HAL
open science

Confinement Temporel de la Génération d'Harmoniques d'Ordres Élevés

Olivier Tcherbakoff

To cite this version:

Olivier Tcherbakoff. Confinement Temporel de la Génération d'Harmoniques d'Ordres Élevés. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2004. Français. NNT : . tel-00010739v2

HAL Id: tel-00010739

https://theses.hal.science/tel-00010739v2

Submitted on 4 Nov 2005

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

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

$N°$d'ordre : 2833

THÈSE

présentée à

L'UNIVERSITÉ BORDEAUX I

ÉCOLE DOCTORALE DE SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

par **Olivier TCHERBAKOFF**

POUR OBTENIR LE GRADE DE

DOCTEUR

SPÉCIALITÉ: Laser & Matière Dense

CONFINEMENT TEMPOREL DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS

Soutenue le : 5 Juillet 2004

Après avis de :

Mr.	**Bertrand CARRÉ**	Responsable de Groupe	**Rapporteur**
Mr.	**Pierre AGOSTINI**	Conseiller Scientifique	**Rapporteur**

Devant la commission d'examen formée de :

Mr.	**Christian STENZ**	Professeur	**Président**
Mr.	**Éric MÉVEL**	Maître de Conférence	**Examinateur**
Mr.	**Luis ROSO**	Professeur	**Examinateur**
Mr.	**François SALIN**	Directeur de Recherche	**Examinateur**

- 2004 -

"Entre
Ce que je pense
Ce que je veux dire
Ce que je crois dire
Ce que je dis
Ce que vous avez envie d'entendre
Ce que vous croyez entendre
Ce que vous entendez
Ce que vous avez envie de comprendre
Ce que vous comprenez
Il y a dix possibilités qu'on ait des difficultés à communiquer.
Mais essayons quand même...."

Bernard Weber

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au Centre Lasers Intenses et Applications sous l'encadrement d'Éric Mével et d'Éric Constant. C'est à eux que j'adresse toute ma reconnaissance pour m'avoir si chaleureusement accueilli, de m'avoir soutenu tout le long de ce travail et, surtout, tant appris.
Je remercie François Salin pour avoir accepté la direction de cette thèse et pour sa disponibilité à des heures tardives pour résoudre des "soucis techniques" sur ce bon vieux femto.
Je remercie, également, les membres du jury de m'avoir fait l'honneur de leur présence. Tout d'abord, Bertrand Carré et Pierre Agostini qui ont accepté d'examiner en détail ce manuscrit, Christian Stenz en qualité de président et enfin Luis Roso, Éric Mével et François Salin.
J'exprime ma gratitude à l'ensemble des membres du laboratoires pour la qualité de leurs relations humaines. Merci, à Sophie Aussel pour ces agréables conversations, à Gilles Darpentigny pour sa disponiblité et sa gentillesse bien que ma présence dans son bureau soit synonyme de problème, à Éric Cormier pour avoir toujours répondu à mes questions et pour son inébranlable présence aux instants fatidiques, surtout en fin de soirée. Je tiens à remercier Inigo, Amelle, Johnatan, Dominique et tous les membres du laboratoires avec qui j'ai collaboré ou qui m'ont aidé.
Cette thèse m'a également permis de rencontrer d'autres environnements, notamment à travers différentes collaborations. Je remercie Bertrand Carré de m'avoir accueilli dans son équipe au CEA-Saclay, ainsi que ses membres; Pascal Salières, Hamed Merdji et Milutin Kovačev. J'ai eu, également, l'opportunité de travailler au Lund Laser Center en Suède, je remercie C.G. Wahlström et Anne L'Huillier de m'avoir reçu, ainsi que Rodrigo López-Martens pour qui la Suède a le goût de la rose.

J'associe à ce travail mes compères du laboratoire et associées Fabien, Cécile, Tony et Estelle, Dominique, Christophe, Jérôme et Cyril... pour leur soutien moral et pour leur prêt gracieux d'appartement. Je remercie Georgina pour sa bonne humeur infaillible, Jêrome et Davy pour ces parties de foot exutoires. Sans oublier ma famille Bretonne qui s'agrandit petit à petit. Pour finir, bien entendu, mon immense gratitude à Carole pour son appui indéfectible tout le long de ce travail, et à toute ma famille pour leur soutien et leur affection.

Table des matières

Introduction générale **1**

I La génération d'harmoniques d'ordres élevés **7**

1 Les fondamentaux **9**

1.1 Les régimes d'interactions en champ fort 9
1.2 La génération d'harmoniques d'ordres élevés 12
1.3 Réponse de l'atome unique 14
1.3.1 Modèle semi-classique 14
1.3.2 Approche quantique 18
1.4 Réponse macroscopique du milieu 21
1.4.1 Accord de phase 23
1.4.2 Influence de l'absorption 28
1.5 Source d'impulsions attosecondes 30

2 Propriétés de la génération d'harmoniques **35**

2.1 Caractéristiques principales 35
2.1.1 Caractéristiques spatiales 35
2.1.2 Cohérence temporelle 36
2.1.3 Énergie des harmoniques 37
2.2 Les paramètres de l'émission harmonique 38
2.2.1 Dépendance en fonction de la nature du milieu 38
2.2.2 Dépendance en fonction de l'éclairement laser 39
2.2.3 Dépendance en fonction de la pression 39
2.2.4 Dépendance en fonction de la longueur d'onde 40
2.2.5 Dépendance en fonction de la durée de l'impulsion 41
2.2.6 Dépendance en fonction de la géométrie de focalisation 42
2.2.7 Dépendance en fonction de la géométrie du milieu 42
2.2.8 Dépendance en fonction de l'ellipticité du fondamental 43

3 Source harmonique du CELIA **45**
3.1 Système laser du CELIA 45
3.1.1 Génération d'impulsions IR femtosecondes 45
3.1.2 Diagnostics temporels 47
3.2 Dispositif de génération d'harmoniques 49
3.3 Optimisation des harmoniques basses 52
3.4 Spectres caractéristiques 55

4 Applications **57**
4.1 Expériences pompe-sonde en spectroscopie 57
4.2 Interférométrie spatiale et spectrale dans le domaine XUV 58
4.3 Fenêtre de l'eau 59
4.4 Physique attoseconde 59

II Confinement temporel de l'émission harmonique **61**

1 État de l'art **63**

2 Confinement temporel de l'émission VUV par modulation de la polarisation **67**
2.1 Principe 67
2.2 Association de lames quart d'onde 69
2.2.1 Lame quart d'onde multi-ordre 69
2.2.2 Lame quart d'onde d'ordre zéro 71
2.2.3 Profil temporel de l'intensité IR 76
2.3 Définition de la durée de la porte d'ellipticité τ_G 79
2.4 Influence de la chromaticité sur la porte d'ellipticité 80
2.5 Limite de validité 83
2.6 Efficacité de la génération d'harmoniques en porte étroite 84

3 Effet du confinement dans le domaine spectral **87**
3.1 But : Mise en évidence 87
3.2 Montage expérimental 87
3.3 Les contributions à la largeur spectrale des harmoniques 89
3.4 Effet spectral du confinement 89
3.5 Influence de la phase atomique 93
3.6 Conclusion 96
3.7 Confirmation de l'effet du confinement à Saclay 96
3.8 Conclusion 101

4 Mesure temporelle du confinement de l'émission harmonique **103**
4.1 Technique : inter-corrélation 103
4.2 Dispositif expérimental 106
4.3 Les Résultats 110
4.3.1 Spectre de photoélectrons 110
4.3.2 Mesure temporelle du confinement 111
4.3.3 Évolution de la largeur des bandes latérales en fonction de la durée de la porte 113
4.4 Conclusion 114

5 Développements et perspectives **115**

III Vers la génération d'une impulsion attoseconde unique **119**

1 Post-Compression d'impulsions laser **121**
1.1 Principes généraux de la post-compression 121
1.1.1 L'état de l'art 127
1.2 Technique de post-compression développée au CELIA 127
1.2.1 Dispositif expérimental 128
1.2.2 Élargissement effectif du spectre 128
1.2.3 Homogénéité radiale du spectre 129
1.2.4 Les durées obtenues 130
1.2.5 Perspectives : hautes énergies 132
1.2.6 Hautes énergies 132
1.3 Conclusion 133

2 Mesure temporelle des impulsions VUV **135**
2.1 Techniques existantes 135
2.2 Autocorrélation du second ordre 138
2.2.1 État de l'art 140
2.3 Transitions à deux photons 141
2.3.1 Dispositif expérimental 145
2.3.2 Caractéristiques du flux VUV 148
2.3.3 Résultats expérimentaux 149
2.4 Conclusion 161

Conclusion générale 163

Annexes 167

Annexe A 169

Annexe B 181

Bibliographie 187

Articles 208

Introduction générale

Dès la naissance du premier laser en 1960, la communauté scientifique s'est appropriée cet outil unique pour accroître les connaissances dans les domaines de la physique, la médecine, la biologie.
L'avènement des sources lasers impulsionnelles nanosecondes et picosecondes a permis l'étude de la dynamique de processus très courts. Néanmoins, la dynamique de nombreux mécanismes restait inaccessible avec ces durées. À la fin des années 80, le développement rapide des sources lasers femtosecondes ($1\ fs = 10^{-15}\ s$) a été rendu possible grâce à l'avancée majeure que fut l'amplification à dérive de fréquence [Strikland *et al.* 85]. Les lasers femtosecondes ont aidé à la compréhension d'un grand nombre de processus allant des sciences fondamentales aux sciences appliquées. On peut citer, par exemple, les études des réactions chimiques ou biologiques, de physique des semi-conducteurs...
Les applications initiales des lasers femtosecondes concernaient essentiellement la "spectroscopie résolue en temps". La montée en puissance des sources femtosecondes a permis d'étendre l'étude de l'interaction laser-matière aux champs forts et d'ouvrir ainsi des domaines de la physique complètement nouveaux. Ces sources délivrent des impulsions ultra-brèves de l'ordre de la dizaine de femtosecondes et de haute énergie ($> mJ$) avec des taux de répétition élevés. En focalisant ces impulsions, on peut atteindre des éclairements de l'ordre de $10^{20}\ W/cm^2$.
L'étude de ces interactions laser-matière permet de concevoir de nouvelles sources cohérentes à impulsions très brèves de l'ordre de la centaine d'*attosecondes* ($1\ as = 10^{-18}\ s$) et de très courtes longueurs d'ondes, en particulier dans l'extrême ultraviolet (cf. figure 1). Ces nouveaux instruments d'étude permettent d'accéder à une meilleure résolution et d'étudier des mécanismes chimiques ou biologiques "en temps réel" inaccessibles jusqu'à présent. Une condition importante pour entreprendre ces études est de produire une **impulsion attoseconde unique**. Actuellement, il existe 2 sources potentielles pour la génération d'impulsions électromagnétiques ultracourtes attosecondes.

La première se base sur la diffusion Raman stimulée [Kaplan 94, Sokolov *et al.* 00]. Le principe est le suivant : dans un gaz moléculaire, une première impulsion laser intense excite de manière cohérente le mouvement vibrationnel ou rotationnel des molécules. Pour une

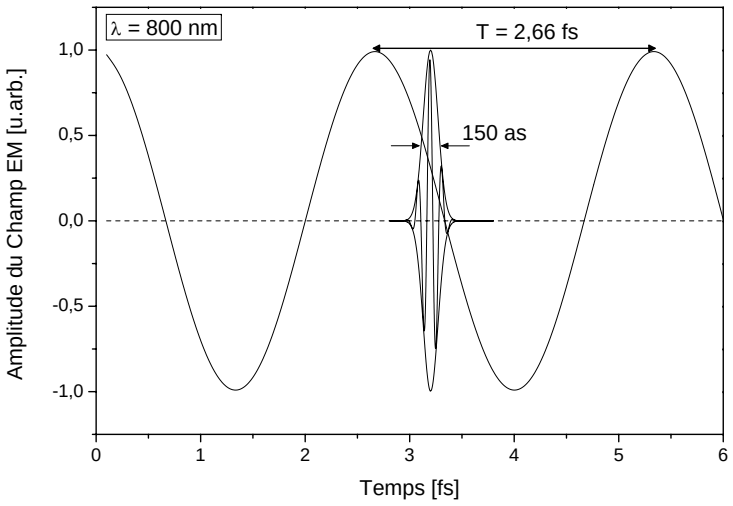


Fig. 1 : *Champ électromagnétique dans le domaine visible et dans le domaine ultra-violet.*

seconde impulsion peu intense se propageant dans le milieu Raman, ce mouvement induit une modulation de phase importante et par conséquent élargit son spectre significativement. En réglant le délai entre les deux impulsions, il est possible de mettre en phase toutes les composantes spectrales de la seconde impulsion et ainsi de générer des impulsions sub-femtosecondes. Dernièrement, une impulsion isolée de 4 fs à 400 nm avec une énergie de 1,5 μJ a été produite par cette technique [Zhavoronkov *et al.* 02].

La seconde source reposant sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG) est l'objet principal de ce manuscrit.
La génération d'harmoniques d'ordres élevés est issue de l'interaction fortement non linéaire d'un champ laser intense ($10^{13} - 10^{15} W/cm^2$) et d'un gaz atomique [Ferray *et al.* 88] [McPherson *et al.* 87]. De façon phénoménologique, sous l'influence du champ laser, un électron de valence va osciller et pouvoir considérablement s'éloigner du cœur ionique. Dans certains cas, l'électron s'éloigne indéfiniment de l'ion ce qui se traduit par une ionisation. Dans d'autres cas, l'électron retourne au voisinage de l'ion avec lequel il peut se recombiner. Le dipôle oscillant qui en résulte est fortement non linéaire et conduit à la production de rayonnement harmonique. Le rayonnement émis dans le domaine VUV (Vacuum Ultra-Violet) est cohérent et directif.
Le spectre d'émission est caractérisé par une suite d'harmoniques d'ordres impaires du champ laser fondamental ω_0, séparées par deux fois la fréquence laser ω_0. Après une rapide décroissance de l'efficacité pour les premières harmoniques, le taux de conversion (10^{-6} à 10^{-8}) reste constant jusqu'à des ordres élevés (harmoniques du plateau) et enfin décroît rapidement (harmoniques de la coupure). Les photons générés ont des énergies allant de l'ultraviolet aux

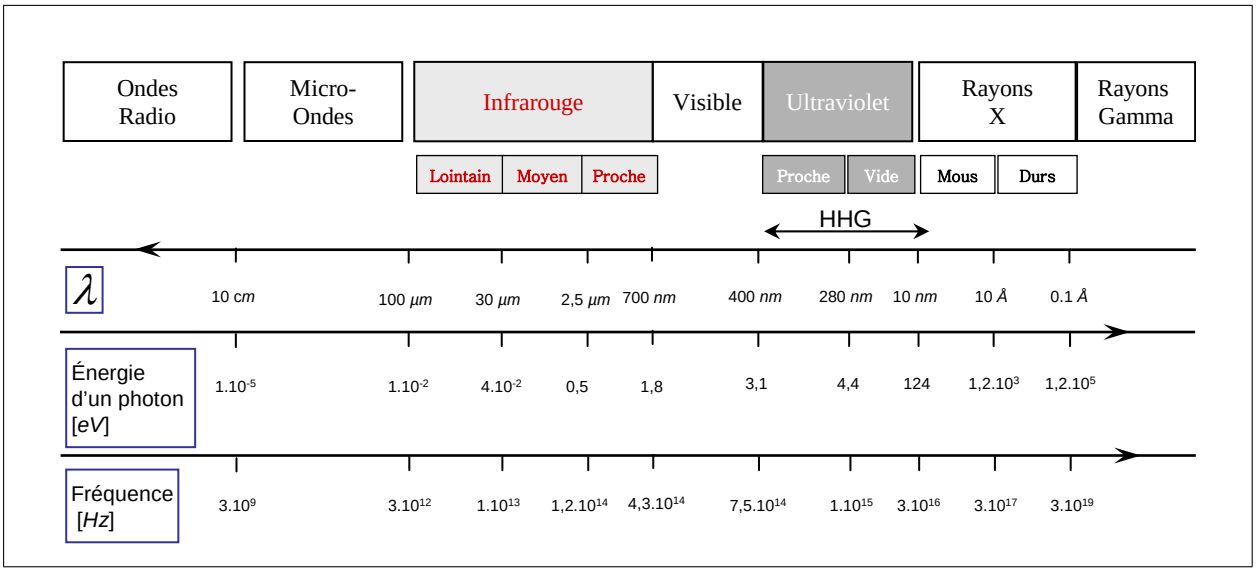


Fig. 2 : *Spectre électromagnétique.*

X-mous (cf. figure 2).

Un spectre typique de la génération d'harmoniques est représenté sur la figure 3. Si les différentes harmoniques sont émises en phases, en sélectionnant N harmoniques dans le plateau, on obtiendrait dans le domaine temporel une succession d'impulsions séparées de la demi-période du fondamental et de durées sub-femtosecondes [Farkas *et al.* 92, Harris *et al.* 93] comme l'illustre la figure 3.

Cette prédiction théorique a été confirmée expérimentalement [Paul *et al.* 01].

Pour entamer l'étude de processus ultra-rapides dans le domaine sub-femtoseconde à partir de la source harmonique, il faut isoler une impulsion du train attoseconde. Dans le cadre de cet objectif, un réseau européen "ATTO Network" a fédéré durant 4 ans les laboratoires européens travaillant sur la source harmonique pour ouvrir le champ de la physique attoseconde. Des techniques ont été développées pour produire une impulsion attoseconde unique à partir de la source harmonique. Elles se décomposent en deux catégories :

- Une première méthode consiste à produire les harmoniques avec une impulsion fondamentale ultra-courte (5 fs) dans le domaine IR (Infrarouge) et de sélectionner les harmoniques d'ordres les plus élevés [Schafer *et al.* 97, Christov *et al.* 97, Kan *et al.* 97]. Expérimentalement, une impulsion harmonique unique de 250 as a été ainsi produite [Kienberger *et al.* 04].
- Une deuxième méthode repose sur la modulation de la polarisation de l'impulsion fondamentale [Corkum *et al.* 93, Ivanov *et al.* 95, Antoine *et al.* 97a, Platonenko *et al.* 99].

Au laboratoire, nous avons choisi d'exploiter la méthode reposant sur la modulation de la polarisation du fondamental. Ce choix est motivé par la large bande spectrale (harmoniques

du plateau) qu'il est possible de confiner en une seule impulsion attoseconde. Cette seconde méthode semble plus prometteuse pour produire des impulsions attosecondes approchant les 100 as.
Dans un premier temps, nous démontrons expérimentalement un confinement temporel de l'émission harmonique par modulation de la polarisation du fondamental. Dans un second temps, nous présentons les conditions expérimentales nécessaires pour produire une impulsion attoseconde unique et les travaux en découlant.

Cette étude nécessite la mise au point d'une technique de caractérisation temporelle de telles impulsions. Les mesures temporelles des impulsions VUV peuvent être réalisées grâce à des techniques basées sur le principe de la caméra à balayage de fente [Kienberger *et al.* 02, Hentschel *et al.* 01] ou bien, grâce à une autocorrélation VUV du second ordre. Au laboratoire, nous avons développé un autocorrélateur VUV, le principe consiste à transformer une information temporelle en une information spatiale aisément exploitable. Ce type d'instrument est très employé pour caractériser des impulsions femtosecondes infrarouges. L'adaptation dans le domaine VUV reste délicate à cause, en partie, de la faible réflexion des optiques dans ce domaine. Le schéma expérimental [Constant *et al.* 01] que nous avons proposé, a été utilisé avec succès par l'équipe du I.E.S.L. d'Heraklion [Goulielmakis *et al.* 02] et du Max Planck.
Mais le principal obstacle ne réside pas dans le dispositif expérimental. En effet, la mesure d'autocorrélation repose sur l'observation d'un effet non linéaire. Les effets non linéaires

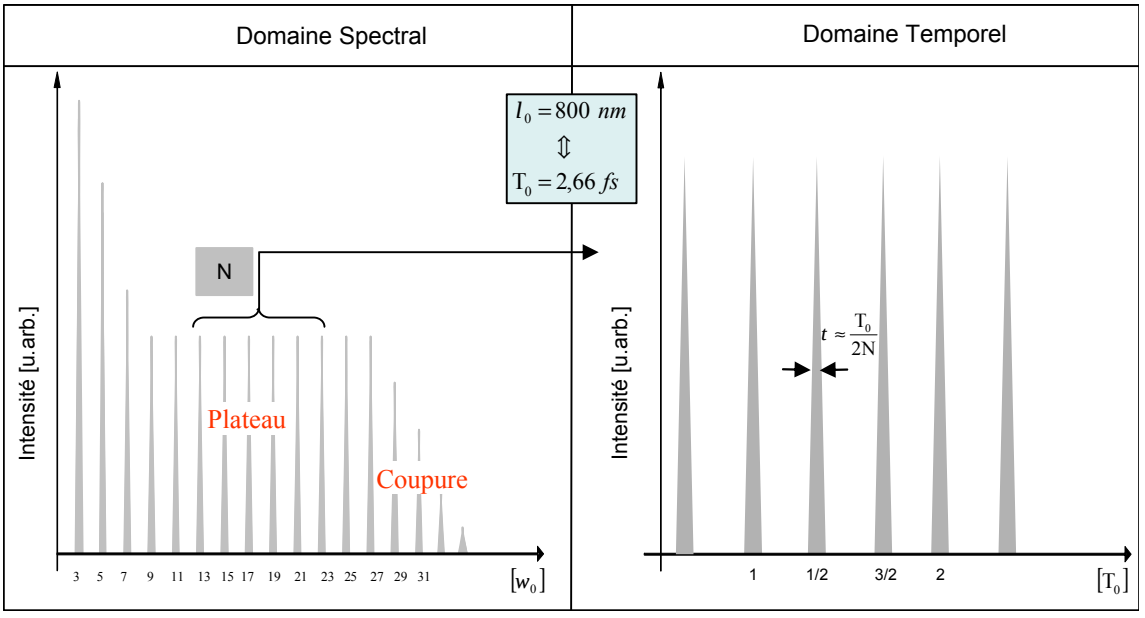


Fig. 3 : *Spectre typique d'harmoniques d'ordres élevés. Train d'impulsions sub-femtosecondes issu de la sélection de N harmoniques du plateau supposées en phase.*

sont observables depuis les années 60 dans le domaine visible [Shen 84]. C'est uniquement 40 ans plus tard que l'observation de ces processus non linéaires est devenue possible dans le domaine VUV grâce au progrès récent des sources VUV comme la génération d'harmoniques d'ordres élevés [Papadogiannis *et al.* 03c, Descamps *et al.* 01, Kobayashi *et al.* 98, Xenakis *et al.* 96]. Des études récentes effectuées au laboratoire ont mis en évidence un processus non linéaire dans le domaine VUV. Cette observation constitue une étape indispensable qui permet d'envisager la réalisation d'une mesure par autocorrélation dans le domaine VUV.

Ce travail de thèse, articulé autour de ces thématiques, se décompose en 3 parties :

La génération d'harmoniques d'ordres élevés

Dans la partie I, nous rappelons les grandes lignes du processus de génération d'harmoniques à travers les modèles semi-classique et quantique, ainsi que les principales propriétés et dépendances du rayonnement VUV issu de ce processus.

Confinement temporel de l'émission harmonique

Cette partie concerne le confinement temporel de l'émission harmonique. Diverses méthodes ont été proposées pour générer une seule impulsion attoseconde reposant sur l'extrême sensibilité de la génération d'harmoniques à la polarisation de l'impulsion fondamentale. En créant une impulsion fondamentale polarisée linéairement sur un intervalle très court, l'émission harmonique est confinée pendant cette durée et peut produire une impulsion attoseconde unique.

Au CELIA, nous avons développé une technique totalement linéaire pour réaliser une impulsion fondamentale polarisée linéairement pendant un très bref laps de temps. La robustesse de cette technique a été testée avec des impulsions initiales relativement longues de 35 fs.

Dans un premier temps nous avons étudié la signature spectrale du confinement. Nous avons observé un élargissement spectral des harmoniques compatible avec un confinement temporel de 8 fs [Tcherbakoff *et al.* 03]. Des expériences ont été poursuivies au CEA-Saclay dans le cadre d'une collaboration [Kovačev *et al.* 03]. Dans un second temps, le confinement temporel de l'émission harmonique a été confirmé en effectuant une mesure directe dans le domaine temporel par une méthode d'inter-corrélation [López-Martens *et al.* 04]. Cette expérience a été menée au Lund Laser Center en Suède lors d'une collaboration entre partenaires du réseau ATTO.

Vers les impulsions attosecondes

Cette partie présente les améliorations à apporter pour générer et caractériser une seule impulsion attoseconde. Tout d'abord, nous présentons un système de post-compression original en cours de développement au CELIA pour produire des impulsions IR haute énergie de 10 fs [Mével *et al.* 03]. Cette source permettrait de générer une seule impulsion attoseconde. Ensuite, l'objectif est de mesurer la durée des impulsions VUV. La méthode retenue est l'autocorrélation du second ordre nécessitant l'observation d'un effet non linéaire.
Nous reportons, ici, l'observation d'un processus non linéaire à partir du rayonnement VUV en l'occurrence la double ionisation de gaz rares par absorption de deux photons VUV [Plumridge *et al.*]. L'expérience ne permet pas de discriminer les processus séquentiel et direct. Si le processus direct contribue de façon significative, il est alors envisageable d'utiliser un autocorrélateur pour mesurer la durée d'impulsions harmoniques.

Première partie

La génération d'harmoniques d'ordres élevés

Chapitre 1

Les fondamentaux

1.1 Les régimes d'interactions en champ fort

Les processus d'ionisation décrits ci-dessous sont non linéaires, correspondant au cas où l'énergie du photon est inférieure au potentiel d'ionisation Ip de l'atome ($\hbar\omega < Ip$). Les trois processus d'ionisation sont :

- L'ionisation multiphotonique.
- L'ionisation par effet tunnel.
- L'ionisation par suppression de la barrière de potentiel.

En champ faible, le champ électrique est considéré comme une perturbation qui n'affecte pas l'attraction coulombienne. Cependant, le champ est assez fort pour induire un effet non linéaire. L'ionisation multiphotonique est la possibilité d'éjecter un électron par absorption de N photons, tels que $N.\hbar\omega > Ip$ (cf. figure I.1-1). La somme en énergie des photons doit être égale ou supérieure à l'énergie nécessaire pour porter un électron dans le continuum. L'électron, ainsi libéré, emporte avec lui une énergie cinétique égale à la différence entre l'énergie des photons absorbés et l'énergie d'ionisation. Dans le cas non-résonnant, la probabilité d'ionisation est proportionnelle à I^N, où I est l'éclairement crête laser.

En champ fort et statique, les processus sont l'ionisation par effet tunnel et l'ionisation par suppression de la barrière de potentiel. En présence d'un champ électrique statique, le potentiel de l'atome est abaissé dans la direction du champ. La barrière de potentiel est déformée, il existe alors une probabilité non nulle que l'électron traverse la barrière par effet

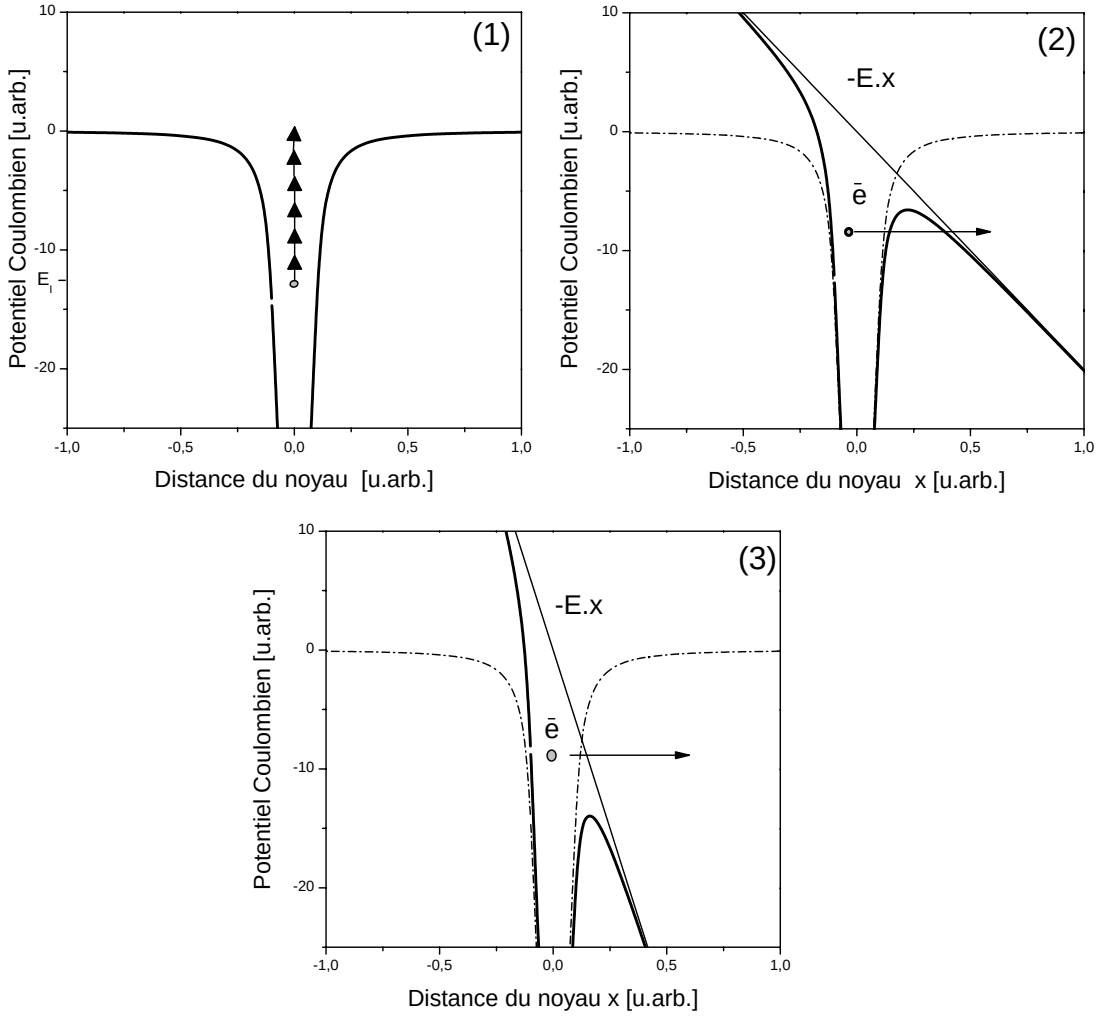


Fig. I.1 : *Les différents processus d'ionisation en champ fort.(1) En régime multiphotonique, l'atome est ionisé en absorbant plusieurs photons. (2) Régime tunnel. Le potentiel coulombien $V_c(x)$ (pointillé), le terme d'interaction dipolaire $E.x$ (trait fin), le potentiel effectif $V_{eff} = V_c(x) - E.x$ (trait gras). L'électron peut traverser la barrière de potentiel effectif. (3) Ionisation par suppression de la barrière.*

tunnel (cf. figure I.1-2). Lorsque l'éclairement est important, la barrière est complètement abaissée et l'électron peut s'échapper (cf. figure I.1-3).

Dans un champ alternatif et intense, les processus d'ionisation par effet tunnel ou d'ionisation multiphotonique peuvent se produire. Pour discriminer ces deux régimes, dans son modèle du champ fort, Keldysh [Keldysh 65] introduit le paramètre :

$$\gamma = \sqrt{\frac{Ip}{2Up}} \tag{I.1}$$

Avec Up l'énergie pondéromotrice correspondant à l'énergie cinétique moyennée sur une période optique du mouvement d'oscillation d'un électron libre initialement au repos dans un champ électrique linéaire $E_0 cos(\omega_0 t)$. Up est donnée par :

$$Up_{\,(eV)} = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega_0^2} = 9{,}33\ \lambda_{0\ (\mu m^2)}^2\ I_{0\ (10^{14}\,W/cm^2)}, \tag{I.2}$$

où m est la masse de l'électron et e la charge de l'électron et ω_0 et λ_0 sont respectivement la pulsation et la longueur d'onde du champ.

Dans un raisonnement "classique", Keldysh définit un pseudo-temps tunnel t_{tunnel} correspondant au temps que mettrait un électron à traverser une distance équivalente à la largeur de la barrière formée par le champ électrique et le potentiel coulombien. C'est en comparant le temps tunnel t_{tunnel} à la période optique du laser T_0 que Keldysh définit son paramètre γ.

$$\gamma = \frac{t_{tunnel}}{T_0} \tag{I.3}$$

Pour que le régime tunnel soit atteint, il faut que le temps de traversée de la barrière soit beaucoup plus petit que la période optique du champ laser, ce qui permet de considérer le champ électrique comme quasi-stationnaire.

Pour $\gamma << 1$, c'est à dire $U_p >> I_p$, soit un éclairement fort et une basse fréquence laser , l'électron a le temps de traverser la barrière avant que le champ électrique ne change de manière significative. Cela correspond au régime tunnel ou d'ionisation par abaissement de la barrière. À titre d'exemple, pour une longueur d'onde égale à 800 nm et un potentiel d'ionisation I_p de 10 eV, l'intensité où $\gamma = 1$ est de $7{,}8.10^{13}\ W/cm^2$.
Pour $\gamma >> 1$, c'est à dire $U_p << I_p$, soit un éclairement modéré et une haute fréquence laser , l'électron n'a pas le temps de traverser la barrière. Le temps tunnel est trop long et la barrière de potentiel remonte avant que l'électron puisse être éjecté. Dans cette limite, la description multiphotonique est plus adaptée.

Éclairement de saturation

I_{sat} est définie comme étant l'intensité à laquelle la probabilité d'ionisation d'un atome est égale à 1. La probabilité d'ionisation augmente avec le temps d'interaction de l'atome avec le champ laser. Par conséquent, plus l'impulsion est longue, plus I_{sat} est faible. Conjointement, plus le potentiel d'ionisation I_p est grand, plus I_{sat} est grand.

1.2 La génération d'harmoniques d'ordres élevés

La génération d'harmoniques d'ordres élevés se produit lorsqu'un laser intense est focalisé dans un gaz atomique ou moléculaire. Il s'ensuit la génération d'un rayonnement cohérent et directif de fréquence multiple impaire de celle du laser (cf. figure I.2). L'éclairement nécessaire pour l'apparition des harmoniques est de l'ordre de 10^{14} W/cm^2. Ce phénomène fut observé en concomitance pour la première fois par deux équipes [Ferray *et al.* 88, McPherson *et al.* 87].

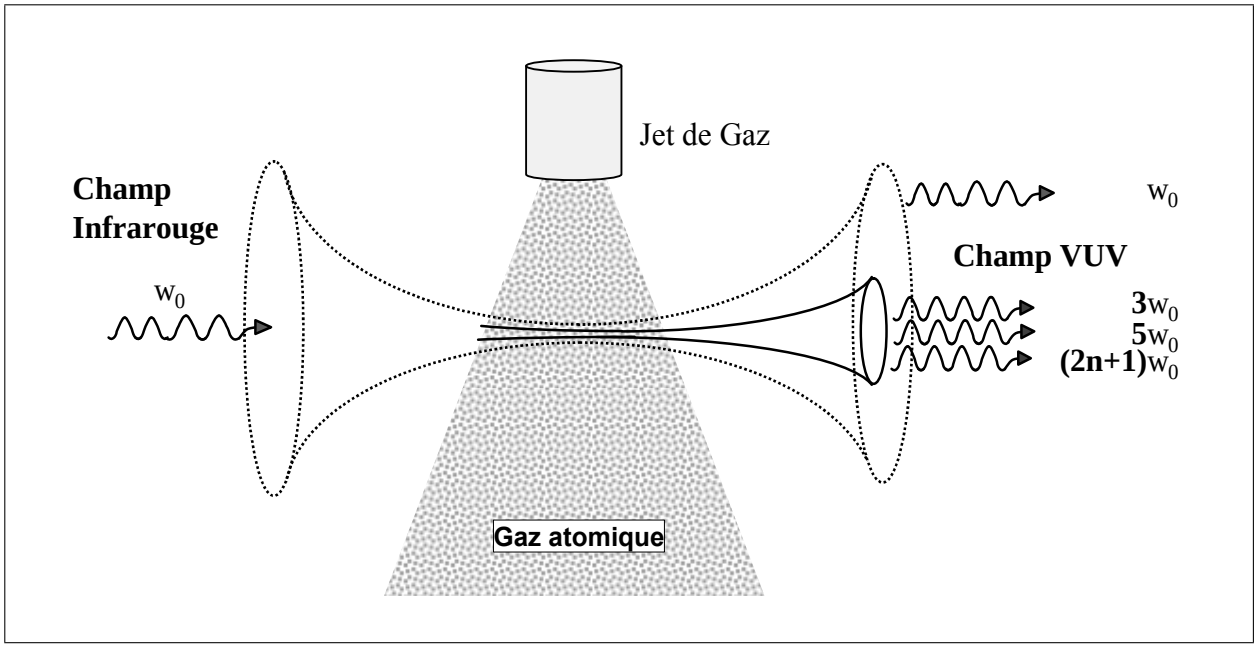


Fig. I.2 : *Principe schématique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés.*

La figure I.3 présente l'allure d'un spectre d'harmoniques typique : une série d'harmoniques impaires multiples de la fréquence fondamentale et de mêmes amplitudes forme le plateau. Les pics sont séparés de deux fois l'énergie laser, soit $2\hbar\omega_0$. À la fin du plateau, l'amplitude des harmoniques décroît rapidement, c'est la coupure. La fréquence, à partir de laquelle l'amplitude des harmoniques décroît rapidement, est appelée la fréquence de coupure définie par $\hbar\omega_q = I_p + 3{,}2U_p$. Le plateau peut être étendu à des ordres très élevés. Des harmoniques jusqu'à l'ordre 301 (301 fois la fréquence laser) ont été produites [Chang *et al.* 97, Spielmann *et al.* 97] en utilisant un faisceau fondamental infrarouge ($\lambda_0 = 800\,nm$).

Pour décrire toutes les caractéristiques du rayonnement harmonique, nous allons nous appuyer sur les différents modèles théoriques développés et les résultats expérimentaux des différents groupes "Harmoniques".

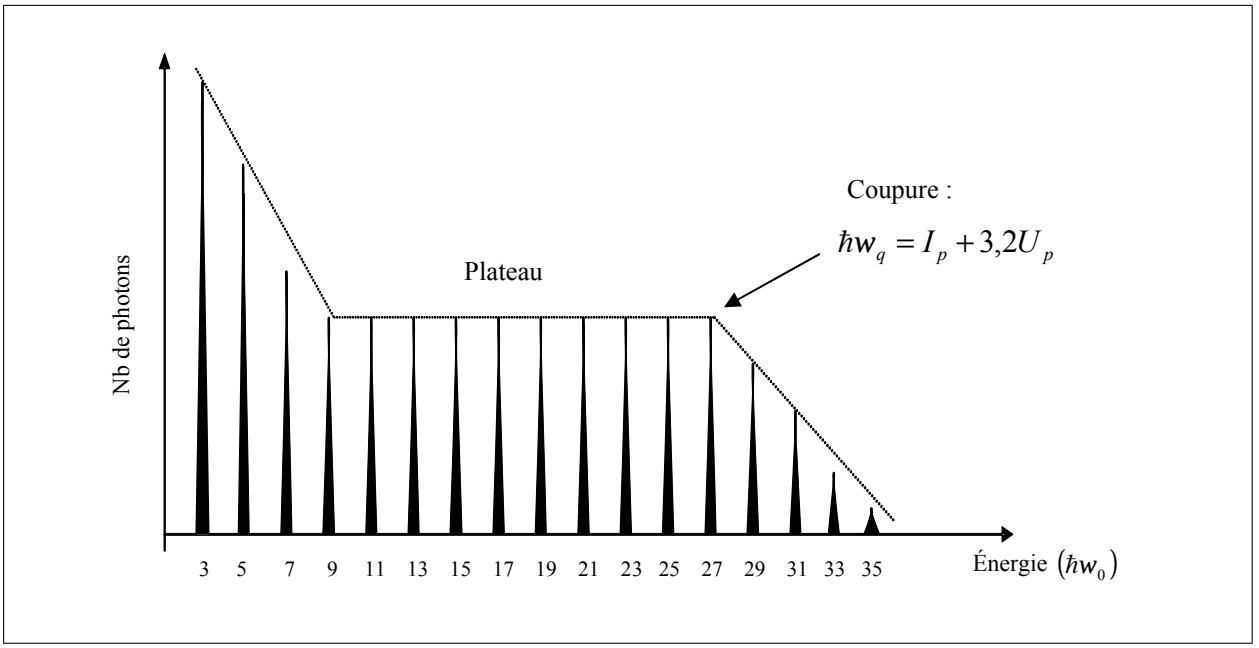


Fig. I.3 : *Allure typique d'un spectre d'harmoniques d'harmoniques d'ordres élevés.*

Une description théorique complète de la génération d'harmoniques comprend l'aspect microscopique (réponse de l'atome unique soumis à un champ électrique intense) et également l'aspect macroscopique (la réponse collective du milieu).

1.3 Réponse de l'atome unique

1.3.1 Modèle semi-classique

Un modèle semi-classique aussi appelé modèle en 3 étapes (proposé par P. Corkum [Corkum 93, Kulander *et al.* 93]) permet de comprendre de manière intuitive le processus de génération d'harmoniques. Ce modèle repose sur 3 étapes. Le modèle suppose un champ intense de basse fréquence polarisé linéairement (régime tunnel). Il est valide pour décrire la génération d'harmoniques loin du seuil d'ionisation c.a.d. $\hbar\omega_q \gg I_p$. Ces trois étapes, illustrées sur la figure I.4, sont :

-1- L'ionisation de l'atome par effet tunnel.

-2- L'accélération de l'électron libre dans le champ laser.

-3- La recombinaison radiative de l'électron.

Ionisation par effet tunnel. L'électron traverse la barrière de potentiel formée par le potentiel coulombien et l'interaction dipolaire. D'après le modèle ADK [Ammosov *et al.* 86], la probabilité d'ionisation tunnel est maximale au maximum du champ électrique, ce qui implique que l'électron a une probabilité importante de franchir la barrière effective deux fois par cycle laser. Des paquets d'onde électronique sont donc émis 2 fois par cycle optique.

Accélération de l'électron libre dans le champ laser. Dans le modèle semi-classique, on néglige l'attraction coulombienne du noyau et l'électron est libéré sans vitesse initiale ($v(t_i) = 0$) dans le champ électrique. Le mouvement de l'électron dépend de l'instant t_i où il est libéré. Pour un champ polarisé linéairement, l'électron ne passe à proximité du noyau (x=0) que lorsque la phase du champ $\omega_0 t_i$ à laquelle il est éjecté est telle que :

$$n\,\pi \leq \omega_0 t_i \leq \frac{2n+1}{2}\,\pi \tag{I.4}$$

Les trajectoires des électrons sont illustrées sur la figure I.5 pour différents instants d'éjection de l'électron (instants d'ionisation) dans le champ. Certains électrons sont ramenés à proximité du noyau, ils sont caractérisés par leur temps d'apparition dans le continuum t_i et leur temps de passage près du noyau ou de recombinaison t_r. Les électrons, ne revenant pas au voisinage du noyau, ne participent pas au processus de génération d'harmoniques.

