la première lame (épaisseur 5 mm). La partie centrale manquante de cette lame est recouverte d'un filtre d'aluminium de 200 nm qui vise à filtrer le faisceau harmonique de toute trace de rayonnement IR et qui laisse passer les harmoniques d'ordre supérieur à 11. La partie annulaire qui traverse l'épaisseur de silice se voit donc retardée à son tour. Elle perd donc son avance sur l'impulsion VUV et à la sortie de cette seconde lame, l'impulsion sonde annulaire (initialement retardée) est de nouveau quasi synchrone avec l'impulsion VUV.

En modifiant l'inclinaison de la première lame on peut donc contrôler le délai entre le faisceau harmonique et le faisceau IR d'habillage. Afin de détecter les spectres de photoélectrons, les deux faisceaux sont alors focalisés par le même miroir torique (MT) dans la zone sensible d'un spectromètre à temps de vol d'électron (TOF), à bouteille magnétique, alimenté d'une pression d'argon de 10^{-4} mbar. Notons que la seconde lame est traversée par un faisceau IR non colimaté ce qui augmente l'épaisseur de verre traversée. Mais, cette petite divergence (2 mrad) induit un délai de 0,48 fs négligeable ici.

Ce dispositif a l'avantage de présenter une géométrie colinéaire qui assure un recouvrement spatial des deux faisceaux et qui permet une grande stabilité interférométrique. De plus on génère les harmoniques avec la partie centrale du faisceau laser et non avec la partie annulaire comme en [1].

On utilise alors plus efficacement l'énergie laser incidente, ce qui nous permettrait d'étendre cette méthode sur une plus grande dynamique d'éclairage. Ce dispositif pourrait donc être tout à fait compatible avec l'utilisation d'impulsions sub-10 fs.

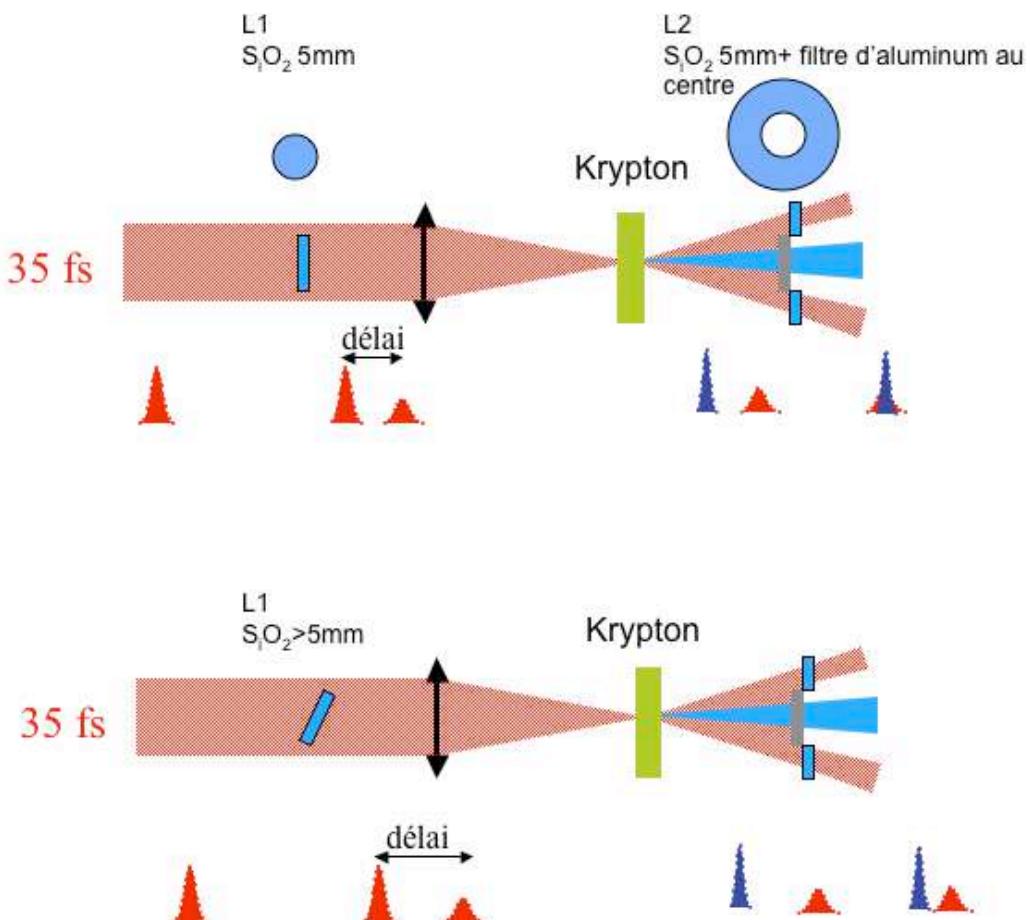


FIGURE 2.1 : DISPOSITIF EXPÉIMENTAL DE CORRÉLATION CROISÉE EN GÉOMÉTRIE COLINÉAIRE : SPACE RABBIT

2.1.2 Reconstruction du profil temporel attoseconde.

Grâce à ce dispositif, nous avons mesuré les spectres d'énergie des photoélectrons, issus de l'ionisation de l'argon présent dans la zone sensible du spectromètre. Ce spectrogramme, présenté en figure (2.2), est représenté en fonction de l'angle d'orientation de la lame (L1). On observe de nouveau les lignes continues correspondant aux harmoniques 13 à 21 et on observe également les bandes latérales 14 à 20 dont la modulation d'amplitude est clairement visible avec un bon contraste sur les spectres bruts.

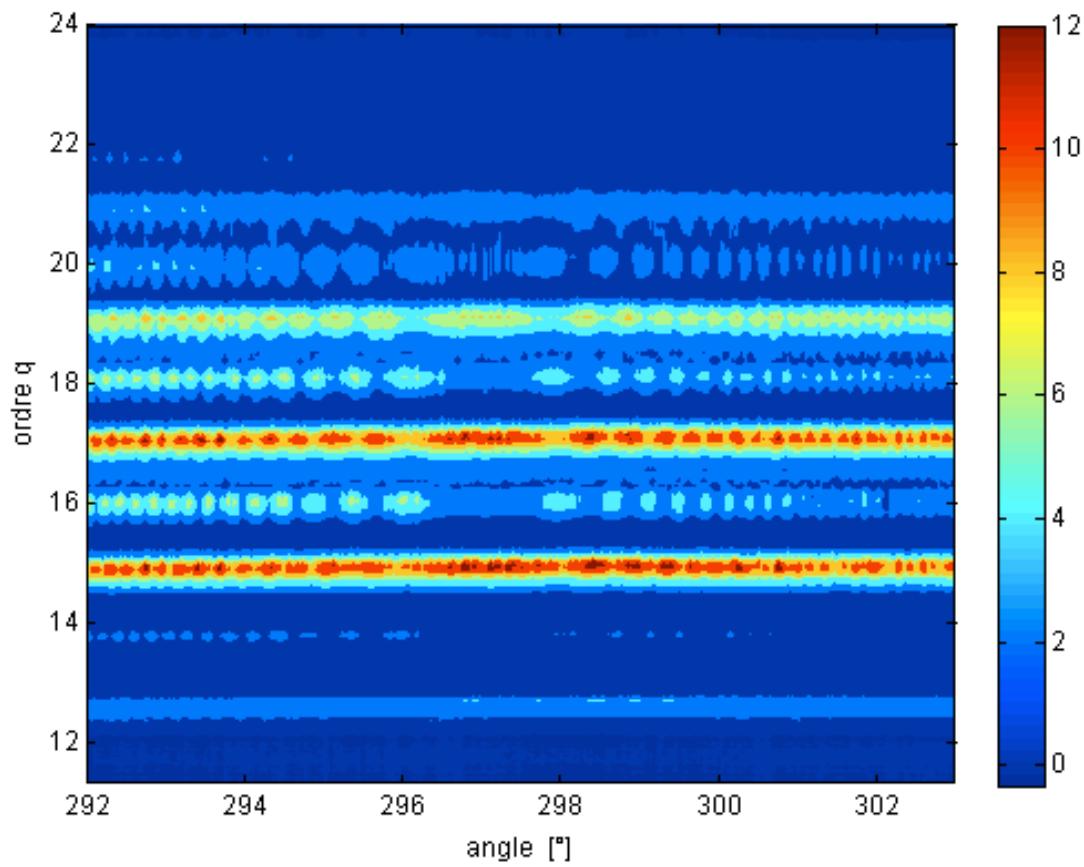


FIGURE 2.2 : SPECTRE DE PHOTOELECTRON OBTENU EN FONCTION DE L'ANGLE D'INCLINAISON DE LAME (L1) ET DE L'ORDRE HARMONIQUE.

À l'aide de l'équation (2.1) et pour une lame (L1) normale au faisceau laser pour un angle $\sim 297,5^\circ$, on peut convertir l'angle d'orientation de la lame en délai.

Cependant ne connaissant pas l'orientation exacte de la seconde lame, nous ne connaissons pas exactement le délai $\tau=0$, la conversion est donc faite à une constante près de délai. On obtient le spectrogramme présenté en figure (2.3).

Nous avons choisi de prendre arbitrairement l'origine des délais, au délai correspondant à un angle de $297,5^\circ$, déduit de la symétrie du spectrogramme, de tel sorte que pour des angles d'inclinaison de la lame respectivement inférieurs et supérieurs à cette valeur correspondent des délais respectivement positifs et négatifs.

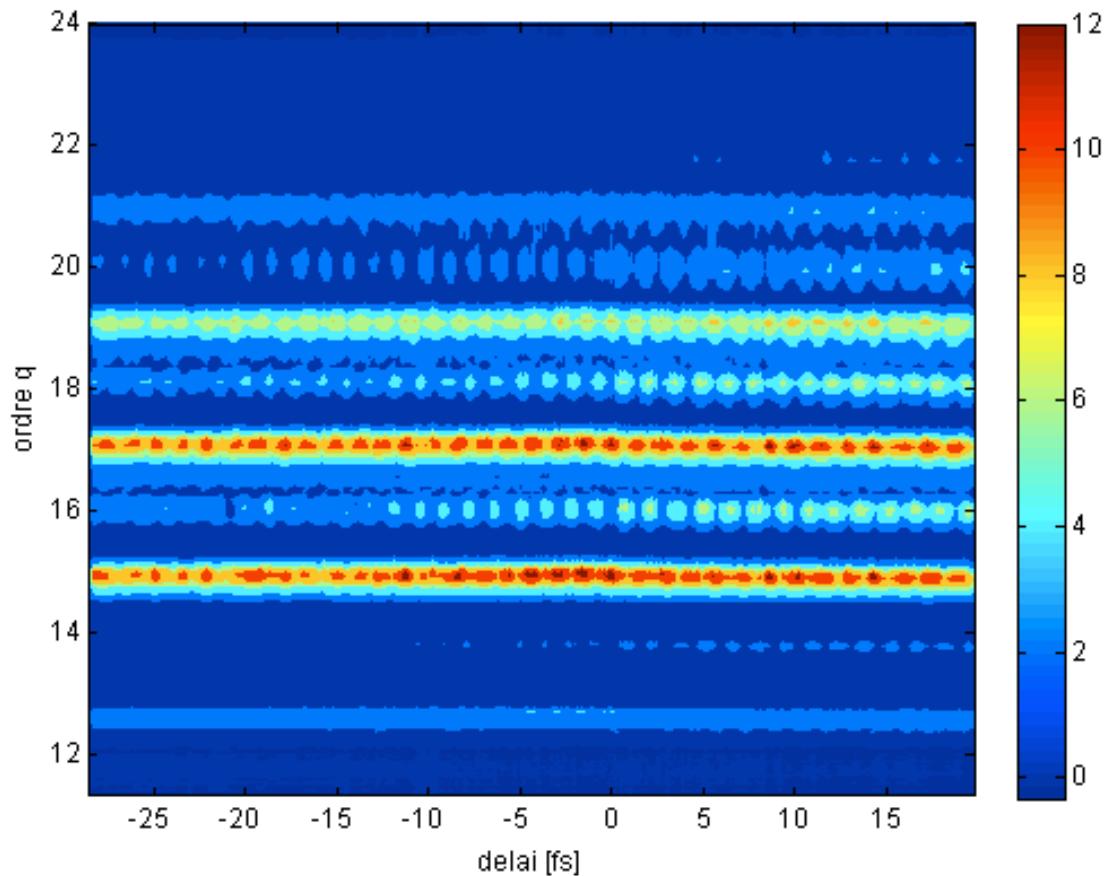


FIGURE 2.3 : SPECTRE DE PHOTOELECTRON OBTENU EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR ET DE L'ORDRE HARMONIQUE.

En intégrant les bandes latérales par rapport à l'énergie cinétique des photoélectrons, on obtient le signal oscillant $A_{BL,q}(\tau)$ (figure 2.4) que l'on va analyser par la technique de RABITT. Cette analyse se fait en prenant en compte la section efficace de photoionisation de l'argon, la réflectivité du miroir torique (MT) ainsi que la courbe d'efficacité du spectromètre. Cette courbe est obtenue en réalisant un balayage en énergie d'un spectre harmonique sans habillage IR. Ce balayage se fait grâce à un potentiel applicable sur la bobine interne au spectromètre qui va accélérer ou décélérer les photoélectrons.

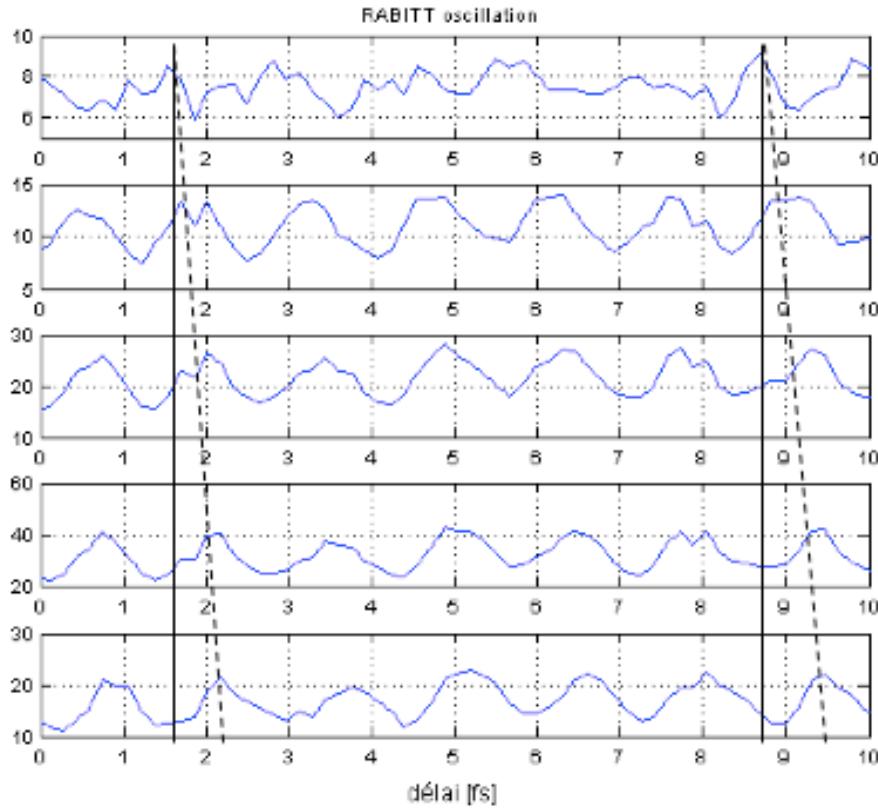


FIGURE 2.4 : AMPLITUDE DES BANDES LATÉRALES 14 (HAUT) À 22 (BAS) EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR.

On constate tout d'abord que les oscillations d'amplitude de bandes latérales présentent une période de $\sim 1,3$ fs proche d'un demi-cycle optique IR. De plus les oscillations ne sont pas exactement en phase comme le montre la ligne de niveau des maxima (pointillé). Les harmoniques d'ordres élevés sont émises après les harmoniques d'ordre plus faible. Ceci signifie que les harmoniques ne sont pas émis au même instant. Cet instant t_e d'émission a été défini et mesuré pour la première fois par Y. Mairesse et al., [2]:

$$t_e(q+1) = \frac{\partial \varphi(q+1)}{\partial \omega} \approx \frac{\varphi_{q+2} - \varphi_q}{2\omega_0} \quad (2.2)$$

Ce temps d'émission est défini pour les ordres pairs $q+1$, il représente en fait une valeur moyenne des temps d'émission de deux harmoniques consécutifs d'ordre q et $q+2$.

Les phases harmoniques déduites de l'analyse RABITT sont présentées en figure (2.5a). On prend arbitrairement la phase associée à l'harmonique 17 comme origine des phases. Ces phases présentent clairement un comportement quadratique qui traduit une dépendance des temps d'émission avec l'ordre harmonique (2.5b) [2].

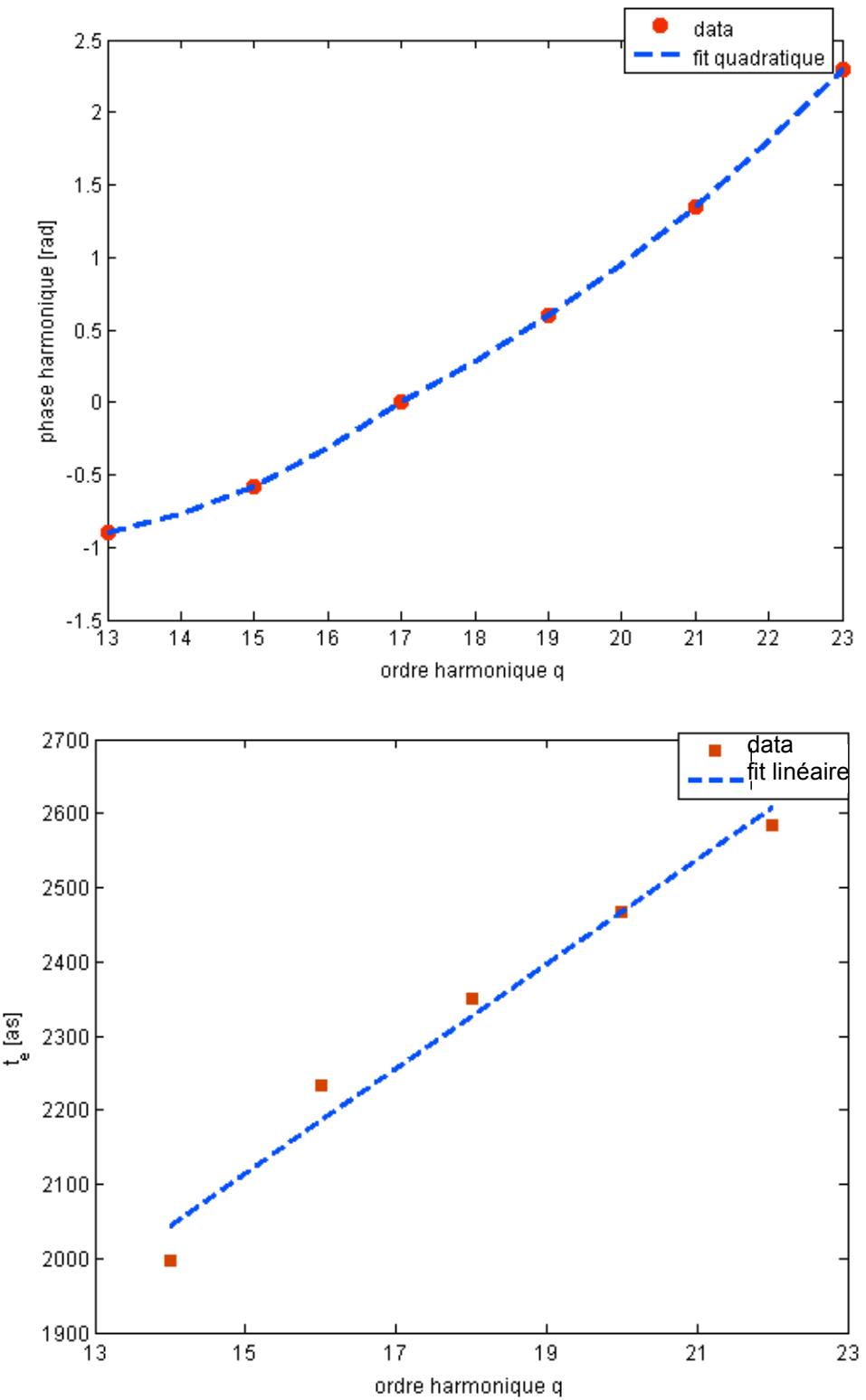


FIGURE 2.5: (A) PHASES HARMONIQUES RELATIVES EXTRAITES DES OSCILATIONS D'AMPLITUDE DE BANDES LATÉRALES. (B) DISPERSION LINÉAIRE DES TEMPS D'ÉMISSION HARMONIQUE (EN VALEUR ABSOLUE).

On estime alors la désynchronisation entre deux harmoniques consécutifs :

$$\Delta t_e = t_e(q+1) - t_e(q-1) \approx 2\omega_0 \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \omega^2} \quad (2.3)$$

Cette désynchronisation est proportionnelle à l'inverse de l'énergie pondéromotrice U_p . Donc pour minimiser cette désynchronisation, il faut soit travailler avec un fondamental de longueur d'onde IR plus élevée, soit avec des éclairements proches de l'éclairement de suppression de barrière I_{BSI} .

Dans notre cas, nous avons travaillé avec un éclairement de $1,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, ce qui est proche de l'éclairement I_{BSI} du krypton soit $1,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Nous estimons alors notre désynchronisation à $\Delta t_e = 117 \text{ as}$. On reconstruit alors le train attoseconde en sommant les champs associés aux harmoniques 13 à 23. Le profil temporel reconstruit est présenté en trait continu en figure (2.6) et montre des impulsions VUV d'une durée de 290 as (FWHM). La limite de Fourier associée à la somme de ces six harmoniques est également représentée (pointillé) et conduit à des impulsions de 220 as. Ce train limité par Fourier est obtenu en sommant les champs harmoniques sans prendre en compte le déphasage harmonique.