Nous nous intéressons maintenant à l'énergie cinétique des électrons, libérés dans le continuum, repassant à proximité du noyau. Au mouvement d'oscillation de l'électron est associée une énergie cinétique. Pour chaque trajectoire, on évalue l'énergie cinétique de l'électron à l'instant t_r. La figure I.6 représente l'énergie cinétique des électrons lorsqu'ils repassent à

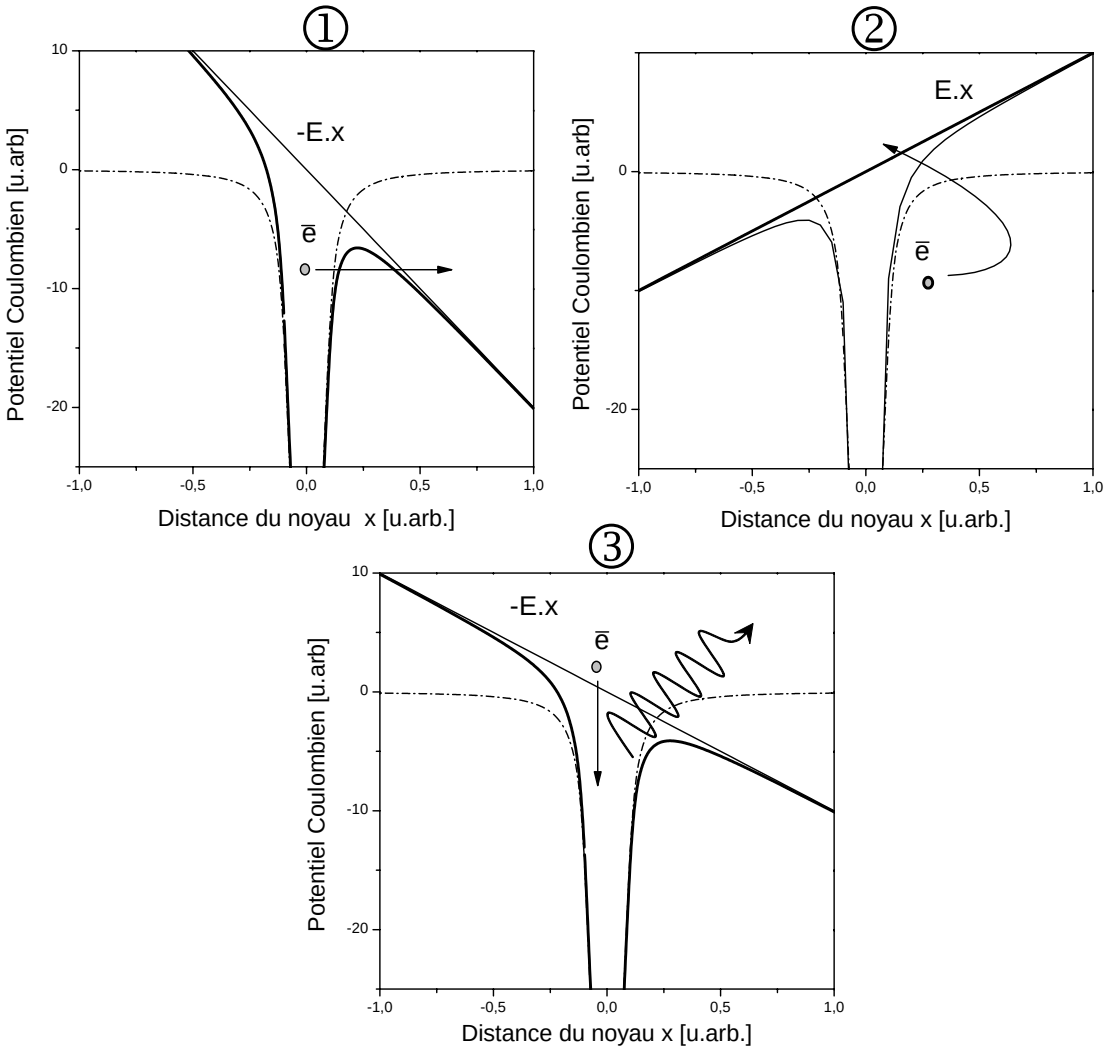


Fig. I.4 : *Représentation schématique du modèle à trois étapes.*

proximité du noyau en fonction de leur temps d'apparition dans le continuum t_i (où plutôt de leur phase $\omega_0 t_i$) et de leur temps de recombinaison t_r, en supposant que l'ionisation peut avoir lieu pour n'importe quelle phase. L'énergie cinétique maximum atteinte par l'électron dans le continuum en x=0 est de 3,17 Up chaque demi-période du champ pour $\omega_0 t' = 1{,}3\pi$. On définit le temps de retour τ qui correspond au temps d'oscillation de l'électron dans le champ : $\tau = t_r - t_i$. Pour les énergies cinétiques basses, à une énergie donnée, il existe deux temps de retour notés τ_1 et τ_2. τ_1 qui correspond à la trajectoire courte est de l'ordre d'une demi-période optique. τ_2 qui correspond à la trajectoire longue est de l'ordre d'une période optique du laser. L'étude semi-classique de ces trajectoires se révèle cruciale pour comprendre les spectres harmoniques. Nous reviendrions sur l'importance de ces trajectoires à la section 1.3.2 page 19.

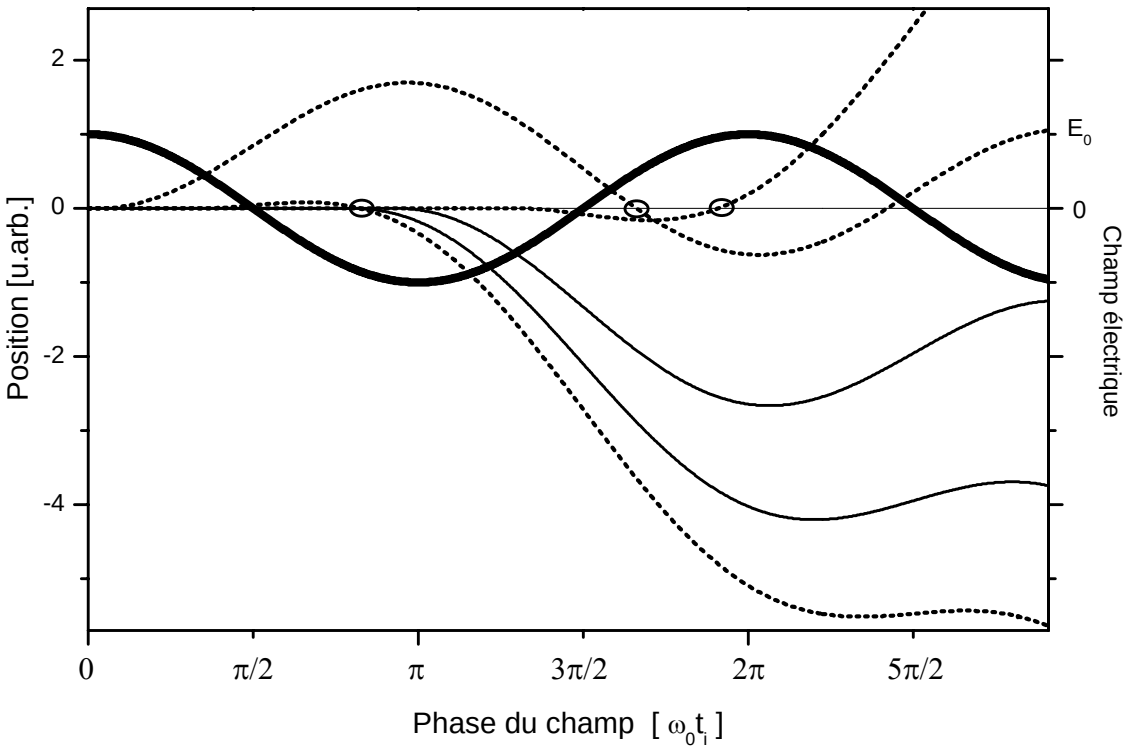


Fig. I.5 : *Trajectoires d'électrons soumis à un champ électrique $E_0 cos(\omega_0 t)$ (trait gras). Les électrons sont libérés dans ce champ, sans vitesse initiale à différents instants t_i. Les trajectoires électroniques passent près du noyau où peuvent se recombiner les électrons (pointillé). Les autres, ne revenant pas sur le noyau, ne participent pas directement à la génération d'harmoniques (trait plein).*

Recombinaison radiative. L'électron, lors de son passage près du noyau, possède une probabilité non-nulle de se recombiner radiativement avec le noyau, à un instant t_r. Cette transition radiative entraîne l'émission d'un photon VUV d'énergie :

$$\hbar\omega = I_p + Ec \tag{I.5}$$

Où Ec est l'énergie cinétique de l'électron acquise dans le continuum. Puisque $Ec = 3{,}17U_p$ est l'énergie maximale que peut avoir l'électron lorsqu'il passe à proximité du noyau, l'énergie maximale des photons émis est donnée par :

$$\hbar\omega = I_p + 3{,}17\,U_p \tag{I.6}$$

Historiquement, la loi de coupure a été trouvée de façon numérique [Krause *et al.* 92]. Le modèle à trois étapes en a ensuite expliqué le sens physique. Les expériences sont en accord avec cette loi à ceci près que le coefficient α mesuré expérimentalement dans $\hbar\omega = I_p + \alpha\,U_p$ est plus faible que 3,17, en raison des effets de propagation [L'Huillier *et al.* 93b, Macklin *et al.* 93].

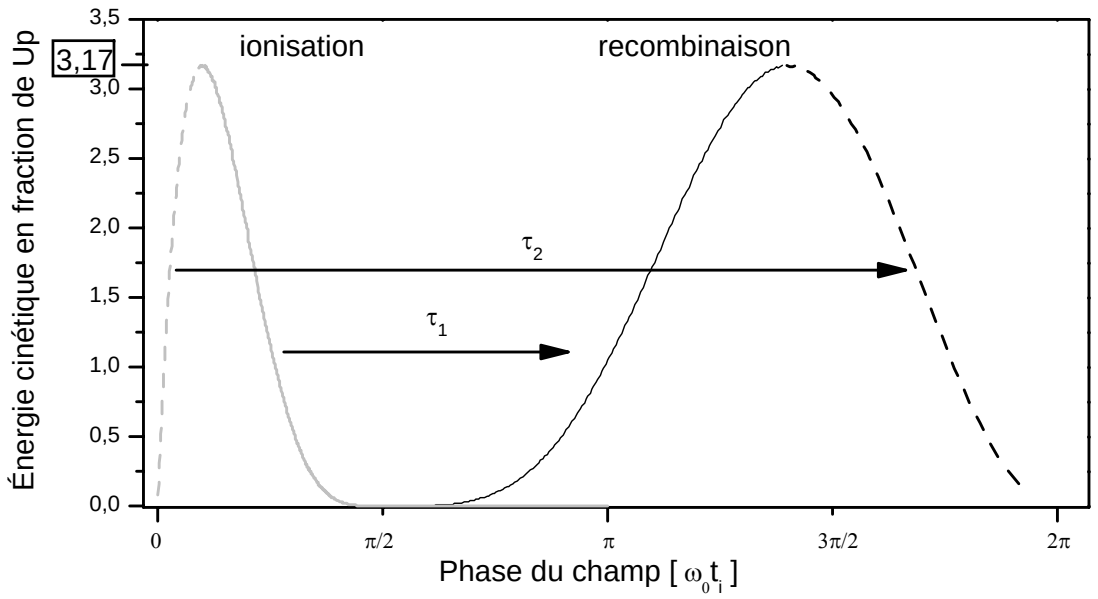


Fig. I.6 : *Énergie cinétique des électrons revenant vers le noyau en fonction de leur phase d'apparition dans le continuum (trait gris) et de la phase de recombinaison (trait noir). L'énergie est représentée en unité U_p. Les électrons libérés dans le champ dans la partie de la courbe en gris-pointillé et gris-trait plein peuvent se recombiner sur la partie de la courbe en noir-pointillé (temps de retour long τ_2) et noir-trait plein (temps de retour court τ_1).*

La périodicité du spectre d'harmoniques impaires s'explique facilement avec ce modèle : les électrons peuvent être éjectés dans le continuum et se recombiner deux fois par période optique. L'émission harmonique de période $T_0/2$ et la cohérence de ce processus mènent, dans le domaine fréquentiel, à une périodicité égale à $2\omega_0$. Le potentiel atomique étant centro-symétrique, seules les harmoniques impaires peuvent exister. De plus, ce modèle met en relief l'importance de la polarisation du laser. Une polarisation linéaire permet de ramener l'électron près du noyau. Si la polarisation est circulaire, l'électron ne retourne jamais au voisinage du noyau et l'émission harmonique ne peut pas avoir lieu.

Cette analyse classique de la dynamique de l'électron donne une représentation simple du processus de génération d'harmoniques. Elle explicite l'origine physique de la loi de coupure et explique la périodicité des harmoniques. Néanmoins, elle reste incomplète pour décrire la réponse de l'atome, notamment les effets quantiques tels que les interférences quantiques, la diffusion du paquet d'onde.... Une approche quantique complète est alors nécessaire pour décrire la réponse de l'atome unique.

1.3.2 Approche quantique

Il existe différentes méthodes théoriques pour obtenir la réponse atomique, elles se basent sur la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps:

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\,\psi(x,t)\,\rangle = \big[H_0 + H_i(t)\big]|\,\psi(x,t)\,\rangle \tag{I.7}$$

H_0 est l'Hamiltonien de l'atome et $H_i(t)$ est l'Hamiltonien d'interaction entre le champ électrique et l'électron. Pour avoir accès au spectre des harmoniques et à leurs phases, il faut évaluer la valeur moyenne du dipôle atomique $d(t)$ en fonction du temps et effectuer ensuite sa transformée de Fourier.

$$d(t) = \langle\,\psi(x,t)\,|\,r\,|\,\psi(x,t)\,\rangle \tag{I.8}$$

La méthode la plus complète, mais la plus coûteuse numériquement, est la résolution exacte de l'équation de Schrödinger dépendante du temps. Différentes techniques numériques ont été développées. Par exemple, elles consistent à construire les solutions de l'équation I.7 sur une base de fonctions Sturmiennes [Piraux *et al.* 94] ou bien sur une base de fonctions B-Splines [Lambropoulos *et al.* 98]. D'autres encore utilisent la méthode des éléments finis [DeVries 90].
Un modèle simplifié a été développé pour évaluer plus efficacement le dipôle atomique. Ce modèle théorique basé sur *l'approximation du champ fort* (S.F.A) [Keldysh 65] fut proposé par Lewenstein [Lewenstein *et al.* 93]. Dans ce modèle, les états excités ne sont pas pris en compte, seul l'état $|\,1s>$ et les états du continuum interviennent dans le processus. On considère également que le potentiel Coulombien est sans effet sur la densité d'états injectés dans le continuum.
L'adéquation qualitative entre ces deux modèles est correcte. Néanmoins, du point de vue quantitatif, une différence persiste entre les deux modèles : une étude comparant la distribution des chemins quantiques entre le modèle de l'approximation du champ fort et la résolution de l'équation de Schrödinger dépendante du temps [Gaarde *et al.* 02a], a établi que la contribution du chemin quantique long τ_2 est surestimée dans le modèle de l'approximation du champ fort (S.F.A.).
Ces modèles retrouvent les prédictions essentielles du modèle semi-classique tout en justifiant les hypothèses.

À titre d'illustration, nous allons exposer la réponse de l'atome unique pour l'harmonique 35 générée dans le néon (calculée dans le cadre de l'approximation du champ fort) en fonction de l'éclairement. Le moment dipolaire de l'harmonique 35 correspond à la 35ème composante de Fourier du dipôle $d(t)$. Le dipôle $d(t)$ est calculé pour chaque éclairement sur quelques cycles optiques avec une amplitude constante. La figure I.7 représente l'intensité du moment

dipolaire de l'harmonique 35 et sa phase associée en fonction de l'éclairement laser pour $\lambda = 794\ nm$. À faible éclairement, l'harmonique se trouve dans la coupure du spectre, la croissance est alors rapide en fonction de l'éclairement. Lorsque l'harmonique atteint le plateau, l'intensité du dipôle croît plus lentement en présentant de brusques variations.
La phase du dipôle décroît linéairement avec l'éclairement présentant deux pentes différentes suivant que l'on se place dans la coupure ou dans le plateau. Un comportement similaire est observé quel que soit le gaz ou l'ordre des harmoniques [Lewenstein *et al.* 95].

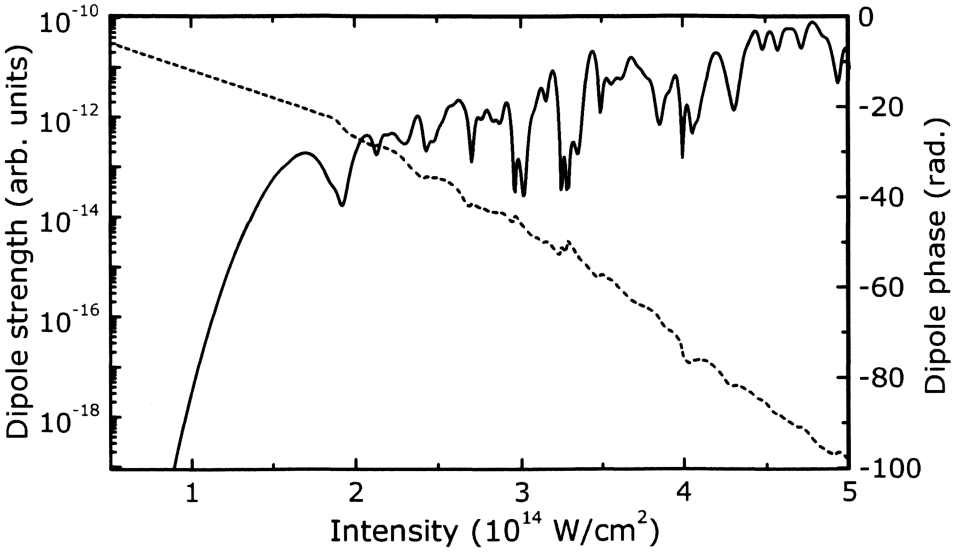


Fig. I.7 : *Intensité et phase du moment dipolaire en fonction de l'éclairement laser de l'harmonique 35 générée dans le néon calculée par le modèle de l'approximation du champ fort, d'après [Roos 01].*

Chemins quantiques

Dans le cadre du modèle semi-classique, l'origine de la phase du dipôle est liée aux différentes trajectoires électroniques qui mènent à l'émission harmonique. C'est en considérant la somme des contributions de ces trajectoires électroniques que l'on calcule la $q^{ème}$ composante du dipôle. La phase associée à chaque trajectoire correspond à l'action semi-classique des électrons [Lewenstein *et al.* 95].

Pour les harmoniques d'ordres élevés appartenant au plateau, il existe 2 trajectoires électroniques dominantes correspondant à τ_1 et τ_2 qui contribuent au processus de génération. Les variations de l'intensité du dipôle figure I.7 dans le plateau sont dues aux interférences entre ces trajectoires.

Dans la coupure, il existe une seule trajectoire dominante.

La phase de la radiation émise dépend alors de la phase associée à chaque chemin quantique dominant. En considérant un champ harmonique du plateau de fréquence $q\omega_0$, la phase de la radiation harmonique se décompose en deux composantes $i = 1,2$:

$$\phi_i(r,z,t) = -\alpha_i I(r,z,t) \tag{I.9}$$

Où I est l'éclairement laser. Expérimentalement, $I(r,z,t)$ varie dans le temps et l'espace. La variation temporelle de l'éclairement induit un changement dans la pulsation instantanée $\omega_i = q\omega_0 - \delta\phi_i(r,z,t)/\delta t$ qui donne lieu à un élargissement spectral.
La variation radiale de I introduit une phase spatiale qui, pour α grand, rend le faisceau plus divergent si le foyer est avant le milieu. Les champs générés respectivement par les deux composantes, présentent donc des caractéristiques spatio-temporelles différentes [Gaarde *et al.* 99, Bellini *et al.* 98].

La distribution des chemins quantiques de l'harmonique 35 générée dans le néon est représentée sur la figure I.8 en fonction de l'éclairement laser (calcul S.F.A) [Roos 01]. Les contributions dominantes apparaissent en noir. Pour une intensité donnée, différents chemins (α_j) concourent de façon non négligeable au processus de génération de l'harmonique. Pour des éclairements en dessous de $1{,}9.10^{14}$ W/cm^2 correspondant à la coupure, un seul chemin quantique ($\alpha_c \approx 12.10^{-14} cm^2/W$) contribue au processus de génération. Au delà, dans le plateau, deux chemins quantiques sont dominants τ_1 et τ_2 surlignés en blanc sur la figure. Avec respectivement pour τ_1 et τ_2 les valeurs suivantes : $\alpha_1 \approx 1.10^{-14} cm^2/W$ et $\alpha_2 \approx 25.10^{-14} cm^2/W$.

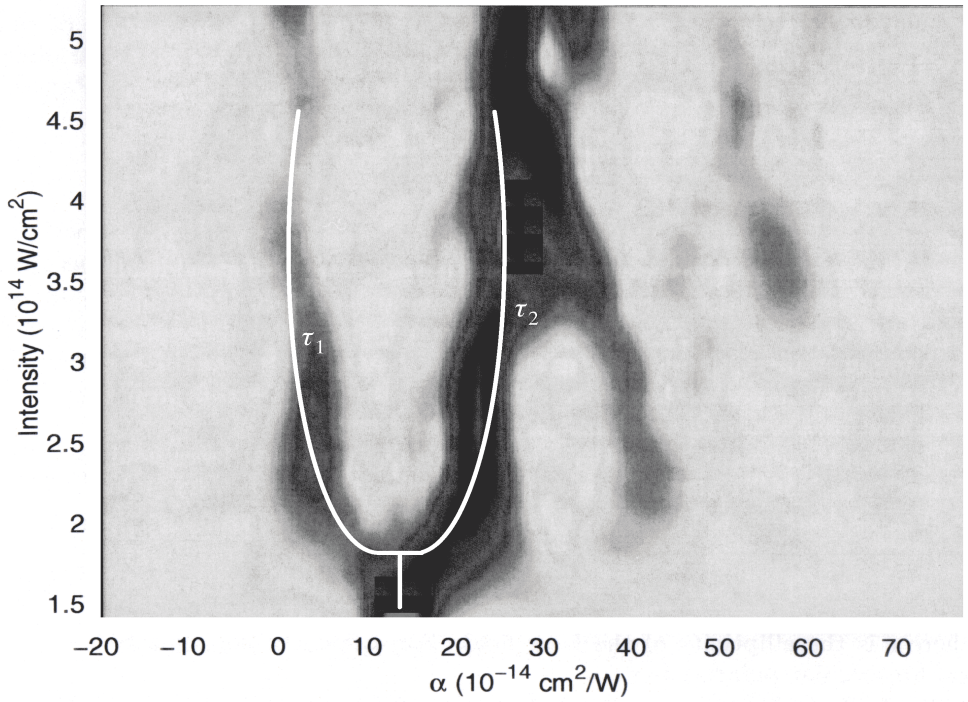


Fig. I.8 : *Distribution des chemins quantiques en fonction de l'éclairement laser du dipôle atomique de l'harmonique 35 générée dans le néon calculée dans le modèle de l'approximation du champ fort, d'après [Roos 01].*

1.4 Réponse macroscopique du milieu

La réponse de l'atome unique ne suffit pas pour décrire la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Le champ total émis en sortie du volume d'interaction dépend aussi des paramètres macroscopiques du milieu (densité, dispersion) et du champ électrique (phase, géométrie spatiale). Pour tenir compte de ces paramètres, la résolution de l'équation de propagation d'un champ électromagnétique dans un milieu est indispensable. Le dipôle atomique (calculé pour un atome) est utilisé comme terme source. Dans l'approximation paraxiale et en polarisation linéaire (le milieu atomique présentant une symétrie d'inversion, la polarisation induite possédera la même polarisation), cette équation prend la forme scalaire suivante :

$$\triangle\mathcal{E}(\mathbf{r},t) - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathcal{E}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{\varepsilon_0 c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}\mathcal{P}(\mathbf{r},t) \tag{I.10}$$

Il est naturel de décomposer le champ électrique $\mathcal{E}$ et la polarisation $\mathcal{P}$ sous forme d'une série de Fourier.

$$\begin{aligned}\mathcal{E}(\mathbf{r},t) &= \frac{1}{2}\sum_{q\ impair}\left(\mathcal{E}_q(\mathbf{r})e^{iq\omega t}\ +\ c.c\right)\\ \mathcal{P}(\mathbf{r},t) &= \frac{1}{2}\sum_{q\ impair}\left(\mathcal{P}_q(\mathbf{r})e^{iq\omega t}\ +\ c.c\right)\end{aligned} \tag{I.11}$$

La transformée de Fourier de l'équation de propagation I.10 donne une série d'équations couplées :

$$\triangle\mathcal{E}_q(\mathbf{r}) - \frac{q^2\omega^2}{c^2}\mathcal{E}_q(\mathbf{r}) = -\frac{q^2\omega^2}{\varepsilon_0 c^2}\mathcal{P}_q(\mathbf{r}) \tag{I.12}$$

Précisons que cette équation est valable dans le cadre adiabatique, c'est-à-dire en considérant une enveloppe temporelle du champ lentement variable. La polarisation $\mathcal{P}_q$ induite se décompose en une partie variant linéairement avec $\mathcal{E}_q$ et une partie non linéaire :

$$\mathcal{P}_q(\mathbf{r}) = \mathcal{P}_q^L(\mathbf{r}) + \mathcal{P}_q^{NL}(\mathbf{r}) \tag{I.13}$$

Pour la contribution linéaire

$$\mathcal{P}_q^L(\mathbf{r}) = \varepsilon_0\,\chi_q(\mathbf{r})\,\mathcal{E}_q(\mathbf{r}) \tag{I.14}$$

où la susceptibilité $\chi_q(\mathbf{r})$ est reliée à l'indice du milieu par la relation suivante :

$$\begin{aligned}n_q(\mathbf{r})^2 &= 1 + \chi_q(\mathbf{r})\\ n_q(\mathbf{r})^2 &= 1 + \mathcal{N}_{at}(\mathbf{r})\kappa_{at}(q\omega) + \mathcal{N}_{ion}(\mathbf{r})\kappa_{ion}(q\omega) + \mathcal{N}_{elec}(\mathbf{r})\kappa_{elec}(q\omega)\end{aligned} \tag{I.15}$$

Les termes κ désignent respectivement les polarisabilités des atomes, des ions et des électrons présents dans le milieu. Les densités associées $\mathcal{N}$ sont réparties de façon inhomogène en temps et en espace. L'influence des ions sur l'indice du milieu est négligeable [L'Huillier *et al.* 92b] : les polarisabilités statiques des ions et des atomes sont très proches ($\kappa_{at} \approx \kappa_{ion} \Rrightarrow \mathcal{N}_{at}\kappa_{at} + \mathcal{N}_{ion}\kappa_{ion} = \mathcal{N}_{at}^0\kappa_{at}$ Où $\mathcal{N}_{at}^0$ correspond à la densité atomique initiale). Par conséquent :

$$n_q(\mathbf{r})^2 = 1 + \mathcal{N}_{at}^0(\mathbf{r})\kappa_{at}(q\omega) + \mathcal{N}_{elec}(\mathbf{r})\kappa_{elec}(q\omega) \tag{I.16}$$

La réponse non linéaire des atomes constitue le terme source des harmoniques émises par le milieu. La polarisation non linéaire $\mathcal{P}_q^{NL}(\mathbf{r})$ est la somme d'un grand nombre de termes faisant intervenir le fondamental et les différentes harmoniques, le terme prépondérant est :

$$\mathcal{P}_q^{NL}(\mathbf{r}) = \mathcal{N}_{at}(\mathbf{r})d_q(\mathbf{r}) \tag{I.17}$$

Où $\mathcal{N}_{at}$ est la densité atomique dans le volume d'interaction et $d_q(\mathbf{r})$ la q^{ème} composante de Fourier du dipôle atomique $d(t)$.

Une étude détaillée sur les effets de la propagation des harmoniques a été effectuée par Anne L'Huillier [L'Huillier *et al.* 92b].

Généralement, la propagation a un effet très marqué sur le fondamental qui est très sensible à la dispersion (en particulier à la dispersion due aux électrons libérés lors de l'ionisation des atomes). La distribution inhomogène des électrons libres agit comme une lentille divergente qui peut défocaliser le faisceau fondamental [Auguste *et al.* 92, Kan *et al.* 95]. La propagation impose donc la phase et l'amplitude du fondamental à tout instant et pour toute position. En retour, le fondamental impose la phase des harmoniques émises en un point donné, à un instant donné. La propagation des harmoniques d'ordres élevés est peu sensible à la dispersion due aux électrons libres. L'addition cohérente des harmoniques émises par les différents atomes constitue le champ total.

1.4.1 Accord de phase

Pour que le champ harmonique puisse se construire efficacement sur toute la longueur de l'interaction, il faut que les harmoniques générées en différents points interfèrent constructivement. D'où l'importance de l'accord de phase. Dans le cas d'un accord de phase classique, le champ harmonique $\mathbf{E}_q$ et le champ fondamental $\mathbf{E}_1$ doivent se propager avec la même vitesse de phase pour que le transfert d'énergie du champ fondamental (vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$) au champ harmonique généré (vecteur d'onde $\mathbf{k}_q$ avec q impair) soit optimal :

$$\triangle \mathbf{k}_q = \mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_1 = 0 \tag{I.18}$$

Dans un cristal non linéaire, cette condition est remplie grâce aux propriétés de biréfringence. Pour la génération d'harmoniques, l'accord de phase est un peu plus complexe, il existe des études complètes de l'accord de phase pour la génération d'harmoniques dans les références suivantes [Salières *et al.* 95, Balcou *et al.* 97].
Pour la génération d'harmoniques, la condition d'accord de phase s'écrit :

$$\mathbf{k}_q = q\mathbf{k}_1^0 + q\mathbf{K}_{geo}(r,z) + \mathbf{K}(r,z) \tag{I.19}$$

Où

- $\mathbf{k}_q$ est le vecteur d'onde du champ harmonique produit, en supposant une géométrie peu focalisée $|\mathbf{k}_q| \approx n_q \frac{q\omega_0}{c}$, où n_q est l'indice du milieu à la pulsation $q\omega_0$.
- $\mathbf{k}_1^0$ est le vecteur d'onde associé à la propagation libre du champ laser, sa norme dépend de l'indice du milieu $|\mathbf{k}_1^0| \approx n_1 \frac{\omega_0}{c}$. Comme nous l'avons vu précédemment, les atomes et les électrons libres contribuent à l'indice n_1 du milieu.

- $\mathbf{K}_{geo}(r,z) = \nabla\phi_{geo}(r,z)$ est le vecteur d'onde associé à la focalisation du faisceau. Le premier terme de $\phi_{geo}(r,z)$ correspond à la phase de Gouy [Salières 95].

$$\phi_{geo}(r,z) = \underbrace{-\arctan\left(\frac{2z}{b}\right)}_{\text{Phase de Gouy}} + \frac{2k_1^0 r^2 z}{b^2 + 4z^2} \tag{I.20}$$

  Avec b=$2\pi w_0^2/\lambda$, le paramètre confocal. La phase de Gouy subit une variation de $\pi/2$ lors du passage au foyer de $z = -b/2$ à $z = b/2$.
- $\mathbf{K}(r,z) = \nabla\phi_i(r,z) = -\alpha_i \nabla I(r,z)$ est le vecteur d'onde associé au dipôle atomique local. Il est déterminé par le gradient de la phase intrinsèque du dipôle, l'indice i=1,2 désignant les trajectoires dominantes dans le processus de génération d'harmoniques.

Le vecteur d'onde associé au faisceau fondamental est :

$$\mathbf{k}_1 = \mathbf{k}_1^0 + \mathbf{K}_{geo} \tag{I.21}$$

Le facteur de désaccord de phase $\triangle k_q$ est défini par :

$$\triangle k_q = |\mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_1 - \mathbf{K}(r,z)| \tag{I.22}$$

Dans la suite, on considère un milieu dilué soumis à un éclairement modeste (ionisation négligeable). Dans ce cas, les dispersions dues aux atomes et aux électrons libres peuvent être négligées.

La figure I.9 illustre la distribution du vecteur d'onde $\mathbf{k}_1$ et du vecteur d'onde associé à la polarisation non linéaire $\mathbf{K}(r,z)$ pour un faisceau Gaussien. Le laser se propage de la gauche vers la droite. Comme attendu, le vecteur $\mathbf{k}_1$ est dirigé principalement dans la direction z, il converge pour $z < 0$ et diverge pour $z > 0$.

On illustre différentes conditions d'accord de phase pour différents points de l'interaction d'un champ électrique (Gaussien) et le milieu atomique. Ceci reste très schématique, car bien entendu, la phase dépend de l'harmonique considérée et de la phase intrinsèque des harmoniques suivant le chemin quantique considéré.

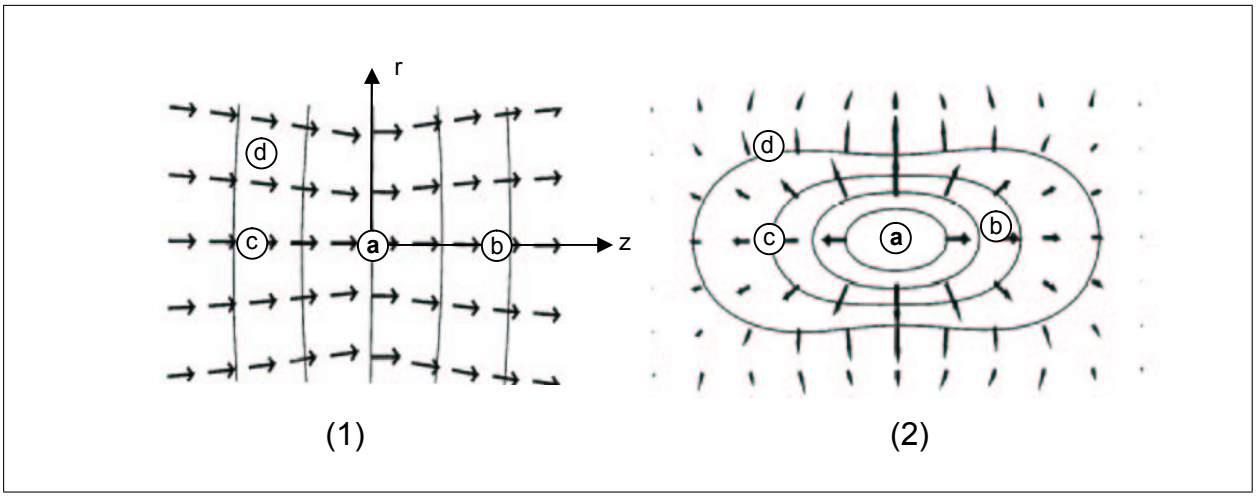
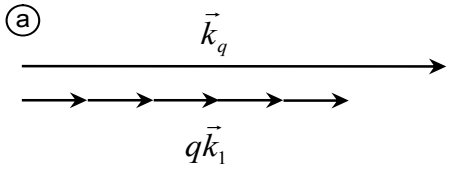
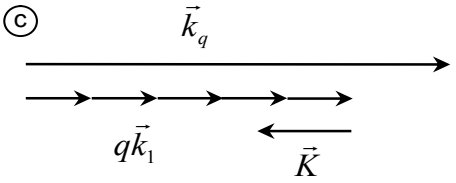


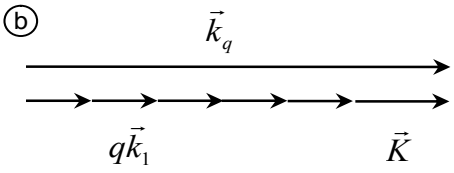
Fig. I.9 : *Distribution spatiale dans la région du foyer du vecteur d'onde laser* $\mathbf{k}_1$ *(1) et du vecteur d'onde* $\mathbf{K}$ *associé la phase atomique (2) d'après [Balcou et al. 97].*



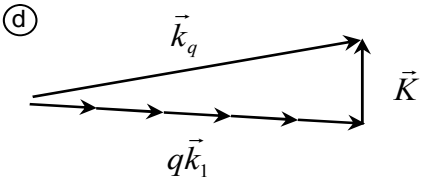
En r=0, z=0, le vecteur d'onde $\mathbf{K}$ est nul. On obtient alors un désaccord de phase du à la phase de Gouy, conduisant à la condition $\triangle k_q \approx 2q/b$.



En r=0, z<0, l'accord de phase n'est pas rempli, par conséquent la génération d'harmoniques est peu efficace autour des ces points.



En r=0, z>0, le vecteur d'onde $\mathbf{K}$ permet de compenser le désaccord de phase. Un accord de phase colinéaire est ainsi réalisé. Le champ harmonique émis se construit sur l'axe, ce qui donne une émission harmonique centrée en sortie du milieu en champ lointain. Dans un milieu générateur fin, seul le chemin quantique court τ_1 remplit les conditions d'accord de phase [Antoine *et al.* 96a, Gaarde *et al.* 99]. Cette contribution est donc dominante.



En r≠0, z<0, il existe des régions où l'accord de phase non-colinéaire est réalisé. Le champ harmonique présente alors une structure annulaire. Le gradient radial est d'autant plus important que ϕ_i est grand. Le chemin quantique long τ_2 semble alors avoir une contribution dominante dans l'accord de phase hors-axe.

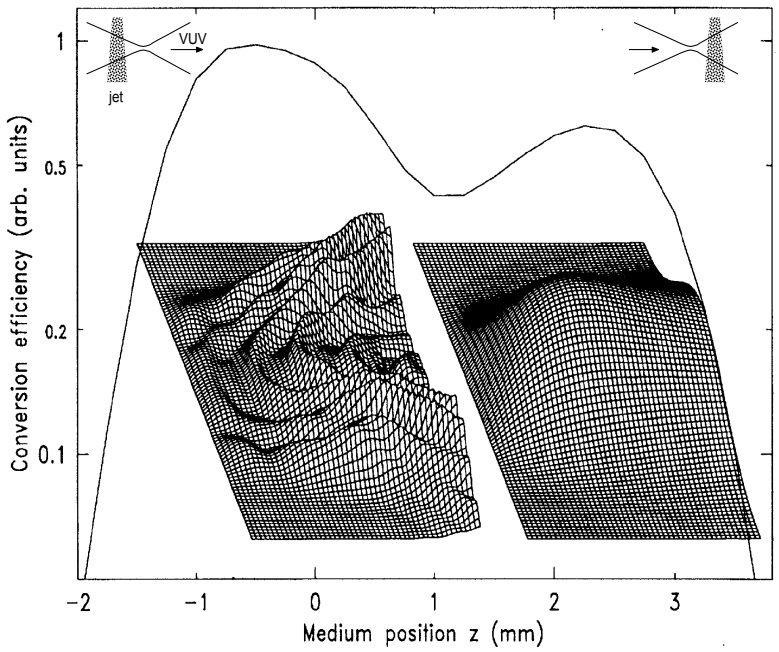


Fig. I.10 : *Efficacité de conversion de l'harmonique 45 générée dans le néon en fonction de la position z du centre du jet (de longueur : 1 mm) par rapport au foyer. La construction 3D représente la structure radiale du champ harmonique pour z=-1 et z=3 d'après [Salières* et al. *95].*

Suivant la position du milieu par rapport au faisceau laser, la réalisation de l'accord de phase diffère. La figure I.10 représente l'efficacité de conversion pour l'harmonique 45 générée dans un jet de néon en fonction de la position de son centre par rapport au foyer. La longueur du milieu est de 1 mm, l'éclairement maximum est de 6.10^{14} W/cm^2. Cette simulation a été effectuée par Salières *et al.* [Salières *et al.* 95] dans le cadre du modèle S.F.A.. Lorsque le laser est focalisé avant le jet (z>0), le champ harmonique se construit sur l'axe et présente une faible divergence. L'accord de phase favorise le chemin quantique court τ_1. Lorsque le laser est focalisé après le jet (z<0), le champ harmonique se construit principalement hors axe, présentant un profil annulaire à la sortie du milieu, avec une divergence plus importante que dans le cas précédent. L'accord de phase favorise le chemin quantique long τ_2. Les positions optimales, où les conditions d'accord de phase ⓑ et ⓓ sont réalisées, se caractérisent par deux maxima sur la courbe.

influence des atomes et des électrons sur l'accord de phase

La dispersion atomique introduite par le milieu générateur modifie l'indice de réfraction du milieu. Le désaccord de phase introduit par le milieu atomique s'écrit alors :

$$\Delta k_q^{at} = \mathbf{k}_q^{at} - q\mathbf{k}_1^{at} = \frac{q\omega_0 \mathcal{N}_{at}^0}{2c}(\kappa_1^{at} - \kappa_q^{at} - \kappa_1^{at}) \tag{I.23}$$

Où $\mathcal{N}_{at}^0$ est la densité d'atomes ($atomes/cm^3$), α^{at} est la polarisabilité statique du milieu atomique ($\alpha_1^{at} = 1{,}6.10^{-24}\ cm^{-3}$ pour l'argon à 800 nm [L'Huillier *et al.* 90]). L'énergie des photons harmoniques est supérieure à l'énergie d'ionisation, par conséquent les valeurs α_q^{at} sont négatives et du même ordre de grandeur que α_1^{at}.
Le vecteur $\Delta\mathbf{k}_q^{at}$ est négatif, orienté dans le sens inverse de $\mathbf{k}_q$. En l'absence d'ionisation, il existe une pression optimal P_{opt} permettant de compenser le désaccord de phase géométrique et ainsi d'obtenir un accord de phase ($\Delta k = 0$).

L'effet des électrons libres sur l'accord de phase est très important. En général, il devient prépondérant par rapport aux autres termes de dispersion. Il introduit un désaccord de phase positif entre le champ harmonique et le champ fondamental, qui augmente au fur et à mesure que le milieu s'ionise. Pour une pression supérieure à la pression optimale P_{opt}, on peut obtenir un accord de phase transitoire [Mével *et al.* 00, Kazamias *et al.* 03b]. À plus haute pression, la présence des électrons libres perturbe la propagation du champ fondamental. Dans ces conditions, le désaccord de phase devient important [L'Huillier *et al.* 92a]. Le désaccord de phase introduit par les électrons s'écrit :

$$\Delta k_q^{elec} = \mathbf{k}_q^{elec} - q\mathbf{k}_1^{elec} = \frac{\omega_p^2}{2cq\omega_0}(q^2 - 1) \tag{I.24}$$

Où ω_p est la fréquence plasma définie par :

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 \mathcal{N}_e}{m_e \varepsilon_0}} \tag{I.25}$$

Avec m_e masse de l'électron, e la charge de l'électron, ε_0 est la permittivité du vide.

La figure I.11 illustre le cas ⓐ avec l'addition des dispersions atomique et électronique si l'ionisation n'est pas trop élevée. Sous certaines conditions, les contributions de la dispersion électronique et de la dispersion atomique aboutissent à un accord de phase sur l'axe.

Lorsqu'il subsiste un désaccord de phase, on définit une longueur de cohérence L_{coh} comme étant la longueur sur laquelle le champ harmonique se construit efficacement.

$$L_{coh} = \left| \frac{\pi}{\Delta k_q} \right| \tag{I.26}$$

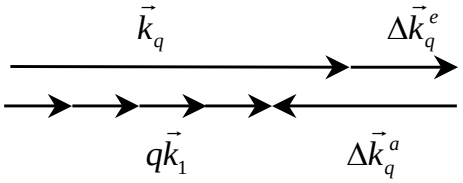


Fig. I.11 : *Diagramme des vecteurs d'ondes impliqués dans l'accord de phase sur l'axe lors de la génération d'harmoniques.*

L'accord de phase détermine à la fois le profil spatial de l'émission VUV et l'efficacité du processus de génération d'harmoniques. Cependant, un facteur supplémentaire limite l'efficacité.

1.4.2 Influence de l'absorption

L'absorption du rayonnement par le milieu limite l'efficacité de l'émission harmonique. Le terme d'absorption du rayonnement harmonique émis par les atomes est contenu dans la partie imaginaire de la susceptibilité associée aux atomes, elle-même reliée à la section efficace de photoabsorption du milieu atomique. Ce terme d'absorption se révèle crucial pour optimiser le processus de génération d'harmoniques [Constant *et al.* 99, Schnürer *et al.* 99, Kazamias *et al.* 03b].
On définit ainsi la longueur d'absorption comme étant la longueur sur laquelle le champ est atténué d'un facteur e:

$$L_{abs} = \frac{1}{\sigma^{(1)}\mathcal{N}_{at}(r,z,t)} \tag{I.27}$$

Où $\mathcal{N}_{at}$ est la densité atomique, $\sigma^{(1)}$ est la section efficace d'absorption (cm^2) à une fréquence donnée.