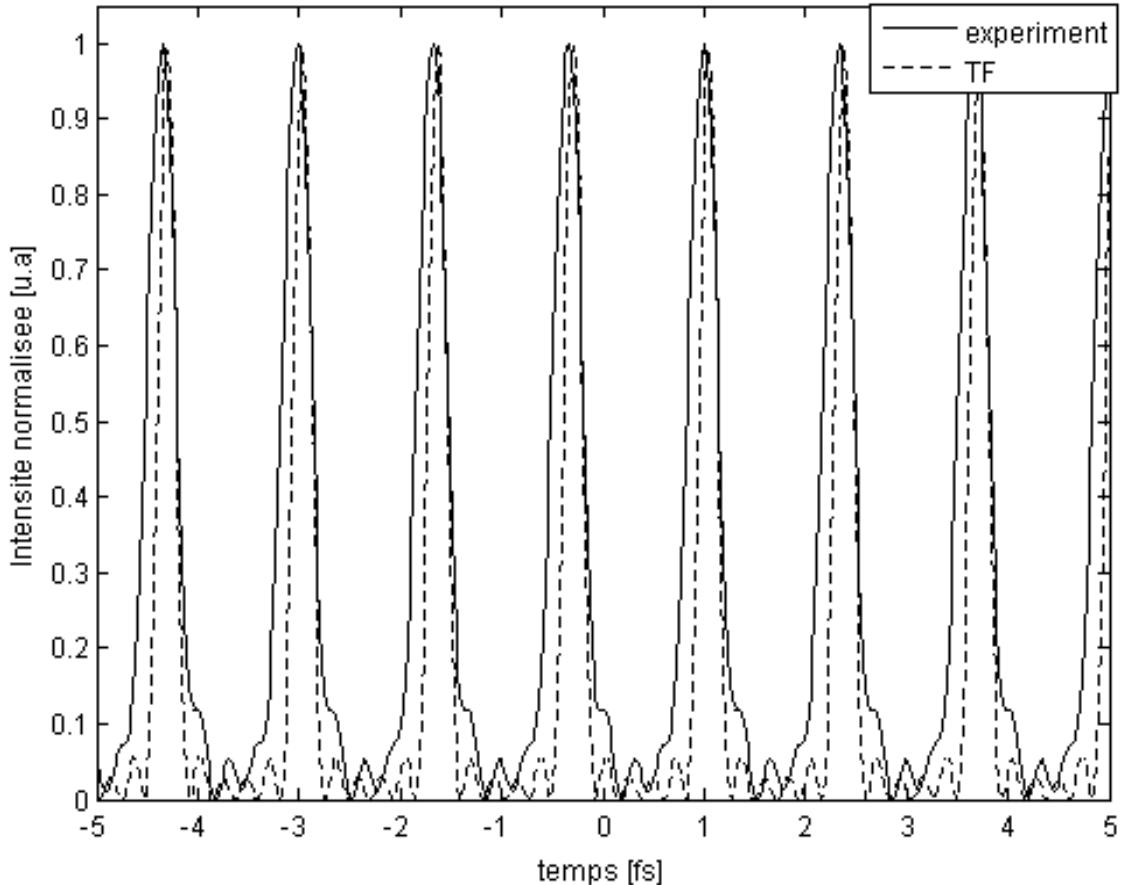


FIGURE 2.6: PROFIL TEMPOREL RECONSTRUIT À PARTIR DE LA DÉTERMINATION DES PHASES RELATIVES HARMONIQUES POUR LES HARMONIQUES 13 À 23 GÉNÉRÉES DANS LE KRYPTION PAR DES IMPULSIONS LASER DE 40 FS.

2.1.3 Conclusion.

Nous avons pu mettre en œuvre un dispositif expérimental qui nous a permis de mesurer les phases relatives harmoniques. Ce dispositif possède une bonne stabilité interférométrique et est facile à mettre en œuvre. Il nécessite peu d'énergie pour générer les harmoniques et le délai introduit permet de balayer le spectre de photoélectrons sur ~ 50 fs. Il serait tout fait compatible avec l'utilisation d'impulsions sub-10 fs et permettrait ainsi de mesurer l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes VUV. Le comportement quadratique des phases relatives que nous avons pu mesurer, montre que les harmoniques (générés dans le krypton) ne sont pas émis en phase. Les temps d'émission harmoniques présentent une désynchronisation de 117 as entre deux harmoniques consécutifs.

Ces résultats ont déjà été observés par l'équipe de Saclay [2], pour des harmoniques générées dans l'argon et le néon avec une désynchronisation des temps d'émission harmonique respectivement de 106 as (argon) et 33 as (néon). Nous nous attendions à avoir une désynchronisation, dans le krypton, supérieure à celle obtenue par Y. Mairesse et al., dans l'argon (106 as pour $I_0=1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Mais, comme nous l'avons vu, cette mesure est dépendante de l'éclairement laser et dans notre cas cet éclairement est proche de l'éclairement de saturation, ce qui pourrait être à l'origine de la « faible » désynchronisation mesurée.

2.2 Train généré par une impulsion IR post-comprimée.

2.2.1 Dispositif expérimental

Dans une seconde campagne d'expériences réalisées au LLC nous avons voulu reconstruire le train d'impulsions attosecondes générées par une impulsion post-comprimée. Le montage expérimental est analogue à celui utilisé pour la corrélation croisée à deux couleurs dans le cadre de notre mesure de porte d'ellipticité. Nous avons pris soin cependant de générer les impulsions sub-10 fs en dehors de l'interféromètre, afin de gagner en stabilité interférométrique. Le faisceau est donc divisé après le dispositif de post-compression, en deux bras, par une lame séparatrice fine 40/60 (épaisseur 370 μm).

Le premier bras constitue le faisceau sonde IR de 9 fs et le second bras permet de générer des harmoniques dans une cellule de 3 mm remplie d'argon ($P_{\text{AR}}=30 \text{ mbar}$). Les impulsions en sortie de post-compression ont une durée de 9 fs et une énergie de $800 \mu\text{J}$ ($I_0=1,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Cet interféromètre de type Mach-Zehnder permet de contrôler le délai IR-VUV sur une large gamme mais il possède le désavantage d'être sensible aux fluctuations mécaniques dues à la longueur des bras.

2.2.2 Reconstruction du profil temporel attoseconde.

Le spectrogramme de photoélectrons, mesuré en fonction du délai, est présenté en figure (2.7). On reconnaît les harmoniques 13 à 25 et on observe également les bandes latérales 14 à 24. La durée de ces bandes latérales est clairement reliée à la durée des impulsions IR et VUV, on les voit apparaître sur une durée ~ 10 fs. De plus les traces sont peu homogènes (comparé au cas précédent) en raison de la sensibilité du système aux instabilités mécaniques.

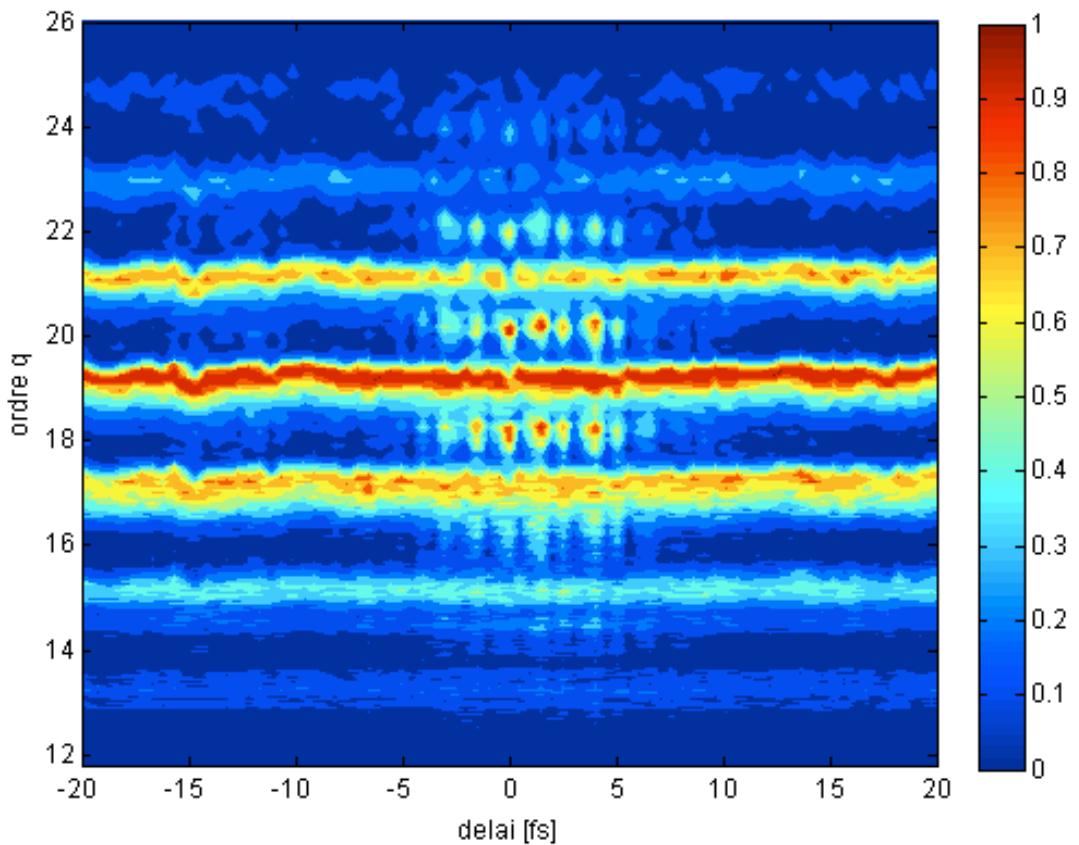


FIGURE 2.7 : SPECTRE DE PHOTOELECTRONS OBTENU EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR ET DE L'ORDRE HARMONIQUE

En intégrant les bandes latérales par rapport à l'énergie cinétique des photoélectrons, on obtient le signal oscillant $A_{BL,q}(\tau)$ (figure 2.8). Ces traces « RABITT » montrent non seulement des oscillations dont la période est proche d'un demi-cycle optique mais permettent aussi d'accéder à l'inter-correlation IR-VUV correspondant à l'enveloppe de ces oscillations.

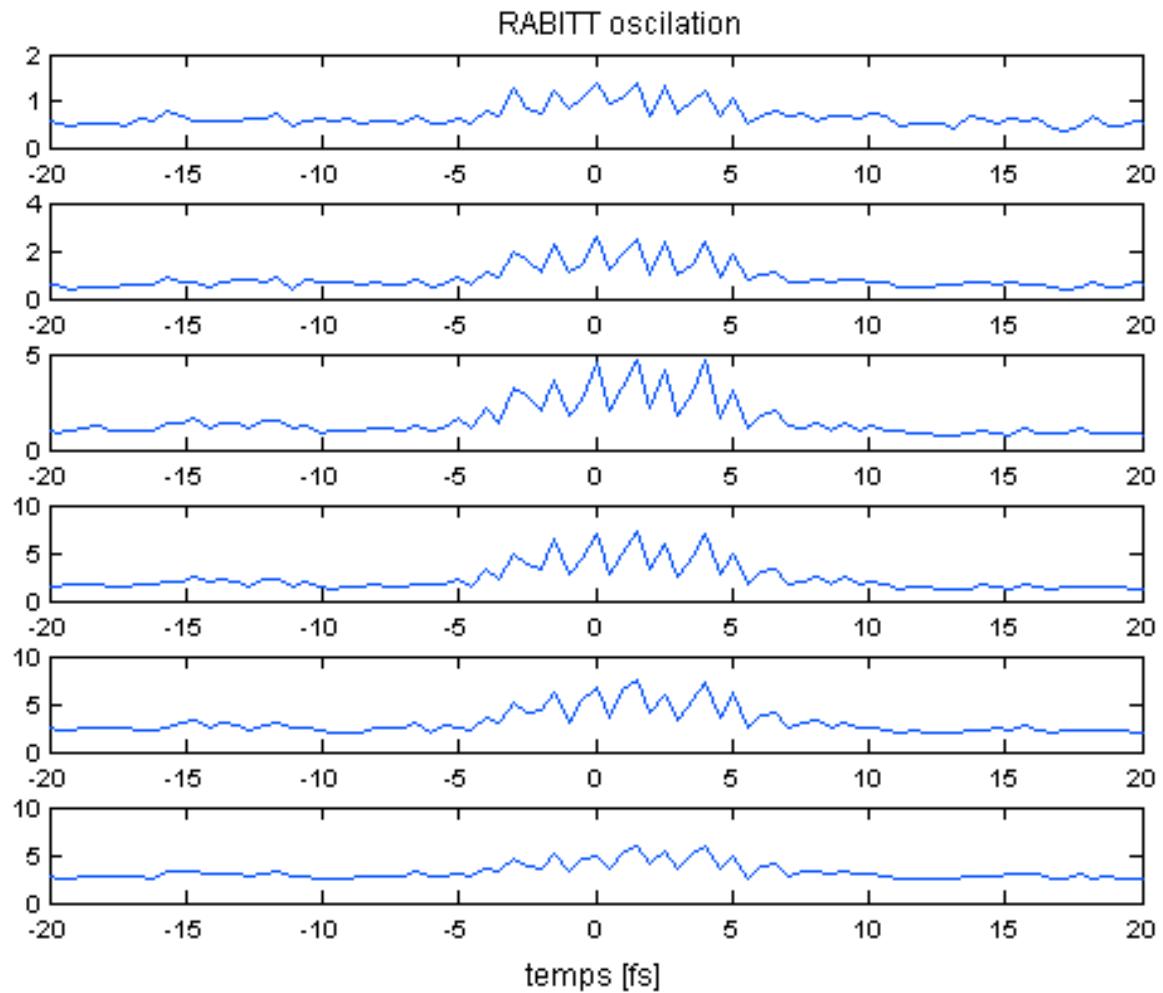


FIGURE 2.8 : AMPLITUDE DES BANDES LATÉRALES 14 À 24 EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR.

On en déduit les phases relatives harmoniques présentées en figure (2.9a). On retrouve là aussi un comportement non linéaire des phases qui traduit une désynchronisation des temps d'émission harmoniques qui ici semble induire un chirp quadratique (figure(2.9b)). La désynchronisation entre deux harmoniques consécutifs est estimée à $\Delta t_e = 104$ as. Ce qui est en accord avec les résultats obtenus en [2] dans l'Argon.

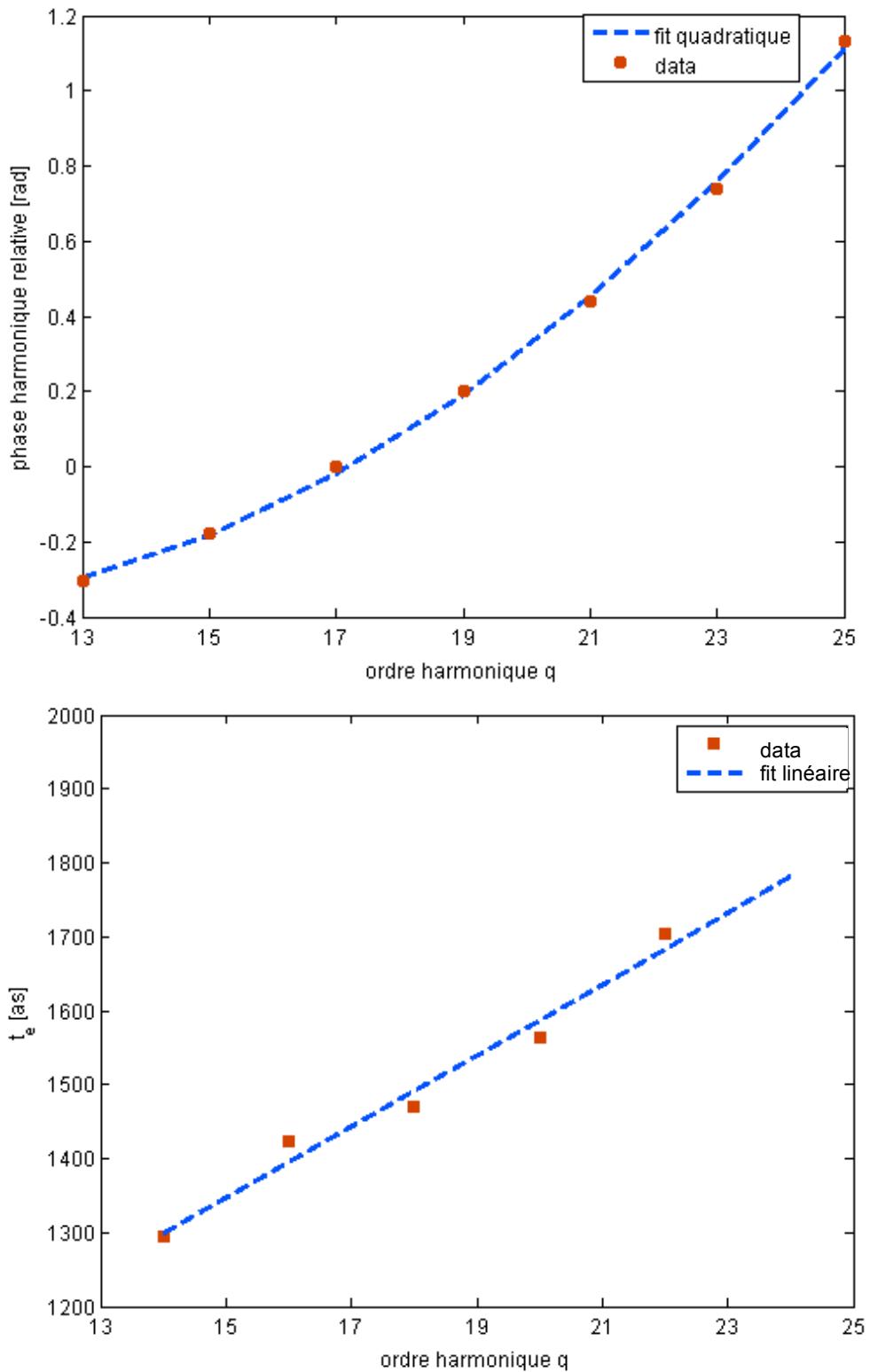


FIGURE 2.9 : (A) PHASES HARMONIQUES EXTRAITES DES OSCILATIONS D'AMPLITUDE DE BANDES LATÉRALES. (B) DISPERSION LINÉAIRE DES TEMPS D'ÉMISSION HARMONIQUE.

On reconstruit alors le train d'impulsions en sommant la contribution des 7 harmoniques. Le train obtenu est présenté en figure (2.10) et montre des impulsions VUV d'une durée de 192 as. La limite de Fourier associé est également représentée et conduit à des impulsions de 185 as.

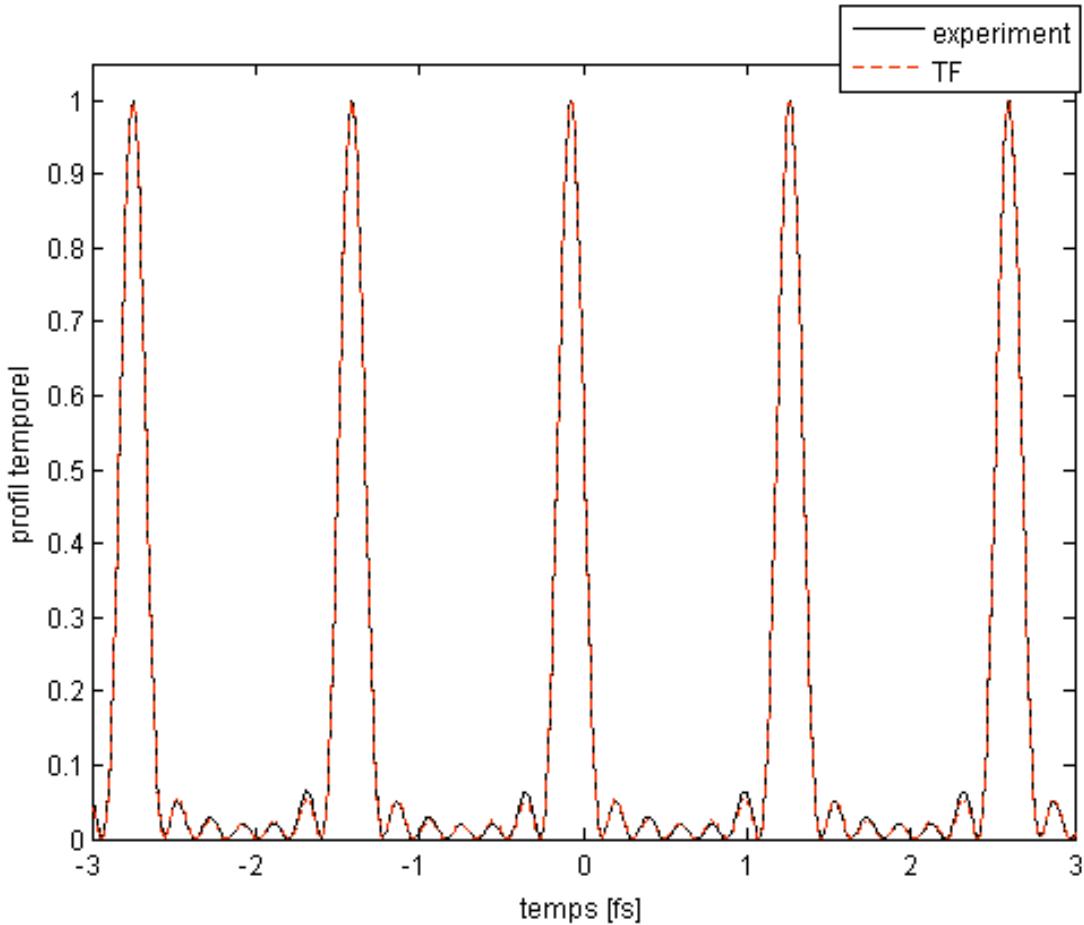


FIGURE 2.10: PROFIL TEMPOREL RECONSTRUIT À PARTIR DE LA DÉTERMINATION DES PHASES RELATIVES HARMONIQUES POUR LES HARMONIQUES 13 À 25 GÉNÉRÉES DANS L' ARGON PAR DES IMPULSIONS LASER DE 9 FS.

Les traces « RABITT » permettent également d'avoir accès à l'enveloppe des traces de corrélation croisée. De la même façon que dans l'expérience qui nous a permis de mesurer la durée de la porte d'ellipticité, on peut faire une déconvolution de cette enveloppe et calculer l'enveloppe temporelle moyenne de deux harmoniques consécutifs. En prenant en compte ces enveloppes moyennes on peut déduire l'allure du train attosecondes représenté en figure (2.11). L'émission VUV se faisant en moyenne sur une durée calculée de 3 fs, (FWHM) on observe (rouge) cinq impulsions attosecondes dont la durée est de 182 as.

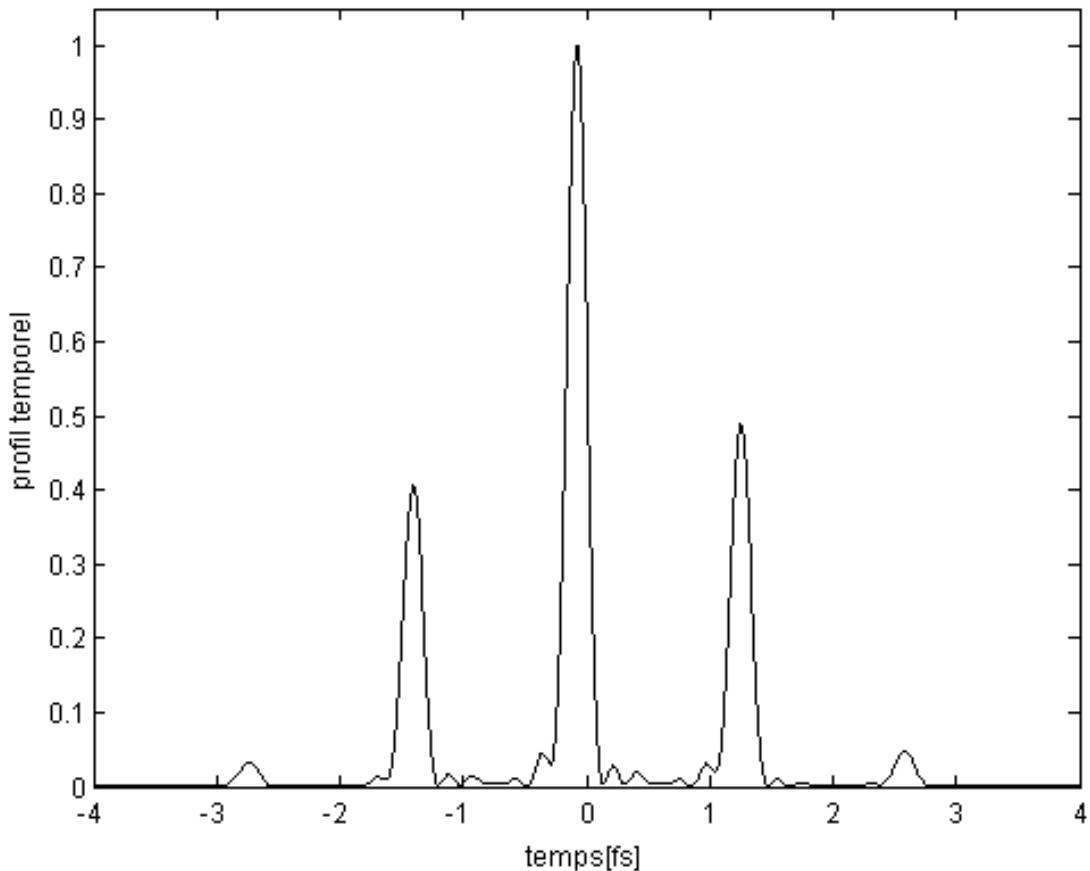


FIGURE 2.10 : PROFIL TEMPOREL RECONSTRUIT À PARTIR DE LA DÉTERMINATION DES PHASES RELATIVES HARMONIQUES EN PRENANT EN COMPTE L'ENVELOPPE VUV.