La figure I.12 représente les sections efficaces d'absorption à 1 photon en fonction de l'énergie pour des gaz rares. En général, la longueur d'absorption est beaucoup plus petite pour les harmoniques d'ordres bas que pour les harmoniques d'ordres élevés.
En considérant la condition d'accord de phase relatif au cas ⓐ, l'évolution des longueurs de cohérence et d'absorption sont représentées figure I.13 pour l'harmonique 23 en fonction de la pression du milieu avec un taux d'ionisation constant de 4%. En augmentant la pression, L_{abs} diminue devenant plus faible que L_{coh} qui diverge à la pression permettant un accord de phase quasi-parfait. L'accord de phase limite l'efficacité de l'émission à faible pression et l'absorption devient le facteur limitant à plus forte pression.

La dernière longueur caractéristique correspond à la longueur du milieu L_{med}. Pour optimiser le processus de génération d'harmoniques, les longueurs caractéristiques doivent remplir

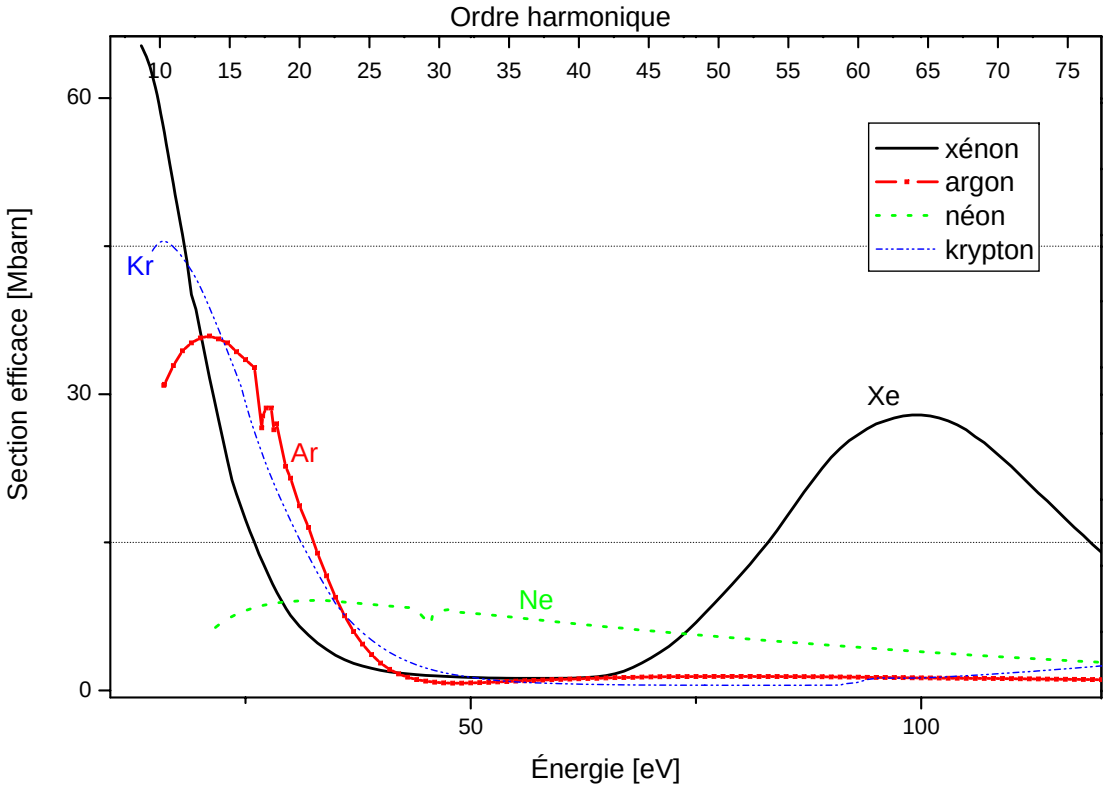


Fig. I.12 : *Section efficace d'absorption à 1 photon des gaz rares, (1 Mbarn = $10^{-18}\,cm^2$) d'après [Samson et al. 02] en fonction de l'énergie des photons et des ordres des harmoniques ($\lambda_0 =$ 800 nm).*

certaines conditions.

Une étude [Constant *et al.* 99, Mével *et al.* 00] sur la génération d'harmoniques dans une fibre creuse a établi la formule I.28, représentant le nombre de photons en sortie du milieu.

$$N_{out} = \mathcal{N}_{at}\, A_q^2 \frac{4\, L_{abs}^2}{1 + 4\pi\, (L_{abs}^2/L_{coh}^2)} \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{med}}{L_{abs}}\right) + 2\cos\left(\frac{\pi\, L_{med}}{L_{coh}}\right)\, \exp\left(-\frac{L_{med}}{2\, L_{abs}}\right)\right] \tag{I.28}$$

Où A_q est l'amplitude du dipôle à la fréquence ω_q : $A_q = [1 - \Gamma_i(t)(I(t))]\ d_q(I(t))$ avec Γ_i, la probabilité d'ionisation et $d_q(I(t))$, l'intensité du dipôle moyennée sur les interférences quantiques [Lewenstein *et al.* 93] .

Les conditions générales d'optimisation du rendement de conversion des harmoniques requièrent simultanément d'augmenter le rapport $\left|A_q/\sigma^{(1)}\right|^2$ et de remplir les conditions suivantes :

$$\begin{aligned} L_{coh} &> 5L_{abs} \\ L_{med} &> 3L_{abs} \end{aligned} \tag{I.29}$$

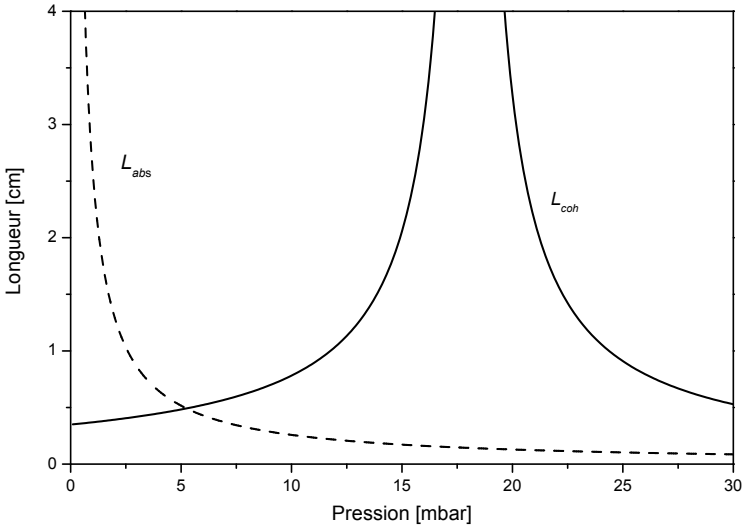


Fig. I.13 : *Évolution des longueurs de cohérence (trait plein) et d'absorption (trait pointillé) en présence d'ionisation pour l'harmonique 23 dans l'argon dans le cas* ⓐ

1.5 Source d'impulsions attosecondes

Dans le domaine spectral, les harmoniques du plateau sont séparées de deux fois la pulsation du fondamental ω_0 et d'égales amplitudes. N harmoniques du plateau en phase produiraient, dans le domaine temporel, un train d'impulsions séparées d'une demi-période optique du fondamental soit 1,33 fs à $\lambda = 800$ nm. La durée à mi-hauteur de chaque pic serait $\tau_N \approx T_0/2N$ avec T_0 la période du laser, soit $\tau_N = 266$ as pour $N = 5$ et $\lambda = 800$ nm. Il faut néanmoins que la phase spectrale des harmoniques varie de façon quasi-linéaire pour qu'un train d'impulsions attosecondes existe véritablement. Les calculs théoriques effectués par Philippe Antoine *et al.* [Antoine *et al.* 96a] sur la génération d'harmoniques dans le domaine temporel ont montré que cela était le cas. Courant 2001, Pierre-Marie Paul *et al.* [Paul *et al.* 01] ont montré, expérimentalement, que l'émission harmonique consiste en un train d'impulsions attosecondes. Le principe de leur expérience est présenté page 135.

Phase des harmoniques

L'étude de la phase relative entre les harmoniques montre que l'émission harmonique consiste en un train attoseconde.
Nous allons présenter les résultats fondamentaux issus du travail de Philippe Antoine *et al.* [Antoine *et al.* 96a].
La différence de phase entre les harmoniques consécutives dans le cas de la réponse de l'atome unique pour le néon est illustrée figure I.14. La longueur d'onde est $\lambda = 825$ nm et l'éclairement de $4{,}4.10^{14}$ W/cm^2. A priori, la différence de phase entre deux harmoniques consécutives semble varier aléatoirement pour les harmoniques d'ordres inférieures à q=65.

Néanmoins, on peut noter qu'il existe deux zones (en pointillé sur la figure) pour lesquelles la différence de phase suit une loi linéaire. Ces deux zones peuvent être associées aux chemins quantiques court et long : la branche supérieure correspond à la contribution du chemin quantique long τ_2 tandis que la branche inférieure correspond à la contribution du chemin quantique court τ_1.
L'analyse dans le domaine temporel montre quatre pics par cycle optique (cf. I.14 (2)). Les principaux pics (notés τ_1 et τ_2 sur la figure) apparaissent à des temps correspondant aux temps de retour τ_1 et τ_2.

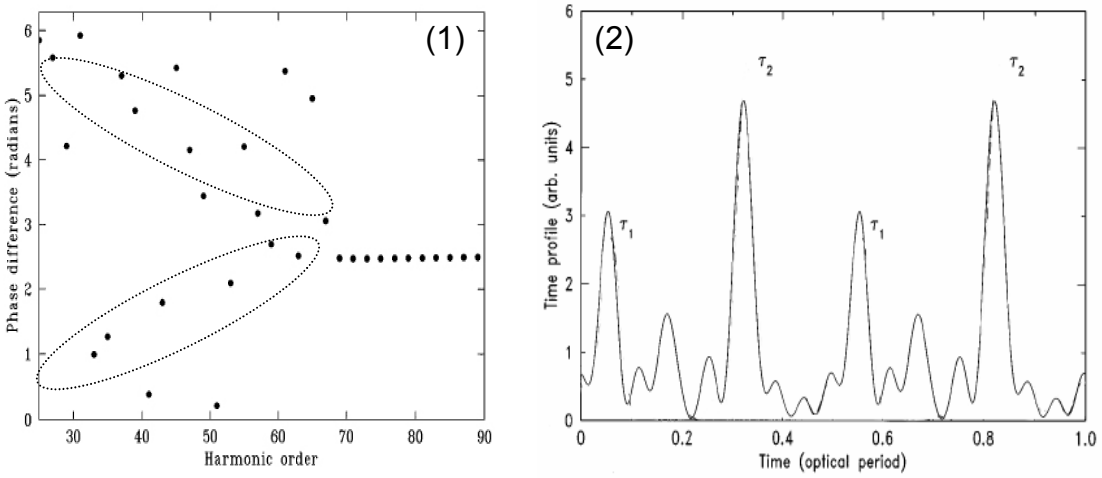


Fig. I.14 : *(1) Différence de phase entre les harmoniques consécutives. Harmoniques générés dans le néon. (2) Train d'impulsions correspondant à la somme des harmoniques 11 à 41 émises par un atome d'après [Antoine et al. 96a].*

À partir de l'étude semi-classique du mouvement de l'électron dans le champ laser, on retrouve cette dépendance linéaire de la phase intrinsèque des harmoniques. La phase intrinsèque du dipôle est directement proportionnelle au temps de retour τ : $\Phi_{dip} \approx -U_p\,\tau$. La phase des harmonique calculée à partir du mouvement classique de l'électron dans le champ est représentée figure I.15 en fonction de l'énergie cinétique à la recollision. Ce calcul classique permet de retouver ces deux zones pour lesquelles la distribution de la différence de phase entre harmoniques est linéaire. Ces dépendances linéaires ne sont plus valides pour les harmoniques basses et celles de la coupure.

Dans la suite, les effets de propagation sont pris en compte. On considère deux positions du jet par rapport au foyer. Les paramètres des simulations sont les suivants : l'impulsion est Gaussienne avec un paramètre confocal b=5 mm, la longueur du jet de gaz est de 1 mm.
La figure I.16 (1) représente le cas où le jet est placé 2 mm après le foyer [z = 2 mm], l'éclairement est alors de 4,4.10^{14} W/cm^2. La propagation agit comme un filtre : elle sélectionne le

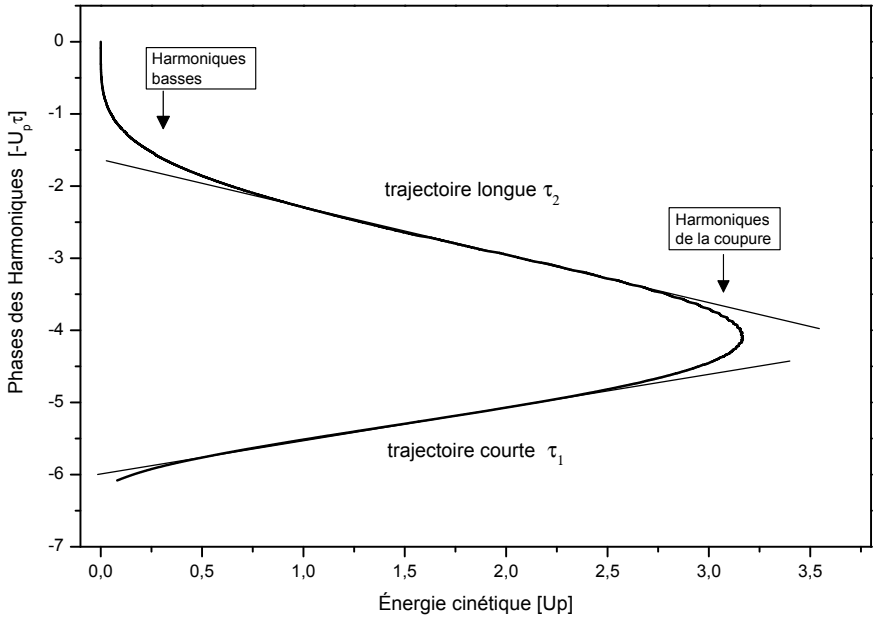


Fig. I.15 : *Phases des harmoniques en fonction de l'énergie cinétique à la recollision en unités de U_p.*

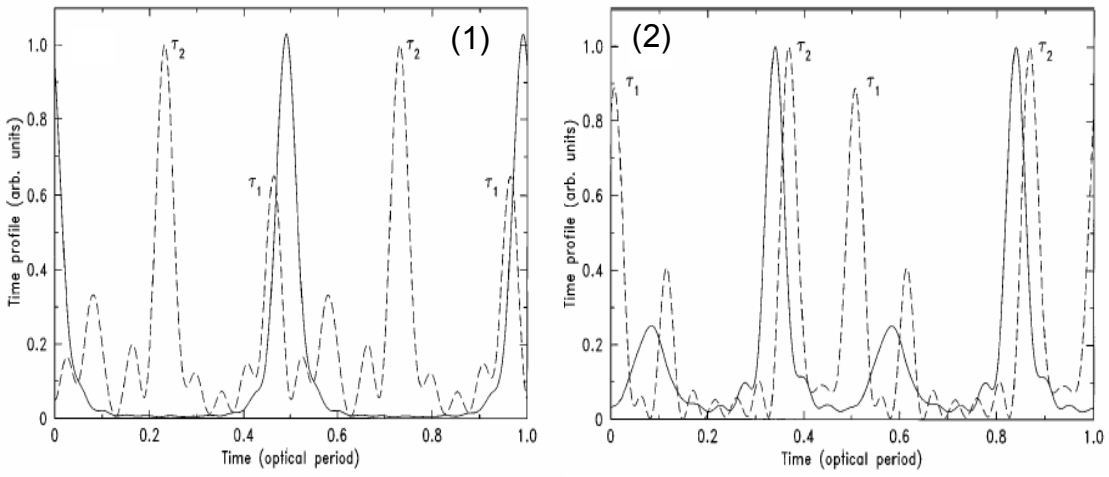


Fig. I.16 : *(1) Profil temporel de l'émission harmonique après propagation dans le milieu atomique, le jet atomique de longueur 1mm est placé 2 mm après le foyer [z= 2 mm] (trait plein). (2) Profil temporel de l'émission harmonique après propagation dans le milieu atomique le jet atomique est au foyer [z=0] (trait plein). La réponse de l'atome unique est représentée en pointillé.*

chemin quantique court τ_1 pour lequel l'accord de phase est favorisé. Le train d'impulsions ne comporte alors plus qu'un seul pic par 1/2 cycle optique.
La figure I.16 (2) représente le cas où le jet est placé au le foyer [z = 0 mm], l'éclairement est

alors de 6,6.10^{14} W/cm^2. Une autre trajectoire est sélectionnée, les deux pics prédominants correspondent au chemin quantique long τ_2.
En conclusion, les calculs effectués par Philippe Antoine ont confirmé les prédictions des modèles semi-classique sur le comportement de la phase relative des harmoniques. Il a pu mettre en évidence dans le domaine temporel les contributions respectives des chemins quantiques court et long. Enfin, en prenant en compte les effets de propagation, il a montré qu'il possible de "nettoyer" le train d'impulsions en sélectionnant une trajectoire.

Chapitre 2

Propriétés de la génération d'harmoniques

L'émission harmonique a été largement étudiée par différents laboratoires à travers le monde. Le comportement des spectres harmoniques est maintenant bien connu pour des impulsions laser $> 25\,fs$. Nous allons exposer les principales *caractéristiques* et *dépendances* des spectres harmoniques.

2.1 Caractéristiques principales

2.1.1 Caractéristiques spatiales

Les études spatiales sur le faisceau harmonique ont porté au début sur le profil radial en intensité des harmoniques. Tisch *et al.* [Tisch *et al.* 91] ont observé des profils très irréguliers pour des harmoniques d'ordres élevés (q=71,101) générées dans l'hélium. Ils attribuent ces effets à l'ionisation du milieu et à la phase du dipôle atomique. Leur jet était alors placé au foyer du laser. Une étude menée par Salières *et al.* a démontré que le profil des harmoniques dépendait fortement des conditions d'accord de phase réalisées dans le milieu et par conséquent de la position du jet par rapport au foyer [Salières *et al.* 96, Salières *et al.* 95]. Sous certaines conditions, il est possible de générer un faisceau harmonique dont le profil spatial est proche de celui d'un faisceau Gaussien (cf. figure I.17).

L'étude des propriétés spatiales ne se limite pas aux profils en intensité. D'autres caractéristiques importantes existent : à savoir la cohérence spatiale du faisceau et la qualité du front d'onde. Pour ce dernier point, la bonne qualité de la tache focale du faisceau harmonique généré dans le xénon a été caractérisée [Le Déroff *et al.* 98]. Le faisceau VUV est focalisé avec un miroir multicouche Mo/Si, légèrement hors axe. Dans le meilleur des cas, la taille du faisceau obtenue est de 10 μm. La qualité du faisceau se dégrade rapidement dès que la pression augmente à cause de la présence croissante des électrons libres dans le

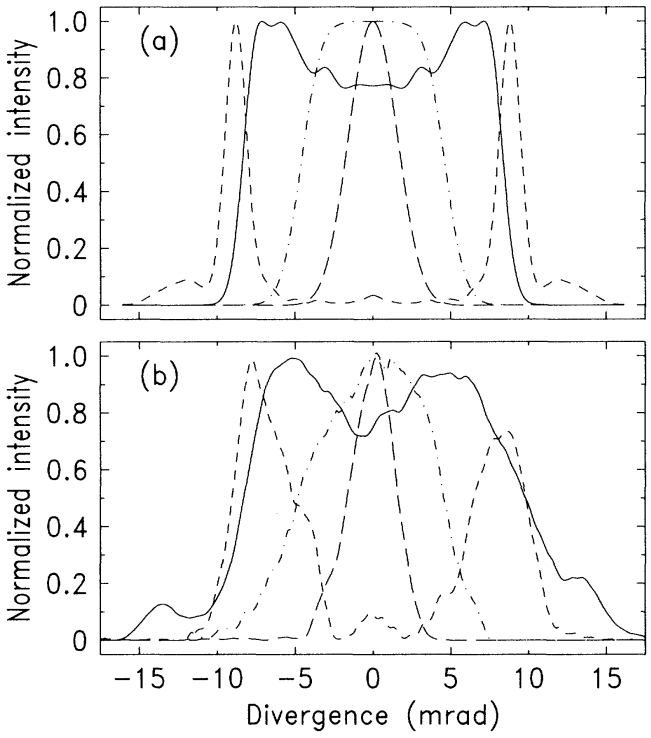


Fig. I.17 : *Évolution des profils spatiaux de l'harmonique 39 générée dans le néon en fonction de la position relative du jet de gaz. Le faisceau est focalisé avant le jet (trait court), le profil est alors Gaussien. Lorsque le jet se rapproche du foyer, le profil s'élargit (trait court point) et (trait plein). Le faisceau est focalisé après le jet, le profil devient annulaire. (a) Théorie [Salières* et al. *95]. (b) Résultats expérimentaux.*

milieu. Une mesure récente donne, pour un faisceau VUV focalisé, un diamètre de 3 μm [Kazamias *et al.* 03a].
La cohérence spatiale des harmoniques a été étudiée avec des fentes de Young [Ditmire *et al.* 96] et un bi-miroir de Fresnel [Le Déroff *et al.* 00]. En champ lointain, le degré de cohérence spatiale est élevé sur tout le faisceau harmonique ($\gamma > 0{,}5$). Il se dégrade dès que la pression augmente et que le faisceau est focalisé dans ou après le jet de gaz.

2.1.2 Cohérence temporelle

Cette étude a été effectuée en étudiant les interférences en champ lointain de deux sources harmoniques [Bellini *et al.* 98, Lyngå *et al.* 99]. La cohérence temporelle mutuelle a été mesurée en variant le délai ζ entre les deux sources et en enregistrant la décroissance de la visibilité des franges $V(\zeta)$. Le temps de cohérence est défini comme étant la largeur à mi-hauteur du module de la fonction d'autocorrélation du premier ordre. Expérimentalement, elle coïncide avec la fonction $V(\zeta)$. Le temps de cohérence est, en général, plus court que

la durée de l'impulsion et est égal à celle-ci si l'impulsion est limitée par transformée de Fourier. Pour les harmoniques du plateau, on distingue deux régions avec des cohérences temporelles différentes. La région centrale avec un temps de cohérence long correspond à la contribution du chemin quantique court τ_1. La région périphérique avec un temps de cohérence plus court correspond à la contribution du chemin quantique long τ_2. La figure I.18 présente la variation du temps de cohérence pour les deux régions distinctes en fonction de l'ordre des harmoniques et pour une harmonique donnée en fonction de l'éclairement laser. Les harmoniques sont générées dans l'argon. Dans la figure de gauche, le temps de cohérence reste assez constant quel que soit l'ordre des harmoniques pour la région périphérique. Pour la région centrale, le temps de cohérence diminue avec l'ordre harmonique. Dans la figure de droite, pour la région centrale, le temps de cohérence augmente avec l'éclairement alors qu'il reste insensible dans la région périphérique. En augmentant l'éclairement, l'harmonique passe de la coupure au plateau. À faible éclairement, l'harmonique se trouve dans la coupure, la contribution dominante provient d'une seule trajectoire. Le temps de cohérence devrait être identique quel que soit la région considérée. Cet effet est observé à un éclairement de $1{,}5.10^{14}\ W/cm^2$.

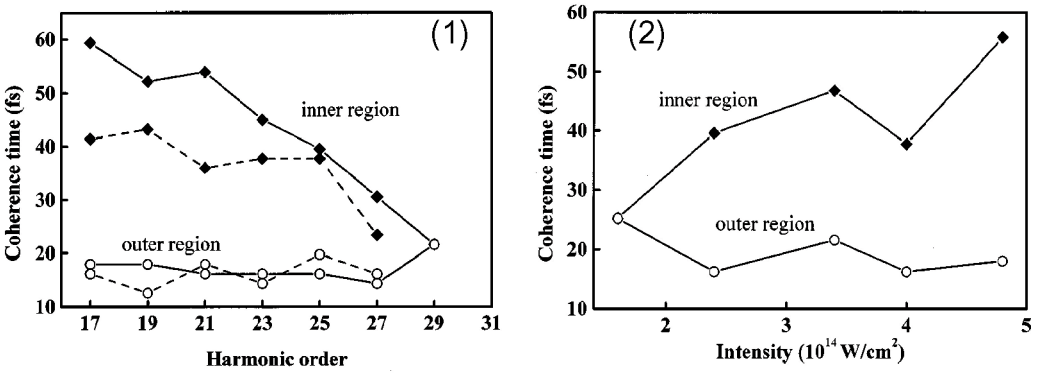


Fig. I.18 : *Évolution du temps de cohérence (1) en fonction de l'ordre des harmoniques. L'intensité est de* $2.10^{14}\ W/cm^2$ *(en pointillé) et de* $4.10^{14}\ W/cm^2$ *(trait plein). Et (2) en fonction de l'intensité pour l'harmonique 23. La région centrale est marquée avec des losanges (♦) et la région périphérique avec des cercles (○) d'après [Lyngå et al. 99].*

2.1.3 Énergie des harmoniques

L'efficacité de conversion de la génération d'harmoniques est définie par E_q/E_1, où E_q est l'énergie d'une harmonique et E_1 est l'énergie du faisceau fondamental. L'ordre de grandeur de l'efficacité de conversion se situe entre 10^{-5} et 10^{-8} [Constant *et al.* 99]. En utilisant des focales longues (5 m) et des énergies de faisceau pompe élevées, deux équipes

Harmoniques Xe	Énergie par impulsion	Photons par impulsion	Efficacité
H11 [1]	7 μJ	2,6.10^{12}	5,0.10^{-4}
H13 [1]	4,7 μJ	1,5.10^{12}	3,3.10^{-4}
H15 [1]	1 μJ	2,7.10^{11}	7,1.10^{-5}
Faisceau pompe : $E_1 = 14\ mJ$, $\lambda = 810\ nm$, $\tau = 35\ fs$			
H15 [2]	1,9 μJ	5,0.10^{11}	7,6.10^{-5}
Faisceau pompe : $E_1 = 25\ mJ$, $\lambda = 800\ nm$, $\tau = 60\ fs$			

Tab. I.1 : *Récapitulatifs des résultats obtenus par [Takahashi et al. 02]*[1] *et [Hergott et al. 02]*[2].

[Hergott *et al.* 02, Takahashi *et al.* 02]) ont atteint dans le xénon le *microJoule* par impulsion harmonique (cf. tableau I.1).

2.2 Les paramètres de l'émission harmonique

Nous allons décrire l'influence de différents paramètres sur la génération d'harmoniques. Le contrôle de ces paramètres est primordial pour obtenir un flux de photons important et un profil spatial homogène.

2.2.1 Dépendance en fonction de la nature du milieu

Les spectres harmoniques dépendent de la nature du milieu utilisé. On utilise, en général, des gaz rares. La génération d'harmoniques est liée à la polarisation non linéaire induite par le champ laser [Liang *et al.* 94]. Elle est d'autant plus efficace que l'atome est facilement polarisable. Les atomes lourds (xénon, argon, krypton) avec des polarisabilités élevées produiront des harmoniques plus efficacement que les atomes légers présentant des polarisabilités faibles (néon, hélium).

Les ions avec un potentiel d'ionisation I_p plus élevé que les atomes peuvent en théorie générer des harmoniques plus hautes d'après la loi de coupure I.6 page 16. Expérimentalement, l'interaction ions-laser étend le spectre harmonique généré par les atomes vers des ordres plus élevés [Wahlström *et al.* 93, Wahlström *et al.* 95, Gibson *et al.* 95]. Cependant, l'efficacité de conversion est plus faible pour les ions que pour les atomes neutres.

Des études menées avec des molécules [Lyngå *et al.* 96] ont montré des efficacités de génération identiques ou plus faibles en comparaison avec les gaz rares.

2.2.2 Dépendance en fonction de l'éclairement laser

La figure I.19 illustre la dépendance en éclairement de l'harmonique 21 générée dans l'argon. Dans un premier temps, le nombre de photons augmente rapidement lorsque l'éclairement augmente puis, dans un second temps, sature [Wahlström *et al.* 93, L'Huillier *et al.* 93a]. L'intensité harmonique varie plus rapidement dans la coupure que dans le plateau. l'éclairement auquel le signal sature correspond à l'éclairement de saturation pour l'ionisation du gaz I_{sat}. Pour un éclairement supérieur à l'éclairement de saturation, plusieurs raisons

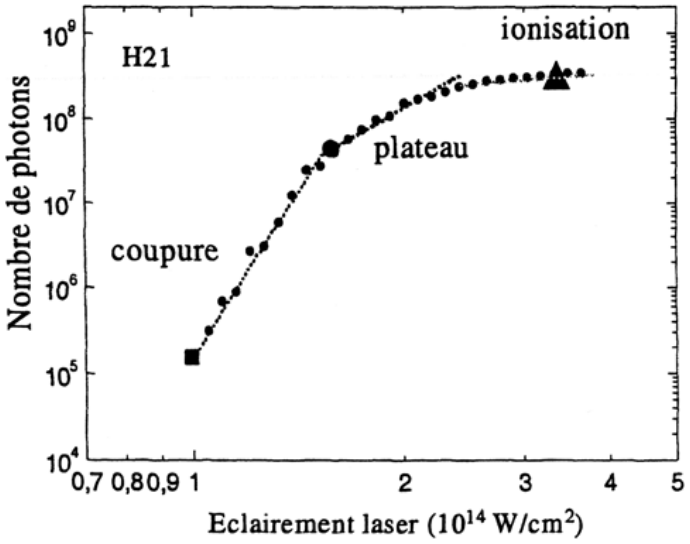


Fig. I.19 : *Nombre de photons de l'harmonique 21 générée dans l'argon en fonction de l'éclairement laser dans le milieu d'après [Salières 95].*

concourent à une plus faible augmentation du signal: Premièrement, le signal continu de croître avec le volume contenant l'éclairement de saturation qui varie comme $I^{\frac{3}{2}}$. Ensuite, l'augmentation du signal peut provenir de la contributions des ions pour lesquels l'efficacité est moindre (polarisabilité plus faible). Enfin, une dernière limitation peut provenir de la présence des électrons libres dans le milieu qui introduit une désaccord de phase ou même une défocalisation du faisceau laser.

2.2.3 Dépendance en fonction de la pression

Un moyen simple d'accroître l'efficacité de conversion est d'augmenter le nombre d'atomes émetteurs. La génération d'harmoniques est un processus cohérent censé augmenter comme

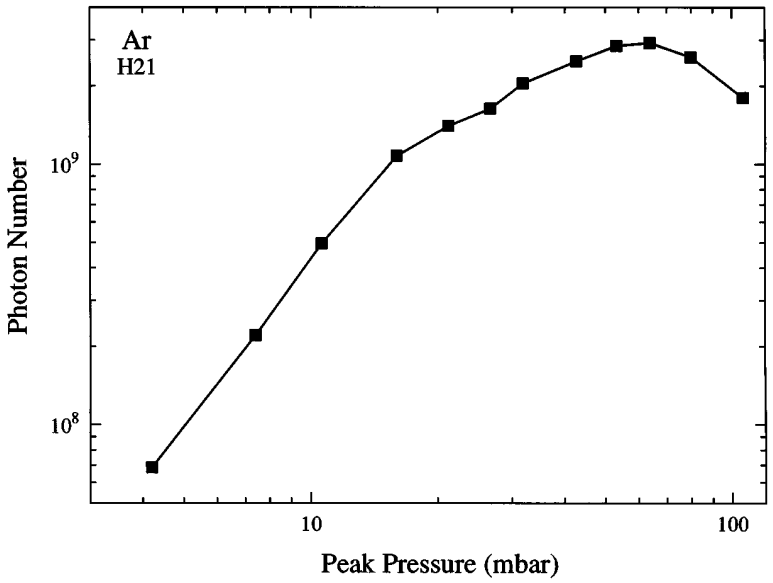


Fig. I.20 : *Nombre de photons de l'harmonique 21 en fonction de la pression. L'harmonique est générée un jet d'argon, l'intensité est de* 4.10^{14} W/cm^2. *D'après [Altucci* et al. *96]*

le carré de la densité atomique. Néanmoins, cette loi d'échelle est valable seulement pour les faibles pressions. À pression élevée, la génération d'harmoniques est influencée par d'autres paramètres qui varient avec la pression et peuvent altérer le signal harmonique : la réabsorption des harmoniques par le milieu générateur, la présence d'électrons libres due à l'ionisation du milieu entraînant un désaccord de phase entre le champ laser et la polarisation non linéaire, la défocalisation du faisceau fondamental [Altucci *et al.* 96, Hergott 01].

La figure I.20 représente l'évolution du signal de l'harmonique 21 générée dans l'argon en fonction de la pression dans un jet de dimension 1,2 mm. Altucci *et al.* observent une croissance quadratique du signal jusqu'à 16 $mbar$, ensuite le signal sature et puis diminue à haute pression en raison de la défocalisation du faisceau.

En général, pour les harmoniques du plateau, le facteur limitant est dû à l'absorption par le milieu atomique alors que pour les harmoniques de la coupure le facteur limitant provient de la défocalisation du faisceau fondamental dans le milieu ionisé.

2.2.4 Dépendance en fonction de la longueur d'onde

La plupart des expériences de génération d'harmoniques utilisent des lasers Titane:Saphir à 800 nm. D'autres équipes ont néanmoins pris des directions différentes. Celle de Louis DiMauro travaille avec une impulsion fondamentale à 4 μm pour générer des harmoniques dans le visible et proche UV. Dans ce domaine, la caractérisation temporelle (et spatiale) des harmoniques peut s'effectuer en utilisant des techniques conventionnelles [Sheely *et al.* 99].

D'après la loi de coupure $\hbar\omega_q = I_p + 3{,}2U_p(\lambda)$, avec une longueur d'onde courte, le plateau des harmoniques s'étend moins loin. Pour générer des harmoniques très élevées, il est préférable d'utiliser une grande longueur d'onde. Cependant, il a été démontré que pour un même éclairement et pour certaines harmoniques "basses", l'efficacité de génération décroît avec une longueur d'onde fondamentale de plus en plus grande [Ditmire *et al.* 95, Lewenstein *et al.* 93].

2.2.5 Dépendance en fonction de la durée de l'impulsion

L'efficacité de la génération d'harmoniques d'ordres élevés est d'autant plus importante que la durée de l'impulsion est courte pour une intensité donnée [Zhou *et al.* 96], [Balcou *et al.* 92]. Ce comportement est relié à l'éclairement de saturation I_{sat}. En effet lorsque l'impulsion est "longue", le milieu est totalement ionisé avant que le maximum de l'enveloppe temporelle soit atteint. Le signal harmonique émis est saturé par l'ionisation. Pour une impulsion plus courte et de même intensité, I_{sat} est augmentée. L'ionisation du milieu arrive plus tardivement au voisinage du maximum de l'enveloppe temporelle. Le milieu est soumis à un éclairement plus élevé, le spectre harmonique émis présente, par conséquent, un plateau plus étendu [Christov *et al.* 96] (cf. I.21).

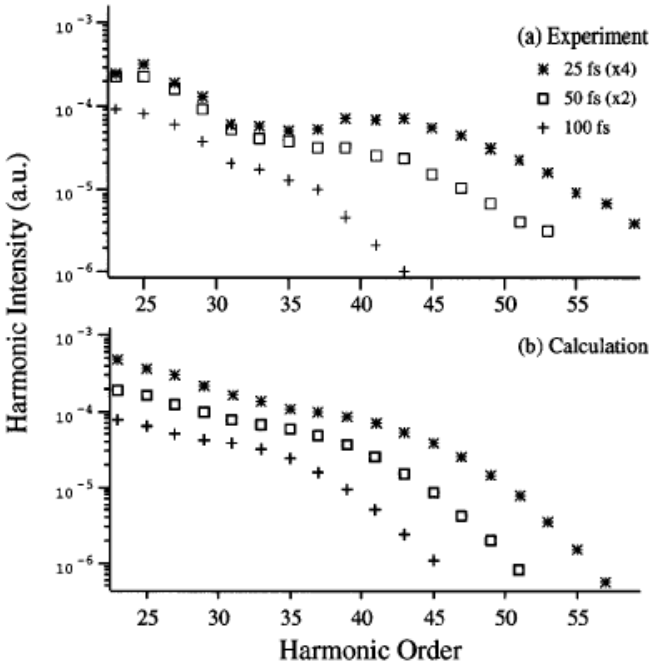


Fig. I.21 : *(a) Harmoniques générées dans l'argon par une impulsion de durée proche de la limite de fourier de 25 fs (∗),50 fs (□) et 100 fs (+) avec une intensité de* 4×10^{14} W/cm^2. *La cellule de gaz de longueur 1 mm est placée 2,5 cm après le foyer. D'après [Christov* et al. *96].*

2.2.6 Dépendance en fonction de la géométrie de focalisation

La manipulation des caractéristiques du faisceau fondamental permet d'optimiser la génération d'harmoniques. Lena Roos *et al.* ont montré qu'en créant deux foyers le long de l'axe de propagation au lieu d'un, l'efficacité de génération d'harmoniques dans le néon s'accroît d'un facteur 4 [Roos *et al.* 99]. De plus, cette technique permet d'augmenter sélectivement le signal d'une harmonique donnée et/ou de contrôler le profil et la taille du plateau harmonique.
Nisoli *et al.* utilisent une impulsion fondamentale dont le profil d'intensité est une fonction de Bessel. Comparé à un faisceau Gaussien, le profil spatial des harmoniques en champ lointain est largement amélioré ainsi que l'efficacité de génération [Nisoli *et al.* 02]. Ces résultats sont imputés à des mécanismes d'accord de phase différents selon le profil de l'impulsion fondamentale [Altucci *et al.* 03].
Des méthodes plus récentes utilisent des optiques adaptatives couplées à un algorithme génétique [Holland 92] permettant ainsi d'optimiser l'efficacité de la génération d'harmoniques.

2.2.7 Dépendance en fonction de la géométrie du milieu

Une méthode prometteuse pour générer les harmoniques est d'utiliser une fibre creuse remplie de gaz rare [Constant *et al.* 99, Rundquist *et al.* 98b, Schnürer *et al.* 98]. Les capillaires permettent d'augmenter la longueur d'interaction par rapport au jet de gaz et de guider le faisceau permettant de soumettre le milieu à un éclairement plus constant. Enfin, le confinement du gaz dans le capillaire permet de garder un vide résiduel satisfaisant dans l'enceinte à pression élevée. L'avantage de cette technique sous certaines conditions de pression est de pouvoir compenser la dispersion géométrique et électronique par la dispersion atomique et ainsi obtenir un accord de phase sur l'axe de la fibre. Mais l'efficacité est limitée par la réabsorption de l'émission harmonique par le milieu. L'efficacité obtenue est similaire à celle d'un jet long (cf. figure I.22). Cependant, pour certaines harmoniques (comme les harmoniques 29 à 33 générées dans l'argon) où l'absorption est faible, l'efficacité est plus importante. La fibre creuse garde tout son intérêt pour générer des harmoniques d'ordres très élevées.

L'équipe de Margaret M. Murnane et Henry C. Kapteyn *et al.* [Paul *et al.* 03] utilise une fibre creuse modulée spatialement. Avec cette géométrie, d'après les auteurs, le quasi-accord de phase est obtenu. En comparaison avec une fibre de section droite, l'efficacité de la génération d'harmoniques est augmentée et la coupure du spectre harmonique est déplacée vers des énergies plus élevées.

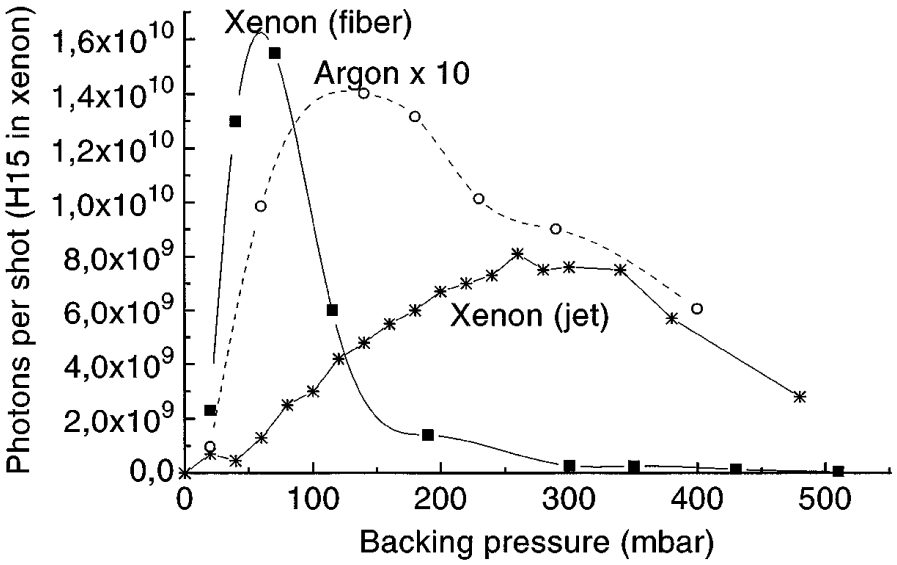


Fig. I.22 : *Nombre de photons détectés par tir pour l'harmonique 15 en fonction de la pression dans une fibre creuse de longueur 4 cm et de diamètre 200 µm et un jet de 800 µm de largeur. D'après [Constant et al. 99].*

Il y a eu également plusieurs études effectuées en fonction de la longueur du milieu avec une cellule de gaz à longueur variable de 0 à 20 *mm* [Delfin *et al.* 99, Tamaki *et al.* 00]. Ces études ont montré qu'en contrôlant la longueur d'interaction et la pression du gaz, l'efficacité du processus de génération d'harmoniques et la qualité spatiale du faisceau VUV sont aisément contrôlables.

2.2.8 Dépendance en fonction de l'ellipticité du fondamental

D'après le modèle semi-classique, le contrôle de la trajectoire de l'électron dans le continuum est primordial pour la génération d'harmoniques. La trajectoire de l'électron peut être modifiée en changeant la polarisation du laser.
L'influence de l'ellipticité du champ fondamental a été étudiée aussi bien expérimentalement [Budil *et al.* 93, Dietrich *et al.* 94] que théoriquement [Antoine *et al.* 96b, Long *et al.* 95]. Le nombre de photons harmoniques du plateau et de la coupure évolue plus ou moins de manière Gaussienne avec l'ellipticité ε du champ fondamental (cf. figure I.23). En notant N_q le nombre de photons émis par la q^{ème} harmonique, nous obtenons la loi empirique suivante :

$$N_q(\varepsilon) = N_q(0)e^{-\gamma_q \varepsilon^2} \tag{I.30}$$

Où γ_q est un coefficient dépendant de la nature du gaz et de l'harmonique considérée. L'importance cruciale de l'état de polarisation du fondamental découle de la réponse de

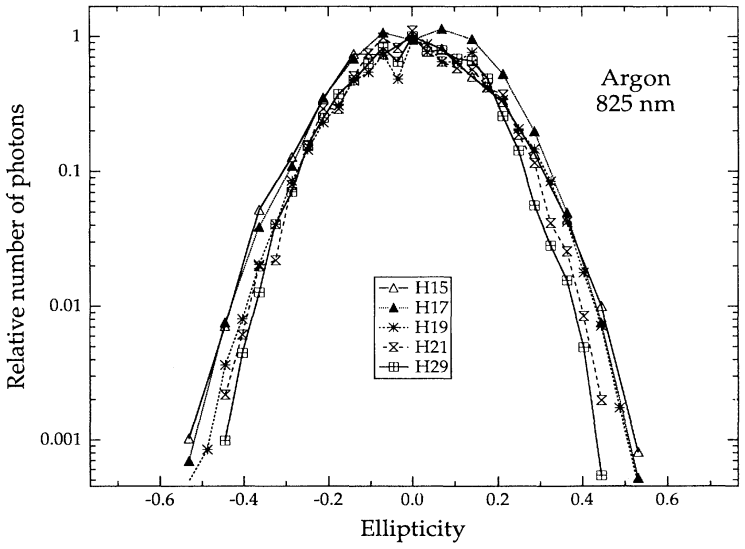


Fig. I.23 : *Évolution de l'intensité des harmoniques produites dans l'argon en fonction de l'ellipticité du champ fondamental. Tirée de [Budil* et al. *93]*

l'atome unique et non des effets collectifs. En régime tunnel, la probabilité d'ionisation de l'atome est très peu affectée par une faible ellipticité du fondamental : cette probabilité décroît de 5% entre $\epsilon = 0$ et $\epsilon = 0.1$ alors que l'émission harmonique est réduite de 50 %. C'est lors de la phase d'accélération de l'électron dans le champ intense que l'état de polarisation joue un rôle important. Dans un champ polarisé linéairement, en considérant le modèle semi-classique, l'électron suit une trajectoire rectiligne qui peut le ramener sur l'ion. Dans un champ elliptique, l'électron est accéléré suivant une trajectoire ne repassant pas par le noyau. La probabilité de recombinaison du noyau et de l'électron décroît rapidement, mais reste non-nulle en raison de l'étendue transverse de la fonction d'onde de l'électron.
Dans le régime perturbatif, l'état de polarisation des harmoniques est identique à celui du champ fondamental. En régime non perturbatif, cette attitude n'est plus exacte. La polarisation des harmoniques se caractérise par son ellipticité et par la rotation de son axe principal par rapport à l'axe principal de l'ellipse du champ fondamental [Weihe *et al.* 95, Antoine *et al.* 96b]. La mesure de la polarisation des harmoniques reste un problème expérimental difficile. D'après les calculs théoriques d'Antoine *et al.*, pour une ellipticité du fondamental $\epsilon < 0{,}1$, la polarisation des harmoniques est quasi linéaire $\epsilon_{VUV} \approx 0$, l'angle de rotation de l'axe principal est inférieur à 20° pour les harmoniques basses (q=23) et égale à 0 pour les harmoniques hautes.
Ces prédictions théoriques ont été confirmées expérimentalment [Antoine *et al.* 97b] [Schulze *et al.* 98].

Chapitre 3

Source harmonique du CELIA

3.1 Système laser du CELIA

3.1.1 Génération d'impulsions IR femtosecondes

La production d'impulsions laser ultracourtes nécessite l'utilisation d'un milieu amplificateur possédant une bande de gain large spectralement.
Le cristal Titane:Saphir possède les qualités nécessaires pour amplifier des impulsions ultracourtes, à savoir un spectre d'émission large (200 nm) centré autour de 800 nm, une énergie de saturation d'environ 1 J/cm^2 et un seuil de dommage élevé de 8-10 J/cm^2.

Le principe : blocage de mode

Une impulsion lumineuse ultracourte est obtenue à partir d'un spectre large si les composantes spectrales se superposent de façon cohérente. Pour cela, il est nécessaire d'obtenir une phase spectrale linéaire.
Dans le cas d'un milieu amplificateur à large bande, la cavité laser fonctionne sur un grand nombres de modes longitudinaux sur une largeur de bande $\Delta\nu_{ampli}$. Le champ laser total créé dans cette cavité par chaque mode E_k s'écrit sous la forme :

$$E_{total}(z,t) = \sum_k E_k(z,t) + \ c.c \quad \text{avec} \ E_k(z,t) = a_k \, e^{(i2\pi\times k\frac{c}{2L})t} \times e^{\alpha_k} + \ c.c \tag{I.31}$$

Avec c la vitesse de la lumière et L la longueur de la cavité. Si la distribution des phases α_k de ces modes est aléatoire, l'émission est continue. Par contre, si tous ces modes sont bloqués sur la même phase, $\alpha_k = cste$, on obtient un train périodique d'impulsions courtes dont la durée est inversement proportionelle à la largeur de la bande d'amplification $\Delta\nu_{ampli}$.

Obtention du blocage de mode

Plusieurs procédés permettent de réaliser la mise en phase des différents modes de la cavité. Nous décrirons la technique la plus répandue : le blocage de mode passif par effet Kerr. L'indice non linéaire n_2 d'un matériau induit une focalisation du faisceau lorsque l'intensité est élevée. En fonctionnement impulsionnel, le mode transverse du laser est modifié. En adaptant le mode spatial du faisceau pompe sur le mode transverse du laser, on favorise ainsi l'amplification des impulsions de forte intensité et donc le fonctionnement en mode impulsionel (cf. figure I.24). Dans la cavité, sans compensation de la dispersion de la vitesse de groupe sur aller-retour, le fonctionnement impulsionnel n'est pas stable.

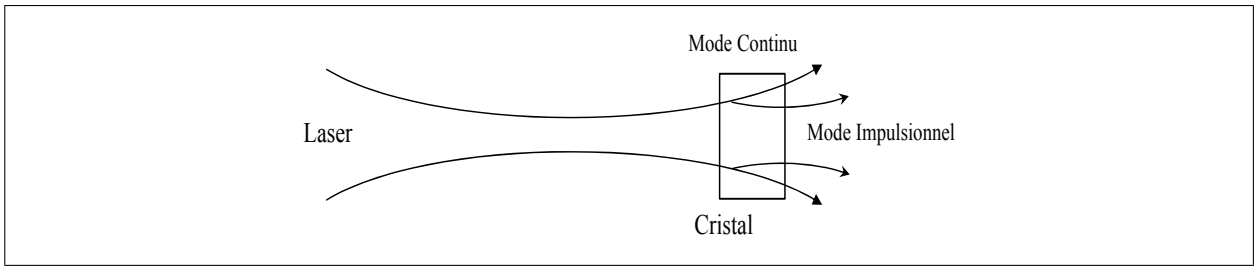


Fig. I.24 : *Effet Kerr dans le cristal de Titane:Spahir.*

Amplification à dérive de fréquence

La limitation principale pour l'amplification d'impulsions ultrabrèves est due à la valeur atteinte par l'éclairement crête de l'impulsion ($10^{12}\,W/cm^2$). La première conséquence est un endommagement irréversible du milieu amplificateur et des optiques. Pour s'affranchir de cette limitation, une technique empruntée aux hyperfréquences a été développée en 1985 [Strikland *et al.* 85], appelée l'amplification d'impulsions à dérive de fréquence (CPA: *Chirp Pulse Amplification*). La méthode consiste à étirer temporellement l'impulsion avant l'amplification afin de diminuer l'intensité crête du faisceau laser et ainsi de s'affranchir des problèmes d'endommagement des optiques et des effets non linéaires. Après amplification, l'impulsion est recomprimée à la limite de Fourier. Le principe est représenté figure I.25. L'impulsion courte initiale est générée dans une cavité laser en mode bloqué. L'impulsion est étirée temporellement avec une dérive de fréquence positive (le spectre est étalé dans le temps). Après l'étireur, les basses fréquences ("rouge") se situent sur le front avant de l'impulsion et les hautes fréquences ("bleu") sur le front arrière de l'impulsion. Après l'amplification, le faisceau passe à travers une ligne à dispersion négative pour comprimer temporellement l'impulsion. Pour atteindre la durée de l'impulsion initiale, il faudrait que toutes les composantes fréquentielles soient amplifiées de la même manière. Cependant, le rétrécissement

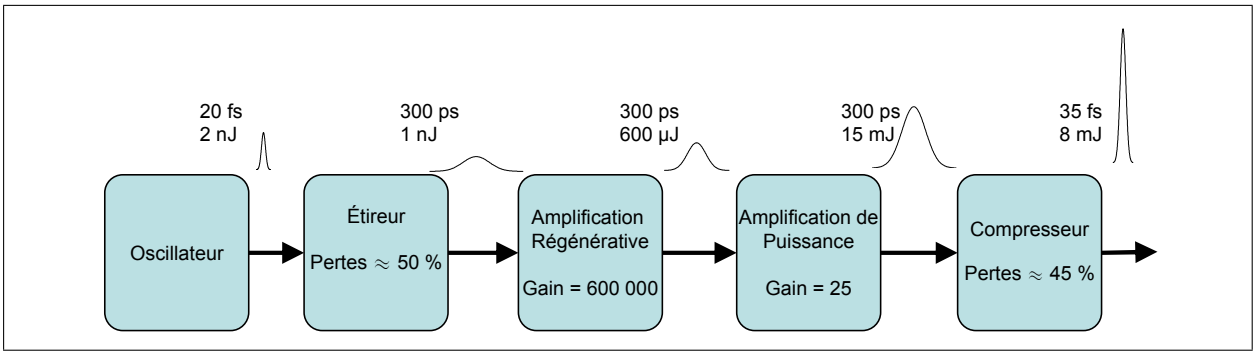


Fig. I.25 : *Diagramme fonctionnel de la chaîne laser du CELIA.*

spectral par le gain qui survient dans le premier étage d'amplification ne permet pas de recomprimer l'impulsion à sa durée initiale.
La source laser du CELIA est née du projet ELIA. L'ambition de ce projet était le développement de sources de rayonnement dans une vaste gamme de fréquences allant du proche infrarouge au rayonnement X. Un schéma du laser est présenté figure I.26, il a été en grande partie réalisé par Vincent Bagnoud [Bagnoud 99]. La chaîne laser du CELIA délivre à 800 nm des impulsions de durée 35 fs et une énergie atteignant 8 mJ avec un taux de répétition de 1 kHz.

3.1.2 Diagnostics temporels

Il n'existe pas de détecteur assez rapide pour mesurer la durée d'impulsions femtosecondes. La technique usuelle est d'utiliser un autocorrélateur du second ordre. D'autres techniques ont été développées comme le "SPIDER" (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction). Aujourd'hui, le SPIDER est la méthode la plus complète pour caractériser une impulsion : elle permet de mesurer l'amplitude du champ $|E(t)|$ et la phase spectrale $\Phi(\omega)$. Elle est en cours d'implémentation à CELIA.

Autocorrélateur $2\,\omega$

Le schéma de principe de 1'autocorrelateur est représenté sur la figure I.27. L'impulsion lumineuse est divisée en deux par une lame séparatrice. Une des deux impulsions suit un trajet fixe. La seconde impulsion est retardée temporellement par son passage dans un coin de cube monté sur un pont vibreur dont le déplacement est commandé par un générateur sinusoïdal de basse fréquence, typiquement 30 Hz. Si 1'on appelle $I(t)$ le profil temporel en intensité de 1'impulsion parcourant le bras fixe, celui de 1'impulsion ayant parcouru le bras mobile sera notée $I(t-\tau)$, où τ est le retard introduit par le déplacement du coin de cube.
Les deux impulsions IR de fréquence ω sont ensuite focalisées sur un cristal doubleur de

fréquence de KDP ou de BBO. L'intensité du signal doublé 2ω dépend alors du retard τ. L'intensité est mesurée à l'aide d'une photodiode dont le temps de réponse est très lent par rapport à la durée de l'impulsion. On obtient un signal $I_{2\omega}$ qui est proportionnel à l'intégrale :

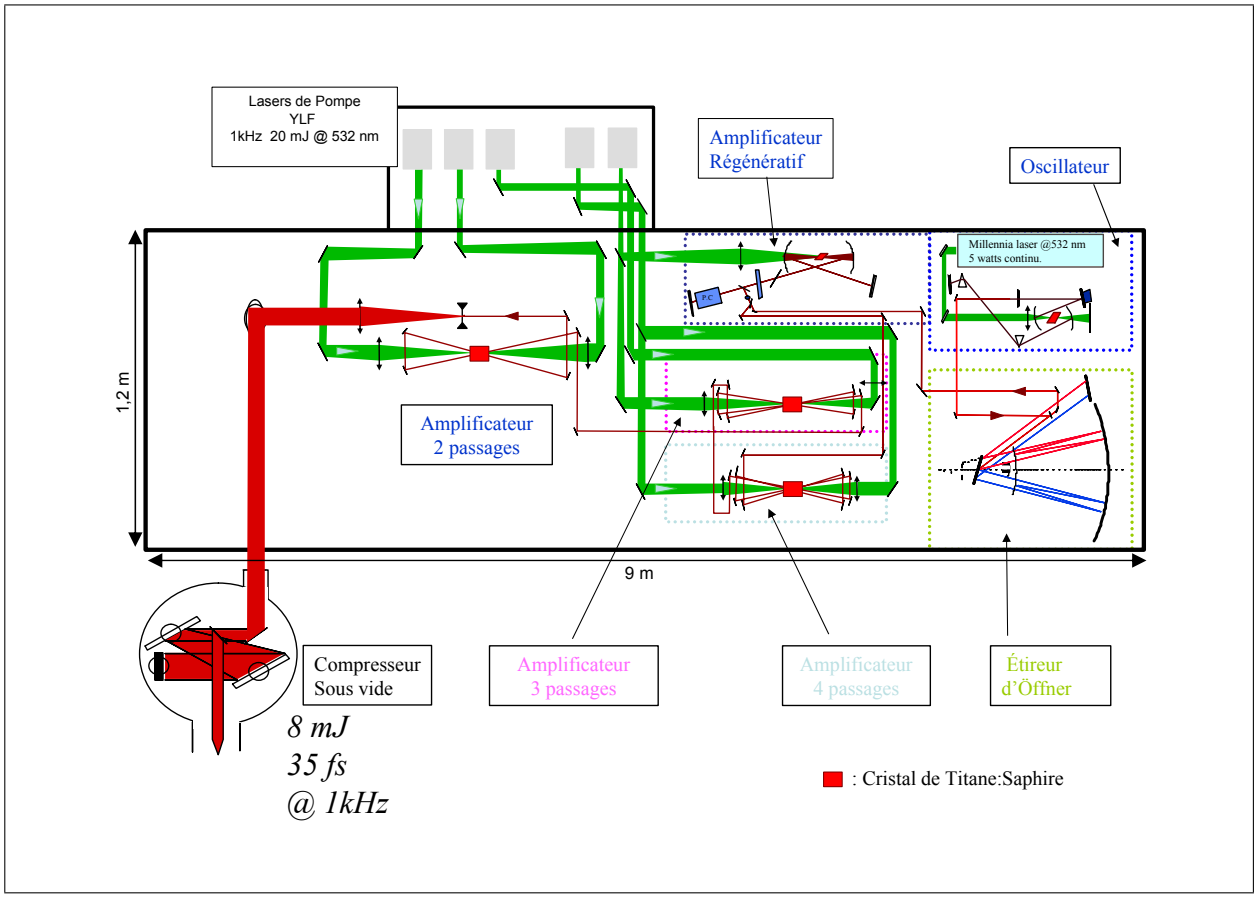


Fig. I.26 : *Configuration de la chaîne laser du CELIA lors de ce travail de thèse.*

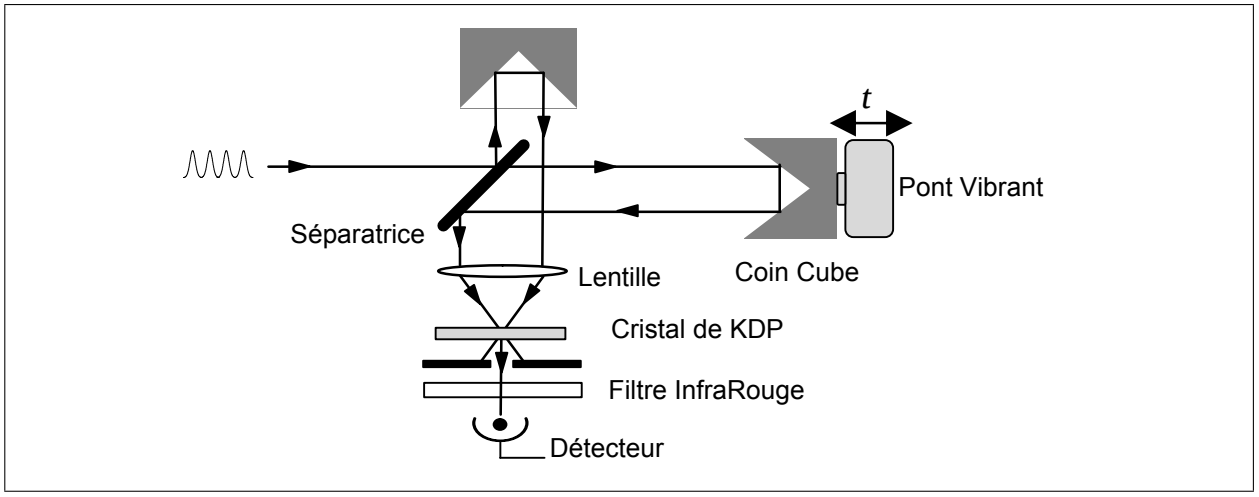


Fig. I.27 : *Schéma de principe de l'autocorrélateur optique*

$$I_{2\,\omega}(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_\omega(t) \times I_\omega(t-\tau)\ \ dt \tag{I.32}$$

La fonction $I_{2\,\omega}(\tau)$ obtenue correspond à la fonction d'autocorrélation du profil temporel de l'impulsion en intensité. Dans le cas d'une impulsion Gaussienne, la fonction d'autocorrélation est une Gaussienne de durée $\sqrt{2}$ plus grande. On déduit ensuite la durée de l'impulsion à partir de la largeur de la fonction d'autocorrélation. La largeur de l'autocorrélation donne une idée sur la durée de l'impulsion.

3.2 Dispositif de génération d'harmoniques

La figure I.28 représente le montage utilisé au CELIA pour générer et étudier les harmoniques d'ordres élevés. Le rayonnement harmonique est émis lors de l'interaction entre le laser IR et le milieu atomique contenu dans la cellule. La cellule est un tube de verre

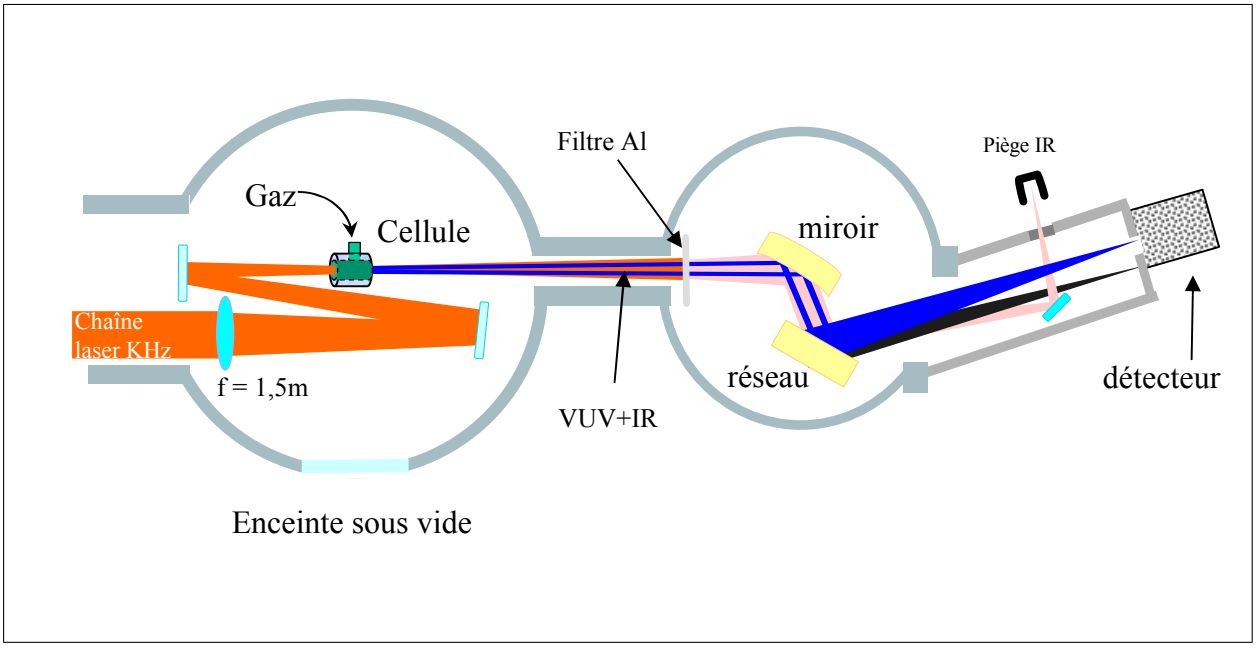


Fig. I.28 : *Dispositif expérimental pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés à CELIA.*

creux avec un diamètre intérieure variant de 200 à 400 μm et une longueur variant de 1 à 4 cm. Elle repose sur un support mécanique permettant d'effectuer les réglages sous vide selon 3 axes orthogonaux. Il est possible d'ajuster la cellule selon la direction Y (latérale au faisceau laser), la direction Z (parallèle au faisceau) et la direction X (verticale à la direction du faisceau). La focalisation du faisceau laser est réalisée soit à l'aide d'une lentille soit à l'aide d'un miroir sphérique. Les lentilles nous donnent la possibilité d'utiliser des focales plus longues que les miroirs. La configuration avec la lentille est représentée sur la figure I.29. Les

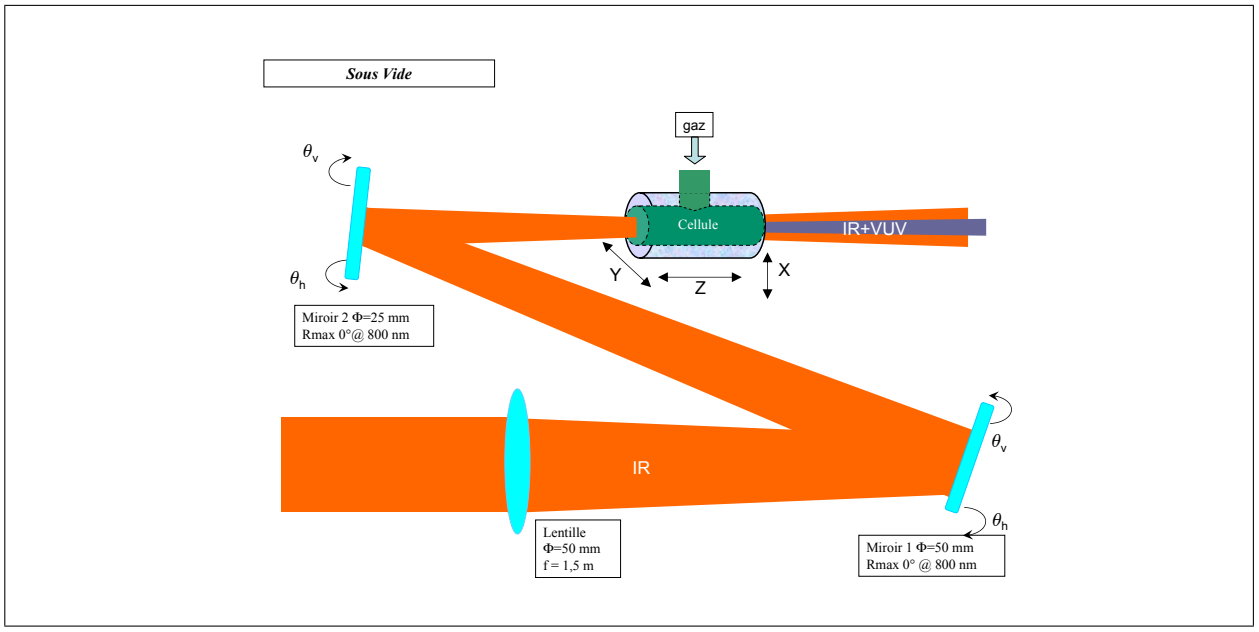


Fig. I.29 : *Détail du dispositif avec la lentille.*

rotations des miroirs de renvoi nous permettent de régler l'axe du faisceau IR prédéfini par des repères mécaniques.

L'émission VUV est analysée par un système optique composé d'un miroir torique de focale 1 m et d'un réseau plan. L'avantage de ce système est de créer une image en champ plan permettant de fonctionner directement en spectromètre avec une caméra CCD. Le système optique image directement la zone d'interaction (configuration 2f-2f), de ce fait on ne dispose pas de fente d'entrée. Les optiques sont recouvertes d'or et sont attaquées sous incidence rasante de 12,5° dans le but d'obtenir une meilleure réflectivité dans le domaine VUV. Le réseau possède un pas variable avec une densité moyenne de 470 $traits/mm$. En l'absence de fente d'entrée, la calibration du spectromètre doit être effectuée à chaque installation de la source harmonique. La déviation totale du réseau est D=i-r ($\approx$ 155°) où i est l'angle d'incidence sur le réseau et r l'angle de réflexion par rapport à la normale du réseau. La loi des réseaux en réflexion s'écrit :

$$(\sin i + \sin r) = q_r \, m \, \lambda \tag{I.33}$$

avec m l'ordre de diffraction et q_r le nombre de traits par millimètre. La relation entre la longueur d'onde harmonique et l'angle θ du réseau est donnée par :

$$\sin(\theta - \theta_1) = \frac{q_r \, m \, \lambda}{\cos \frac{D}{2}} \tag{I.34}$$

Avec θ_1 l'angle pour lequel le faisceau infrarouge d'ordre 0 est centré sur le dispositif de détection. L'angle de déviation D est égal à $2(\theta_1 - \theta_0)$, avec θ_0 l'angle du réseau pour lequel le faisceau IR est renvoyé sur lui-même.

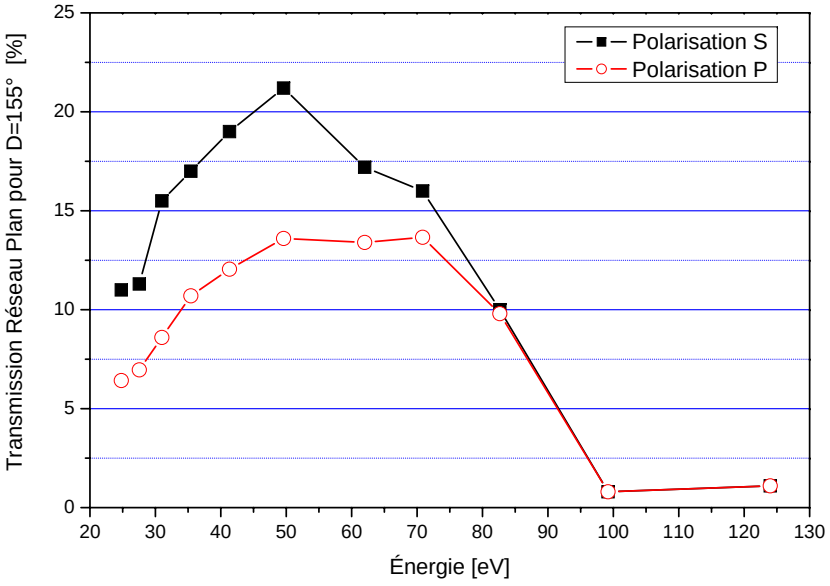


Fig. I.30 : *Réflectivité absolue du réseau plan JOBIN-YVON en fonction des énergies des photons incidents pour un angle de déviation D=155°. Données JOBIN-YVON.*

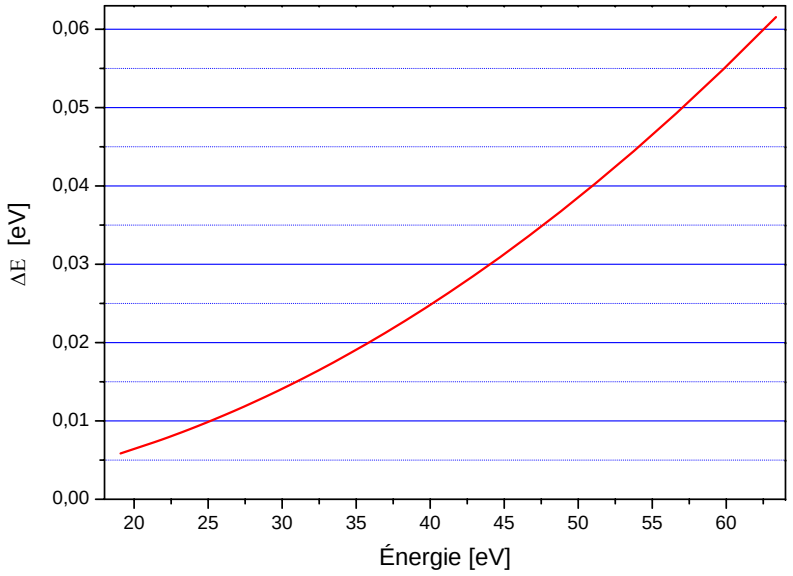


Fig. I.31 : *Résolution du système déterminée par la loi des réseaux.*

Les systèmes de détection se composent soit d'une caméra CCD soit d'un photomultiplicateur.

• La caméra CCD amincie Princeton est maintenue sous vide et placée au foyer du spectromètre. La caméra étant très sensible au proche IR diffusé, elle est protégée par un filtre en aluminium d'épaisseur 1000$\AA$ ou 2000$\AA$ (courbe de transmission page 148). Ces filtres de dimensions importantes sont déposés sur une fine grille, ce qui les rend plus résistants. La sélection des ordres des harmoniques observées se fait via la rotation du réseau plan commandée électroniquement. Avec la caméra, nous avons accès à deux informations : le spectre harmonique dans la dimension horizontale et la distribution radiale de l'éclairement dans la dimension verticale. La résolution du système est présentée figure I.31.

• Le photomultiplicateur se trouve à environ 3 cm derrière la fente placée au foyer du spectromètre. Pour chaque position du réseau, le signal harmonique est enregistré. Ce balayage permet de reconstruire le spectre harmonique. La largeur de la fente définit la résolution du système, l'optimum étant atteint pour une largeur égale à celle de la source.

3.3 Optimisation des harmoniques basses

Le plus souvent, les applications du rayonnement VUV mettent en jeu des harmoniques relativement basses (q=15,17). Nous avons testé différents dispositifs de génération d'harmoniques pour optimiser le flux des harmoniques basses. Nos tests ont été réalisés en utilisant soit une fibre creuse soit une cellule. Nous avons placé un diaphragme de diamètre ajustable sur la trajectoire du faisceau fondamental avant l'optique de focalisation. Le diamètre du trou le plus usité est de 17,5 mm, l'intensité au foyer est alors d'environ 1.10^{15} W/cm^2.

Avec une fibre de diamètre 200 μm et de longueur 4 cm, l'infrarouge est focalisé avec un miroir de focale 1 m, le couplage fibre-IR est de 63 %. On obtient pour les harmoniques basses 15 et 17 de meilleurs résultats avec le krypton qu'avec l'argon (un facteur 2). Ensuite, en remplaçant le miroir par une lentille de 1,5 m, le couplage passe à 77 %. On n'observe pas de changement significatif sur le flux des harmoniques basses.

En substituant à la fibre une cellule de diamètre 400 μm et de longueur 1.5 cm, l'énergie des harmoniques basses augmente d'un ordre de grandeur avec la lentille (comparée à la fibre). En déplaçant la cellule par rapport au foyer (quelques centimètres), le flux augmente rapidement comme l'illustre la figure I.32. Cette opération est impossible avec la fibre sans une détérioration rapide du couplage. La figure I.33 représente les spectres des harmoniques 15 et 17 pour trois positions différentes de la cellule par rapport au foyer. Cette figure illustre l'évolution caractéristique de la largeur spectrale des harmoniques en fonction de la position du milieu générateur par rapport au foyer . Quand le milieu est placé avant le foyer, l'accord

de phase favorise le chemin quantique long τ_2 par conséquent la largeur des harmoniques est importante. Quand le milieu est placé après le foyer l'accord de phase favorise le chemin quantique court τ_1 donnant des harmoniques "fines".

En comparaison avec la fibre, la pression dans la cellule est limitée plus rapidement par le

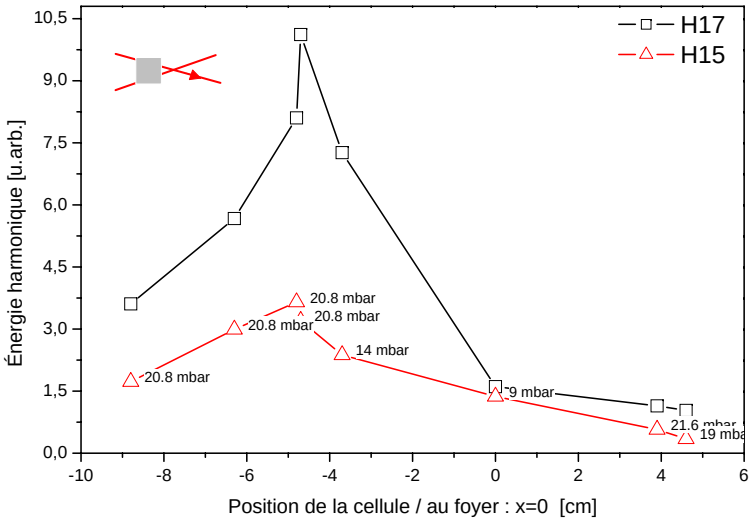


Fig. I.32 : *Énergies des harmoniques 15 et 17 produites dans le krypton en fonction de la position de la cellule par rapport au foyer. La pression optimale dans la cellule est indiquée sur la figure pour chaque position.*

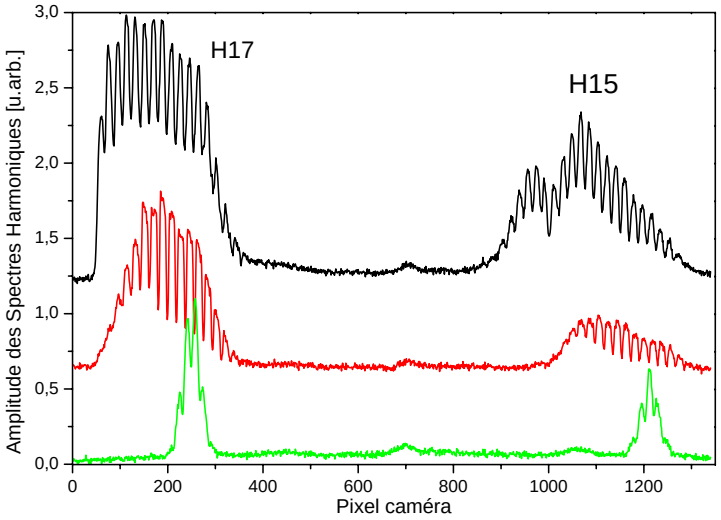


Fig. I.33 : *Spectres des harmoniques 15 et 17 pour 3 positions de la cellule par rapport au foyer. La cellule est placée 4 cm avant le foyer (haut), au foyer (milieu), et enfin 4 cm après le foyer (bas). Les oscillations dans les spectres harmoniques sont dues à la grille supportant le filtre en aluminium.*

système de pompage de l'enceinte. Toujours dans le but d'optimiser le flux harmonique, nous avons procédé à des comparaisons en utilisant du krypton et du xénon comme gaz générateur et également en doublant la fréquence du fondamental à l'aide d'un cristal de BBO. Les résultats sont récapitulés dans la figure I.34. Ces résultats démontrent qu'avec notre système

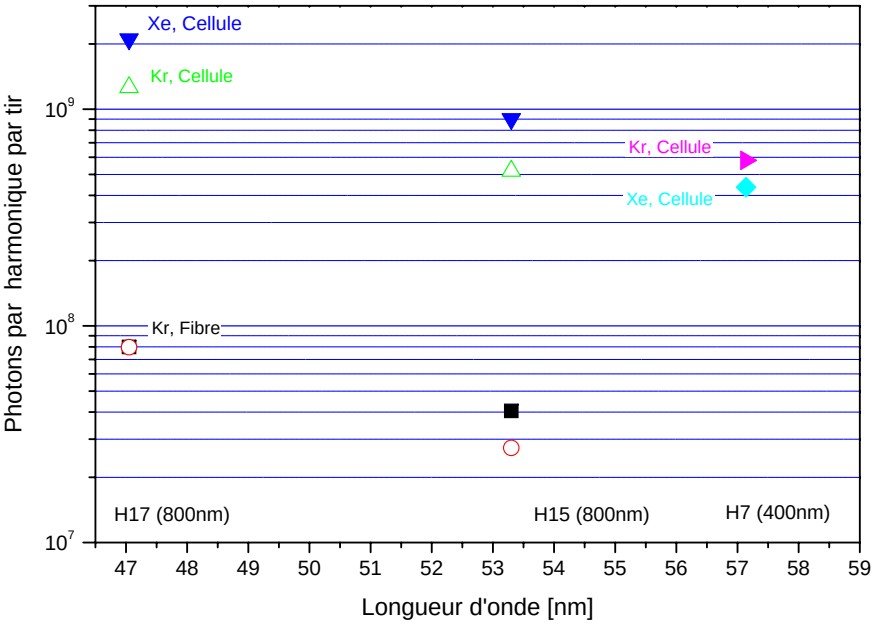


Fig. I.34 : *Nombre de photons par harmonique en fonction de la longueur d'onde des harmoniques pour différents dispositifs expérimentaux:*
fibre remplie de krypton et miroir de focale 1 m (■),
fibre remplie de krypton et lentille de focale 1,5 m (○),
cellule remplie de xénon, $\lambda_0 = 800$ nm (▼), cellule remplie de krypton, $\lambda_0 = 800$ nm (△), cellule remplie de xénon, $\lambda_0 = 400$ nm (◆), cellule remplie de krypton, $\lambda_0 = 400$ nm (▶).

expérimental, l'utilisation de la cellule et d'un faisceau fondamental non doublé donnent de meilleurs résultats pour la génération d'harmoniques basses.
L'utilisation d'un faisceau doublé (400 nm) ou d'un faisceau fondamental (800 nm) donnent des résultats comparables pour des harmoniques proches en longueur d'onde (H7 pour $\lambda = 400nm$) et (H15 pour $\lambda = 800nm$). La génération d'harmoniques est plus efficace à 400 nm qu'à 800 nm mais la faible efficacité de doublage ($\sim 10\%$) compense l'augmentation de l'efficacité. L'utilisation d'un faisceau IR doublé en fréquence peut être intéressante en raison de sa coupure très nette (absence d'harmoniques très élevées).

3.4 Spectres caractéristiques

Les figures suivantes représentent les différents spectres harmoniques générés dans des milieux différents tels que le xénon, l'argon et le krypton avec le système du CELIA. Dans ces expériences, un photomultiplicateur est utilisée pour détecter les harmoniques en sortie du spectromètre. La source harmonique est optimisée pour les harmoniques du plateau en fonction de la position de la cellule par rapport au foyer du laser et de la pression dans la cellule. L'énergie laser incidente est de 1,5 mJ, la durée de l'impulsion est de 60 fs, la longueur d'onde est de 810 nm. La cellule a un diamètre de 400 μm et une longueur de 1 cm, elle est centrée au foyer du laser pour z=0.

argon

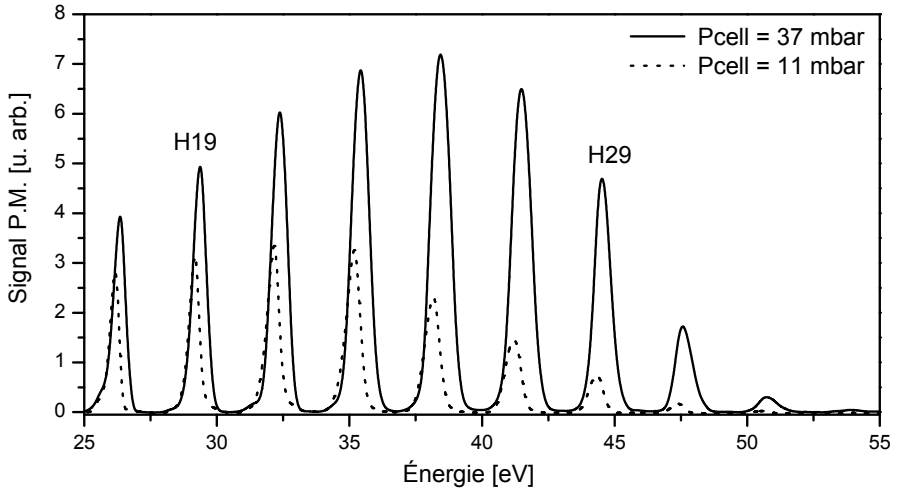


Fig. I.35 : *Spectre harmonique de l'argon, pour 2 pressions différentes. Le centre de la cellule est placé à z=-6,5 mm.*

krypton

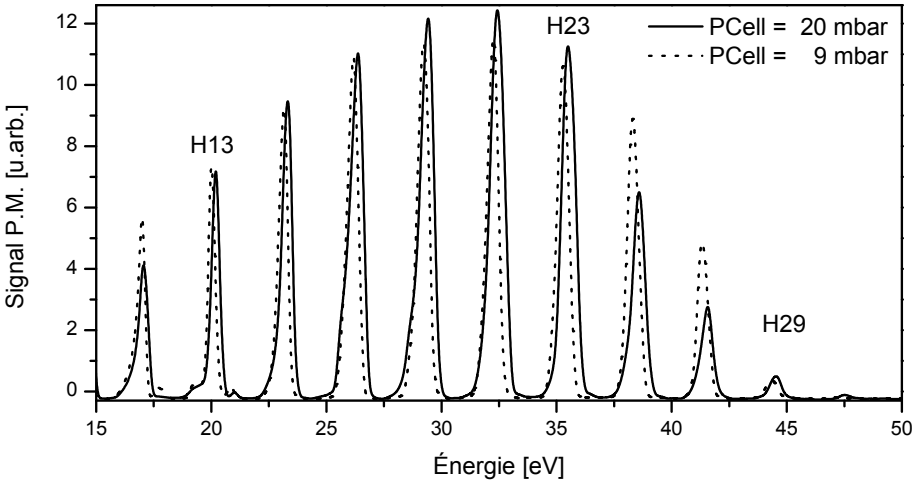


Fig. I.36 : *Spectre harmonique du krypton, pour 2 pressions différentes. Le centre de la cellule est placé à z=-6,5 mm.*

xénon

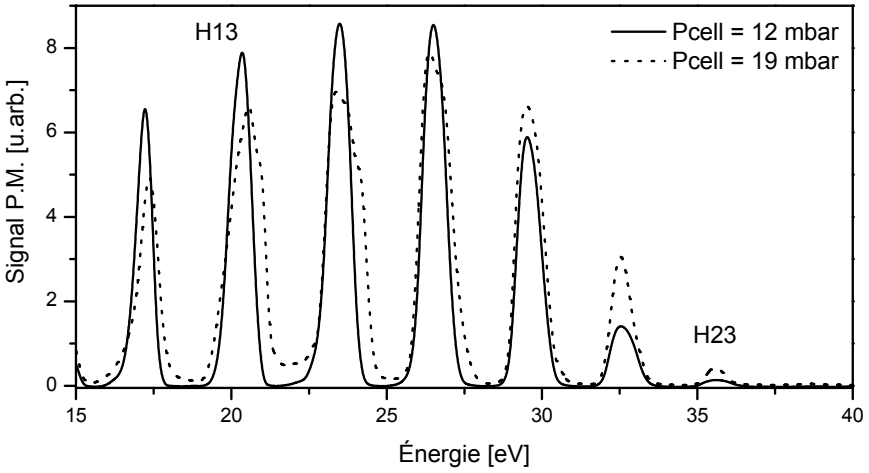


Fig. I.37 : *Spectre harmonique du xénon, pour 2 pressions différentes. Le centre de la cellule est placé à z=-3,5 mm.*

Chapitre 4

Applications

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est une source VUV aux propriétés uniques offrant dans différents domaines de la physique un nouvel outil. Les applications de ce rayonnement sont multiples; nous allons présenter quelques-unes de ces principales applications [L'Huillier *et al.* 03].