2.3 Conclusion.

Nous avons utilisé deux dispositifs expérimentaux basés sur l'interférométrie à deux couleurs. Ces deux types d'interféromètres nous ont permis de mesurer les phases relatives harmoniques par l'analyse des oscillations d'amplitude des bandes latérales. Le comportement non linéaire de ces phases, en fonction de l'ordre harmonique, a permis d'identifier une dispersion des temps d'émission harmonique positive. Nous avons estimé la désynchronisation de l'émission harmonique à 104 as pour les harmoniques générés dans l'argon et 117 as pour les harmoniques générés dans le krypton pour un éclairement de $1,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

La reconstruction des trains attosecondes associés montre que nous avons généré des impulsions d'une durée de ~ 290 as dans le krypton et de ~ 180 as dans l'argon. La mesure de la phase d'une impulsion attoseconde isolée ne sera pas possible avec la méthode RABITT car on ne peut pas résoudre les oscillations d'amplitude de bandes latérales, noyées dans l'élargissement des harmoniques. Il faudra donc s'orienter vers d'autres techniques telles que le « FROG CRAB » [3,4] développé à Saclay ou encore le « SPIDER X »[5,6].

- [1] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini. *Science 292, 1689 (2001)*.
“Observation of a train of attosecond pulses from hight harmonic generation”
- [2] Y. Mairesse, A. Bohan, L. J. Fransinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Montchicourt, P. Breger, M. Kovacěv, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini and P. Salières. *Science 302, 1540 (2003)*.
“Attosecond synchronisation of high-harmonic soft x-rays”
- [3] Y. Mairesse and F. Quéré.
PRA 71, 011401 (R) (2005).
“Frequency- Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Bursts”
- [4] F. Quéré, Y. Mairesse and J. Itatani.
Journal of modern optics 52, 339-360 (2005).
“Temporal characterisation of attosecond xuv fields”
- [5] E. M. Kosik, L. Corner, A. S. Wyatt, E. Cormier, I. A. Walmsley and L. F. DiMauro. *Journal of modern optics 52, 361-378 (2005)*.
“Complete characterisation of attosecond pulses”
- [6] E. Cormier, I. A. Walmsley, E. M. Kosik, A. S. Wyatt, L. Corner and L. F. DiMauro. *PRL 94, 033905(2005)*.
“Self-referencing, Spectrally, or Spatially Encoded Spectral Interferometry for the Complete Characterization of Attosecond Electromagnetic Pulses”

CONCLUSION GENERALE

Conclusion générale et perspectives

Ce mémoire est l'aboutissement de trois années de thèse dans l'équipe harmonique expérimentale du CELIA. Elle a débuté par une collaboration avec le LLC dans le cadre du réseau européen ATTO puis XTRA.

Nous avons pu pendant cette thèse mettre au point les trois techniques expérimentales de post-compression, de porte d'ellipticité et de diagnostic temporel du train d'impulsions attosecondes. Grâce à ces nouveaux systèmes, nous avons pu participer aux prémisses de « l'attophysique », en disposant des outils nécessaires à la production, la caractérisation et l'utilisation d'impulsions VUV attosecondes.

Post compression :

Les travaux expérimentaux effectués sur la post-compression nous ont permis de mettre à disposition au CELIA une nouvelle ligne sub-10 fs délivrant une énergie par impulsion de 200 μ J à \sim 900 μ J. L'élaboration de cette ligne est le fruit d'une collaboration avec I. J. Sola, post-doc au CELIA et mon binôme pendant 2 ans. Cette nouvelle ligne nous a permis de démontrer que les techniques de confinement (porte d'ellipticité) et de caractérisation temporelle du train attoseconde (RABITT) compatibles avec des impulsions laser de 35 fs, étaient également compatibles avec des impulsions sub-10fs. Cette technique est limitée par l'énergie injectable, et par sa transmission, mais l'expérience réalisée avec le néon, offre la perspective d'injecter plus de 1 mJ dans le système.

Confinement harmonique :

Nous avons également réalisé des campagnes d'expériences sur le confinement temporel harmonique. En utilisant des impulsions « longues » (35 fs), nous avons pu mesurer la durée du confinement à $\sim 11,5$ fs concordant avec la durée calculée de la porte d'ellipticité.

En utilisant des impulsions sub-10 fs issues de la ligne de post-compression, nous avons obtenu un quasi-continuum spectral, qui montre que la technique permet de contrôler le nombre d'impulsions attosecondes générées et permet en outre de générer une à deux impulsions attosecondes.

En parallèle, nous avons développé le code classique « e_motion » qui permet de comprendre de manière simplifiée, ce qui se passe au niveau des trajectoires électroniques, lorsque l'on utilise une porte d'ellipticité d'une durée inférieure à un demi-cycle optique (sub-cycle). Les trajectoires électroniques ont une dépendance claire avec la durée de la porte et la valeur de la phase absolue du champ :

Concernant l'influence de la durée de la porte, sa présence augmente l'efficacité de recombinaison des trajectoires émises de part et d'autre de la porte.

Concernant l'influence de la phase absolue du champ laser, il apparaît d'une part qu'il n'existe pas de valeur de phase absolue qui permette la production d'une unique impulsion attoseconde sans sélection spectrale. Un compromis doit être fait en sélectionnant la trajectoire du cut-off associée à la trajectoire longue ou la trajectoire courte du plateau.

D'autre part, ces calculs montrent que lorsque l'on utilise la porte d'ellipticité, la dépendance de l'efficacité de recombinaison avec la phase absolue du champ, impose une limite de la mesure de la durée des impulsions attosecondes générées.

Caractérisation du train attoseconde :

La mise en oeuvre d'un interféromètre à deux couleurs au CELIA et de son programme d'analyse a occupé la dernière année de ma thèse. Grâce à cette technique, nous avons été capables de mesurer des trains d'impulsions attosecondes d'une durée de 290 as et 180 as pour la première fois au CELIA.

Cependant cette technique basée sur l'observation d'oscillations d'amplitude de bandes latérales, n'est pas compatible avec la reconstruction d'une unique impulsion attoseconde. Il est donc envisagé d'implémenter une technique qui reconstruit continûment la phase des harmoniques comme le FROG CRAB ou le SPIDER X.

Cependant les reconstructions RABITT sont encourageantes et pour ma part, un des aspects les plus réjouissants de cette thèse a été la reconstruction de ces trains qui constitue une preuve d'un premier franchissement, pour notre équipe, de la barrière temporelle femtoseconde.

Perspectives :

Nous avons réussi à réunir au cours de cette thèse l'ensemble des ingrédients nécessaires à la production d'une impulsion attoseconde unique et ceci sous certaines conditions de phase absolue du champ laser. La prochaine étape au CELIA consistera donc à soit implémenter sur le laser Aurore un système de stabilisation de la phase absolue du champ laser, soit à mesurer cette phase et à sélectionner les tirs laser conduisant à l'émission d'une impulsion attoseconde unique.

Une fois cette impulsion unique produite, on pourra envisager d'utiliser notre interféromètre SPACE RABITT pour l'acquisition de spectrogramme de photo-électrons avec une très bonne stabilité interférométrique. En revanche, l'analyse de ces spectrogrammes, pour la reconstruction de l'impulsion attoseconde, ne pourra pas être menée par la méthode RABITT. Il faudra utiliser la technique de FROG CRAB du groupe de Saclay [Mairesse *et al.*, 2005] compatible avec la reconstruction d'une unique impulsion attoseconde.

La porte d'ellipticité que nous avons mis en œuvre dans cette thèse a l'avantage d'être compatible avec un large spectre harmonique (plateau et coupure) et peut être adaptée à d'autre longueur d'onde laser. Cette accordabilité de la source VUV peut être mis à profit pour la production d'une impulsion attoseconde unique encore plus courte. En effet, récemment il a été démontré [Seres *et al.*, 2005] qu'à partir d'un laser Titane saphir (800nm) il est possible d'atteindre des énergies de photons harmoniques de 1 keV.

On pourra donc envisager d'utiliser la porte d'ellipticité avec ces larges spectres harmoniques ouvrant la possibilité de générer des impulsions attosecondes encore plus brèves. De plus, si on utilise un laser générateur dont la longueur d'onde centrale est de quelques micromètres, il est aussi possible d'étendre le plateau harmonique à des énergies de photons de plusieurs keV [Gordon *et al.*, 2005]. On pourra donc la aussi adapter la porte d'ellipticité pour confiner les impulsions attosecondes associées.

Dans ces conditions, notre interféromètre SPACE RABITT associé à notre analyse RABITT ou à une analyse FROG CRAB pourra toujours être utilisé.

À l'aide de notre reconstruction de train attoseconde, nous avons pu mesurer la durée de nos impulsions attosecondes à des valeurs de 290 as au CELIA et 180 as au LLC. Ces impulsions pourront être utilisé pour observer par exemple les oscillations du paquet d'onde ionique dans l'état H_2^+ en enregistrant l'évolution des spectres de protons ($H^+ + H^+$) lors de l'explosion coulombienne. Plus particulièrement la génération de nos trois impulsions attosecondes de 180 as grâce à la porte d'ellipticité, ouvre la possibilité d'observer la déformation de ce paquet d'onde pendant son oscillation dans l'état vibrationnel H_2^+ (période 14 fs) est donc à la dynamique moléculaire de H_2 .

On peut également envisager d'utiliser la porte d'ellipticité pour produire une impulsion attoseconde unique, afin de mesurer les temps de relaxation de type Auger [Drescher *et al.*, 2002] dans les gaz rares. Dans cette expérience, l'impulsion attoseconde unique ionise un électron dans une couche interne de l'atome cible et un électron secondaire est ionisé par effet Auger. Pour mesurer la durée du paquet d'onde électronique par corrélation croisée VUV-IR, on pourra utiliser également notre interféromètre SPACE RABITT. L'accordabilité de la source VUV pourra en outre nous permettre d'accéder à cette information dans différents matériaux.

Enfin la possibilité qu'offre notre technique de porte d'ellipticité à générer une unique impulsion attoseconde avec un large spectre harmonique (> 10 eV), pourra nous permettre de réaliser des reconstructions d'orbitale moléculaire par tomographie [Itatani *et al.*, 2004] avec une meilleure résolution temporelle et pour des orbitales non stationnaires.

PUBLICATIONS

- E. Constant, E. Mével, A. Zaïr, V. Bagnoud and F. Salin. *Journal de physique IV*, 537 (2001).
“Toward sub-femtosecond pump probe experiments: a dispersion less autocorelator with attoseconde resolution”
- V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mével and E. Constant. *Appl. Phys. B* 78, 879-884 (2004).
“Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental”
- R. López-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L’Huillier, O. Tcherbakoff, A. Zaïr, E. Mével and E. Constant. *Phys. Rev. A*, 69 (2004), 053811.
“Time-resolved ellipticity gating of high-ordre harmonic emission”
- A. Zaïr, O. Tcherbakoff, E. Mével, E. Constant, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L’Huillier. *Appl. Phys. B*, 78, 869 (2004).
“Time-resolved measurement of high order harmonics confined by polarization gating”
- A. Zaïr, I. J. Sola, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, E. Cormier, K. Varjù, J. Mauritsson, D. Descamps, V. strelkov, A. L’Huillier, E. Mével and E. Constant. *J. Phys. IV France*, 127, 91 (2005).
“Contrôle de la génération d’harmoniques d’ordres élevés par modulation de l’ellipticité du fondamental”
- V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mével and E. Constant. *J. Phys. B* 38, L161-L167 (2005)

“Single attosecond pulse production with ellipticity modulated driving IR pulse”

V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mével and E. Constant. *Laser Physics 15, #6 (2005)*

“Attosecond pulse generation with an ellipticity modulated laser pulse”

K. Varjú, P. Johnsson, R. López-Martens, T. Remetter, E. Gustafsson, A. L'Huillier, J. Mauritsson, M. B. Gaarde, K. J. Schafer, C. Erny, I. Sola, A. Zaïr, E. Constant, E. Cormier, E. Mével. *Laser Physics, 15, 888 (2005)*

“Experimental studies of Attosecond Pulse Trains ”

I. J. Sola, A. Zaïr, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, K. Varjù, E. Cormier, J. Mauritsson, A. L'Huillier, V. strelkov, E. Mével and E. Constant. *Submitted to PRA (2005).*

“Temporal and spectral studies of high-order harmonics generated by polarization-modulated infrared fields”

Table des illustrations

Chapitre I.1

FIGURE 1.1 : SCHÉMA OPÉRATIONNEL DE LA CHAÎNE LASER KHZ AURORE DU CELIA	27
FIGURE 1.2 : ARCHITECTURE DE LA CHAÎNE LASER KHZ AURORE DU CELIA.	27
FIGURE 1.3: PROFILS TRANSVERSES DES MODES EH1N ($N \in \{1 ; 2 ; 3 ; 4\}$) DE PROPAGATION DANS UNE FIBRE CREUSE (EN QUARTZ SF $N(SF)=1.45843$) DE RAYON INTERNE $A=170\mu\text{m}$	30
FIGURE 1.4 : COEFFICIENTS DE COUPLAGE ENTRE UN FAISCEAU LASER GAUSSIEN ET LES MODES EH1N ($N \in \{1 ; 2 ; 3 ; 4\}$) DE PROPAGATION DANS UNE FIBRE CREUSE.	31
FIGURE 1.5 : PHASE NON LINÉAIRE Φ_{NL} DUE À L'AUTOMODULATION DE PHASE ET FRÉQUENCE INSTANTANÉE ω ..	33
FIGURE 1.6 : SPECTRES D'UNE IMPULSION LASER DE 35 FS ÉLARGIE PAR AUTO MODULATION DE PHASE, POUR DIFFÉRENTES VALEURS DE LA PHASE NON LINÉAIRE MAXIMALE Φ_{NL}^{\max}	34
FIGURE 1.7 : ELARGISSEMENT TEMPOREL D'UN IMPULSION GAUSSIENNE DE 35 FS DUE À LA DISPERSION DE VITESSE DE GROUPE POUR UNE PRESSION D'ARGON DE 500 MBAR ($\beta_2 \sim 6,28 \text{ FS}^2/\text{M}$)	38
FIGURE 1.8 : EVOLUTION DU PROFIL TEMPOREL D'UNE IMPULSION GAUSSIENNE DE 35 FS DUE À LA DISPERSION D'ORDRE 2 ET 3 POUR UNE PRESSION D'ARGON DE 500 MBAR.	39
FIGURE 1.9 : PROFIL SPECTRAL D'UNE IMPULSION DE 35 FS SUBISSANT L'AUTOMODULATION DE PHASE ET LA DISPERSION D'ORDRE 2 ET 3, POUR DIFFÉRENTES VALEURS DE LA PHASE NON LINÉAIRE MAXIMALE Φ_{nl}^{\max} ..	40
FIGURE 1.10 : FREQUENCE INSTANTANÉE D'UNE IMPULSION LASER INITIALEMENT DE 35 FS (CENTREE EN 0) SUBISSANT L'EFFET DE L'AUTOMODULATION DE PHASE SEULE (POINTILLE), LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE ET DE LA DISPERSION D'ORDRE 2 (CONTINU) ET LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE , ET DES DISPERSIONS D'ORDRE 2 ET 3 (POINT), POUR UNE PHASE NON LINEAIRE MAXIMALE DE 4,5 π	41
FIGURE 1.11 : PROFIL TEMPOREL D'UNE IMPULSION LASER INITIALEMENT DE 35 FS SUBISSANT L'EFFET DE L'AUTOMODULATION DE PHASE SEULE (POINTILLE), LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE ET DE LA DISPERSION D'ORDRE 2 (CONTINU) ET LES EFFETS COMBINES DE L'AUTOMODULATION DE PHASE , ET DES DISPERSIONS D'ORDRE 2 ET 3 (POINT), POUR UNE PHASE NON LINEAIRE MAXIMALE DE 4,5 π	42
FIGURE 1.12 : DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE POST-COMPRESSION UTILISÉ AU CELIA POUR LA COMPRESSION D'IMPULSION LASER IR 35 FS EN RÉGIME SUB-10FS.	44
FIGURE 1.13 : CONDITIONS INITIALES D'EXPÉRIENCE DE POST-COMPRESSION DANS L'ARGON. L'IMPULSION INJECTÉE À UNE DURÉE (FWHM) DE 39 FS.	48
FIGURE 1.14 : SPECTRES EXPÉRIMENTAUX OBTENUS APRÈS ÉLARGISSEMENT SPECTRAL DANS UN CAPILLAIRE (LFIB=80 CM ET $A=140\mu\text{m}$) REMPLI PAR UNE PRESSION PAR D'ARGON.....	49
FIGURE 1.15: TRACE D'AUTOCORRELATION EN ENTRÉE (GRIS) ET EN SORTIE (NOIR) DE POST COMPRESSION POUR UNE PRESSION DE 807 MBAR D'ARGON.	50
FIGURE 1.14 : SPECTRES EXPÉRIMENTAUX OBTENUS APRÈS ÉLARGISSEMENT SPECTRAL DANS LE NEON.	52

Chapitre I.2

FIGURE 2.1 : SCHÉMA EXPÉRIMENTAL TYPE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS.	60
FIGURE 2.2 : MODÈLE SEMI-CLASSIQUE EN 3 ÉTAPES : IONISATION PAR EFFET TUNNEL, ACCÉLÉRATION DU PAQUET D'ONDE ELECTRONIQUE LIBRE PAR LE CHAMP LASER ET RECOMBINAISON RADIATIVE DE CE PAQUET D'ONDE ELECTRONIQUE.	62
TABLEAU 2.1 : ÉCLAIREMENT LASER CONDUISANT À L'IONISATION D'UN ÉLECTRON PAR SUPPRESSION DE BARRIÈRE DE POTENTIEL.	64
FIGURE 2.3 : TAUX D'IONISATION W _{TUNNEL} DE L'ARGON, LE NÉON ET L'HÉLIUM PAR UN CHAMP LASER D'ELLIPTICITÉ $\epsilon=0$ (TRAIT PLEIN) ET $\epsilon=1$ (POINTILLÉ).	66
FIGURE 2.5: TRAJECTOIRES POSSIBLES D'UN ÉLECTRON LIBRE DANS LE CHAMP LASER EN FONCTION DE SES INSTANTS DE NAISSANCE DANS LE CONTINUUM.	68
FIGURE 2.6: ENERGIE CINÉTIQUE ACQUISE PAR L'ÉLECTRON AU MOMENT DE LA RECOMBINAISON EN FONCTION DE SES PHASES DE NAISSANCES ET DE CES PHASES DE RETOUR	70
FIGURE 2.7: PHASE DE GOUY ϕ_{GOUY} (LIGNE CONTINUE) D'UN FAISCEAU GAUSSIEN ET SA DÉRIVÉE PAR RAPPORT À Z (LIGNE POINTILLE) EN FONCTION DE SA DISTANCE AU POINT FOCAL (FOYER EN $Z/ZR=0$).	74
FIGURE 2.8 : GEOMETRIE DE L'ACCORD DE PHASE EN FONCTION DE LA POSITION RELATIVE FOYER-MILIEU.	76
FIGURE 2.9: DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE GÉNÉRATION ET DÉTECTION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS.	79
FIGURE 2.10: SPECTRES HARMONIQUES GÉNÉRÉS DANS L'ARGON (A), LE KRYPTON (B) ET LE NÉON (C).	81
FIGURE 2.11 : EFFICACITÉ DE DIFFRACTION DU RÉSEAU PLAN JOBIN-YVON DU SPECTROMÈTRE XUV DU CELIA, CALCULÉE POUR UN ANGLE DE DÉVIATION DE 153°.	82
FIGURE 2.12 : ETUDE DE VARIATION DU NOMBRE DE PHOTONS HARMONIQUES GÉNÉRÉS DANS L'ARGON (H17 ET H29) EN FONCTION DE LA PRESSION DE GAZ DANS LA CELLULE.	83
FIGURE 2.13: ETUDE DE VARIATION DU NOMBRE DE PHOTONS HARMONIQUES GÉNÉRÉS DANS LE NEON (H69) EN FONCTION DE LA PRESSION DE GAZ DANS LA CELLULE.	84
FIGURE 2.14: SPECTRE HARMONIQUE OBTENU DANS L'ARGON POUR DEUX PRESSIONS : 12 MBAR (POINTILLÉ) OPTIMISE LES HARMONIQUES DU PLATEAU ET 38 MBAR (CONTINU) OPTIMISE LES HARMONIQUES DU CUTOFF.	85
FIGURE 2.15: EVOLUTION DU SIGNAL INTÉGRÉ DE H17 ET H29 GÉNÉRÉ DANS L'ARGON EN FONCTION DE LA POSITION RELATIVE FOYER-MILIEU DE CELLULE (MILIEU DE CELLULE EN $Z=0$).	86

Chapitre II.1

FIGURE 1.1 : EVOLUTION DU SIGNAL HARMONIQUE EXPÉRIMENTAL EN FONCTION DU DEGRÉ D'ELLIPTICITÉ DU FONDAMENTALE POUR LES HARMONIQUES H15, H21 ET H27 GÉNÉRÉS PAR UNE IMPULSION DE 35 FS DANS LE KRYPTON.	98
FIGURE 1.2 : PRINCIPE DU CONFINEMENT TEMPOREL DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUE D'ORDRES ÉLEVÉS PAR VARIATION TEMPORELLE DE L'ETAT DE POLARISATION FONDAMENTAL.	99
FIGURE 1.3 : ACTION DE LA LAME QUART D'ONDE MULTI ORDRE SUR LE CHAMP LASER INITIALEMENT POLARISÉ LINEAIREMENT.	101
FIGURE 1.4 : PROFIL D'INTENSITÉ D'UNE IMPULSION IR (10 FS) EN SORTIE DE LAME QUART D'ONDE MULTI ORDRE (POINTILLE) INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS ET EVOLUTION DE SON DEGRE D'ELLIPTICITÉ AU COURS DU TEMPS (CONTINU) POUR $\alpha=45^\circ$	103
FIGURE 1.5 : ORIENTATION DE LA LAME QUART D'ONDE MULTI-ORDRE.	104
FIGURE 1.6 : ACTION COUPLÉE DE LA LAME N°1 ET 2 SUR LE CHAMP LASER INITIALEMENT POLARISÉ LINEAIREMENT.	105
FIGURE 1.7 : PROFIL D'INTENSITÉ D'UNE IMPULSION IR (10 FS) EN SORTIE DU SYSTÈME DE LAME QUART D'ONDE (POINTILLE) INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS ET EVOLUTION DE SON DEGRE D'ELLIPTICITÉ AU COURS DU TEMPS (CONTINU) POUR $\alpha=45^\circ$ ET $\beta=0^\circ$	106
FIGURE 1.8 : PROFIL D'INTENSITÉ D'UNE IMPULSION IR (10 FS) EN SORTIE DU SYSTÈME DE LAME QUART D'ONDE (POINTILLE) INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS ET EVOLUTION DE SON DEGRE D'ELLIPTICITÉ ET DE L'ORIENTATION DU GRAND AXE DE POLARISATION AU COURS DU TEMPS : $\alpha=45^\circ$ ET $\beta=[0^\circ; 72^\circ; 45^\circ]$	110
FIGURE 1.9 : CHAMP ELECTRIQUE LASER (IMPULSION DE DURÉE 10FS) EN SORTIE DU SYSTÈME DE LAME QUART D'ONDE INTRODUISANT UN DÉLAI DE 10 FS EN CONFIGURATION LARGE ET ÉTROITE.	112