4.1 Expériences pompe-sonde en spectroscopie

Les expériences pompe-sonde permettent entre autres d'effectuer des expériences de spectroscopie résolue en temps. La durée d'émission ultrabrève, l'accordabilité, la divergence, l'énergie des photons des harmoniques d'ordres élevés et la synchronisation naturelle du rayonnement harmonique avec l'impulsion fondamentale sont adaptées à la réalisation d'expériences pompe-sonde. À l'heure actuelle, bon nombre d'expériences de spectroscopie utilisent les transitions multiphotoniques pour peupler ou ioniser des états excités. Cette méthode présente l'inconvénient d'exciter des niveaux intermédiaires que l'on ne désire pas étudier et de soumettre le système à un fort champ électrique qui peut perturber la mesure. L'utilisation de la génération d'harmoniques d'ordres élevés comme source VUV ultra-brève ouvre donc la porte à des études spectroscopiques jusqu'alors inaccessibles. Parmi les expériences réalisées en physique atomique, on peut citer la mesure de la dépendance en longueur d'onde des sections efficaces d'ionisation des états excités de l'hélium [Gisselbrecht *et al.* 00, Larsson *et al.* 95], la mesure de la durée de vie de certains états de Rydberg de l'acétylène [Sorensen *et al.* 00].
Au laboratoire CELIA, la source harmonique sert à l'étude de la dynamique des processus de relaxation électronique dans des diélectriques. La technique employée est la photoémission résolue en temps. Ces expériences sont menées par Stéphane Guizard *et al.* du LSI en collaboration avec Patrick Martin *et al.* du CELIA [Geoffroy *et al.* 03]. La connaissance

de ces processus est fondamentale dans le domaine de la physique des solides et des matériaux. La source harmonique du CELIA, fonctionnant à une récurrence de 1 kHz offre un avantage considérable pour la réalisation d'expériences avec un faible rapport signal sur bruit.

4.2 Interférométrie spatiale et spectrale dans le domaine XUV

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est une source VUV cohérente spatialement et temporellement. Ces propriétés de cohérence ont été utilisées pour étendre les techniques interférométriques spatiales au domaine spectral VUV [Descamps *et al.* 00, Hergott 01]. L'interféromètre est basé sur la possibilité de créer deux sources VUV distinctes mais mutuellement cohérentes [Zerne *et al.* 97] . L'avantage de cet interféromètre réside dans le fait que la division d'amplitude est effectuée dans le proche infrarouge, longueur d'onde du fondamentale, et non pas dans le VUV ce qui nécessiterait d'élaborer une séparatrice VUV de bonne qualité optique. Cet interféromètre a été utilisé pour mesurer la densité électronique d'un plasma dense créé par ablation laser sur une cible solide. La réfraction et l'absorption d'un plasma limitent fortement les densités électroniques que l'on peut sonder avec un faisceau sonde dans le visible. En utilisant l'interféromètre à 61.5 nm, la cartographie de la densité électronique du plasma a été ainsi réalisée. Des densités supérieures à $2{,}5.10^{20}$ e^-/cm^3 ont été mesurées. La brièveté des harmoniques permet de réaliser des interférogrammes sur un temps extrêmement court offrant la possibilité de sonder des mécanismes ultra-rapides.
La cohérence mutuelle peut être aussi être mis à profit pour produire deux sources décalées non pas spatialement mais temporellement. Ces propriétés du rayonnement harmonique ont permis la réalisation des premières expériences d'interférométrie fréquentielle dans le domaine VUV [Salières *et al.* 99, Hergott 01]. Les deux impulsions harmoniques séparées temporellement sont produites à partir de deux impulsions fondamentales séparées temporellement se propageant sur le même axe, donc superposées spatialement. Comme pour l'interférométrie spatiale appliquée au diagnostic plasma, l'application de l'interférométrie fréquentielle à la mesure de la densité électronique d'un plasma utilise le schéma de type pompe-sonde. L'évolution de la densité moyenne au cours du temps peut être reconstruite et une densité électronique maximale de 7.10^{19} e^-/cm^3 a été mesurée [Salières *et al.* 99].

De manière plus générale, les expériences réalisées ont démontré que les techniques interférométriques développées dans le domaine visible peuvent s'étendre au VUV en utilisant la génération d'harmoniques d'ordres élevés comme source cohérente.

4.3 Fenêtre de l'eau

Des harmoniques jusqu'à l'ordre 301 (301 fois la fréquence laser, $\lambda_{301} = 2{,}7\ nm$) ont été produites avec un laser de longueur d'onde 800 nm [Chang *et al.* 97, Spielmann *et al.* 97] . La "fenêtre de l'eau" est atteinte; elle correspond au domaine spectral dans lequel l'absorption par l'oxygène et l'eau est faible ($\lambda = [2{,}7\ nm - \ 4{,}4\ nm]$). Dans cette gamme de longueur d'onde des échantillons vivants (l'intérieur de cellules, par exemple) peuvent être étudiés. Le potentiel est considérable en biologie et en médecine.

4.4 Physique attoseconde

Les impulsions ultra-courtes femtosecondes servent à étudier et à contrôler les processus les plus rapides en physique atomique et moléculaire. De nouveaux champs de recherches ont émergé de ces avancées technologiques, comme par exemple la *femtochimie*. Elle consiste à étudier un processus physico-chimique élémentaire avec l'aide d'impulsions laser à l'échelle femtoseconde [Zewail 00]. L'expérience de *femtochimie* la plus courante est de type pompe-sonde. Le signal détecté est ensuite analysé en fonction du retard entre les deux impulsions pour déterminer l'avancement de la réaction chimique; les instants successifs formant ainsi une sorte de film de la réaction. Ces impulsions laser ultra-brèves permettent de "photographier", en temps réel, le mouvement des atomes dans des molécules sur une échelle de temps caractéristique de 10-100 fs.

la dynamique des électrons dans un atome évolue à l'échelle sub-femtoseconde. L'avènement des impulsions attosecondes ($10^{-18}\ s$) ouvre des perspectives dans l'étude des relaxations électroniques dans les atomes. La physique attoseconde dite *attophysique* est un nouveau champ de recherche, les applications de ces impulsions commencent à apparaître [Hentschel *et al.* 01, Krausz 02].
On peut citer la résolution de processus ultra-rapides comme la relaxation électronique. Une impulsion VUV sub-femtoseconde, synchronisée avec une impulsion ultracourte IR, offre un outil unique pour la spectroscopie. Par exemple, une impulsion attoseconde VUV peut ioniser un atome. Un électron d'une couche profonde peut être alors arraché de l'atome, aussi bien qu'un électron de la couche externe. La lacune de la couche interne possède un temps de vie très court de quelques femtosecondes à quelques centaines d'attosecondes. Un atome ionisé

par un rayonnement électromagnétique peut se désexciter suivant deux processus concurrentiels, l'un radiatif (fluorescence X), l'autre non radiatif (désexcitation Auger).

① Lorsque la lacune est créée, un électron d'énergie supérieure va se relaxer et combler la lacune. L'atome émet alors un photon X ou UV dont l'énergie est égale à celle perdue par l'électron changeant de niveau : c'est le phénomène de fluorescence.

② Après ionisation de l'atome (effet photoélectrique), un électron d'une couche supérieure vient combler la lacune créée par l'excitation, l'énergie est transmise à un autre électron ou électron Auger qui peut ainsi s'échapper de l'atome.

Contrairement au cas des photoélectrons dont l'énergie est caractéristique d'un seul niveau, l'émission des électrons Auger met donc en jeu trois niveaux (cf. figure I.38).

À partir de la mesure de l'énergie cinétique des électrons Auger en fonction du délai entre l'impulsion VUV et IR, le temps de vie de la lacune en couche interne peut être déduit directement [Drescher *et al.* 02].

Signalons également que la mesure du champ électrique d'une impulsion très courte dans le domaine infrarouge à l'aide des impulsions attosecondes a été proposée [Hentschel *et al.* 01, Bandrauk *et al.* 02, Kienberger *et al.* 02].

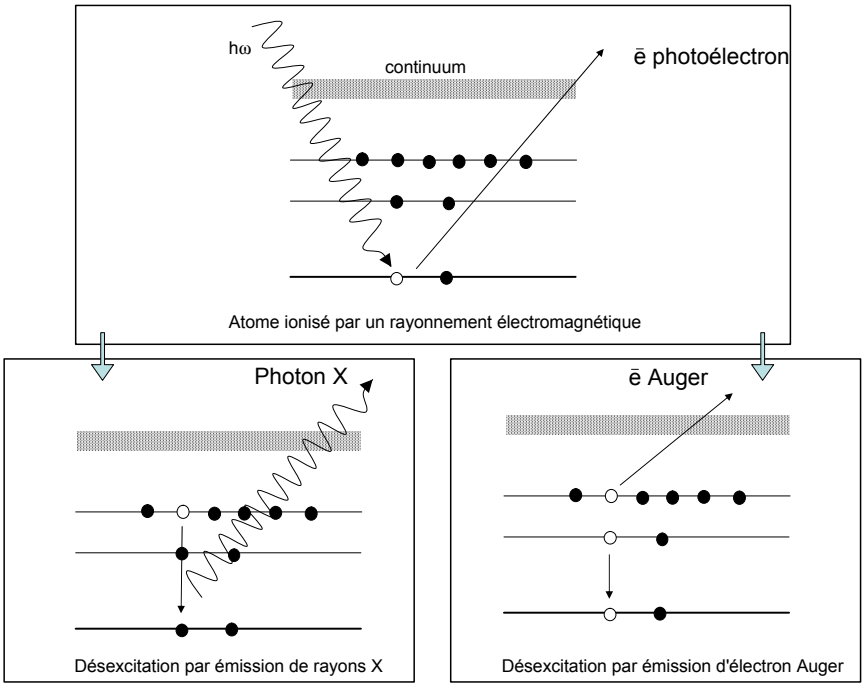


Fig. I.38 : *Processus d'excitation et d'émission.*

Deuxième partie

Confinement temporel de l'émission harmonique

Chapitre 1

État de l'art

Les lasers de puissance femtoseconde Titane:Saphir connaissent un essor important en raison de leur fiabilité, de leur compacité et de la diversité des processus physiques qu'ils permettent d'explorer. Cependant, la durée des impulsions délivrées par les lasers femtosecondes couplés à des systèmes de post-compression, approche la limite de 3 fs liée à la période optique du champ infrarouge [Schenkel *et al.* 03].
Pour dépasser la barrière que représente la femtoseconde (10^{-15} s), deux routes sont possibles : la génération d'harmoniques d'ordres élevés et l'effet Raman stimulé [Zhavoronkov *et al.* 02, Sokolov *et al.* 00]. Ces deux sources offrent un spectre assez large pour potentiellement produire des impulsions de quelques centaines d'attosecondes. Nous nous intéressons, ici, uniquement à la génération d'harmoniques. Des études théoriques et expérimentales ont montré que la périodicité du spectre harmonique et la distribution linéaire de la phase des harmoniques produisent dans le domaine temporel un train d'impulsions attosecondes [Paul *et al.* 01, Antoine *et al.* 96a]. Avec des durées d'impulsions aussi courtes, l'exploration des mouvements électroniques des atomes est à portée de main. Pour rappel, dans le modèle de Bohr, le temps de révolution d'un électron autour du proton est de 150 as, ce qui définit l'échelle de temps caractéristique de la dynamique électronique de l'atome. Pour enregistrer en temps réel les relaxation électroniques dans les atomes, il faut exciter et mesurer les durées de ces transitions à cette échelle. Pour réaliser ce type d'enregistrement, il faut, en général, disposer d'*une seule impulsion attoseconde*.
Des méthodes ont été proposées pour isoler une seule impulsion attoseconde dans le processus de génération d'harmoniques.

Une première méthode consiste à utiliser une impulsion fondamentale ultracourte (5 fs) avec un éclairement laser approprié pour générer les harmoniques. En sélectionnant les harmoniques de la coupure à l'aide d'un filtre, il est possible de générer dans le domaine temporel une seule impulsion attoseconde [Schafer *et al.* 97, Christov *et al.* 97, Kan *et al.* 97].

Le nombre d'impulsions attosecondes produites dépend cependant de la phase absolue Φ du champ fondamental par rapport à l'enveloppe [de Bohan *et al.* 98]. Armelle de Bohan *et al.* ont calculé les spectres harmoniques émis pour une impulsion fondamentale de 4,3 fs avec deux phases absolues Φ différentes (cf. figure II.1).

Ce calcul est réalisé pour l'atome unique à l'aide du modèle de Lewenstein. Le profil temporel de l'impulsion harmonique est calculé à l'aide du spectre harmonique autour de la fréquence $65\,\omega_0$ (coupure) en utilisant un filtre Gaussien de largeur à mi-hauteur de $9\,\omega_0$.

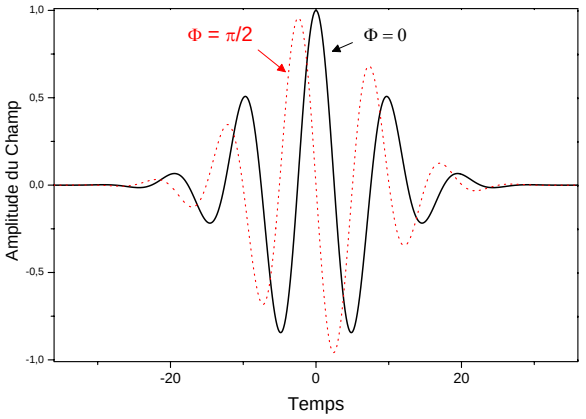


FIG. *II.1 : Champ de l'impulsion fondamentale pour deux phases absolues différentes*

Pour $\Phi = \pi/2$, l'intensité IR est suffisante pour générer les harmoniques de la coupure durant deux demi-cycles optiques donnant lieu à deux impulsions attosecondes (cf. figure II.3). La périodicité caractéristique du spectre harmonique ($2\omega_0$) est toujours visible dans la coupure.

Pour $\Phi = 0$, l'émission VUV des harmoniques de la coupure ne survient que pendant un demi-cycle optique, une seule impulsion est générée (cf. figure II.3), la durée de l'impulsion harmonique est d'environ $550\,as$, le domaine attoseconde est atteint. Les harmoniques ne sont plus résolues dans la région de la coupure, le spectre est continu.

Ces calculs soulignent l'importance du contrôle de la phase absolue du champ fondamental pour générer une seule impulsion attoseconde.

Les principaux défauts de cette méthode proviennent de la bande spectrale sélectionnée, limitant la durée de l'impulsion attoseconde et de la faible efficacité de conversion dans la coupure.

Les méthodes pour obtenir des impulsions IR de 5 fs, haute énergie, stabilisées en phase, ne sont pas faciles à mettre en œuvre. Seul l'Institut de Photonique de l'Université Technique de Vienne maîtrise cette technique et produit des impulsions aussi courtes avec un système à rétroaction pour stabiliser et contrôler la phase absolue du champ IR [Baltuska *et al.* 03]. Avec cette méthode, il est possible de générer une seule impulsion attoseconde de 250 as [Kienberger *et al.* 04].

On propose, ici, une méthode alternative utilisant des impulsions fondamentales longues ($\approx$ 10 fs) compatible avec l'émission d'un spectre harmonique continue plus large et donc potentiellement une impulsion attoseconde encore plus courte si tant est que la phase spectrale VUV puisse être contrôlée. De plus, cette méthode ne nécessite pas obligatoirement

une stabilisation de la phase; le dispositif expérimental en est plus simple. Le principe est présenté au chapitre suivant.

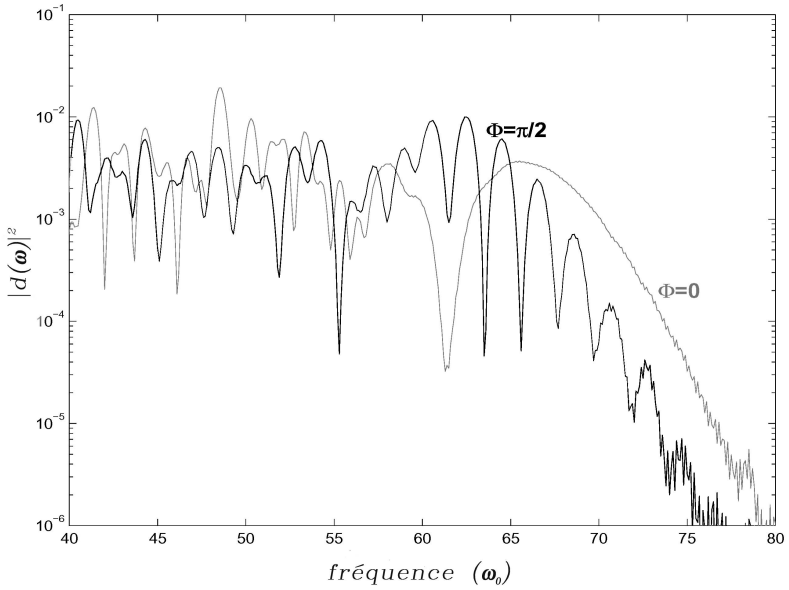


Fig. II.2 : *Spectres harmoniques générée avec une impulsion de 4,3 fs pour deux phases absolues de l'impulsion $\Phi = 0$ et $\Phi = \pi/2$, respectivement en gris et en noir. Calcul réalisé à l'aide du modèle de Lewenstein. D'après [de Bohan et al. 98].*

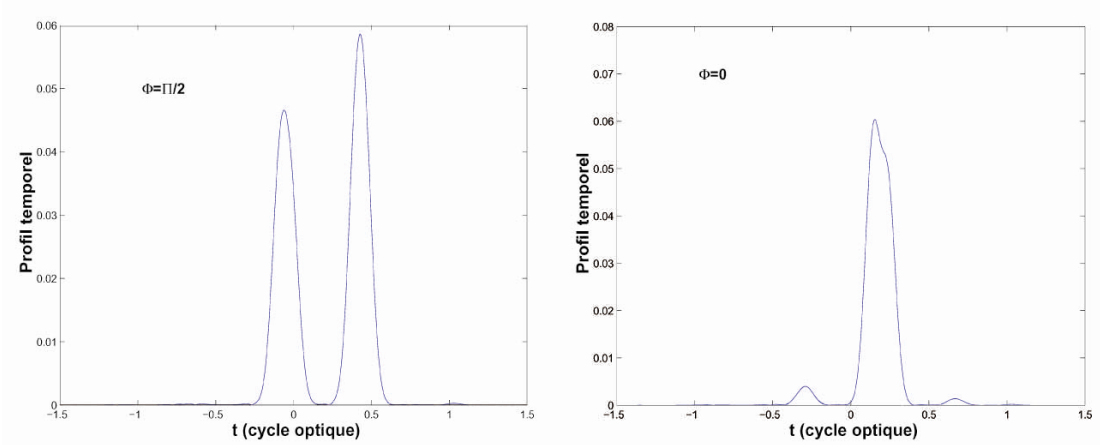


Fig. II.3 : *Profils temporels des harmoniques de la coupure sélectionnées par un filtre Gaussien de largeur $9\omega_0$ pour $\Phi = \pi/2$ (à gauche) et $\Phi = 0$ (à droite) [de Bohan et al. 98].*

Chapitre 2

Confinement temporel de l'émission VUV par modulation de la polarisation

2.1 Principe

Cette méthode repose sur l'extrême sensibilité de la génération d'harmoniques à la polarisation du fondamental. La génération d'harmoniques est optimale dans le cas d'une polarisation linéaire. Un degré d'ellipticité trop élevé réduit considérablement l'efficacité du processus de génération (cf. page 43). Cette sensibilité extrême à l'état de polarisation peut-être mise à profit pour confiner temporellement l'émission harmonique et éventuellement aboutir à l'émission d'une impulsion attoseconde unique [Corkum *et al.* 93, Ivanov *et al.* 95, Antoine *et al.* 97a, Platonenko *et al.* 99].
Le principe consiste à moduler temporellement l'état de polarisation de l'impulsion pour qu'elle soit linéairement polarisée uniquement pendant un intervalle de temps très court [Constant 97, Altucci *et al.* 98]. La génération d'harmoniques n'étant efficace que pendant cet intervalle, l'impulsion harmonique générée est ultra brève et peut conduire à une seule impulsion attoseconde. Ce principe est illustré à la figure II.4. Le confinement permet de générer les harmoniques sur seulement quelques cycles optiques de l'impulsion fondamentale. Cela se traduit dans le domaine temporel, par une réduction du nombre d'impulsions attosecondes émises et, dans le domaine spectral, par un élargissement des harmoniques. La suite du chapitre est consacrée à la présentation de la méthode expérimentale utilisée pour moduler temporellement l'ellipticité du fondamental. La modulation de l'état de polarisation de l'impulsion fondamentale a pour but de créer une porte temporelle où la polarisation est linéaire pendant un intervalle de temps très court par rapport à la durée de l'impulsion fondamentale ce que l'on nomme communément la **porte d'ellipticité**. Les méthodes pour moduler l'état

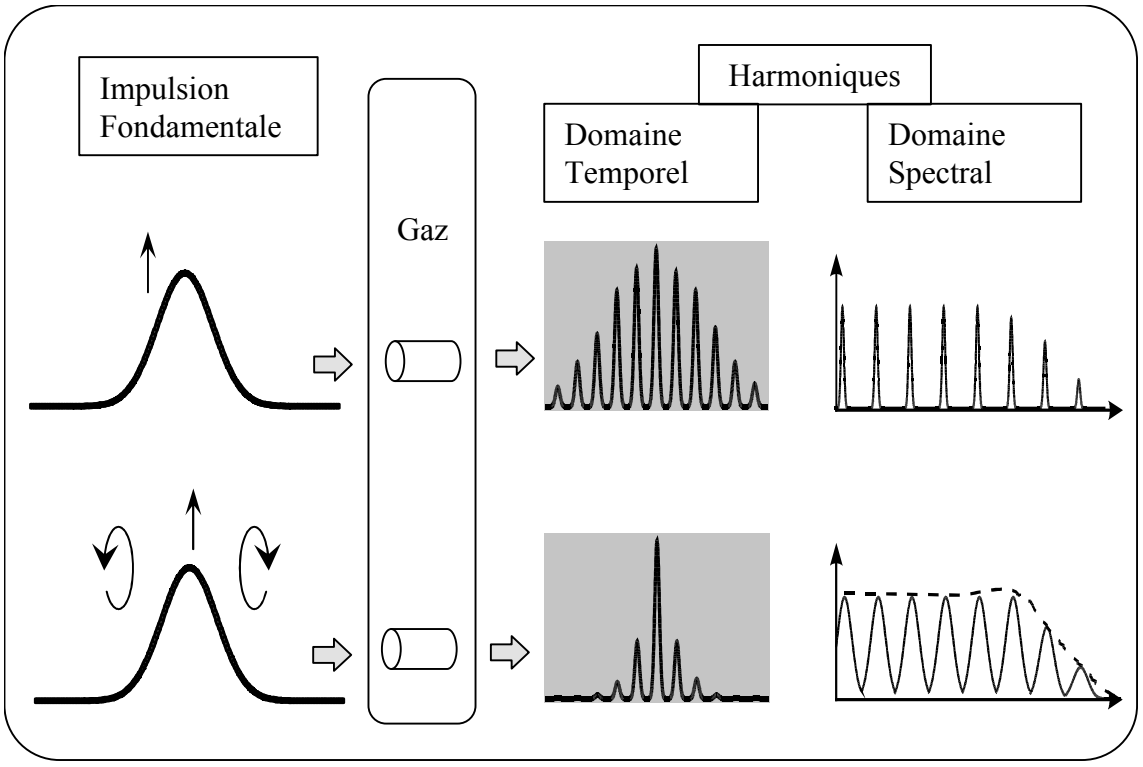


Fig. II.4 : *Principe du confinement de la génération d'harmoniques d'ordre élevée par modulation de l'ellipticité du fondamental.*

de polarisation sont divisées en deux groupes : - celles combinant deux champs électriques avec des fréquences instantanées dépendantes du temps. -Et celles combinant deux champs électriques avec des fréquences instantanées constantes.

La première réalisation expérimentale pour confiner temporellement l'émission harmonique à l'aide d'une porte d'ellipticité a eu lieu au Lund Laser Center [Altucci *et al.* 98]. La polarisation de l'impulsion fondamentale a été modulée en utilisant l'effet non linéaire d'automodulation de phase et une lame biréfringente. Ainsi, une porte temporelle de 5 fs a été créée à partir d'une impulsion initiale IR de 110 fs. L'avantage de cette technique est une ellipticité variant rapidement donnant une porte d'ellipticité très étroite. Cependant, la durée de la porte d'ellipticité est très sensible aux fluctuations en intensité du laser puisqu'elle repose sur un effet non linéaire.
Plus récemment, une porte temporelle d'ellipticité a été créée en utilisant deux impulsions polarisées orthogonalement avec des longueurs d'onde centrales légèrement différentes [Papadogiannis *et al.* 03a].
Une autre technique est basée sur un interféromètre de Michelson et des lames biréfringentes quart d'onde d'ordre 0. Avec cette technique, la stabilité du système est alors primordiale [Kovačev *et al.* 03]. Nous reviendrons plus en détail sur cette technique au cours de ce chapitre.

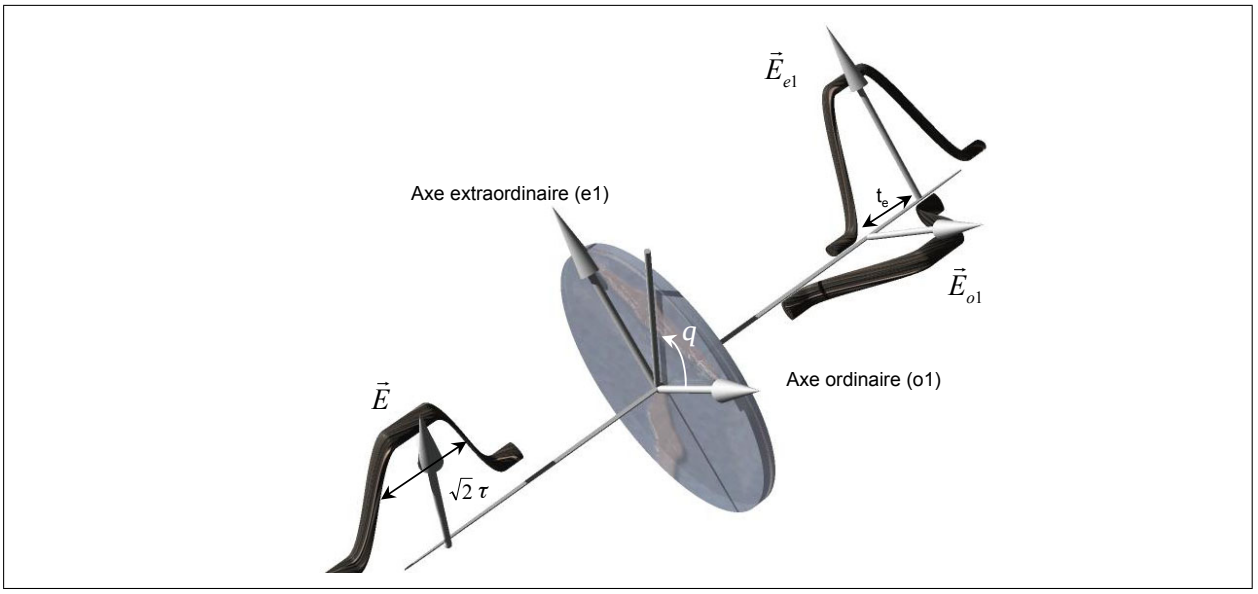


Fig. II.5 : *Traversée de la lame quart d'onde multi-ordre par l'impulsion fondamentale.*

La technique développée au CELIA découle des propriétés de transmission des cristaux biréfringents [Duncan *et al.* 90]. En associant deux lames quart d'onde, l'une d'ordre multiple et l'autre d'ordre 0, l'état de polarisation du fondamental est contrôlé de façon continue [Constant 97].

Nous allons décrire maintenant le principe et le contrôle de la porte d'ellipticité créée par l'association de deux lames biréfringentes.

2.2 Association de lames quart d'onde

2.2.1 Lame quart d'onde multi-ordre

Une impulsion linéairement polarisée transmise par une lame quart d'onde multi-ordre se décompose en deux impulsions polarisées perpendiculairement et décalées temporellement l'une par rapport à l'autre (cf. figure II.5). L'état de polarisation de l'impulsion transmise par le cristal biréfringent dépend de la phase relative entre les deux impulsions et du rapport des amplitudes. Pour expliciter la polarisation du champ, on écrit le champ incident, dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable, sous la forme :

$$E = E_0(t)cos(\omega_0 t) \tag{II.1}$$

En négligeant l'élargissement temporel des impulsions, après décomposition sur les axes propres de la lame et propagation à travers la lame, on obtient :

$$\begin{aligned} E_{e1} &= E_{0+}cos(\theta)cos(\omega_0 t) \\ E_{o1} &= E_{0-}sin(\theta)cos(\omega_0 t + \alpha) \end{aligned} \tag{II.2}$$

Avec

$$E_{0+} = E_0(t + \frac{t_e}{2}) \qquad E_{0-} = E_0(t - \frac{t_e}{2}) \tag{II.3}$$

Le délai t_e introduit par la lame multi-ordre dépend de la différence des indices de groupe ordinaire n_{go} et extraordinaire n_{ge} ainsi que de l'épaisseur e de la lame. En supposant une incidence normale à la lame, on a :

$$t_e = \frac{e}{c}(n_{go} - n_{ge}) \tag{II.4}$$

Le déphasage α introduit par la lame est égal à :

$$\alpha = \frac{2\pi\ e}{\lambda_0}(n_o - n_e), \tag{II.5}$$

où n_o,n_e sont les indices de phase. Pour une lame multi-ordre, $\alpha = (2n + 1)\ \pi/2$ où n est un entier et représente l'ordre de la lame. Par exemple, pour une lame multi-ordre en quartz d'épaisseur 1,05 mm, $n = 47$.

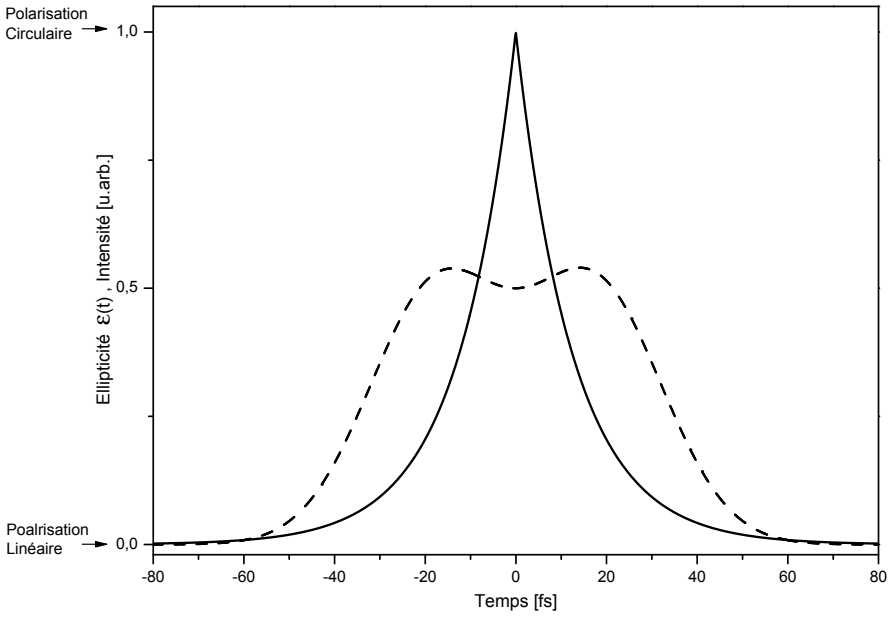


Fig. II.6 : *Évolution de l'ellipticité du champ en fonction du temps (trait plein) et l'intensité correspondante en sortie de la lame (trait pointillé). L'impulsion incidente est Gaussienne de durée en intensité à mi-hauteur $\tau = 35\ fs$, $t_e \approx 35\ fs$, $\theta =\ 45°$.*

Dans le cas d'une lame quart d'onde et un angle $\theta = 45°$, on obtient :

$$\begin{aligned} E_{e1} &= \frac{E_{0+}}{\sqrt{2}} cos(\omega_0 t) \\ E_{o1} &= \frac{E_{0-}}{\sqrt{2}} sin(\omega_0 t) \end{aligned} \tag{II.6}$$

À chaque instant t, on détermine l'état de polarisation de l'impulsion de sortie. Dans les conditions ci-dessus, l'ellipticité au cours du temps est donnée par :

$$\varepsilon(t) = \frac{E_{0-}}{E_{0+}} \text{ pour t>0} \qquad \varepsilon(t) = \frac{E_{0+}}{E_{0-}} \text{ pour t<0} \tag{II.7}$$

Au début et à la fin de l'impulsion, la polarisation est forcément linéaire et suivant les axes propres de la lame en raison du décalage temporel introduit par la biréfringence du cristal. Il existe un instant unique où les deux champs ont la même amplitude. C'est le seul instant où la polarisation peut être circulaire si le déphasage entre les deux ondes est de $\pi/2$. Dans le cas d'une enveloppe Gaussienne, la figure II.6 illustre l'évolution temporelle de l'ellipticité du champ en sortie de la lame quart d'onde d'ordre multiple pour un délai t_e et une durée à mi-hauteur d'impulsion τ égale à 35 fs.

2.2.2 Lame quart d'onde d'ordre zéro

À la suite de la lame quart d'onde multi-ordre, on place une lame quart d'onde d'ordre 0 suivant l'axe de propagation de l'impulsion (cf. figure II.7). β définit l'angle entre les axes propres de la 2nde lame et ceux de la 1ere lame.

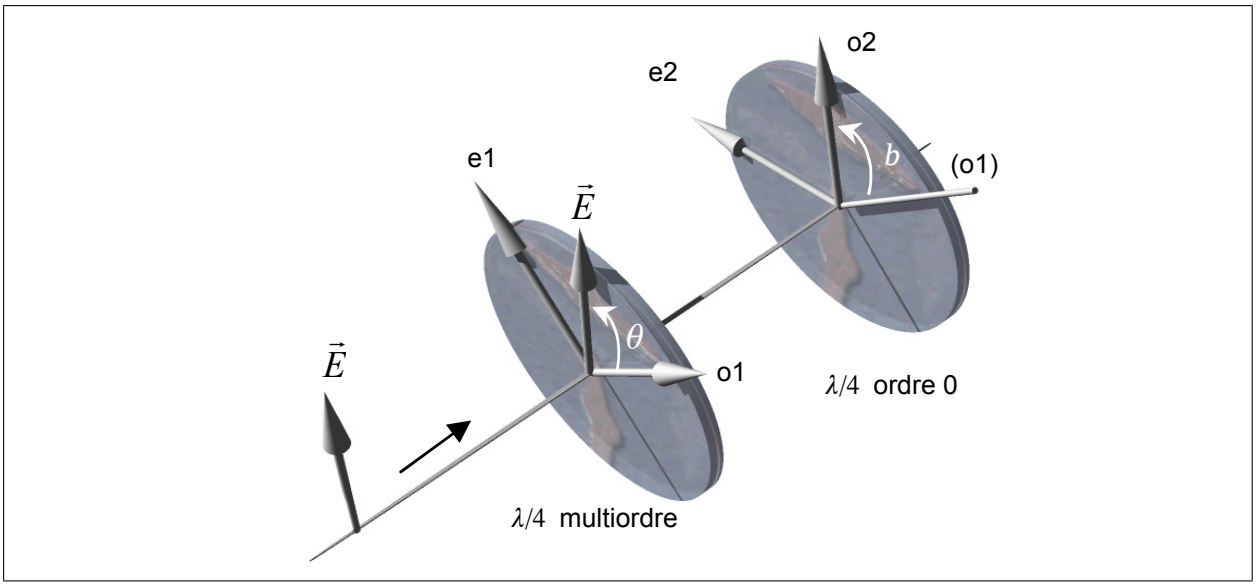


Fig. II.7 : *Disposition des lames quart d'onde multi-ordre et d'ordre 0.*

En sortie de la lame, l'impulsion est caractérisée par son ellipticité $\varepsilon(t)$ et par $\alpha(t)$ représentant l'angle entre l'axe de la polarisation initiale du champ laser et le grand axe de l'ellipse de la polarisation du champ IR après les lames.
L'ellipticité en sortie des lames en fonction de l'angle β pour $\theta =$ 45° s'écrit alors :

$$\varepsilon(t) = \tan\left[\frac{1}{2}\arcsin\left(\frac{|E_{0+}^2 - E_{0-}^2|}{E_{0+}^2 + E_{0-}^2}\sin(2\beta)\right)\right] \tag{II.8}$$

L'évolution de l'angle α dans le cas où $\theta = 45°$ est donnée par :

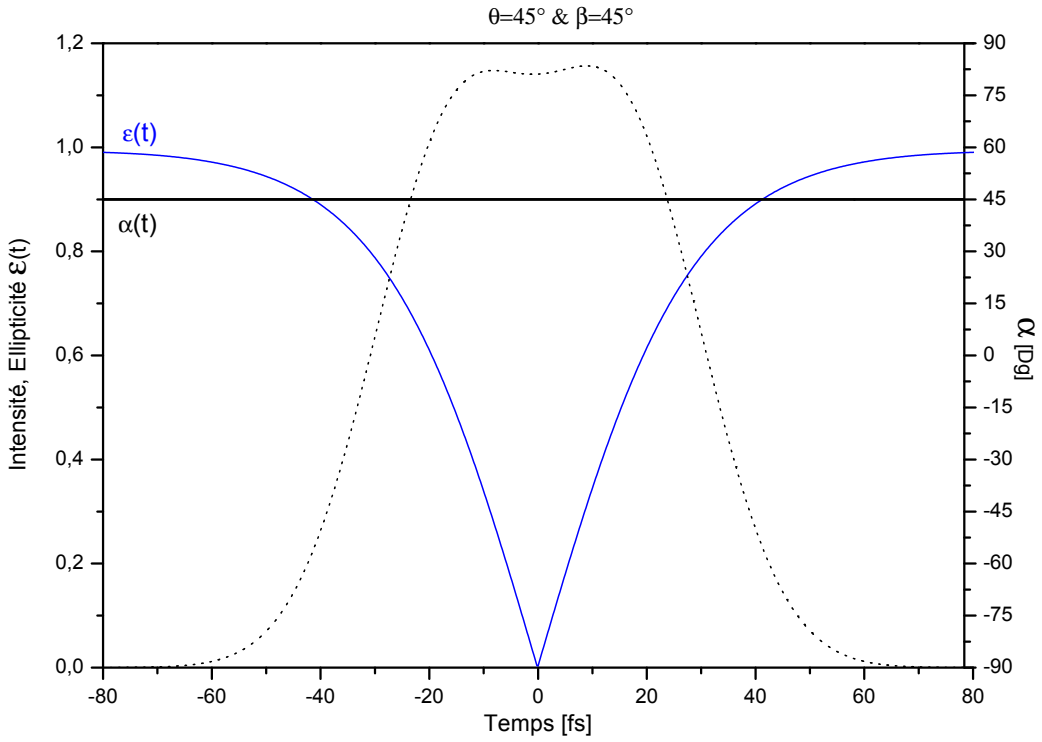
$$\alpha(t) = \beta + \frac{1}{2}\arctan\left[\frac{E_{0+}^2 - E_{0-}^2}{2E_{0-}E_{0+}}cos(2\beta)\right] \tag{II.9}$$

L'ellipticité en sortie des deux lames dépend de l'angle β et du délai t_e inclus dans $E_{0\pm}$. Le profil de l'ellipticité est contrôlé continument par l'angle β tout en préservant le profil en intensité de l'impulsion en sortie des lames. Nous allons présenter l'évolution de l'ellipticité en sortie de la lame ainsi que celle de l'angle $\alpha(t)$ pour deux valeurs particulières de β et une valeur intermédiaire.

- $\beta =$ 45°: à cet angle, la lame d'ordre 0 transforme une polarisation circulaire en polarisation linéaire et vice et versa. L'impulsion résultante possède alors les caractéristiques nécessaires pour confiner temporellement l'émission harmonique. La polarisation instantanée initialement circulaire devient linéaire pour un instant très court et redevient circulaire (cf. figure II.8). La largeur minimale de la porte d'ellipticité est atteinte, c'est la **porte étroite**. L'ellipticité devient pour $\theta = 45°$:

$$\varepsilon(t) = \left| \frac{E_{0-} + E_{0+}}{E_{0-} - E_{0+}} \right| \tag{II.10}$$

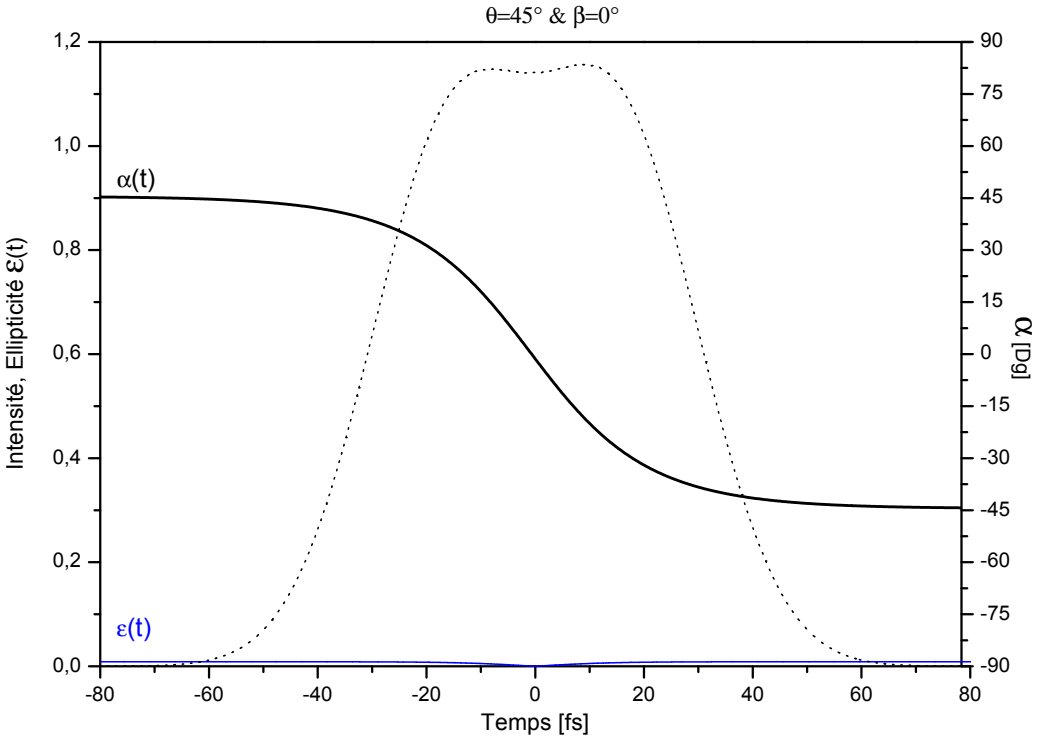
La direction du grand axe de l'ellipse est constante tout le long de l'impulsion.



Porte Étroite.