FIGURE 1.10 : DURÉE DE LA PORTE D' ELLIPTICITE EN FONCTION DE L'ANGLE DE LA SECONDE LAME PAR RAPPORT À LA PREMIÈRE LAME : α FIXÉ À 45° ET $\beta \in [0 ; 90^\circ]$	113
---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------	-----

Chapitre II.2

FIGURE 2.1 : DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL POUR L'ÉTUDE DE L'INFLUENCE SUR LE SPECTRE HARMONIQUE DE LA PORTE D'ELLIPTICITÉ.	136
FIGURE 2.2 : SPECTRE HARMONIQUE GÉNÉRÉ DANS L'ARGON PAR UNE IMPULSION LASER DE 10 FS ET UNE PORTE D'ELLIPTICITE ($\delta\tau=10\text{fs}$) EN CONFIGURATION SANS PORTE, PORTE LARGE ET PORTE ÉTROITE.....	138
FIGURE 2.3 : ÉVOLUTION CONTINUE DE LA LARGEUR DES HARMONIQUES H15 ET H17 EN FONCTION DE β	139
FIGURE 2.4 : IONISATION AU-DESSUS DU SEUIL PAR DES PHOTONS HARMONIQUES $\hbar\omega_Q$ ET $\hbar\omega_{Q+2}$ (A) ET HABILLAGE PAR ABSORPTION OU EMISSION D'UN PHOTON IR $\hbar\omega_{IR}$ (B) CONDUISANT À L'APPARITION D'UNE BANDE LATÉRALE INTER-HARMONIQUE BLQ+1.....	141
FIGURE 2.5 : DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL DE CORRELATION CROISÉE À DEUX COULEURS.	143
FIGURE 2.6 : SPECTRE DE PHOTOÉLECTRONS EN FONCTION DE LEUR ENERGIE ET DU DÉLAI ENTRE LES IMPULSIONS VUV ET IR. LES LIGNES CONTINUES INDÉPENDANTES DU DÉLAI CORRESPONDENT AUX HARMONIQUES 13 À 21 DE L'ARGON. LORSQUE LES IMPULSIONS SE RECOUVRENT TEMPORELLEMENT DES BANDES LATÉRALES (BL) APPARAISSENT ENTRE LES STRUCTURES HARMONIQUES.	144
FIGURE 2.7 : TRACES DE CORRELATION CROISÉE DE LA BANDE LATÉRALE BL20 SITUÉE ENTRE LES HARMONIQUES H19 ET H21 EN CONFIGURATION « SANS PORTE » (CONTINU), « PORTE LARGE » (POINTILLÉ) ET « PORTE ÉTROITE » (CERCLE).	145
FIGURE 2.8 : DURÉE (FWHM) DES TRACES DE CORRELATIONS CROISÉES CORRESPONDANT AUX BANDES LATÉRALES BL14 À BL20 EN CONFIGURATION « SANS PORTE » (CONTINU-ÉTOILE), « PORTE LARGE » (POINTILLÉ - TRIANGLE) ET « PORTE ÉTROITE » (CONTINU-CERCLE).	146
FIGURE 2.9 : DISPOSITIF DE CORRELATION CROISÉE À DEUX COULEURS EN GÉOMÉTRIE COLLINÉAIRE.	148
FIGURE 2.10 : SPECTRE DE PHOTOÉLECTRONS EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR.	149
FIGURE 2.11 : TRACES DE CORRELATIONS CROISÉES CORRESPONDANT A LA BANDE LATÉRALE BL18 EN CONFIGURATION « SANS PORTE » (CERCLE), « PORTE LARGE » (CARRÉ) ET « PORTE ÉTROITE » (TRIANGLE).	149

Chapitre II.3

FIGURE 3.1: DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL.....	154
FIGURE 3.2 : PROFIL TEMPOREL(CONTINU) ET DEGRÉ D'ELLIPTICITÉ (POINTILLÉ) D'UNE IMPULSION IR DE 9 FS AYANT TRAVERSÉE LE SYSTÈME DE LAMES QUART D'ONDE INTRODUISANT UN DÉLAI $\delta\tau=15,32\text{ fs}$	155
FIGURE 3.3 : (HAUT) SPECTRE HARMONIQUE EN CONFIGURATION « PORTE LARGE ». (BAS) SPECTRE HARMONIQUE EN CONFIGURATION « PORTE ETROITE ».	157
FIGURE 3.4 : SPECTRE VUV HARMONIQUE EN CONFIGURATION « SANS PORTE » POUR UNE IMPULSION GENERATRICE DE 10 FS, UNE PRESSION D'ARGON DE 40 MBAR ET UN ECLAIREMENT DE $1,6.10^{15}\text{ W/cm}^2$	159
FIGURE 3.5 : SPECTRE VUV HARMONIQUE EN CONFIGURATION « PORTE ETROITE» POUR UNE IMPULSION GENERATRICE DE 10 FS, UNE PRESSION D'ARGON DE 40 MBAR ET UN ECLAIREMENT DE $3,3.10^{14}\text{ W/cm}^2$	159
FIGURE 3.4 : TRAIN ATTOSÉCONDE CALCULÉ EN CONFIGURATION « PORTE ÉTROITE » RESPECTANT LES CONDITIONS EXPÉRIMENTALES POUR QUATRE VALEURS DE LA PHASE ABSOLUE DU CHAMP LASER. POUR $\varphi_{CPE} = (\text{DISQUEBLANC})$ DEUX IMPULSIONS ATTOSÉCONDES SONT THÉORIQUEMENT ÉMISENT, POUR UNE $\varphi_{CPE} = \pi/2$ (CONTINU), UNE IMPULSION ATTOSÉCONDE UNIQUE EST THÉORIQUEMENT PRODUITE.....	160

Chapitre III.1

TABLEAU 1.1 : TRANSITIONS DIPOLAIRES ÉLECTRIQUES À DEUX PHOTONS.	170
FIGURE 1.1 : PHASE ATOMIQUE $\Delta\phi_{at,q+1}$ CALCULÉ À PARTIR DE L'ARTICLE [6] (CERCLE) ET À PARTIR DU CODE DE RÉSOLUTION DE L'ÉQUATION DE SCHRODINGER DÉPENDANTE DU TEMPS DEVELOPPE AU CELIA.	170

Chapitre III.2

FIGURE 2.2 : SPECTRE DE PHOTOELECTRON OBTENU EN FONCTION DE L'ANGLE DE LAME (L1) ET DE L'ORDRE HARMONIQUE.	179
FIGURE 2.3 : SPECTRE DE PHOTOELECTRON OBTENU EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR ET DE L'ORDRE HARMONIQUE.	180
FIGURE 2.4 : AMPLITUDE DES BANDES LATÉRALES 14 (HAUT) À 22 (BAS) EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR.	181
FIGURE 2.5: (A) PHASES HARMONIQUES RELATIVES EXTRAITES DES OSCILATIONS D'AMPLITUDE DE BANDES LATÉRALES. (B) DISPERSION LINÉAIRE DES TEMPS D'ÉMISSION HARMONIQUE.	182
FIGURE 2.6: PROFIL TEMPOREL RECONSTRUIT À PARTIR DE LA DÉTERMINATION DES PHASES RELATIVES HARMONIQUES POUR LES HARMONIQUES 13 À 23 GÉNÉRÉES DANS LE KRYPTION PAR DES IMPULSIONS LASER DE 40FS.	184
FIGURE 2.7 : SPECTRE DE PHOTOELECTRON OBTENU EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR ET DE L'ORDRE HARMONIQUE	186
FIGURE 2.4 : AMPLITUDE DES BANDES LATÉRALES 14 À 24 EN FONCTION DU DÉLAI VUV-IR.	187
FIGURE 2.8 : (A) PHASES HARMONIQUES RELATIVES EXTRAITES DES OSCILATIONS D'AMPLITUDE DE BANDES LATÉRALES. (B) DISPERSION LINÉAIRE DES TEMPS D'ÉMISSION HARMONIQUE.	188
FIGURE 2.9: PROFIL TEMPOREL RECONSTRUIT À PARTIR DE LA DÉTERMINATION DES PHASES RELATIVES HARMONIQUES POUR LES HARMONIQUES 13 À 25 GÉNÉRÉES DANS L' ARGON PAR DES IMPULSIONS LASER DE 9 FS.	189
FIGURE 2.10 : PROFIL TEMPOREL RECONSTRUIT À PARTIR DE LA DÉTERMINATION DES PHASES RELATIVES HARMONIQUES EN PRENANT EN COMPTE L'ENVELOPPE VUV.	190

BIBLIOGRAPHIE GENERALE

Bibliographie générale

- [Augst] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2212–2215 (1989)
“Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field”
- [Altucci] C. Altucci, T. Starczewski, E. Mével, C. G. Wahlström, B. Carré and A. L’Huillier. *Opt. Soc. Am B* **13**, 148 (1996)
“Influence of atomic density in high-order harmonic generation.”
- C. Altucci, C. Delfin, L. Roos, M. B. Gaarde, A. L’huillier, I. Mercer, T. Starczewski and C. G. Wahlström. *Phys. rev. A* **58**, 3934 (1998).
“Frequency-resolved time-gated high-order harmonics”
- [Agrawal] G. P. Agrawal. *Third edition, Academic Press. (2001)*
“Non linear fiber optics”
- [Auguste] T. Auguste, P. Monot, L.A. Lompré, G. Mainfray and C. Manus. *J. Phys. B* **25**, 4181- 4194 (1992).
“Multiply charged ions produced in noble gases by a 1 ps laser pulse at $\lambda=1053$ nm”
- [Ammosov] M.V. Ammosov, N.B. Delone and V. P. Krainov *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191 (1986)
“Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field.”
- [Antoine] Ph. Antoine, B. Piraux and A. Maquet. *Phys. Rev. A.* **51**, R1750 (1995)

“Time profile of harmonics generated by a single atom in a strong electromagnetic field”

Ph. Antoine, A. L’Huillier and M. Lewenstein. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 1234 (1996)

“Attosecond pulse trains using high-order harmonics”

Ph. Antoine, A. L’Huillier, P. Salières and M. Lewenstein. *Phys. Rev. A* **53**, 1725 (1996)

“Theory of high-harmonic generation by an elliptically polarized laser field”

Ph. Antoine, D. B. Milosevic, A. L’Huillier, M. B. Gaarde, P. Salières and M. Lewenstein. *Phys. Rev. A* **56**, 4960 (1997).

“Generation of attosecond pulses in macroscopique media.”

[Balcou] Ph. Balcou, P. Salières, A. L’Huillier and M. Lewenstein. *Phys. Rev. A* **55**, 3204 (1997)

“Generalized phse-matching conditions for high harmonic: The role of field-gradient forces”

[Baltuška] A. Baltuška, Th. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, Ch. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakovlev, A. Scrinzi, T. W. Hänsch and F. Krausz. *Nature (London)* **421**, 611 (2003).

“Attosecond control of electronic processes by intense light fields”

[Bethe] Bethe and Salpeter. *Springer-velag, Berlin 1975*

“ Quantum mechanics of one and two electron atoms”

[Brabec] T. Brabec, C. Spielmann, P. E. Curley, F. Krausz. *Opt. Lett.* **17**, 1292-1294 (1992)

“Kerr lens mode locking.”