Fig. II.8 : *Évolution de l'ellipticité $\varepsilon(t)$ (trait plein fin) et de l'angle $\alpha(t)$ (trait plein épais) pour $\beta = 45°$. L'intensité est en trait pointillé. L'impulsion incidente est Gaussienne de durée à mi-hauteur en intensité $\tau = 35\ fs$, $t_e = 31{,}5\ fs$, $\theta =$ 45°.*

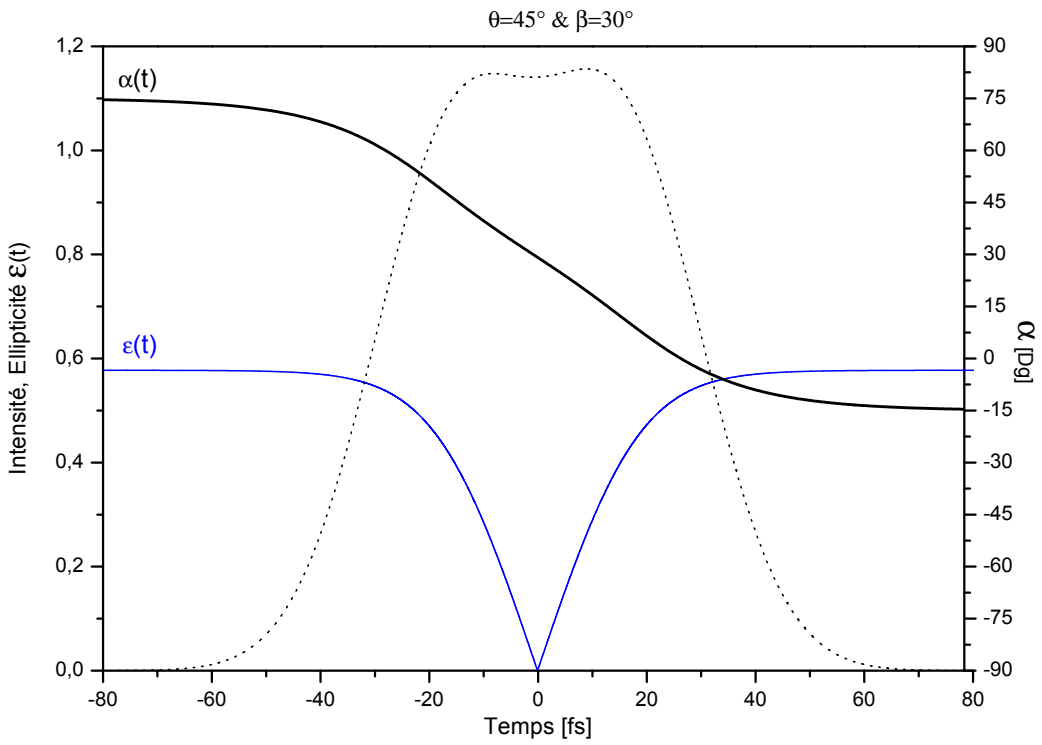
- $\beta = 0°$: les axes propres de la 1ere et 2nde lame sont parallèles, l'ensemble des deux lames est équivalent à une lame demi-onde d'ordre multiple. La polarisation est linéaire pendant toute la durée de l'impulsion. C'est la **porte large** illustrée à la figure II.9. La polarisation reste linéaire mais tourne de $\pi/2$ au cours de l'impulsion.



Porte Large.

Fig. II.9 : *Évolution de l'ellipticité $\varepsilon(t)$ (trait plein fin) et de l'angle $\alpha(t)$ (trait plein épais) pour $\beta = 0°$. L'intensité est en trait pointillé. L'impulsion incidente est Gaussienne de durée à mi-hauteur en intensité $\tau = 35\ fs$, $t_e = 31{,}5\ fs$, $\theta = 45°$.*

- $\beta =$ 30° est un angle quelconque correspondant à une porte "intermédiaire", l'allure de l'ellipticité est très semblable à celle de la porte étroite à ceci près que la vitesse d'évolution pour passer d'une polarisation elliptique à la polarisation linéaire est plus lente que celle définie par la porte étroite. L'ellipticité $\varepsilon(t)$ et l'angle $\alpha(t)$ sont illustrés à la figure II.10.



Porte Intermédiaire.

Fig. II.10 : *Évolution de l'ellipticité $\varepsilon(t)$ (trait plein fin) et de l'angle $\alpha(t)$ (trait plein épais) pour $\beta =$ 30°. L'intensité est en trait pointillé. L'impulsion incidente est Gaussienne de durée à mi-hauteur en intensité $\tau = 35\ fs$, $t_e = 31{,}5\ fs$, $\theta =$ 45°.*

Une représentation 3D du champ électrique est présentée, en porte large et en porte étroite, figure II.11. La durée à mi-hauteur de l'impulsion initiale est de 10 fs et le délai introduit par la première lame est t_e= 13 fs. La notion de polarisation n'est plus vraiment valide car l'évolution du vecteur champ perd sa périodicité. Pour la porte large, le champ est polarisé linéairement sur toute la durée de l'impulsion. Cependant, la variation rapide de l'orientation de l'axe de polarisation au centre de l'impulsion sur moins d'un cycle optique conduit à une ellipticité "effective". Avec des impulsions longues cet effet est moins prononcé. Pour la porte étroite, les projections suivant les axes X et Y nous montrent que le champ est polarisé linéairement au temps $t = 0$ pendant un laps de temps ultra-bref.

2.2.3 Profil temporel de l'intensité IR

L'angle θ détermine le profil en intensité en sortie des lames. Pour $\theta = 45°$ le profil en sortie des lames est symétrique. Ce profil est déformé lorsque l'angle θ est modifié comme l'illustre la figure II.12. En porte étroite, l'instant, où la polarisation est linéaire, est décalé temporellement. Cet instant correspond au moment où les enveloppes des champs suivant les axes propres de la 1ere lame ont la même amplitude.

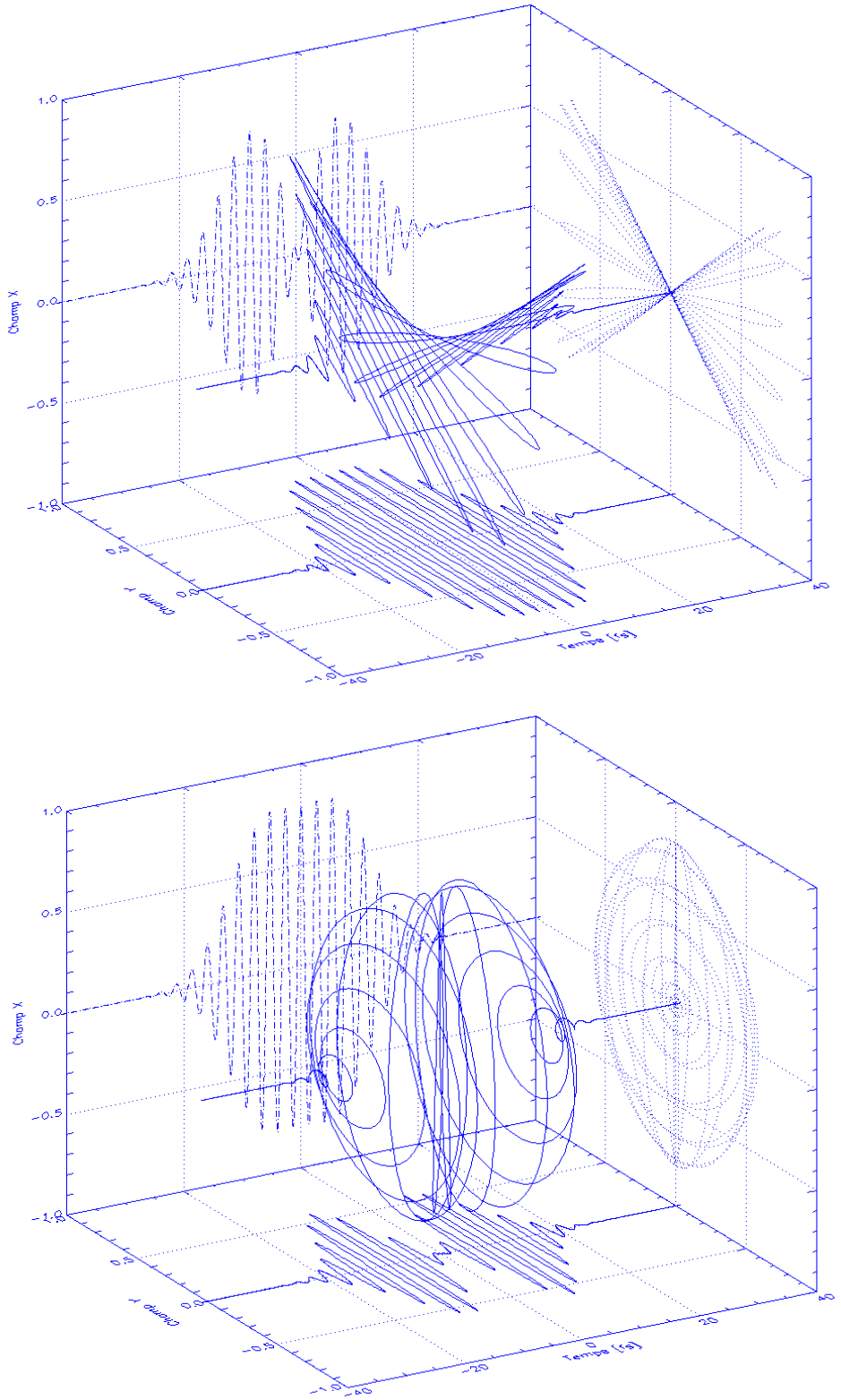


Fig. II.11 : *Évolution du champ électrique en 3D en porte large (haut) et en porte étroite (bas). L'impulsion incidente est Gaussienne de durée à mi-hauteur en intensité* $\tau = 10\ fs$, $t_e = 13\ fs$.

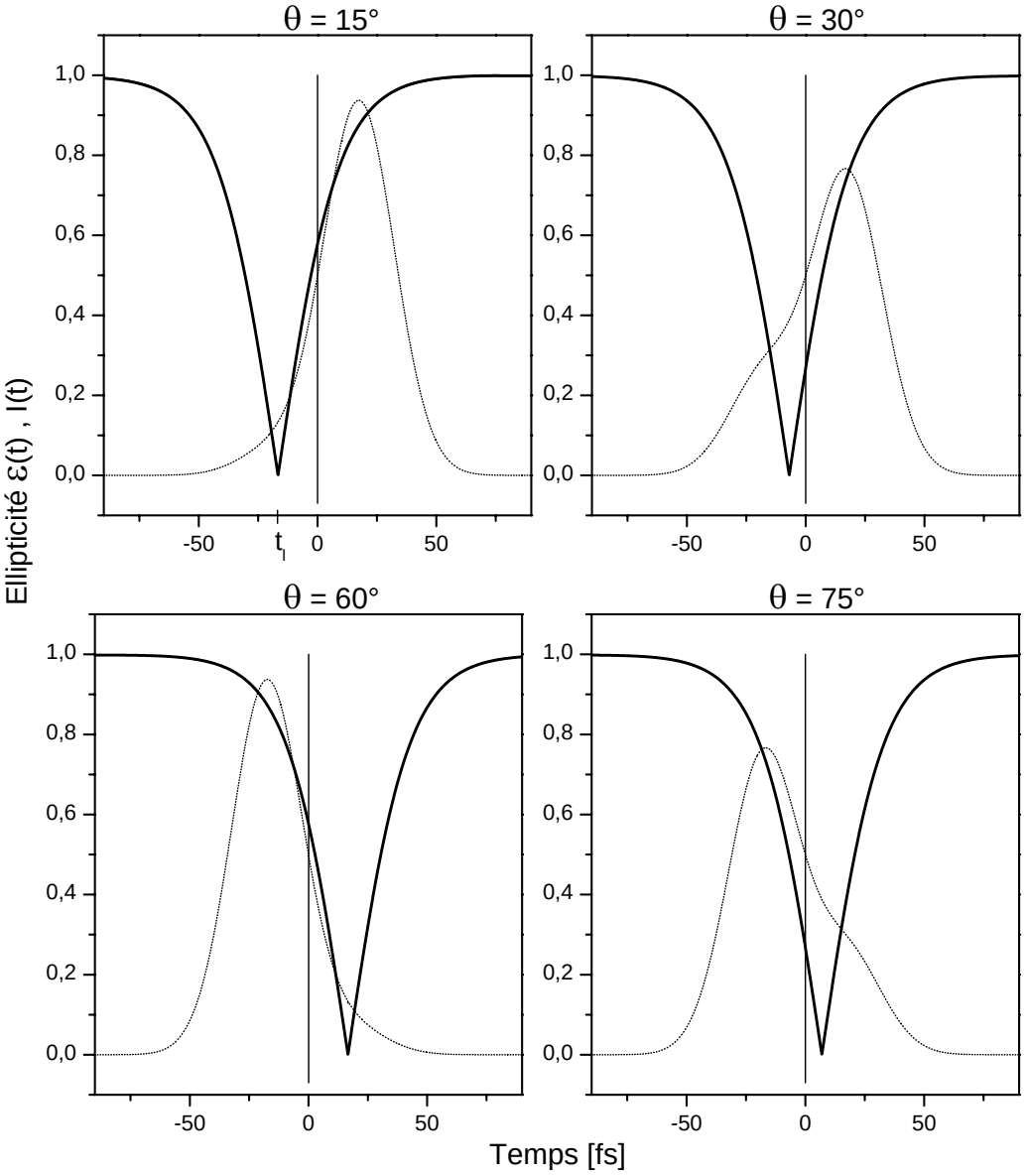


Fig. II.12 : *Ellipticité du champ en fonction du temps (trait plein) et Intensité en sortie de la lame (trait pointillé) pour différents angles de la polarisation incidente sur la 1ere lame. L'impulsion incidente est Gaussienne de durée à mi-hauteur en intensité* $\tau = 35\ fs$, $t_e = 35\ fs$, $\lambda = 800\ nm$, $\beta =\ 45°$.

2.3 Définition de la durée de la porte d'ellipticité τ_G

La largeur de la porte d'ellipticité τ_G sert de critère de référence pour évaluer l'effet du confinement.
Le premier critère ① que nous avons retenu pour définir la largeur de la porte τ_G repose sur l'ellipticité de l'impulsion. L'efficacité des harmoniques est maximale en polarisation linéaire et diminue de 50 % pour une ellipticité égale à $\varepsilon_c = 0{,}13$ (déterminée expérimentalement pour une harmonique du plateau q=19 dans l'argon). On définit τ_G comme étant l'intervalle de temps pendant lequel l'ellipticité est inférieure à ε_c. Ce critère est satisfait pour la porte étroite et les portes intermédiaires. Dès que l'ellipticité est inférieure à ε_c durant toute la durée de l'impulsion, τ_G est égal à la largeur à mi-hauteur en intensité de l'enveloppe de l'impulsion. Avec ce critère, il est possible de déterminer une relation simple entre τ_G en porte étroite, le délai t_e et la durée de l'impulsion initiale τ :

$$\tau_{G-PE} = \frac{\tau^2}{4 \ln 2 \, t_e} \ln \left(\frac{(1+\varepsilon_c)^2}{(1-\varepsilon_c)^2} \right) \tag{II.11}$$

Nous avons également adopté une seconde définition ② où τ_G équivaut à la largeur à mi-hauteur du produit de l'intensité IR en sortie des lames avec la loi d'évolution du signal harmonique en fonction de l'ellipticité du champ soit : $I(t) \times e^{-\gamma_q \varepsilon^2}$. γ_q est une constante permettant de décrire la dépendance gaussienne du signal harmonique avec l'ellipticité $\varepsilon(t)$ de l'impulsion fondamentale. Suivant l'ordre de l'harmonique considérée, γ_q peut varier de 15 à 60. C'est, en général, ce critère que nous privilégierons dans la suite du document.

Évolution de τ_G en fonction de l'angle β

Le contrôle continu de la largeur de la porte τ_G se réalise en tournant la 2nde lame autour de l'axe de propagation (angle β) et ce en préservant le profil temporel en intensité de l'impulsion. La largeur de la porte d'ellipticité en fonction de l'angle β de la 2nde lame est représentée sur la figure II.13 pour les critères ① ($\varepsilon_c = 0{,}13$) et ② ($\gamma_q = 35$). En considérant le critère ②, pour $\tau = 35\ fs$, la largeur temporelle τ_G correspond à la durée en intensité de l'impulsion de sortie pour $\beta = 0°$. Dans ce cas, l'ellipticité reste nulle pendant toute l'impulsion. Pour $5° < \beta < 15°$, on observe une décroissance rapide de la durée de la porte qui passe de 66 fs à 20 fs. L'évolution de la durée de la porte devient plus lente à partir de 15°. Pour $\tau = 10\ fs$ et $t_e = 13\ fs$, lorsque $0° < \beta < 10°$, τ_G varie sur moins de 10%. Après une décroissance rapide entre 10° et 15°, le système tend vers la porte étroite dont la durée est 1,9 fs.

Les largeurs de la porte d'ellipticité définies par les critères ① et ② ont la même allure mis à part une décroissance plus abrupte pour le critère ①.

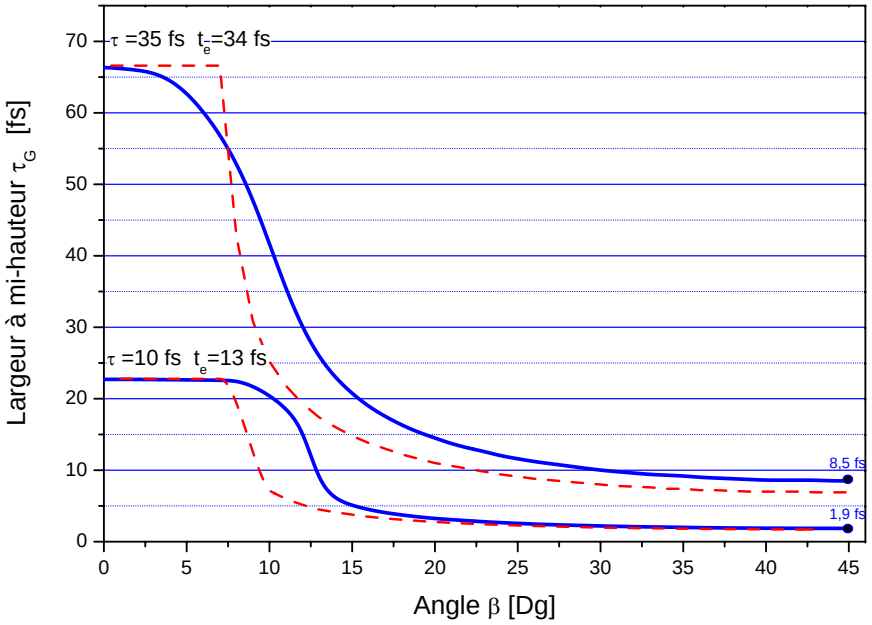


Fig. II.13 : *Largeur de la porte d'ellipticité τ_G pour le critère ① (trait pointillé long) et ② (trait plein) en fonction de l'angle β pour deux durées d'impulsion différente $\tau = 35\ fs$ et $\tau = 10\ fs$. Le délai introduit par la lame multi-ordre est égal respectivement à 34 et 13 fs. L'impulsion est Gaussienne, $\theta =$ 45°.*

2.4 Influence de la chromaticité sur la porte d'ellipticité

L'évolution de l'ellipticité peut être fortement modifiée par la chromaticité de la lame multi-ordre (la lame d'ordre 0 quant à elle, est quart d'onde sur un domaine spectral étendu). Pour un faisceau IR incident de longueur d'onde (λ_1) différente de celle pour laquelle la lame multi-ordre est quart d'onde (λ_0), l'ellipticité en sortie des lames sera différente en comparaison avec un faisceau incident de longueur d'onde (λ_0). La figure II.14 illustre les déformations de l'état de polarisation de l'impulsion au cours du temps pour deux impulsions incidentes de longueur d'onde λ_1 et λ_0 :

- En porte large : l'impulsion finalement polarisée linéairement au centre de l'impulsion pour λ_0 se transforme en polarisation elliptique pour λ_1. La notion de porte large n'a plus de sens.
- En porte intermédiaire : la polarisation bien que modifiée garde ses principales caractéristiques.
- En porte étroite : *quel que soit* le déphasage induit par la 1ere lame, l'évolution de la polarisation ne change pas, néanmoins la direction de polarisation linéaire (α(t) pour

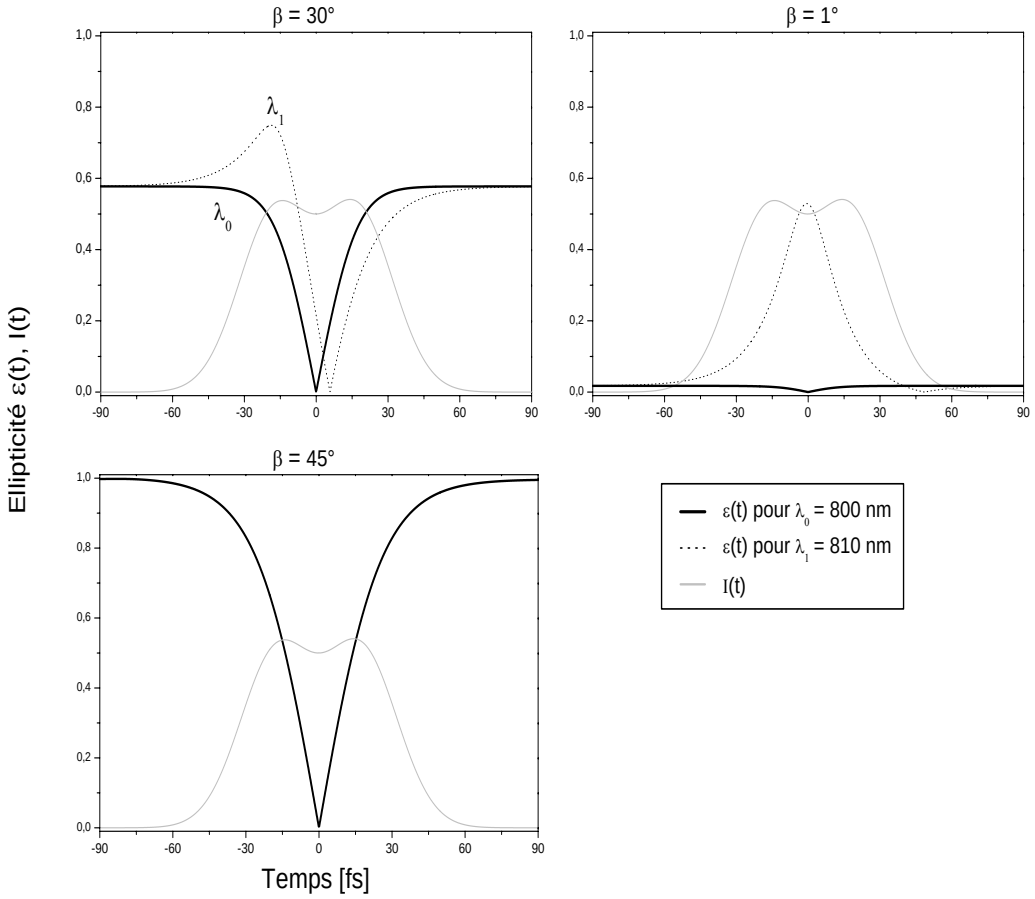


Fig. II.14 : *Ellipticité du champ en fonction du temps pour λ_0 (trait plein épais) et λ_1 (trait plein fin). L'intensité en sortie de la lame ne change pas (trait pointillé). L'impulsions est Gaussienne $\tau = 35\ fs$, $t_e = 35\ fs$, $\theta =\ 45°$.*

t=0) est modifiée.

Il est possible que la longueur d'onde du laser ne corresponde pas à la longueur d'onde pour laquelle la lame est quart d'onde. Nous pouvons ajuster le déphasage introduit par la lame pour qu'il soit égal à $\pi/2$ à cette longueur d'onde. L'évolution du déphasage en fonction de l'angle d'incidence i du faisceau laser par rapport à la normale de la lame (axe oz) et l'angle ϑ entre les axes propres de la lame et le référentiel du laboratoire (axes oxy, cf. figure II.15) s'écrit (cf. annexe 2.4, page 181) :

$$\Phi = \frac{2\pi\, e}{\lambda}\left[n_e\sqrt{1-\sin^2 i\left(\frac{\cos^2\vartheta}{n_e^2}+\frac{\sin^2\vartheta}{n_e^2}\right)} - n_o\sqrt{1-\frac{\sin^2 i}{n_o^2}}\right] \qquad \text{(II.12)}$$

Avec e l'épaisseur de la lame, n_e et n_o les indices extraordinaire et ordinaire de la lame à la longueur d'onde λ.

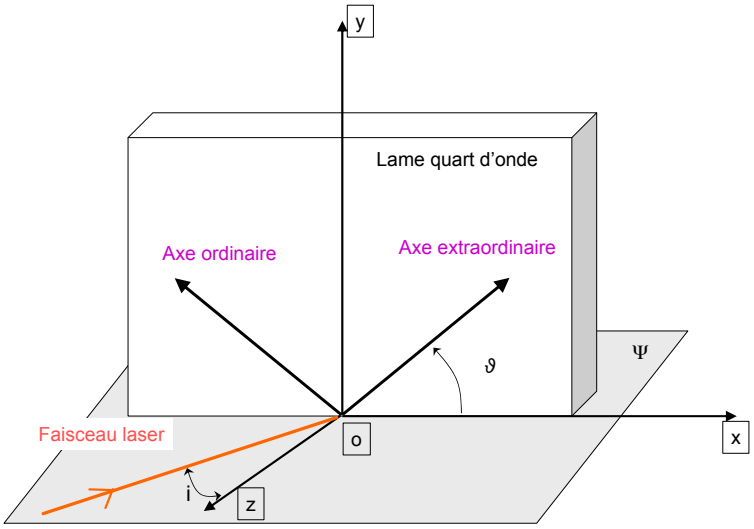


Fig. II.15 : *Configuration de la lame quart d'onde multi-ordre.*

L'évolution du cosinus du déphasage pour une lame quart d'onde multi-ordre en quartz à 800 nm et d'épaisseur $e = 1{,}05\ mm$ est représentée figure II.16. La lame est quart d'onde pour $cos\,\Phi = 0$. Nous avons considéré trois configurations différentes :

- $\lambda = 800\ nm$ et $\vartheta = 0°$. En fonction de l'angle d'incidence i, $cos\Phi$ est modulé autour de 0. La lame est quart d'onde pour différents angles i. En concomitance, le délai t_e diminue rapidement pour i croissant.
- $\lambda = 800\ nm$ et $\vartheta = 45°$. La lame reste quart d'onde jusqu'à $i \approx 20°$ et devient une lame d'onde $\Phi = 0 \bmod [2\pi]$ aux alentours de $i = 65°$. Le délai t_e croît légèrement avec l'angle i.
- $\lambda = 815\ nm$ et $\vartheta = 45°$. La lame en incidence normale équivaut à une lame demi-onde $\Phi = \pi$. La lame est quart d'onde lorsque $i \approx 60°$ avec un délai t_e légèrement augmenté.

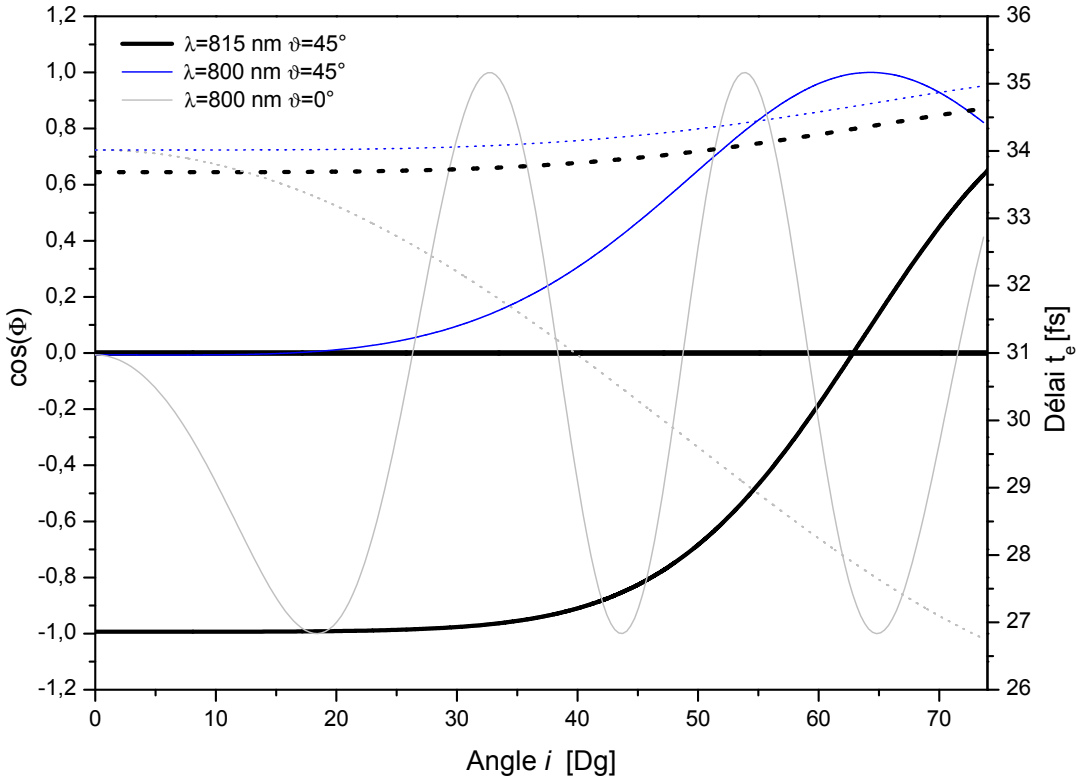


Fig. II.16 : *Évolution du cosinus du déphasage introduit par une lame en quartz, quart d'onde à 800 nm et d'épaisseur e=1,05 mm en fonction de l'angle d'incidence i, pour trois configurations différentes : λ=800 nm et ϑ=0 (trait plein gris), λ=800 nm et ϑ=45° (trait plein noir),λ=815 nm et ϑ=45° (trait plein épais noir). Le délai t_e entre les 2 axes est représenté pour les 3 cas en pointillé.*

2.5 Limite de validité

Cette étude est valide uniquement pour une longueur d'onde donnée c'est-à-dire avec une dérive de fréquence instantanée nulle. Dans ces simulations, la dispersion de vitesse de groupe n'est pas prise en compte. Expérimentalement, on cherche à obtenir une impulsion présentant une dérive de fréquence nulle en sortie des deux lames. Pour cela, on pré-compense la dérive de fréquence induite par la dispersion des lames. On négligera la différence de dérive de fréquence entre les deux axes principaux de la lame multi-ordre qui est effectivement très faible, par exemple pour $t_e=\tau=35\ fs$, la différence d'épaisseur optique entre les 2 axes correspond à une durée de moins de 0,03 fs. Cette dispersion est négligeable pour des impulsions longues. Pour des impulsions plus courtes, l'épaisseur de la lame multi-ordre diminue en proportion et la différence de dispersion reste négligeable dans le cas où $t_e \approx \tau$ (durée inférieure à 0,1 fs entre les deux axes pour τ=10 fs).

2.6 Efficacité de la génération d'harmoniques en porte étroite

En porte étroite, l'augmentation du délai t_e se traduit par un accroissement de la vitesse à laquelle la polarisation passe de circulaire à linéaire. En d'autres termes la porte d'ellipticité est de plus en plus étroite. En revanche, l'intensité de l'impulsion où la polarisation est linéaire diminue avec t_e (cf. figure II.17). L'intensité IR dans la porte et l'efficacité de la génération d'harmoniques sont intimement liées : si l'intensité IR diminue, l'efficacité de la génération d'harmoniques décroît.
En se basant sur un modèle simple, le niveau du signal correspondant à l'harmonique d'ordre q est donné par :

$$S_q(t_e) = A \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{IR}}{}^{qeff}(t,t_e)\ \exp\left[-\gamma_q\, \varepsilon^2(t,t_e)\right]\ dt \tag{II.13}$$

Où A est une constante de normalisation, I_{IR} est l'intensité du laser, $qeff$ est un ordre effectif de non linéarité égal à 3 [Wahlström *et al.* 93], qui décrit la dépendance en fonction de l'intensité de l'efficacité de génération d'harmoniques du plateau. γ_q est une constante permettant de décrire la dépendance gaussienne du signal harmonique avec l'ellipticité $\varepsilon(t,t_e)$ de l'impulsion fondamentale ($\gamma_{19} = 35$; déterminé expérimentalement pour l'harmonique 19 dans l'argon) .

L'efficacité η de la génération d'une harmonique d'ordre q est définie par :

$$\eta = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{IR}}{}^{qeff}(t,t_e)\ \exp\left[-\gamma_q\, \varepsilon^2(t,t_e)\right]\ dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{IR}}{}^{qeff}(t,t_e)\, dt} \tag{II.14}$$

On considère que γ_q est constant quelle que soit la durée de l'impulsion initiale τ ($\gamma_q = 35$). L'évolution de l'efficacité du signal d'une harmonique en fonction du rapport t_e/τ en association avec la largeur de la porte étroite τ_{G-PE} est représentée figure II.18. Au fur et à mesure que la largeur de la porte étroite diminue, l'efficacité chute rapidement. L'efficacité diminue d'un ordre de grandeur lorsque $t_e = \tau$ et de deux deux ordres de grandeur pour $t_e = 1{,}5\ \tau$. Quant à la largeur de la porte d'ellipticité associée, elle diminue d'un facteur 2. Il faut trouver un compromis entre la durée de la porte d'ellipticité qui détermine la durée des harmoniques émises et l'intensité IR dans la porte. Par exemple, si on peut se permettre de perdre un ordre de grandeur sur le signal harmonique en passant de la configuration sans porte à la configuration porte étroite, le rapport entre le délai t_e et la durée de l'impulsion initiale τ doit être compris entre 1 et 1,25.

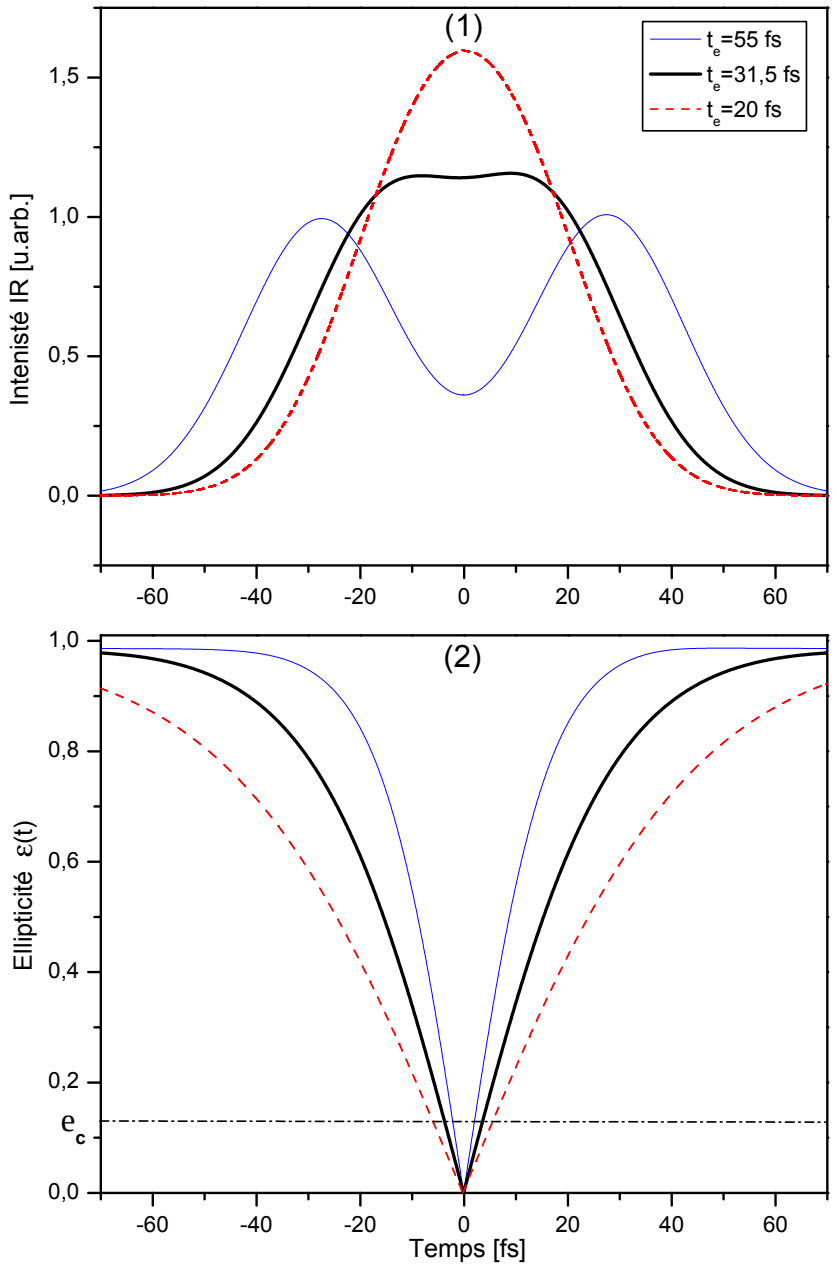


Fig. II.17 : *Évolution temporelle de l'intensité en sortie des lames (1) et de l'ellipticité correspondante (2) pour différents délais t_e. L'impulsion incidente est Gaussienne de durée à mi-hauteur en intensité $\tau = 35\ fs$, $\theta = 45°$, $\beta = 45°$.*

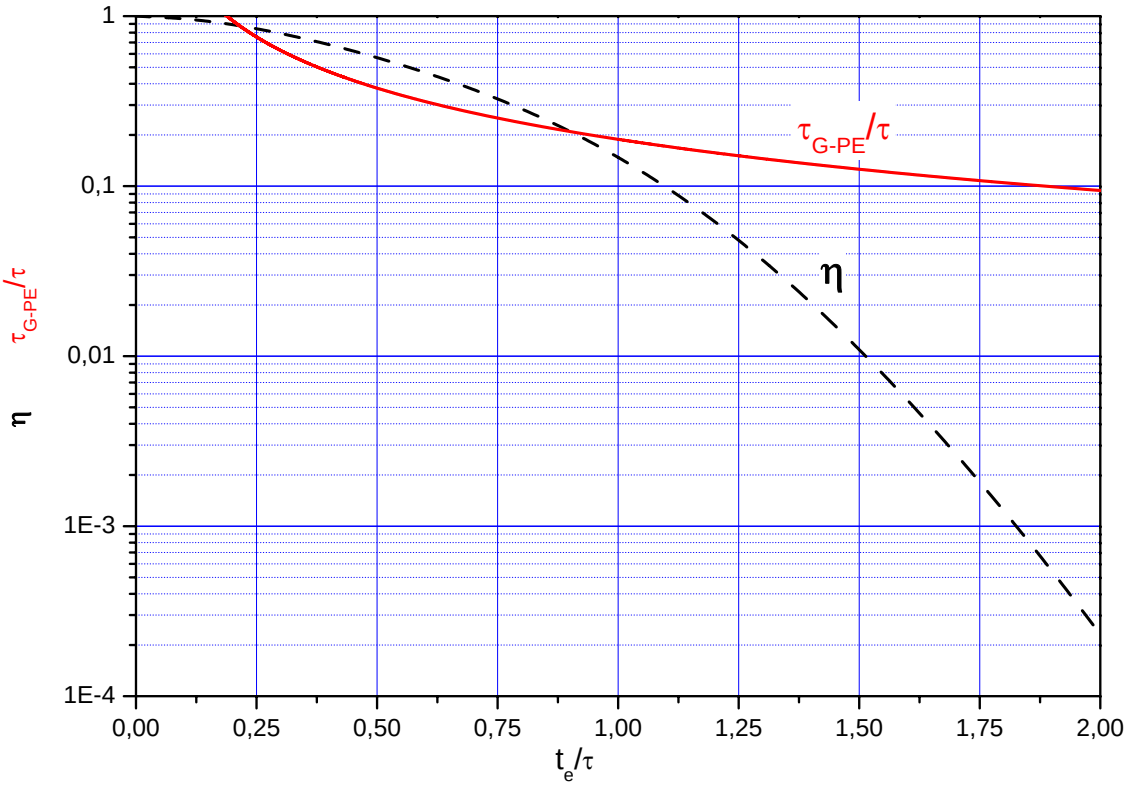


Fig. II.18 : *Efficacité normalisée de la génération d'une harmonique du plateau en porte étroite en fonction de τ_{G-PE}/τ (pointillé). Évolution de la largeur de la porte d'ellipticité τ_{G-PE}/τ_0 dans la configuration porte étroite en fonction de t_e/τ (trait plein). τ_G est calculé par la formule II.11.*

Chapitre 3

Effet du confinement dans le domaine spectral

3.1 But : Mise en évidence

Nous avons mené une première série d'expériences pour valider la faisabilité de cette technique de confinement temporel de la génération d'harmoniques. Ces études préliminaires ont été effectuées dans le domaine le plus facilement accessible c'est-à-dire le domaine spectral. Nous avons étudié la signature spectrale du confinement temporel des harmoniques en travaillant avec une impulsion fondamentale IR de 35 fs [Tcherbakoff *et al.* 03]. Plus précisément, nous avons suivi l'évolution de la largeur spectrale des harmoniques en fonction de la durée de la porte temporelle d'ellipticité τ_G.

3.2 Montage expérimental

Nous utilisons la chaîne laser du CELIA délivrant à 800 nm des impulsions de durée 35 fs et une énergie atteignant 10 mJ avec un taux de répétition de 1 kHz. La modulation de la polarisation de l'impulsion laser, se réalise via deux lames de quartz biréfringentes (cf. caractéristiques tableau II.1): une lame quart d'onde d'ordre multiple d'épaisseur 1,05 mm introduisant un délai $t_e = 34fs$, et une lame quart d'onde d'ordre 0 d'épaisseur 1 mm. Le faisceau est focalisé à l'aide d'une lentille de 1,5 m dans une cellule de longueur 1,5 cm et de diamètre 400 μm remplie d'argon. Le spectre harmonique est analysé à l'aide d'un spectromètre VUV comportant un miroir torique en incidence rasante et un réseau plan. Le signal est détecté à l'aide d'une caméra CCD, protégée par un filtre en aluminium d'épaisseur 1000 Å monté sur une grille (transmission page 148).

n_o	1,5384
n_e	1,5473
ng_o	1,5544
ng_e	1,5639
k''_o	412 fs^2/cm
k''_e	421 fs^2/cm

Tab. II.1 : *Indices de phase, indices de groupe et dispersions de vistesse de groupe ordinaire et extraordianaire du quartz pour λ=800 nm.*

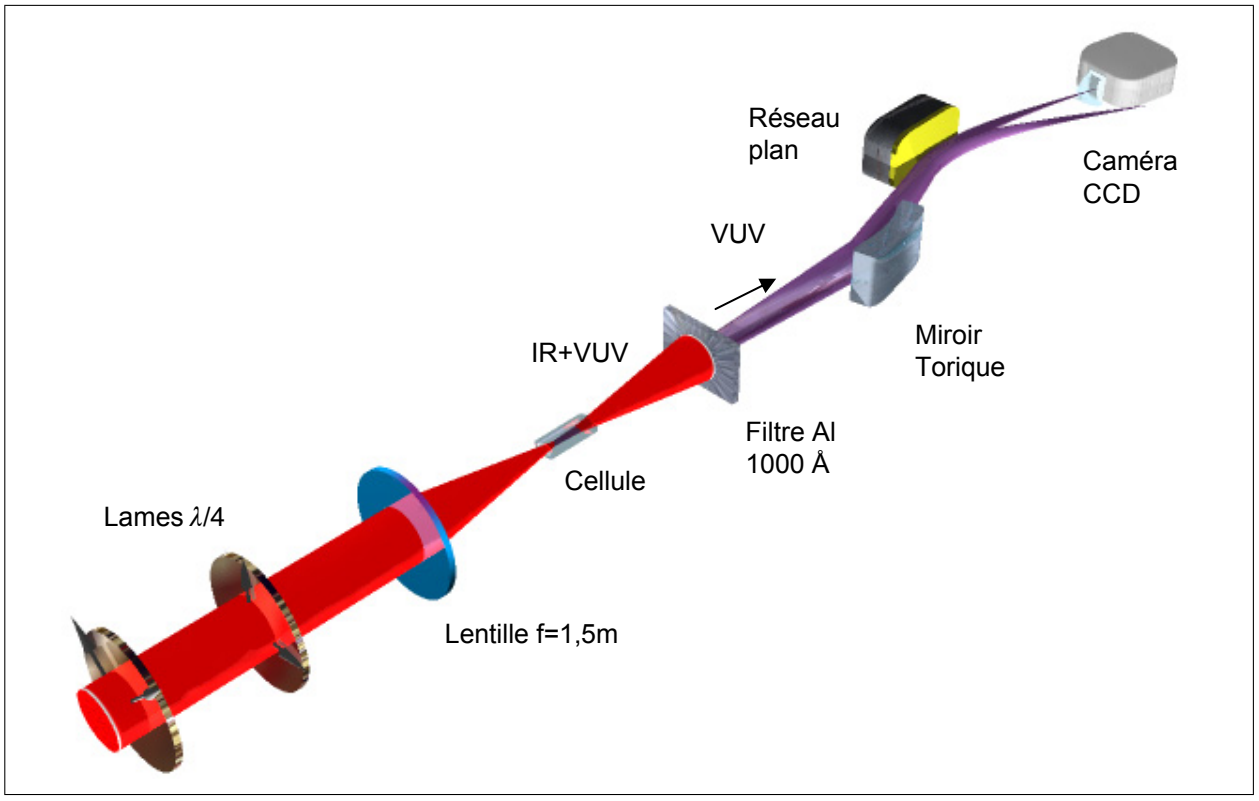


Fig. II.19 : *Dispositif expérimental.*

3.3 Les contributions à la largeur spectrale des harmoniques

Les différentes contributions à la largeur spectrale des harmoniques proviennent :

ⓐ de la dérive de fréquence initiale de l'impulsion fondamentale. Une dérive de fréquence de l'impulsion fondamentale $\Delta\lambda/\Delta t$ conduira à une dérive de fréquence $\Delta\lambda/q\Delta t$ pour une harmonique d'ordre q.