- [Budil] K.S. Budil, P. Salières, A. L’Huillier, T. Ditmire and N. D. Perry *Phys. Rev. A* **48**, 3437 (1993)
“Influence of ellipticity on harmonic generation.”
- [Christov] I. P. Christov, J. Zhou, J. Peatross, A. Rundquist, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn *Phys. Rev. lett* **77**, 1743 (1996)
“Non-adiabatic effects in high-harmonic generation with ultra-short pulses.”
- [Constant] E. Constant. *PhD thesis, Faculté des Sciences à l’Université de Sherbrooke, Québec, Canada* (1997).
“Champs laser intenses ultracourts : Application à la mesure et création d’impulsions attosecondes et à l’imagerie de paquets d’ondes moléculaires par explosion coulombienne.”
- E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Leblanc, F. Salin and P. Agostini *Phys. Rev. lett* **74**, 3776 (1995)
“Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment.”
- [Cormier] E. Cormier, I. A. Wamsley, E. M. Kosik, A. S. Wyatt, L. Corner and L. F. DiMauro. *PRL* **94**, 033905 (2005)
“Self-referency spectrally or spatially encoded spectral interferometry or the complete characterization of attosecond electromagnetic pulses.”
- [Corkum] P. B Corkum, N. H. Brunett M. Y. Ivanov *Opt. Lett.* **19**, 1870 (1993)
“Subfemtosecond pulses.”
- P. B. Corkum. *Phys. Rev. Lett.*, **71** (13), 1994–1997 (1993)
“Plasma perspective on strong field multiphoton ionization”
- [Déroff] L. Le Déroff, P. Salières and B. Carré. *Opt. Lett.* **23**, 1544 (1998)
“Beam-quality measurement of a focused high-order-harmonic beam.”

L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, D. Joyeux and D. Phalippou. *Phys. Rev. A* **61**, 43802 (2000)

“Measurement of the degree of spatial coherence of high-order-harmonics using a fresnel-mirror interferometer ”

[Ditmire] T. Ditmire, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer and M. Hutchinson. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4756 (1996)
“Spatial coherence measurements of soft x-ray radiation produced by high-order-harmonic generation”

[Drescher] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann and F. Krausz. *Nature*, **439**, 803. (2002).
“Timeresolved atomic inner-shell spectroscopy.”

[Dorchies] **Ph.D thesis**, Ecole Polytechnique, Palaiseau , Paris (1998).
“Etude du sillage laser : application à l'accélération d'électrons”

[Farkas] G. Farkas and C. Toth. *Phys. Lett. A.* **168**, 447 (1992).
“Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion process in rare gases”

[Ferray] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray and C. Manus. *J. Phys. B*, **21**: L31 (1988).
“Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases”

[Georgiev] D. Georgiev, J. Herrmann, U. Stamm. *Opt. Commun.* **92**, 368 (1992)
“Cavity design for optimum nonlinear absorption in Kerr-lens mode-locked solid-state lasers.”

[Gouy] L. G. Gouy, C. R. Acad. Sci. Paris **110**, 1251 (1890)

- [Harris] S. Harris, J. Macklin, and T. Hänsch, *Opt. Comm.*, **100**, 487 (1993).
“Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation.”
- [Hergott] J. F. Hergott, M Kovac v, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Sali res and B. Carr . *Phys. Rev. A* **66**, 21801 (2002)
“Extreme-ultraviolet hight_order harmonic pulses in the microjoules range”
- [Herrmann] J. Herrmann *J. Opt. Soc. Am. B* **11**, 498 (1994)
“Theory of Kerr lens mode-locking: role of self focusing and radially varying gain.”
- [Itatani] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pepin, J.C. Kieffer, P.B. Corkum and D. M. Villeneuve. *Nature*, **432** (7019), 867–871 (2004).
“Tomographic imaging of molecular orbitals.”
- [Kosik] E. M. Kosik, L. Corner, A. S. Wayatt, E. Cormier, I. A. Walmsley and L. F. DiMauro..*Journal of modern optics* **52**, 361-378 (2005)
“Complete characterisation of attosecond pulses”
- [Kovac v] M. Kovac v, Y. Mairesse, E. Priori, H. Merdji, O. Tcherbakoff, P. Montchicourt, P. Breger, E. M vel, E. Constant, P. Sali res, B. Carr  et P. Agostini. *The Europ an Physical journal D* **26**, 79, (2003).
“Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating”
- [Keldysh] V. Keldysh. *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965)
“Ionization in the field of strong electromagnetic wave.”
- [Kienberger] R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker, Ch. Spielmann, M. Kitzler, A. Scrinzi, M. Weiland, Th. Westrewalbesloh, U. Kleinberg, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krauzs. *Science* **297**, 1144 (2002).
“Steering attosecond electron wave packets with light”

- [Kulander] K. C. Kulander, K. J. Schaferand J. L. Krausse. *Plenum Press (1993)*
“Atoms in intense laser field.”
- [Lambropoulos] P. Lambropoulos, P. Maragakis and E. Cormier. *Laser. Phys. 8, 625 (1998)*
“Atoms in short, intense laser pulses: a review of recent progress in ab initio approaches”
- [Lewenstein] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier ans P. B. Corkum. *Phys. Rev. A. 49, 2117 (1994)*
“Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields”
- [Hauri] C. P, Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert and U. Keller. *Appl. Phys B 79, 673-677 (2004)*
“Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation”
- [Hentsche] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. B. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krauzs. *Nature 414, 509 (2001).*
“Attosecond metrology”
- [L’Huillier] A. L’Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, Ph. Balcou, M. Y. Ivanov, C. G. Wahlström and J. Larsson *Phys. Rev. A 48, R3433 (1993)*
“High-order harmonic generation cutoff.”
- [Lindner] F. Lindner, G. G. Paulus, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius and F. Krausz. *Phys. Rev. Lett. 92, 113001 (2004)*
“Gouy phse shift for few-cycle laser pulses”.

- [Lyngå] C. Lyngå, M. B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L’Huillier and C-G. Wahlström. *Phys. Rev. A* **60**, 4823 (1999)
“Temporal coherence of high-order-harmonics”
- [Macklin] J. J. Macklin, J. D. Kmetec and C. L. Gordon *Phys. Rev. lett* **70**, 776 (1993)
“High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses.”
- [Magni] V. Magni, G. Cerullo, S . De Silvestri. *Opt. Commun.* **96**, 348 (1993)
“ABCD matrix analysis of propagation of gaussian beams through Kerr media”
- [Marcatili] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer. *Bell Syst. Tech. J.* **July**, 1783 (1964)
“Hollow metallic an dielectric waveguides for long distance optical transmissions and lasers”
- [Mairesse] Y. Mairesse, A. Bohan, L. J. Fransinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Montchicourt, P. Breger, M. Kovacěv, R. Taïeb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini and P. Salières. *Science* **302**, 1540 (2003).
“Attosecond synchronisation of high-harmonic soft x-rays”
Y. Mairesse and F. Quéré. *PRA* **71**, 011401 (2005)
“Frequency-resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Burst”
- [McPherson] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. McIntyre, K. Boyer and C. K Rhodes. *J. Opt. Soc. Am. B*, **4**, 595 (1987).
“Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases”
- [Mével] E. Mével, O. Tcgerbakoff, F. Salin and E. Constant. *J. Opt. Soc. Am* **B20**, 105 (2002)
“Extracavity compression technique for high-energy femtosecond pulses”

Bibliographie générale

- [Miyagi] Mitsunobu Miyagi and Shigeo Nishida. *Appl. Opt* **18**, 678 (1979)
“Pulse spreading in a single-mode fiber due to third-order dispersion“
- [Muller] H. G. Muller. *Appl. Phys. B*. **74**, S17 (2002).
“ Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transition“
- [Nisoli] M. Nisoli, S.D. Silvestri and O. Svelto. *Appl. Phys.* **68**, 2793-2795 (1996)
“Generation of a high energy 10fs pulses by a new pulse compression technique“
- M. Nisoli, S.D. Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania and F. Krausz. *Opt. Lett.* **22**, 522-524 (1997)
“Compression of high-energy laser pulses below 5fs“
- [Oishi] Yu Oishi, Akira Suda, *Katsumi Midorikawa and Fumihiko Kannari. Rev. Sci. Instrum.* **76**, 093114 (2005)
“ Sub-10 fs, multimillijoule laser system “
- [Papadogiannis] N. A. Papadogiannis, G. Nersisyan, E. Goulielmakis, M. Decros, M. Tatarakis, E. Hertz, L. A. A. Nikolopoulos and D. Charalambidis. *Proceeding SPIE* (2003).
- [Paul] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini. *Science* **292**, 1689 (2001).
“Observation of a train of attosecond pulses from hight harmonic generation”
- [Pessot] M. Pessot, P. Maine and G. Mourou *Opt. Com.* **62**, 419 (1987)
“1000 times expansion/compression of optical pulses for chirped pulse amplification”

- [Salières] P. Salières, T. Ditmire, K. S. Budil, M. D. Perry and A. L’Huillier. *J. Phys. B.* **27**, L217 (1994).
P. Salières, A. L’Huillier and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
“Coherence control of high-order-harmonics”
- [Schenkel] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. D. Silvestri and O. Svelto. *Opt. Lett.* **28**, 1987-1989 (2003)
“Generation of 3.8 fs pulses from adaptative compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum”
- [Schins] J. M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. C. Constantinescu, H. G. Muller, A. Bouhal, G. Grillon, A. Antonetti and A. Mysyrowicz. *J. Opt. Soc. Am. B* **13** (1995)
“ Cross-correlation measurements of femtosecond extreme ultraviolet high-order harmonics”
- [Sokolov] A. V. Sokolov, D. R. Walker, D. D. Yavuz, G. Y. Yin, and S. E. Harris. *Phys. Rev. Lett.* **85**, 562-565
“Raman Generation by Phased and Antiphased Molecular States”
- [Seres] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, Ch. Strel, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, Ch. Spielmann and F. Krausz. *Nature* **443**, 596 (2005)
“ Coherent kiloelectronvolt X-ray emission from laser-driven atoms”
- [Sola] I. J. Sola, A. Zaïr, R. Lopez-Martens, P. Johnson, K. Varju, E. Cormier, J. Mauritsson, A. L’Huillier, V. Strelkov, E. Mevel and E. Constant. *Submitted to PRA* (2005).
“ Temporal and spectral studies of high-order harmonics generated by polarization-modulated infrared fields”

- [Strelkov] V. Strelkov, A. Zaïr, O. Tcherbakoff, R. Lopez-Martens, E. Cormier, E. Mével and E. Constant. *Appl. Phys. B* **78**, 879-884 (2004).
“Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental”
- [Suda] Akira Suda, Masatoshi Hatayama, Keigo Nagasaka and Katsumi Midorikawa. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 111116 (2005)
“Generation of sub-10-fs, 5-mJ-optical pulses using a hollow fiber with a pressure gradient”
- [Takahashi] E. J; Takahashi, Y. Nabekawa and K. Midorikawa. *Opt.Lett.* **27**, 1920 (2002)
“Generation of $10\mu\text{J}$ coherent extreme-ultraviolet light pulse by use of high-order harmonic”
- [Tcherbakoff] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge and E. Constant. *Phys. Rev. A* **68**, 43804 (2003).
“Time-gate high-order harmonic generation”
- [Thomlinson] W. J. Thomlinson, R. H. Stolen and C.V. Shank. *J. Opt. Soc. Am B* **1**, 139 (1984)
“Compression of optical pulses chirped by self-phase modulation in fibers”
- [Tzallas] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte and G. D. Tsakiris. *Nature* **426**, 267 (2003).
“Direct observation of attosecond light bunching”
- [Quéré] F. Quéré, Y. Mairesse and J. Itatani. *Journal of modern optics* **52**, 339-360 (2005)
“Temporal characterisation of attosecond xuv fields”

Bibliographie générale

- [Zaïr] A. Zaïr, O. Tcherbakoff, E. Mével, E. Constant, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L'Huillier. *Appl. Phys. B.* **78**, 869 (2004).
“Time-resolved measurement of high order harmonics confined by polarization gating”
A. Zaïr, I. J. Sola, R. Lopez-Martens, P. Johnsson, E. Cormier, K. Varjù, J. Mauritsson, D. Descamps, V. Strelkov, A. L'Huillier, E. Mével and E. Constant. *J. Phys. IV France.* **127**, 91 (2005).
“Contrôle de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par modulation de l'ellipticité du fondamental”
- [Zewail] A. Zewail. *J. Phys. Chem. A*, **104** (2000)
“Femtochemistry : Atomic-scale dynamics of the chemical bond”