ⓑ de la présence d'électrons libres dans le milieu. Ils induisent une modulation de la longueur d'onde du fondamental qui se répercute sur les harmoniques. Pour une harmonique d'ordre q estimée sur toute la durée de l'impulsion fondamentale, la modulation s'écrit :

$$\delta\lambda = -\frac{\lambda^3\, e^2}{2\pi\, q\, m\, c^3}\frac{d\mathcal{N}_e}{dt}L_{med} \tag{II.15}$$

avec e et m, la charge et la masse de l'électron, $\mathcal{N}_e$ la population d'électrons libres, L_{med} la longueur du milieu.

ⓒ de la phase du dipôle atomique intrinsèque au processus de génération d'harmoniques qui varie linéairement avec l'intensité produit une modulation de la phase des harmoniques.

Pour que l'effet du confinement soit observable, il faut limiter ou supprimer toutes les contributions pouvant masquer cet effet. La contribution ⓐ peut être supprimée en s'assurant que l'impulsion est limitée par transformée de Fourier.
La contribution ⓑ peut être réduite en évitant une ionisation trop importante du milieu générateur ou en réduisant la pression.
La contribution ⓒ est inévitable, cependant avec un profil temporel en intensité plat au sommet, on s'affranchit au maximum de la phase intrinsèque du dipôle pour les harmoniques générées au sommet de l'impulsion. Cette condition est remplie si le délai introduit par la lame multi-ordre $t_e = 0.9\,\tau$. De plus, en modifiant la position de la cellule par rapport au foyer, nous pouvons sélectionner un accord de phase favorisant le chemin quantique court qui possède une contribution à la phase intrinsèque plus faible que le chemin quantique long pour une harmonique du plateau. Cette étude n'a pas été faite systématiquement en passant continûment d'une configuration à l'autre.

3.4 Effet spectral du confinement

Nous avons étudié les harmoniques produites dans l'argon allant de l'ordre 15 à 35. L'énergie incidente et la pression du gaz sont maintenues à des valeurs relativement basses (10 $mbar$; 1,1-1,4 mJ) pour éviter toute modification du spectre harmonique par les effets d'ionisation du milieu.

Les **harmoniques du plateau** présentent un comportement qui a déjà été constaté dans une expérience précédente [Altucci *et al.* 98]. On observe expérimentalement un rétrécissement spectral des harmoniques lorsqu'on passe de la porte large ($\beta = 0°$, $\tau_G = 66\ fs$) à la porte étroite ($\beta = 45°$, $\tau_G = 8{,}5\ fs$)(cf. figure II.20). Cela va à l'encontre de l'idée de l'action du confinement sur le spectre harmonique. L'évolution de la largeur spectrale de l'harmonique 19 en fonction de l'angle β est représentée sur la figure II.20. Au fur et à mesure que la largeur de la porte τ_G diminue, la largeur spectrale décroît. En porte large, le signal de l'harmonique 19 est très faible, l'évaluation de sa largeur spectrale n'est pas possible. Ces observations contre intuitives s'expliquent si l'on tient compte du rôle de la phase du dipôle atomique dans le processus de la génération d'harmoniques (voir la discussion chapitre 3.5, page 93). .

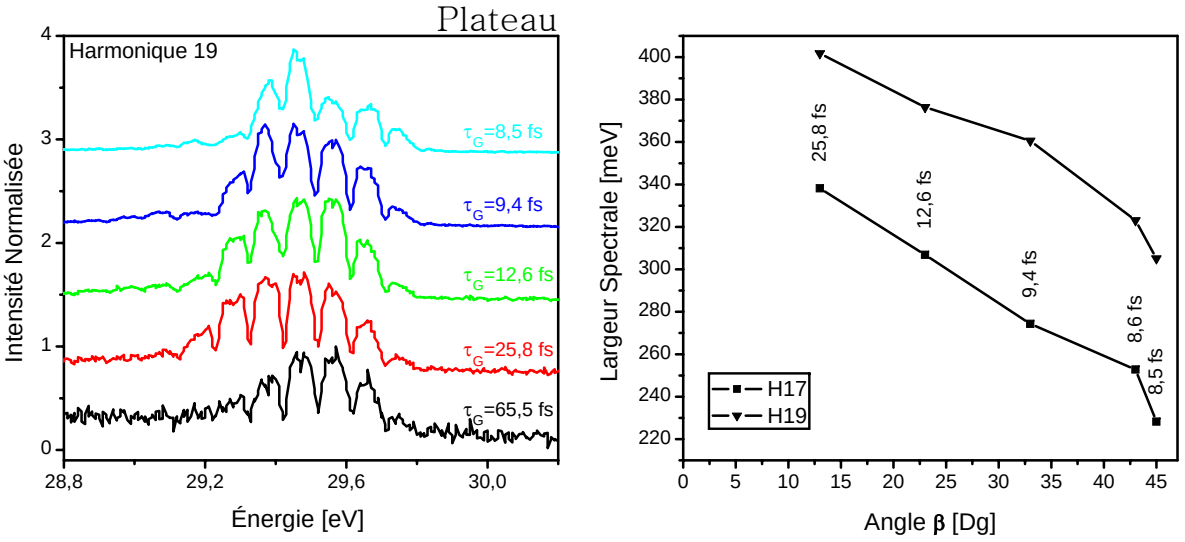


Fig. II.20 : *Spectres de l'harmonique 19 générée dans 10 mbar d'argon pour différentes durées estimées de la porte d'ellipticité τ_G (à gauche). (À droite) largeur à mi-hauteur des spectres de l'harmonique 19 en fonction de l'angle β. Les durées τ_G sont annotées sur la courbe en fonction de β. Les oscillations dans le spectre sont dues à la grille supportant le filtre en Al.*

Les **harmoniques de la coupure** suivent le comportement escompté : en diminuant la largeur de la porte d'ellipticité, les harmoniques s'élargissent (cf. figure II.21). Pour l'harmonique 25, la largeur spectrale, estimée avec un ajustement Gaussien, passe de 300 meV en porte large à 400 meV en porte étroite. En réduisant la pression de 30 $mbar$ à 10 $mbar$ (en augmentant l'énergie de 1,1 mJ à 1,4 mJ pour garder un niveau correct de signal), on observe le même effet. Ceci montre qu'avec une énergie basse, les effets de l'ionisation du milieu sont totalement négligeables et les modifications spectrales observées sont dues uniquement aux effets du confinement temporel. Nous n'avons également constaté aucune modification

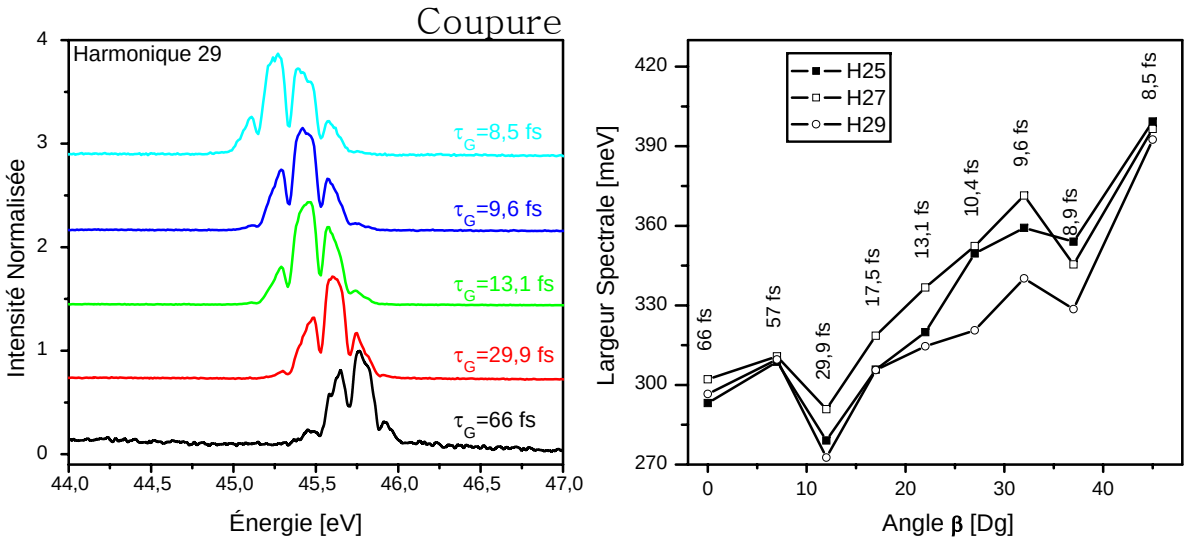


Fig. II.21 : *Spectres de l'harmonique 29 générée dans 30 mbar d'argon pour différentes durées de la porte d'ellipticité τ_G (à gauche). (À droite) largeur à mi-hauteur des spectres de l'harmonique 29 en fonction de l'angle de la seconde lame β. Les durées τ_G sont annotées sur la courbe en fonction de β.*

spectrale de l'impulsion infrarouge après propagation dans le milieu générateur. Cette observation n'est pas une preuve, mais apporte une indication puisque les effets d'ionisation sont plus importants sur les harmoniques.

Pour valider ces observations, le même groupe d'harmoniques (25, 27) initialement dans la coupure, a été amené dans le plateau en augmentant l'énergie incidente à 2,2 mJ. Le résultat est en accord avec les observations faites auparavant. La largeur des harmoniques du plateau décroît lorsque l'on passe de la porte large à la porte étroite (cf. figure II.22). En augmentant l'énergie IR incidente, les harmoniques suivent la même tendance que précédemment comme l'illustre la figure II.23. La largeur spectrale des harmoniques du plateau 31 et 33 diminue en passant de la porte large à la porte étroite, alors que les harmoniques de la coupure 35 et 37 s'élargissent. Cependant les largeurs spectrales mesurées sont plus importantes. Dans ce cas-là, la contribution due à l'ionisation du milieu ne peut plus être négligée. L'interprétation des spectres est alors plus complexe.

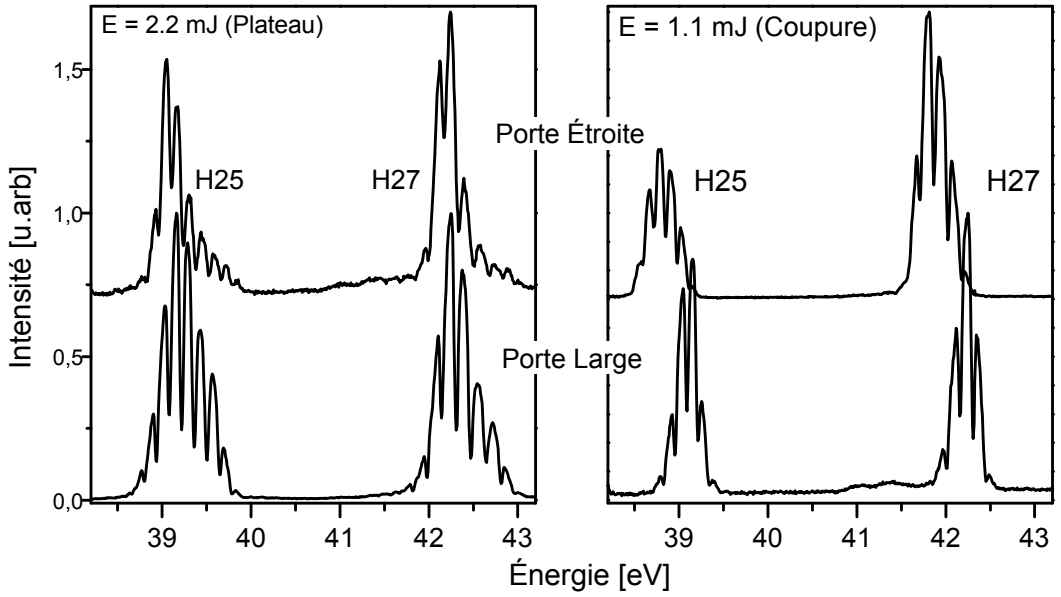


Fig. II.22 : *Spectres des harmoniques 25 et 27 générées dans 30 mbar d'argon en porte étroite (haut de la figure) et porte large (bas de la figure). Les harmoniques 25, 27 sont dans le plateau (À gauche) et dans la coupure (À droite).*

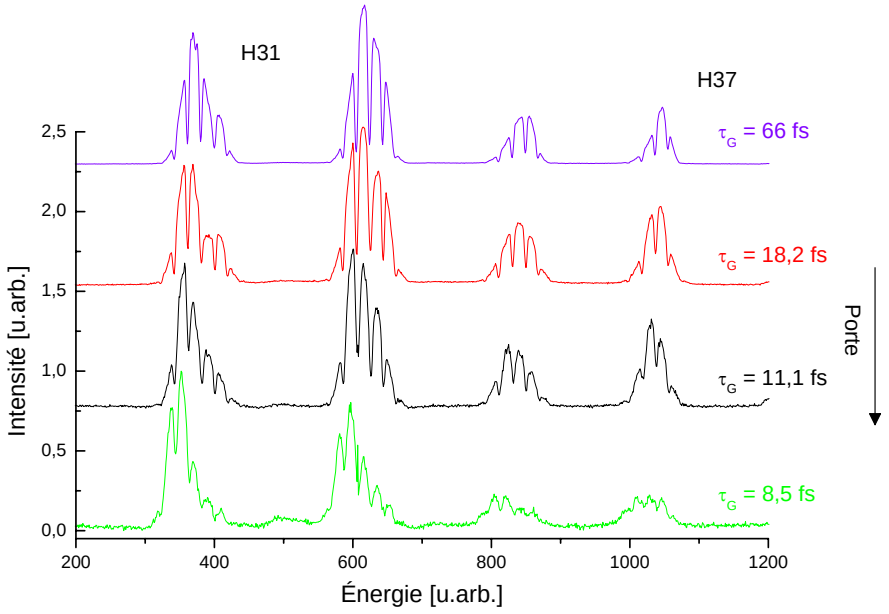


Fig. II.23 : *Spectres des harmoniques générées avec une impulsion de 2,2 mJ dans 30 mbar d'argon pour différentes largeurs de la porte d'ellipticité τ_G. L'effet de l'ionisation du milieu sur la génération d'harmoniques n'est plus négligeable.*

3.5 Influence de la phase atomique

L'interprétation de ces résultats doit tenir compte de la phase atomique du dipôle dans le processus de génération d'harmoniques. Elle se décompose principalement en deux composantes distinctes appelées chemin quantique long et chemin quantique court (cf. section 1.3.2 page 19). Pour les harmoniques du plateau, ces deux chemins participent au processus de génération d'harmoniques. Pour les harmoniques de la coupure, ces deux chemins se regroupent en un seul. La phase du dipôle atomique s'écrit ($\alpha > 0$) :

$$\varphi_q = -q\omega_0 t - \alpha I(t) \tag{II.16}$$

la fréquence instantanée est alors égale à :

$$\omega_q(t) = -\frac{d\varphi_q}{dt} = q\omega_0 + \alpha\frac{\delta I(t)}{\delta t} \tag{II.17}$$

pour les harmoniques du plateau, α peut prendre deux valeurs : pour le chemin quantique court $\alpha_1 \approx 1.10^{-14} cm^2/W$, pour le chemin quantique long $\alpha_2 \approx 25.10^{-14} cm^2/W$. Pour les harmoniques de la coupure $\alpha_c \approx 12.10^{-14} cm^2/W$.
On observe, à la limite de détection, l'harmonique 33, en utilisant la loi de coupure, on estime l'intensité égale à 1,9.10^{14} W/cm^2. On retiendra la valeur de 2.10^{14} W/cm^2. À la limite de diffraction l'intensité crête au foyer est de $\approx$ 5.10^{14} W/cm^2 avec une impulsion de 1,1 mJ de durée 66 fs et un faisceau de diamètre 25 mm .
En porte large, les harmoniques du plateau peuvent être générées sur le front montant et descendant de l'impulsion pour lesquels $dI/dt \neq 0$. La fréquence instantanée varie considérablement durant le processus de génération dans le cas du *chemin quantique long*. Pour l'harmonique 17, l'intensité seuil à partir de laquelle l'harmonique peut être générée est d'environ 6.10^{13} W/cm^2. La fréquence instantanée ω_{17} peut varier d'environ 2,4 eV (cf. figure II.24). Cette valeur est néanmoins largement surestimée, on ne tient pas compte de la distribution spatiale de l'intensité, de la déplétion du milieu et de l'évolution de l'efficacité de génération en fonction de I. En confinant l'émission des harmoniques du plateau, deux phénomènes s'opposent :

- le confinement temporel de l'émission harmonique qui a tendance à élargir le spectre des harmoniques.
- La réduction de la variation temporelle de l'intensité dI/dt sur la durée de l'émission harmonique (conduisant à une réduction de la dérive de fréquence des harmoniques) qui tend à rétrécir la largeur spectrale. Par exemple, pour l'harmonique 17, la variation de la fréquence instantanée passe de 2,4 eV en porte large à 0,54 eV en porte étroite.

Pour le *chemin quantique court*, la fréquence instantanée varie très peu comparée à celle du chemin quantique long. Le confinement de "$dI(t)/dt$" n'a que très peu d'influence sur la

largeur spectrale des harmoniques. Dans ce cas, le confinement temporel de la génération d'harmoniques doit conduire à un élargissement des spectres.
La contribution relative des chemins quantiques dépend de la géométrie de focalisation et de la pression du gaz.

Dans nos conditions expérimentales, la largeur spectrale à basse pression et faible intensité des harmoniques du plateau est plus importante que celle des harmoniques de la coupure. Ceci dénote une contribution du chemin quantique long prépondérante dans le processus de génération des harmoniques du plateau [Gaarde *et al.* 99].

Pour les harmoniques du plateau, on observe un rétrécissement de la largeur des harmoniques. La largeur minimale mesurée de 230 meV est compatible avec un confinement temporel de 8,5 fs estimée à partir du principe d'incertitude d'Heisenberg pour une impulsion gaussienne ($\delta E.\delta t = 1{,}8$ avec δE en eV et δt en fs). Ici, la contribution du chemin quantique long à la phase intrinsèque du dipôle masque l'effet du confinement, la durée de la porte d'ellipticité n'est pas assez étroite pour observer un élargissement du spectre. Dans l'hypothèse où la porte d'ellipticité τ_G continuerait à diminuer, la contribution de la phase atomique serait de plus en plus faible, l'effet du confiment ne serait alors plus masqué et les harmoniques du plateau devraient s'élargir.

Pour les harmoniques de la coupure, la situation est opposée. D'une part, il existe un seul chemin quantique avec un coefficient plus faible que celui du chemin quantique long. D'autre part, les harmoniques de la coupure sont générées au sommet de l'impulsion où l'intensité est stationnaire ($dI/dt \approx 0$), ce qui implique une faible variation de la phase du dipôle atomique d'où l'importance du profil en intensité plat. En passant de la porte large à la porte étroite, on observe un élargissement de la largeur spectrale des harmoniques. On estime la largeur spectrale due au confinement, en considérant la largeur ΔE_0 relative à la porte large. Le confinement de l'émission harmonique à δt_{hhg} élargit le spectre de ΔE_{conf}. En considérant que ΔE_{conf} et ΔE_0 sont indépendants, la largeur totale s'écrit $\Delta E = \sqrt{\Delta E_0^2 + \Delta E_{conf}^2}$. Sur la figure II.21 la largeur spectrale passe de 300 meV en porte large à 400 meV en porte étroite ce qui donne $\Delta E_{conf} = 260\ meV$. Cette valeur est en accord avec un confinement temporel de 8,5 fs.

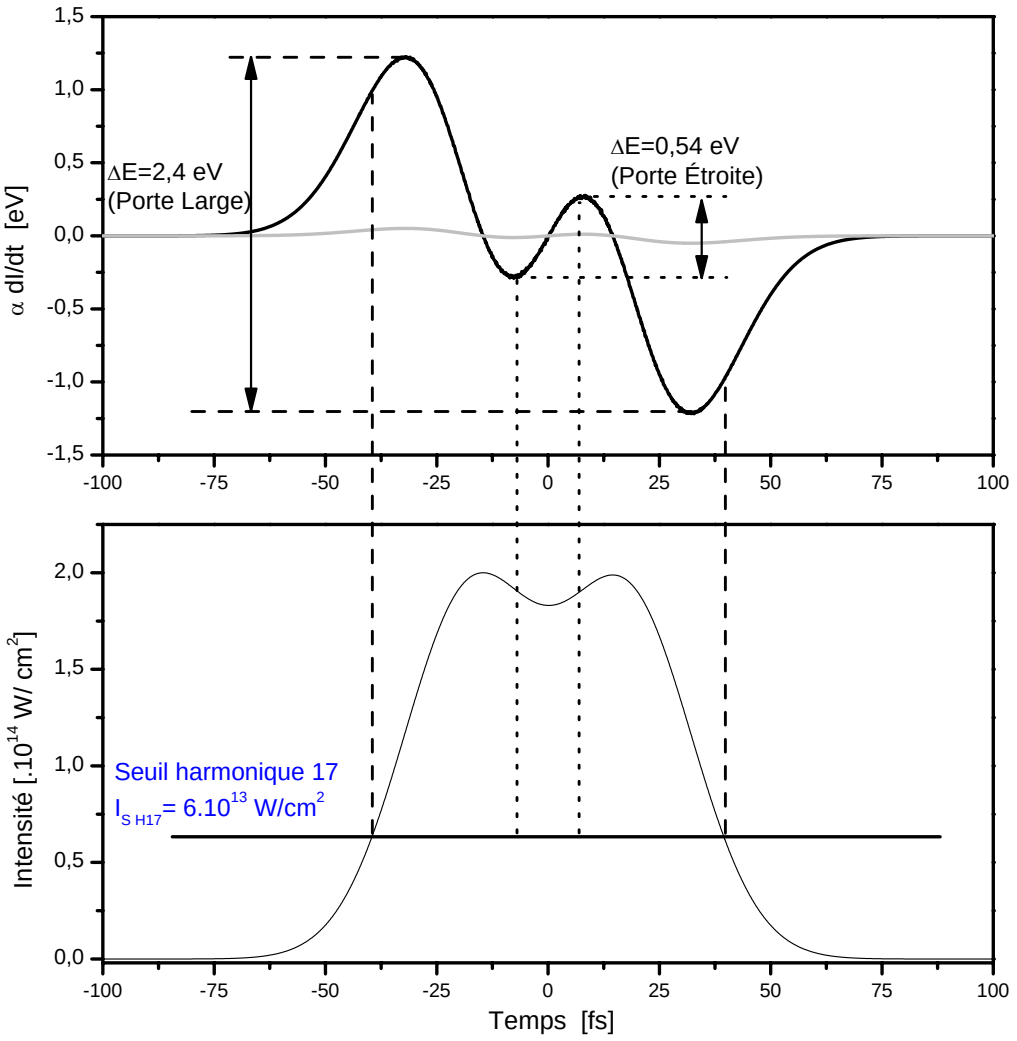


Fig. II.24 : *(En haut), variation de la fréquence instantanée en [eV] pour l'harmonique 17. Le chemin quantique long est présenté en trait noir et le chemin quantique court en trait gris. (En bas) le profil temporel en intensité de l'impulsion IR, le seuil pour générer l'harmonique 17 est noté sur la courbe. En porte large* $\Delta E = 2{,}4eV$*, en porte étroite* $\Delta E = 0{,}54\,eV$ *(cf. texte pour explications).*

3.6 Conclusion

Cette expérience met en évidence pour la première fois une signature spectrale en accord avec un confinement de l'émission harmonique pendant 8,5 fs. Pour les harmoniques du plateau, on observe un comportement contre-intuitif, en réduisant temporellement l'émission harmonique, la largeur des harmoniques diminue. Ce phénomène s'explique par l'influence de la phase atomique sur la génération d'harmoniques.
La méthode utilisée présente deux avantages capitaux :

- la technique est linéaire et par conséquent elle reste insensible aux fluctuations en énergie du laser.
- La porte d'ellipticité est ajustable de façon continue.

Nous avons mis en avant le rôle de la phase du dipôle atomique pour l'interprétation des spectres harmoniques. Une étude spectrale avec une configuration expérimentale sélectionnant le chemin quantique court pour les harmoniques du plateau devrait confirmer cette analyse. Nous avons pu réaliser cette étude en collaboration avec le CEA-Saclay.

3.7 Confirmation de l'effet du confinement à Saclay

À la suite de cette expérience, nous avons eu l'opportunité de travailler en collaboration avec le groupe harmonique du SPAM (Service des Photons, Atomes et Molécules) au CEA-Saclay sur le confinement temporel des harmoniques en utilisant une porte d'ellipticité réalisée à l'aide d'un interféromètre de Michelson et des lames quart d'onde d'ordre 0 [Kovačev *et al.* 03]. Cette étude complémentaire, sur la signature spectrale du confinement, a confirmé dans des conditions de génération d'harmoniques différentes la robustesse de cette méthode.

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure II.25. Des lames quart d'onde d'ordre 0 sont placées dans les bras du Michelson dont les axes optiques sont respectivement orientées à +22,5° et -22,5° par rapport à la direction de la polarisation de l'impulsion d'entrée. Les lames quart d'onde d'ordre 0 traversées deux fois agissent comme des lames demi-onde. En sortie du Michelson, les deux impulsions sont polarisées linéairement dans des directions orthogonales. Le décalage temporel de l'une par rapport à l'autre s'effectue via le Michelson de façon continue avec une précision inférieure au cycle optique du champ laser. Ces deux impulsions de polarisations orthogonales traversent une dernière lame quart d'onde d'ordre 0 dont les axes optiques sont à 45° de la direction de polarisation de l'une des impulsions

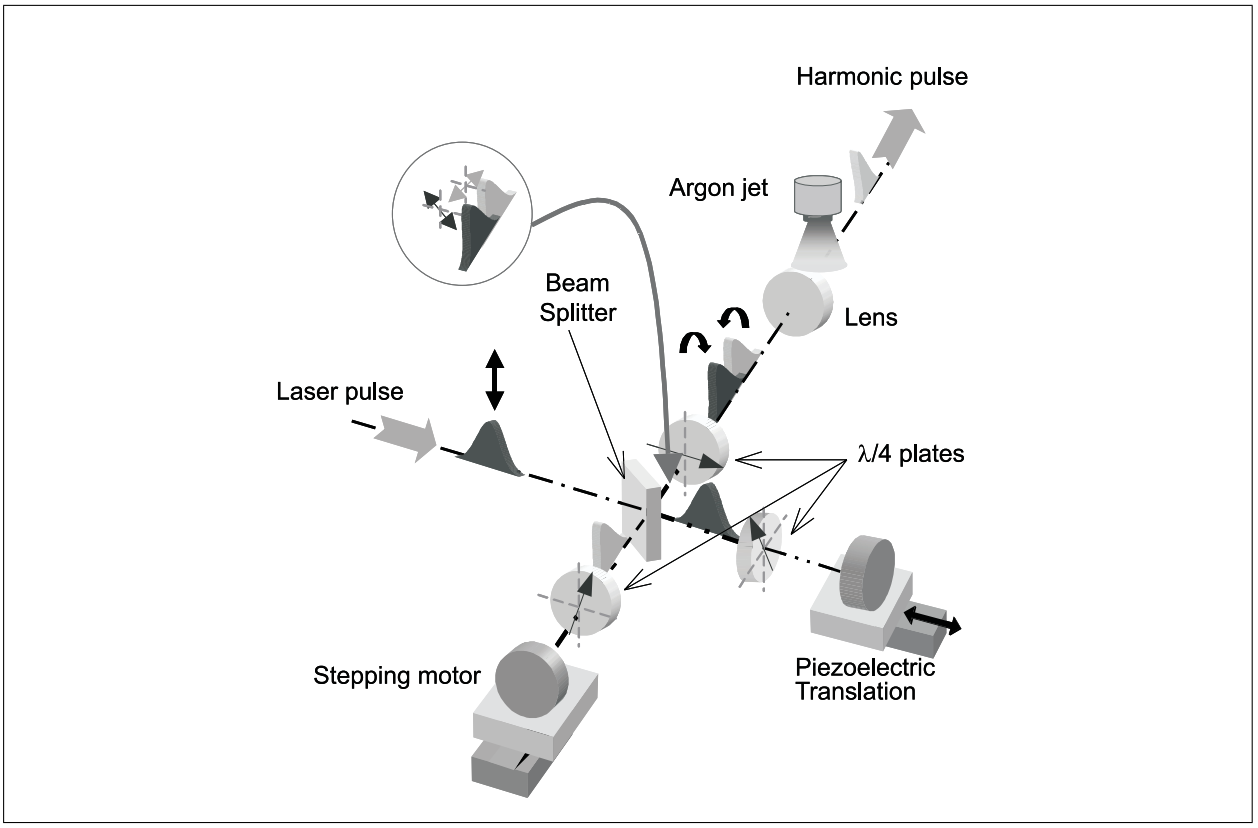


Fig. II.25 : *Dispositif expérimental utilisé à Saclay pour réaliser la porte d'ellipticité.*

incidentes. Cette lame transforme une polarisation circulaire en polarisation linéaire et vice-versa. L'impulsion possède alors les caractéristiques attendues pour confiner temporellement la génération d'harmoniques. En variant le délai t_e entre les deux impulsions, la durée τ_G de la porte d'ellipticité est modifiée. Cette configuration correspond dans le cas de notre méthode à la porte étroite avec un délai t_e continûment variable.
Le faisceau laser est focalisé dans un jet d'argon avec un éclairement de l'ordre 1.10^{14} W/cm^2. Le rayonnement VUV est analysé par un spectromètre VUV constitué d'un miroir torique et d'un réseau plan en incidence rasante. Le détecteur est un photomultiplicateur.
La durée de l'impulsion initiale est de 50 fs. En sortie de l'interféromètre les deux impulsions polarisées orthogonalement sont caractérisées par un SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction). La durée des impulsions est alors de 80 fs après propagation à travers les lames quart d'onde et la lame séparatrice. Les durées des deux impulsions ne sont pas rigoureusement identiques puisque nous n'avons pas installé de lame compensatrice sur l'un des bras du Michelson. Avec l'évolution temporelle de la phase des deux impulsions, nous avons pu reconstruire la modulation de la polarisation après la 3ème lame quart d'onde. Le résultat est présenté figure II.26 pour un délai de 60 fs. La porte d'ellipticité existe, la polarisation de la porte est linéaire lorsque les impulsions ont la même

intensité. Une seconde porte apparaît à 120 fs mais l'intensité IR correspondante est si faible que nous sommes assurés que la génération d'harmoniques est négligeable.

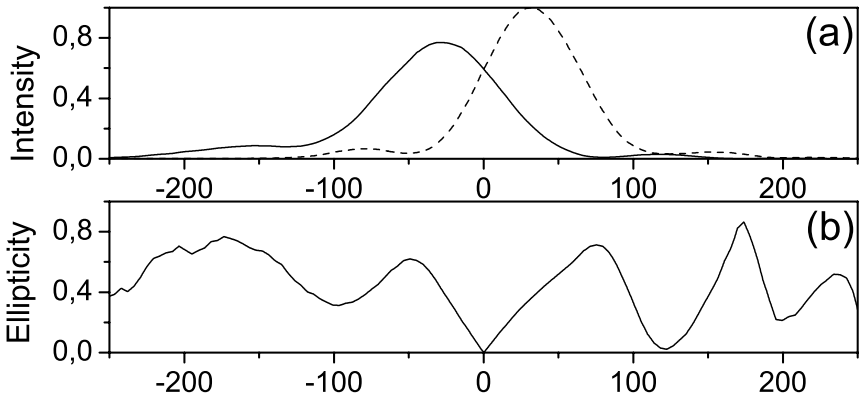


Fig. II.26 : *(a) Profils temporels des deux impulsions polarisées orthogonalement en sortie du Michelson.*
(b) Modulation de la polarisation en fonction du temps après la 3ème lame quart d'onde pour un délai de 60fs.

Résultats expérimentaux

La variation du signal de l'harmonique 11 en fonction du délai t_e est présentée sur la figure II.27. Sans porte, l'impulsion est linéairement polarisée suivant la même direction et l'éclairement crête diminue avec l'augmentation du délai. Il s'ensuit une diminution du signal harmonique quand le délai augmente (pointillé long). En présence de la porte d'ellipticité, le signal harmonique diminue plus rapidement (trait plein). Ceci est dû à la réduction de la durée d'émission VUV et à la diminution de l'éclairement IR sur cet intervalle lorsque le délai augmente. Les modulations rapides du signal sont la conséquence de la réponse du spectromètre : la transmission du réseau varie d'un facteur 2 entre les polarisations S et P. La direction de la polarisation à l'instant où $\varepsilon = 0$ varie de 90° lorsque le délai entre les deux impulsions varie d'une demi-période optique. L'efficacité du spectromètre s'exprime en fonction de l'orientation de la polarisation des harmoniques par :

$$g(\alpha) = 1 - \frac{1}{4}\left[1 + \cos(2\alpha)\right] \tag{II.18}$$

En effectuant une simulation basée sur un modèle simple, le niveau du signal correspondant à l'harmonique d'ordre q est donné par :

$$S_q(t_e) = A \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{IR}}{}^{qeff}(t,t_e)\ \exp\left[-\gamma_q\, \varepsilon^2(t,t_e)\right]\ g(\theta(t_e))\, dt \tag{II.19}$$

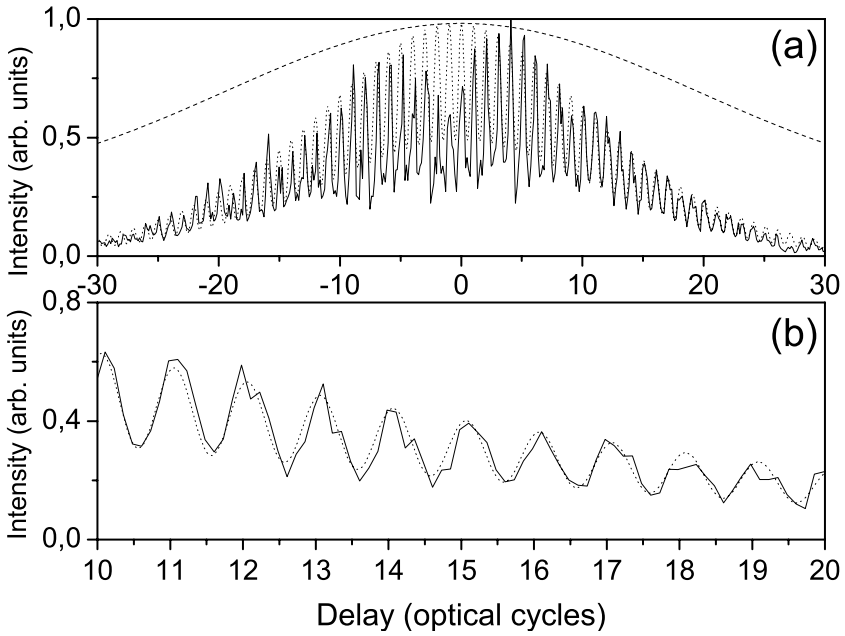


Fig. II.27 : *(a) Variation du signal de l'harmonique d'ordre 11 en fonction du délai t_e. En présence de la porte d'ellipticité (trait plein), la simulation (trait pointillé) et sans porte (trait pointillé long).*
(b) Zoom de la figure (a) montre un excellent accord entre la simulation et la courbe expérimentale.

Où A est une constante de normalisation,I_{IR} est l'intensité du laser, $qeff$ est un ordre effectif de non linéarité égal à 3 [Wahlström *et al.* 93], qui décrit la dépendance en fonction de l'intensité de l'efficacité de génération d'harmoniques du plateau. γ_q est une constante ($\gamma_q = 35$; déterminée expérimentalement) permettant de décrire la dépendance gaussienne du signal harmonique avec l'ellipticité $\varepsilon(t,t_e)$ de l'impulsion fondamentale.

Ce modèle reproduit fidèlement la décroissance du signal harmonique et les modulations expérimentales du signal en fonction du délai (trait pointillé). L'évolution du signal en présence de la porte d'ellipticité est reproduite uniquement si on prend en compte la modulation de polarisation du fondamental. Ces observations montrent que le contrôle de la porte d'ellipticité est très précis.

L'effet du confinement temporel de l'émission VUV sur le spectre harmonique a été observé dans deux spectres, le premier avec un délai nul $t_e = 0\,fs$ (sans porte d'ellipticité, $\tau_G = 80fs$) et le second en présence de la porte d'ellipticité pour un délai $t_e = 60\,fs$ ($\tau_G \approx 20fs$). Avant tout il faut s'affranchir au mieux de la dérive de fréquence des harmoniques inhérente au processus de génération qui pourrait masquer l'effet recherché. L'éclairement est limité pour réduire les causes d'élargissement spectral des harmoniques dues à l'ionisation du milieu. On limite par là même l'ordre des harmoniques émises. La géométrie

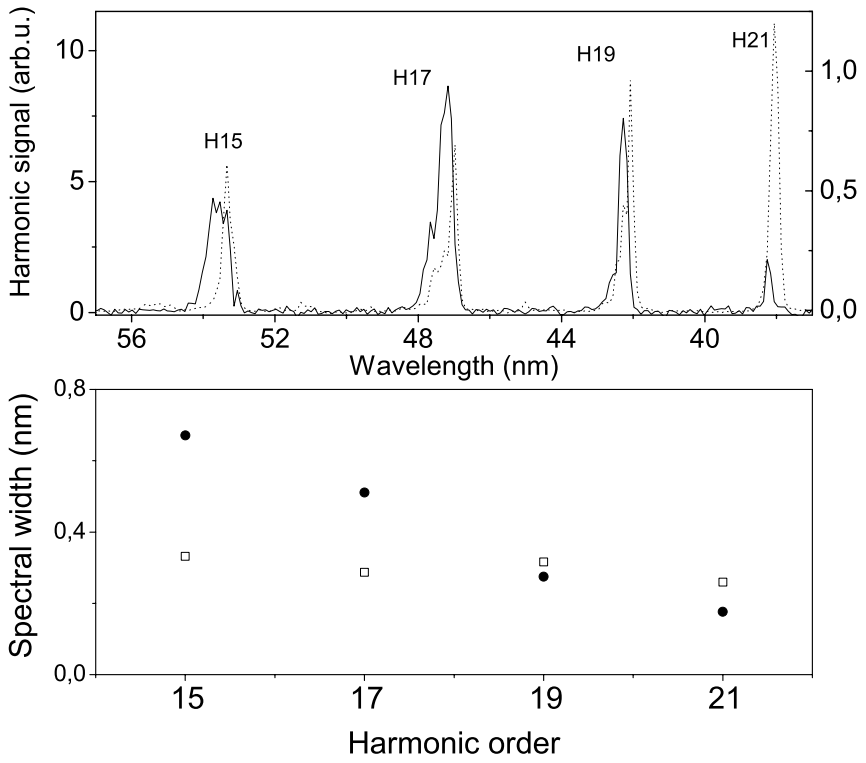


Fig. II.28 : *Spectres harmoniques obtenus sans porte $\tau_G = 80fs$ (trait pointillé) et avec la porte d'ellipticité (trait plein) $\tau_G \approx 20fs$ (haut). Largeurs spectrales associées (bas), à la porte d'ellipticité (•) et sans porte (□).*

du jet est ajustée pour favoriser les conditions d'accord de phase pour le chemin quantique court limitant pour les harmoniques du plateau l'influence de la phase du dipôle atomique. Avec ces précautions prises, les deux spectres sont présentés sur la figure II.28. Le confinement temporel se traduit par un élargissement des harmoniques du plateau. Les harmoniques du plateau 15 et 17 s'élargissent en passant de la configuration sans porte ($\tau_G = 80fs$) à la configuration porte étroite ($\tau_G \approx 20fs$). Par contre, le spectre des harmoniques de la coupure se rétrécit. Ce rétrécissement spectral peut s'expliquer par l'influence de la phase du dipôle atomique. En effet, dans les conditions expérimentales, l'éclairement n'est pas stationnaire dans la porte de polarisation en raison de l'asymétrie des 2 impulsions polarisées orthogonalement (cf. figure II.26). Or quand les conditions de focalisation favorisent le chemin court τ_1, les harmoniques de la coupure apparaissent comparativement plus sensibles à la modulation de la phase du dipôle. On obtient ainsi une situation symétrique à celle de Bordeaux puisque la contribution de la phase du dipôle parvient à masquer les effets de confinement pour les harmoniques de la coupure.

3.8 Conclusion

Ces expériences sur le confinement temporel des harmoniques par modulation de l'état de polarisation du fondamental ont mis en évidence une signature spectrale de la réduction temporelle de l'émission harmonique.
À CELIA, nous avons observé un élargissement spectral des harmoniques de la coupure compatible avec un confinement temporel par une porte d'ellipticité de 8,5 fs.
À Saclay, nous avons observé un élargissement spectral des harmoniques du plateau compatible avec un confinement temporel de l'émission VUV. Il apparaît également que la dérive de fréquence des harmoniques due à la phase atomique et à l'ionisation du milieu doit être contrôlée pour éviter des interprétations erronées. Enfin, cette expérience a permis de valider l'interprétation sur l'évolution des spectres harmoniques observés à CELIA.

Chapitre 4

Mesure temporelle du confinement de l'émission harmonique

Les observationseffectuées dans le domaine spectral sont des mesures indirectes de l'effet du confinement temporel des harmoniques. Elles sont cohérentes avec la réalisation d'un confinement temporel, mais l'estimation du confinement dépend du contrôle ou de la limitation des autres contributions à l'élargissement spectral.
Une mesure temporelle des harmoniques est donc nécessaire pour valider les observations réalisées dans le domaine spectral et ainsi apporter une preuve irréfutable du confinement de l'émission harmonique. Cette expérience a été réalisée en collaboration avec le groupe harmonique d'Anne L'Huillier au Lund Laser Center en Suède avec la participation de Rodrigo López-Martens et Johan Mauritsson [López-Martens *et al.* 04].

4.1 Technique : inter-corrélation

Parmi les méthodes de caractérisation temporelle des impulsions harmoniques existantes (cf. section 2.1 page 135), on s'est tourné vers une technique d'inter-corrélation disponible au Lund Laser Center [Schins *et al.* 95, Glover *et al.* 96, Bouhal *et al.* 97]. Dans notre configuration expérimentale, cette technique ne permet pas de mesurer l'émission VUV associée à la totalité du spectre mais la durée moyenne de deux harmoniques consécutives. Elle est, tout de même, largement suffisante pour une observation directe du confinement temporel de l'émission VUV. La figure II.29 représente l'intensité VUV associé à *une* harmonique d'ordre q en porte large et en porte étroite à l'aide du modèle décrit par la formule II.25 page 113 (nous négligeons, ici, la déplétion du milieu, l'accord de phase, le profil spatial de l'impulsion,...). Le confinement temporel de l'émission VUV associée à une harmonique est clairement visible.

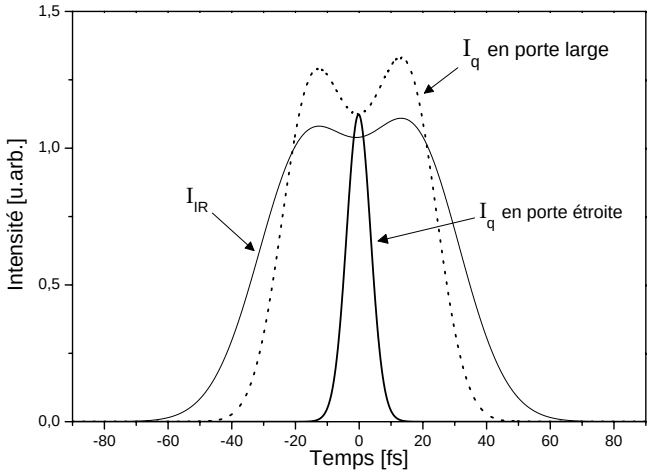


Fig. II.29 : *Intensité VUV associée à une harmonique d'ordre q en porte large (trait pointillé épais) et en porte étroite (trait épais), intensité infrarouge (trait fin).*

La méthode consiste à mesurer un signal dépendant du recouvrement temporel entre l'impulsion harmonique et l'impulsion laser infrarouge. Il s'agit en l'occurrence d'enregistrer le spectre d'énergie des photoélectrons issus de l'ionisation d'atomes de gaz rare par les harmoniques d'ordres élevés en présence du champ laser infrarouge.
Lorsqu'un rayonnement VUV monochromatique photoionise un atome en présence d'un champ électromagnétique infrarouge, il apparaît des pics satellites autour du pic de photoélectron d'énergie $E = \hbar\omega_{\mathrm{VUV}} - I_p$. Les énergies de ces pics satellites sont $E_0 = E \mp n\hbar\omega_{\mathrm{IR}}$. Ils correspondent à l'absorption ou à l'émission stimulée de n photons infrarouges, simultanée à l'absorption du photon VUV [Schins *et al.* 94]. On définit deux régimes : le régime perturbatif ou basse intensité où $n = 1$, avec une intensité de l'impulsion sonde (IR) de l'ordre de $10^{11} - 10^{12}\ W\ cm^2$ et le régime non perturbatif (n>1) où l'intensité IR est égale à $\approx 10^{13}\ W\ cm^2$. En régime perturbatif, le signal de ces pics satellites est proportionnel à l'inter-corrélation entre les deux impulsions :

$$I_{BL}(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{XUV}(t)\, I_{IR}(t-\tau)dt \tag{II.20}$$

Par déconvolution, la durée de l'impulsion VUV moyennant la connaissance de l'impulsion IR (profil, durée) peut être extraite. Dans le cas d'impulsions Gaussiennes, la largeur du signal d'inter-corrélation est liée à celle de l'impulsion infrarouge et à celle de l'impulsion VUV par $\tau_{BL} = \sqrt{\tau_{IR}^2 + \tau_{VUV}^2}$. τ_{BL}, τ_{IR}, τ_{VUV} sont les largeurs à mi-hauteur en intensité respectivement du profil temporel de la bande latérale, de l'impulsion sonde IR et de l'impulsion harmonique.

La précision de la mesure de la durée de l'impulsion VUV décroît rapidement lorsque la durée de l'impulsion IR est supérieure à la durée de l'impulsion VUV. C'est l'inconvénient de cette technique si la pompe et la sonde ont la même durée initiale. Afin de contourner

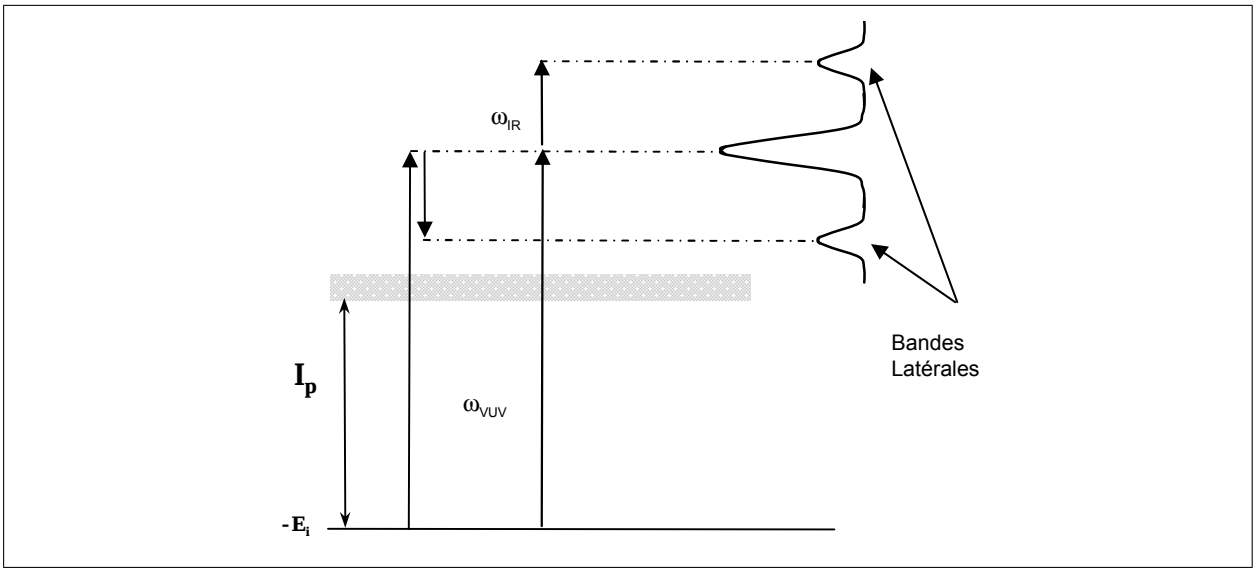


Fig. II.30 : *Ionisation au dessus du seuil à deux couleurs en régime perturbatif. L'atome ionisé par un photon VUV absorbe ou émet des photons IR au dessus du seuil.*

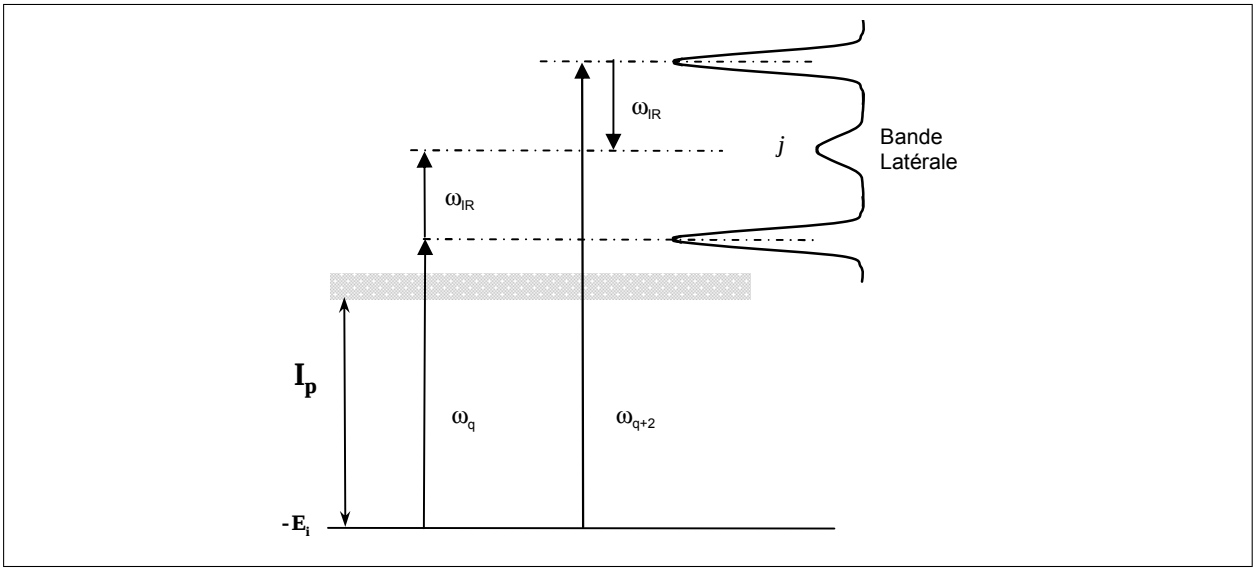


Fig. II.31 : *Processus permettant d'atteindre l'état final correpondant à une raie satellite en présence des harmoniques q et q+2.*

cette limitation, il est possible d'utiliser pour la sonde IR une impulsion plus courte que l'impulsion pompe (qui génère les harmoniques).

Dans l'expérience décrite ici, la source VUV est fournie par génération d'harmoniques d'ordres élevés. En présence du champ laser infrarouge, la transition de l'état fondamental à la bande satellite peut se faire principalement de deux façons, selon que le photon IR est absorbé ou émis. En limitant le nombre de photons IR absorbés ou émis à 1 dans le cadre du régime perturbatif, on obtient le schéma représenté figure II.31. La bande latérale est la résultante de

l'interaction entre le champ IR et les harmoniques q et q+2. Dans ces conditions, cette transition est sensible aux propriétés des deux harmoniques les plus proches [Véniard *et al.* 96]. La durée de l'impulsion VUV extraite de la bande latérale dépend des durées des harmoniques q et q+2.

4.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté à la figure II.32. Le laser femtoseconde du Lund Laser Center délivre des impulsions de 35 fs centrée à 815 nm avec en sortie du compresseur une énergie disponible de 2 mJ. Le diamètre du faisceau est de $\approx$ 12 mm. Le faisceau est alors divisé en deux parties à l'aide d'une lame 50/50. Une partie du faisceau servira de sonde après la traversée d'un système de post-compression : le faisceau est focalisé par un miroir en or de 1 m de focale dans une fibre creuse de diamètre 300 μm et de longueur $\approx$ 65 cm. La fibre est placée dans une enceinte étanche remplie d'argon à une pression de 300 $mbar$. La compensation totale de 200 fs^2 est réalisée par une série de miroirs "chirpés". En sortie, la durée de l'impulsion est de $\tau_{IR} =$ 12 fs avec une énergie disponible de 500 μJ.
La seconde partie du faisceau passe à travers une ligne à retard variable et traverse ensuite les deux lames quart d'onde (identiques à celles utilisées à CELIA) qui permettent de moduler la polarisation de l'impulsion. Le faisceau est ensuite focalisé avec un miroir diélectrique de focale 50 cm dans une cellule de longueur 3 mm remplie d'argon ($P_{Ar} =$ 30 $mbar$) pour produire les harmoniques. L'énergie disponible est de 900 μJ. La demi-largeur en 1/e^2 du faisceau IR focalisé est $w_{IR} =$ 30 μm en considérant un ordre effectif de non linéarité égal à 3, la demi-largeur en 1/e^2 de la source harmonique est $w_{VUV} =$ 17μm. Le champ infrarouge est stoppé avec un filtre en aluminium d'épaisseur 2000 Å. La source harmonique est imagée par un miroir sphérique en or de focale 20 cm dans la région sensible du spectromètre à temps de vol (présenté page 109). La demi-largeur en 1/e^2 du faisceau VUV est estimée à 30 μm à une distance de 24 cm du miroir correspondant à la distance entre la région sensible et le miroir. Le gaz dans le spectromètre (argon) est injecté continûment. La pression dans la zone sensible est de $\approx 10^{-4}$ $mbar$. Le faisceau sonde est également focalisé dans la zone de détection du spectromètre par le même miroir. La taille de la zone de collection du spectromètre est de l'ordre de 200 μm.

Le réglage du recouvrement temporel et spatial du faisceau VUV et IR est effectué en dehors de l'enceinte sous vide. Nous avons utilisé le faisceau fondamental IR et la sonde IR avec une géométrie du dispositif rigoureusement identique. Un miroir sphérique de focal f=20 cm en aluminium remplace le miroir en or du TOF et un trou de diamètre 200 μm placé à 24 cm du miroir représente le centre de la zone sensible du TOF. Le trou nous a servi à effectuer le recouvrement spatial. Le recouvrement temporel a été réalisé à l'aide d'une lame

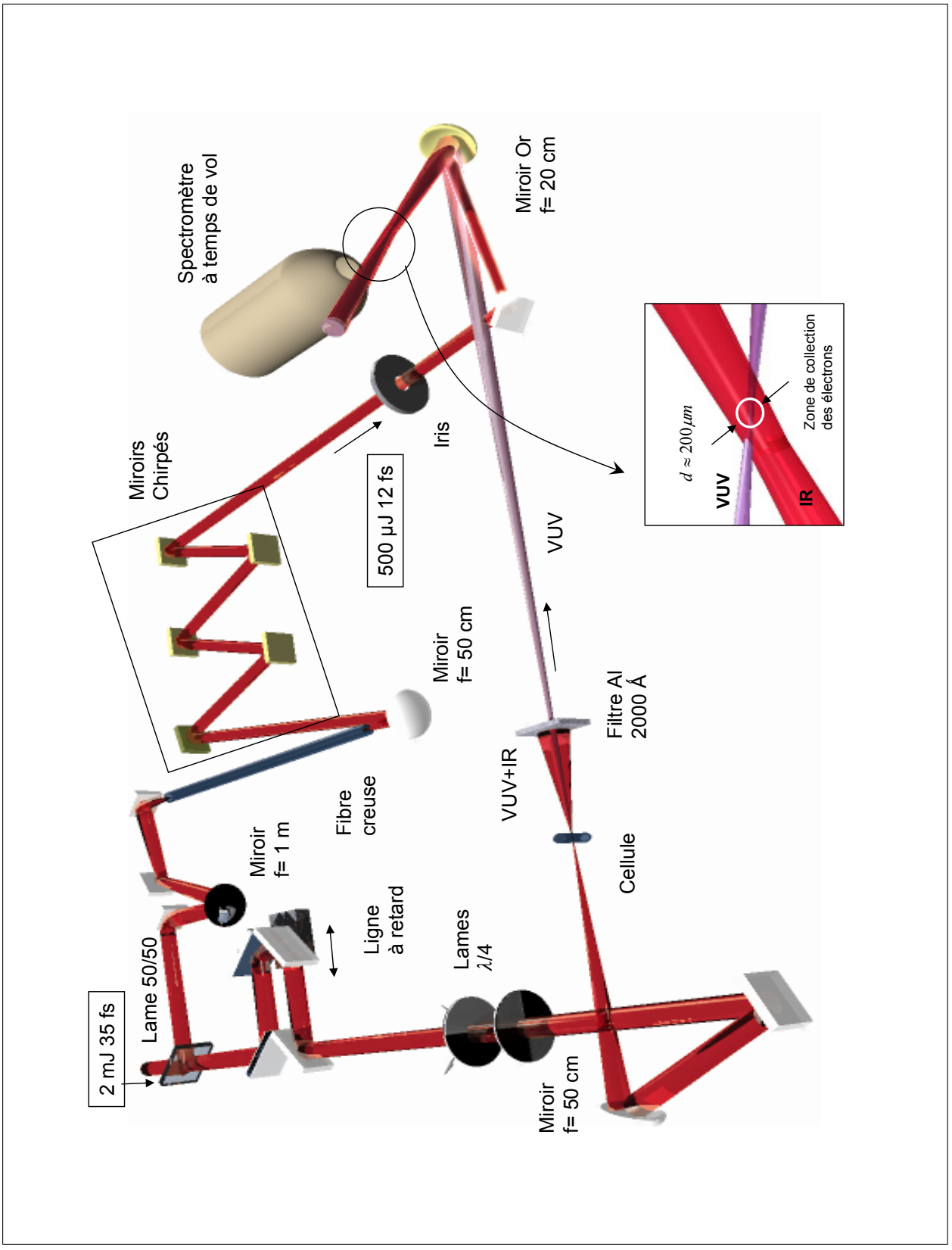


Fig. II.32 : *Dispositif expérimental pour observer les bandes latérales au Lund laser center.*

de verre située à la place du trou. Lorsque les deux faisceaux se recouvrent, un continuum apparaît. Individuellement chaque impulsion ne produit pas de continuum. Sur le miroir, les deux faisceaux sont séparés de 1,5 cm et la distance trou-miroir est de 24 cm, l'angle entre les deux faisceaux est égal à $\theta \approx 1{,}5/24 \approx 3{,}6 Dg$.
Dans la région de collection des électrons, la résolution est limitée par la configuration géométrique non-collinéaire du faisceau infrarouge et du faisceau VUV. Elle est définie par la différence temporelle maximale entre l'impulsion IR et VUV lorsque au point A les deux faisceaux se recouvrent parfaitement ($\Delta t'$) (cf. figure II.33 à gauche) et la différence temporelle maximale due à des parcours optiques différents (Δt) (pour une meilleure compréhension, on considère une faisceau VUV fin, cf. figure II.33 à droite). La résolution géométrique s'écrit :

$$\tau_{res} = \Delta t + \Delta t' = \frac{L}{c}(1 - \cos\theta) + \frac{d_{VUV}}{c}\sin\theta \approx \frac{L\,\theta^2}{2\,c} + \frac{d_{VUV}}{c}\,\theta \qquad \text{(II.21)}$$

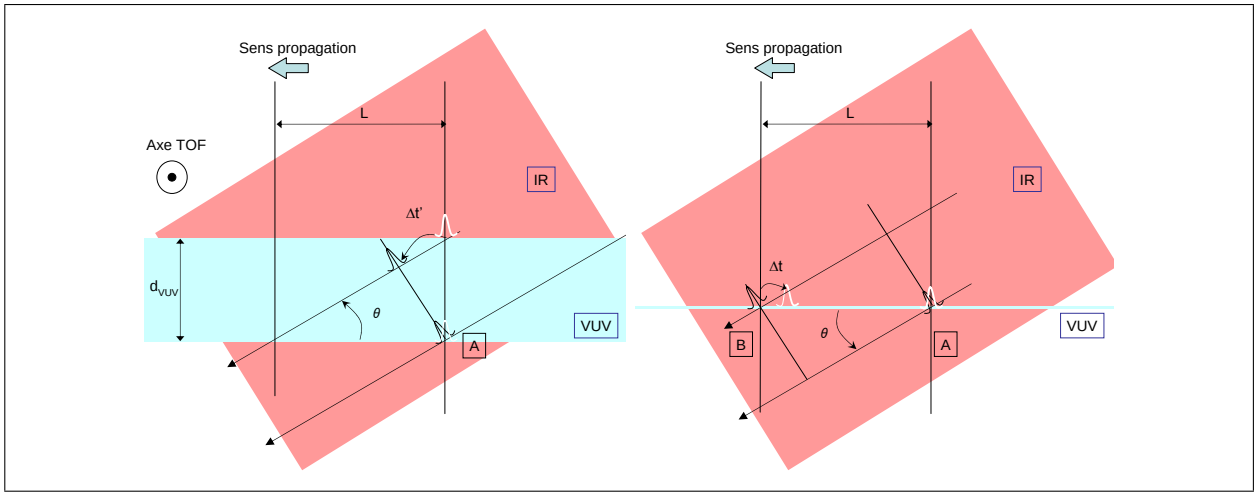


Fig. II.33 : *Configuration géométrique du faisceau sonde IR et du faisceau VUV*

Avec L=200 μm définissant la zone sensible du TOF et θ= 3,6 Dg, on obtient $\tau_{res} \approx 21$ fs. Par contre, nous n'avons pas pu estimer la fluctuation du retard temporel dite "jitter" de nature mécanique entre les deux impulsions qui peut dégrader la résolution du système (le chemin optique des faisceaux est d'environ 3 m).

L'intensité de la sonde est réglée à l'aide d'un diaphragme. Dans la zone sensible du TOF, le diamètre du faisceau IR ($\approx$ 1 mm) est beaucoup plus important que celui du faisceau VUV, ainsi il interagit avec le faisceau IR à intensité constante. La polarisation du faisceau sonde est parallèle à l'axe de détection du spectromètre et celle du faisceau harmonique dépend de l'angle β de la seconde lame.

Le compresseur du laser est ajusté pour compenser la dispersion accumulée lors de la traversée de la lame 50/50 et des deux lames quart d'onde. On évite ainsi toute modification

de l'ellipticité de l'impulsion en sortie des lames par une dérive de fréquence de l'impulsion fondamentale.

La longueur d'onde du laser est différente de celle pour laquelle la lame multi-ordre est quart d'onde. Comme nous l'avons vu à la section 2.4 (page 80), en tournant la lame, nous pouvons ajuster le déphasage introduit par la lame pour obtenir une lame quart d'onde à la longueur d'onde laser. Nous utilisons le critère suivant : en porte large, une polarisation elliptique résiduelle ne favorise pas l'émission harmonique contrairement à une polarisation linéaire. La position de la lame est adéquate lorsqu'en porte large, le signal harmonique est maximum. L'angle expérimental et calculé ont des valeurs très similaires ($\approx 60°$ pour $\vartheta = 45°$). La rotation de la lame multi-ordre augmente le délai t_e de moins de 1 fs.

Spectromètre à temps de vol de type bouteille magnétique

Le spectromètre à temps de vol ou bouteille magnétique est un spectromètre de grande efficacité de collection. Son principe est le suivant : la zone d'interaction, située entre les deux pôles d'un électroaimant, est soumise à un fort champ magnétique B_p (1 T). Les photoélectrons éjectés ont, sous l'action de la force de Lorentz, un mouvement hélicoïdal à la fréquence cyclotron $\omega_p = e\,B_p/m$ (e charge de l'électron et m sa masse). L'électron pénètre ensuite dans le temps de vol où règne un champ magnétique B_t (10^{-3} T). Sur l'axe du temps de vol, le champ magnétique varie continûment de B_p à B_t. La composante de la vitesse perpendiculaire à l'axe du spectromètre est :

$$v = v_0 \sqrt{1 - \frac{B_t}{B_p} \sin^2 \theta_p} \tag{II.22}$$

θ_p est l'angle entre la vitesse initiale $\overrightarrow{v}_0$ et $\overrightarrow{B}_p$. Dans notre cas, les électrons sont conduits parallèlement jusqu'au détecteur. L'efficacité du système varie selon les modèles de 15 % à 50 %. Les spectromètres à bouteille magnétique très sensibles au champ magnétique terrestre utilisent un dispositif de compensation extérieur.

4.3 Les Résultats

4.3.1 Spectre de photoélectrons

Le signal de photoélectrons détecté en présence uniquement du champ VUV est une succession de pics correspondant à la photoionisation du gaz par absorption de photons VUV. Le spectre en énergie de photoélectronsnous donne l'allure du spectre harmonique à la résolution près du système de détection.
L'évolution du spectre harmonique en fonction de la largeur de la porte peut nous donner des informations sur le confinement de l'émission VUV. La première constatation est un élargissement des spectres pour les harmoniques du plateau (13 à 21) en passant de la porte large à la porte étroite. Les harmoniques de la coupure n'étaient pas observables à cause de la faible réflectivité du miroir en or dans le TOF pour les ordres élevés. *La configuration de focalisation permet de sélectionner le chemin quantique court.* Cet élargissement est donc la signature dans le domaine spectral d'un confinement de l'émission pour l'harmonique considérée. La figure II.34 montre l'évolution des spectres harmoniques pour les ordres 17 et 19. En porte large, il semble néanmoins que la limite de résolution du TOF soit atteinte.

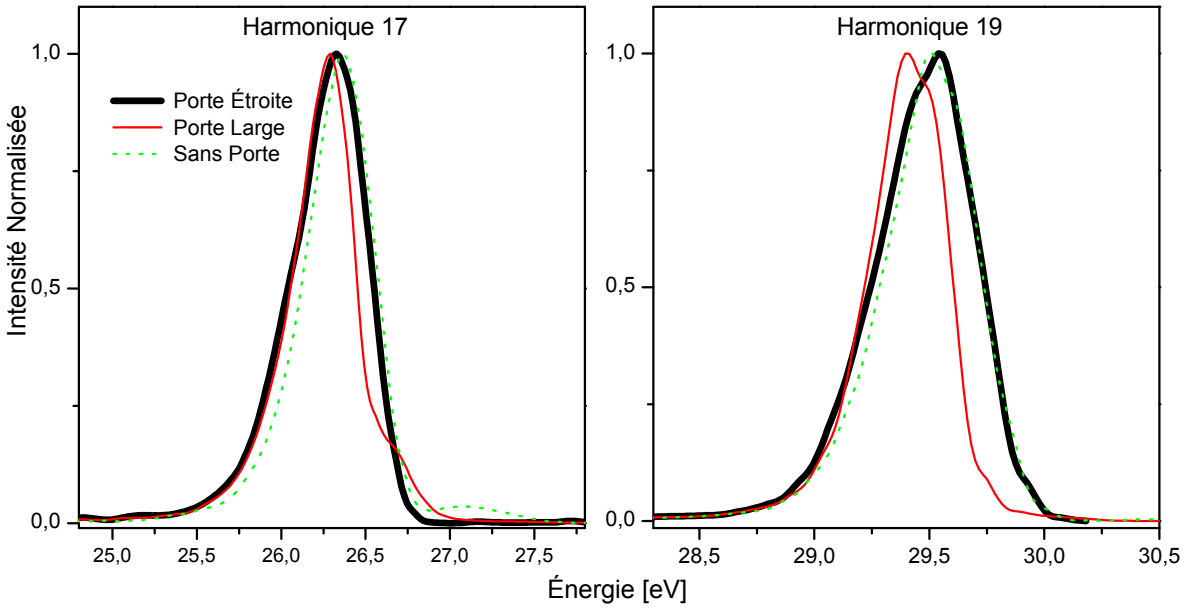


Fig. II.34 : *Spectres en énergie des photoélectrons créés dans l'argon par les harmoniques 17 et 19 en porte étroite (trait épais), en porte large (trait fin) et sans porte (trait pointillé).*

4.3.2 Mesure temporelle du confinement

Lorsque le faisceau IR est superposé temporellement et spatialement au faisceau VUV, des bandes latérales apparaissent autour des pics de photoélectrons dues à l'ionisation par les harmoniques seules (cf. figure II.35).

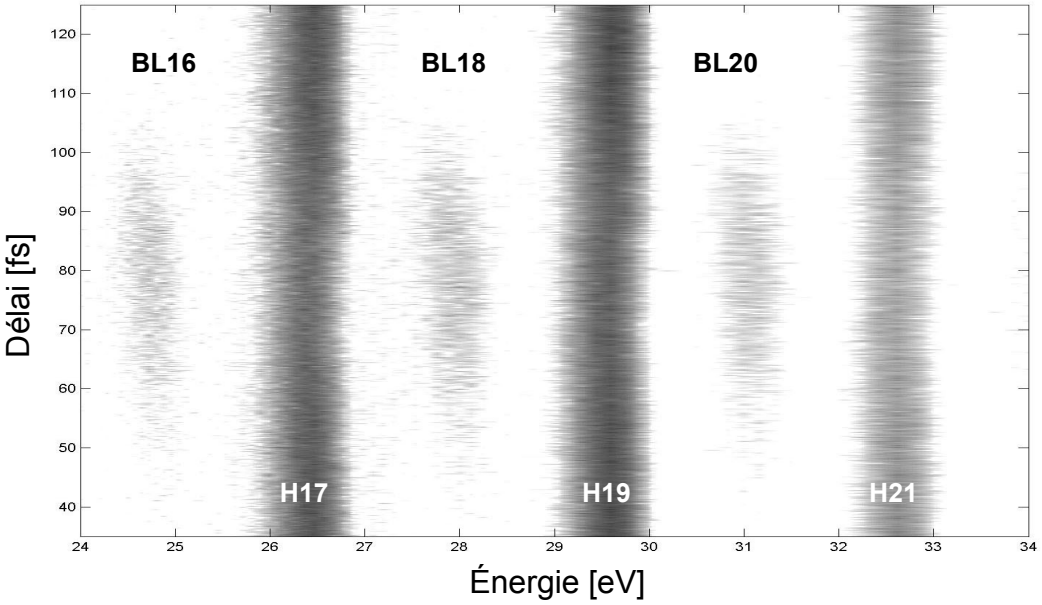


Fig. II.35 : *Spectres de photoélectrons en énergie en fonction du délai entre l'impulsion VUV et la sonde IR. On se place dans une configuration sans lames. Nous avons utilisé l'argon comme gaz de détection dans le spectromètre à temps de vol et comme gaz pour générer les harmoniques. Les bandes latérales (BL16, BL18, BL 20) apparaissent lorsque l'impulsion VUV et IR se superposent temporellement et spatialement.*

Le profil temporel en intensité des bandes latérales est obtenu en intégrant le signal de photoélectrons dans une fenêtre d'énergie donnée. La figure II.36 représente le profil temporel de la bande latérale n°18 en fonction du délai dans le cas de la porte large ($\theta = 45°$, $\beta = 0°$), la porte étroite ($\theta = 45°$, $\beta = 45°$) et sans porte ($\theta = 0°$, $\beta = 0°$). La bande latérale en absence de porte est décalée temporellement vers les temps positifs, ceci indique que la polarisation de l'impulsion fondamentale est orientée selon l'axe ordinaire de la lame multi-ordre. Lors du passage de la porte étroite à la porte large, on observe un confinement temporel de la fonction d'inter-corrélation. La durée à mi-hauteur en intensité de la fonction d'inter-corrélation n°18 est de :

- 57 fs pour la porte large
- 44 fs sans porte
- 26 fs pour la porte étroite

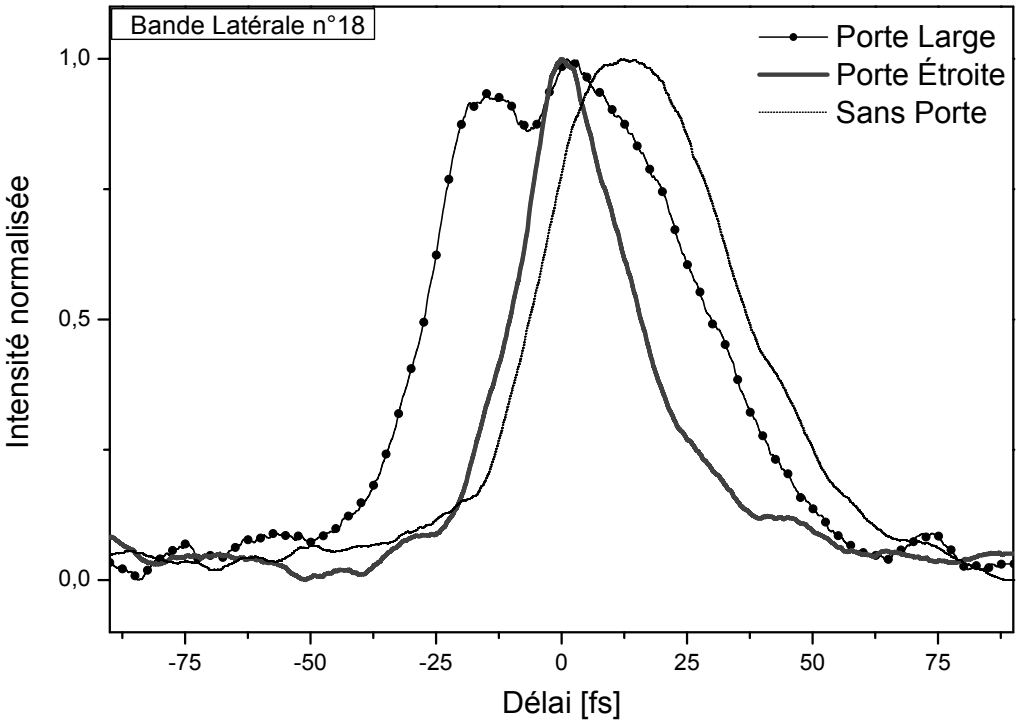


Fig. II.36 : *profil temporel en intensité de la bande latérale 18, issue des harmoniques 17 et 19 en fonction du délai entre l'impulsion VUV et la sonde IR (profil lissé). (Trait gras) signal en porte étroite ($\theta = 45°$, $\beta = 45°$), (•) signal en porte large ($\theta = 45°$, $\beta = 0°$), (trait pointillé) signal sans porte ($\theta = 0°$, $\beta = 0°$). Le gaz de détection dans le spectromètre à temps de vol et le gaz pour générer les harmoniques est de l'argon. La pression dans la cellule est de 27 mbar, celle dans le spectromètre est de* $1{,}8.10^{-3}$ *mbar.*

La modulation de la polarisation de l'impulsion fondamentale conduit à un confinement temporel de l'émission VUV.

D'après des expériences déjà réalisées à Lund, l'efficacité de détection du signal à deux couleurs varie en fonction de la direction de polarisation du champ VUV. La variation du signal des bandes latérales suit la loi :

$$P_{BL}(\alpha) = 1 - 0{,}6\ \sin^2(\alpha) \tag{II.23}$$

Avec α l'angle entre l'axe du spectromètre et la polarisation de l'impulsion VUV. Avec un angle α constant durant l'impulsion, la largeur de la fonction d'inter-corrélation n'est pas modifiée, c'est le cas de la porte étroite. Par contre, dans le cas de la porte large, l'angle α varie de $-\pi/4$ à $\pi/4$ durant l'impulsion, le profil de la bande latérale est déformé de telle sorte que la largeur de la fonction d'inter-corrélation mesurée est sous-estimée. Une correction doit être apportée au signal des bandes latérales pour extraire leurs durées réelles. Ensuite, on effectue une opération de déconvolution Gaussienne pour extraire la durée de l'impulsion

VUV.

$$\tau_{VUV} = \sqrt{\tau_{BL}^2 - \tau_{IR}^2 - \tau_{Res}^2} \tag{II.24}$$

4.3.3 Évolution de la largeur des bandes latérales en fonction de la durée de la porte

On réalise une estimation du profil temporel des harmoniques avec un modèle simplifié dans la limite du régime perturbatif, basé sur la dépendance du signal harmonique en fonction de l'ellipticité du fondamental. On suppose que le profil temporel en intensité des harmoniques d'ordre q est donnée par :

$$I_q(t) = I_{IR}(t)^{qeff}\, e^{-\gamma_q \epsilon(t)^2} \tag{II.25}$$

avec $I_{IR}(t) = I_0\, \exp(-4\ln 2(t/\tau_{IR}^2))$ et $qeff$ est un ordre effectif égal à 3 pour les harmoniques du plateau [Wahlström *et al.* 93]. γ_q (déterminé expérimentalement) est égal à 25 pour les harmoniques du plateau.
La limite de résolution du système τ_{res} est inclue dans la fonction $I_{IR}(t)$ que l'on notera $I'_{IR}(t)$:

$$I'_{IR}(t) = I_0\, \exp\left(-4\ln 2 \frac{t}{\tau_{IR}^2 + \tau_{res}^2}\right) \tag{II.26}$$

Le profil temporel de la bande latérale, en incluant la limite de résolution du système, est donné par le produit de convolution :

$$I_{BL}(t) = I_q(t) * I'_{IR}(t) \tag{II.27}$$

La variation du signal de la fonction d'inter-corrélation dans le TOF suit la loi définie par $P_{BL}(\alpha)$. Les bandes latérales mesurées s'écrivent :

$$I'_{BL}(t) = I_{BL}(t)\ \times\ (1 - 0{,}6\sin^2(\beta(t))) \tag{II.28}$$

À partir de ce modèle, on détermine la largeur temporelle à mi-hauteur τ_q de l'émission d'une harmonique du plateau $I_q(t)$ et τ'_{BL} associé à la fonction d'inter-corrélation attendue $I'_{BL}(t)$ en fonction de la largeur de la porte d'ellipticité τ_G, ici l'angle β de la seconde lame. La figure II.37 rassemble les résultats expérimentaux et les résultats théoriques. Les largeurs des bandes latérales expérimentales de 14 à 20 sont représentées sous forme de points. Avec τ_{res}=21 fs, les points expérimentaux et τ'_{BL} concordent de façon satisfaisante. Le confinement mesuré ne présente pas la limite de la technique la porte d'ellipticité mais, plutôt, la limite de résolution du système.
Ce résultat montre également qu'en tournant la seconde lame, la durée de l'émission VUV peut être réduite continûment.

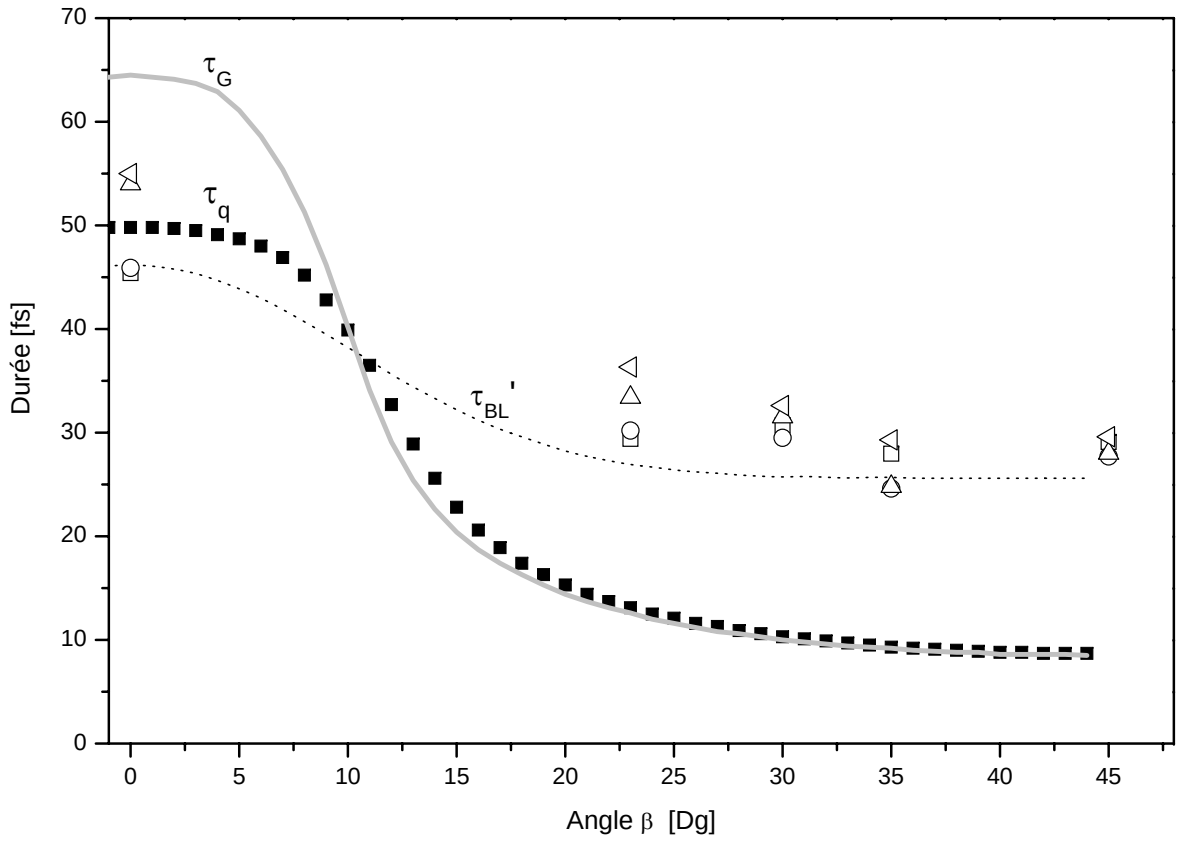


Fig. II.37 : *Largeur à mi-hauteur des bandes latérales expérimentales de 14 à 20 en fonction de l'angle β (respectivement $\square$, $\circ$,$\triangle$, $\triangleleft$). La largeur de la porte d'ellipticité τ_G est représentée (trait gris) ainsi que la largeur à mi-hauteur de l'émission harmonique ($\blacksquare$) et enfin la largeur de la fonction d'inter-corrélation attendue (trait noir pointillé).*

4.4 Conclusion

Cette expérience apporte une confirmation directe du confinement temporel de l'émission VUV lorsque la polarisation du champ fondamental est modulée. La durée du confinement mesurée n'est pas représentative de la limité de la méthode mais plutôt de la limite de résolution du système.

Nous pouvons améliorer la limite de résolution en nous plaçant dans une géométrie collinéaire et en utilisant une impulsion sonde inférieure à 12 fs.

Chapitre 5

Développements et perspectives

Ces expériences sur le confinement de la génération d'harmoniques sont très prometteuses. Dans le domaine spectral, elles mettent en évidence une signature spectrale du confinement temporel de l'émission harmonique. Le résultat principal reste la mesure directe dans le domaine temporel de l'effet du confinement par modulation de la polarisation de l'impulsion fondamentale. Le tableau II.2 présente un récapitulatif de ces résultats.

		Récapitulatif des résultats								
		Domaine spectral						Domaine temporel		
		Largeur spectrale Δω						Durée des harmoniques		
	Porte d'ellipiticité	Plateau			Coupure					
CELIA	Porte large τ_G= 66 fs	q=17 Chemin long	340 meV (τ_G= 25,8 fs)	Effet du confinement masqué par la phase intrinsèque : la largeur spectrale diminue en passant de la PL[1] à la PE[2]	q=29	300 meV	Effet du confinement visible : la largeur spectrale augmente en passant de la PL à la PE			
	Porte étroite τ_G= 8,5 fs		230 meV			390 meV				
LUND	Porte large τ_G= 66 fs	q=17 Chemin court	395 meV (limite de résolution)	Effet du confinement visible : la largeur spectrale augmente en passant de la PL à la PE				Durée moyenne associée aux harmoniques 17 & 19	50 fs	Preuve irréfutable du confinement de l'émission VUV
	Porte étroite τ_G= 8,5 fs		545meV						8,5 fs	
SACLAY	Porte large τ_G= 80 fs	q=17 Chemin court	96 meV	Effet du confinement visible : la largeur spectrale augmente en passant de la PL à la PE	q=21	142 meV	Effet du confinement masqué par la phase intrinsèque : la largeur spectrale diminue en passant de la PL à la PE			
	Porte étroite τ_G= 20 fs		172 meV			94 meV				

Tab. II.2 : *Récapitulatif des expériences de confinement temporel de l'émission VUV par modulation de la polarisation de l'impulsion fondamentale.* [1] *PL : porte large.* [2] *PE : porte étroite.*

Avec une impulsion fondamentale de 35 fs, la largeur minimum de la porte d'ellipticité est estimée à 8,5 fs. Néanmoins, elle ne permet pas de générer une seule impulsion attoseconde.

Pour générer une seule impulsion attoseconde, il faut limiter la génération d'harmoniques

à un demi cycle optique, soit 1,33 fs à 800 nm. La durée de la porte d'ellipticité en porte étroite doit remplir la condition suivante : $\tau_G < T_0/2$.
D'après les calculs effectués par Vasily Strelkov [Strelkov *et al.* 04] pour obtenir une seule impulsion attoseconde, la durée de l'impulsion fondamentale et le délai t_e introduit par la lame multi-ordre doivent être égaux respectivement à 10 fs et 13 fs. La figure II.38 représente le profil temporel des harmoniques d'énergie 15 à 45 eV générées en porte étroite pour deux phases absolues du champ fondamental $\phi = 0$ (trait pointillé) et $\phi = \pi/2$ (trait plein). Pour $\phi = \pi/2$, deux impulsions sont générées alors que pour $\phi = 0$, une seule impulsion attoseconde est produite. La durée de l'impulsion est alors de 200 as; une impulsion limitée par transformée de Fourier donne une durée de 120 as. Cette différence est due à la dérive de fréquence inhérente au processus de génération d'harmoniques [Mairesse *et al.* 03].
La signature spectrale d'une seule impulsion attoseconde devrait se traduire par un spectre continu pour les harmoniques du plateau comme dans la méthode de Vienne où le spectre est continu dans la coupure.

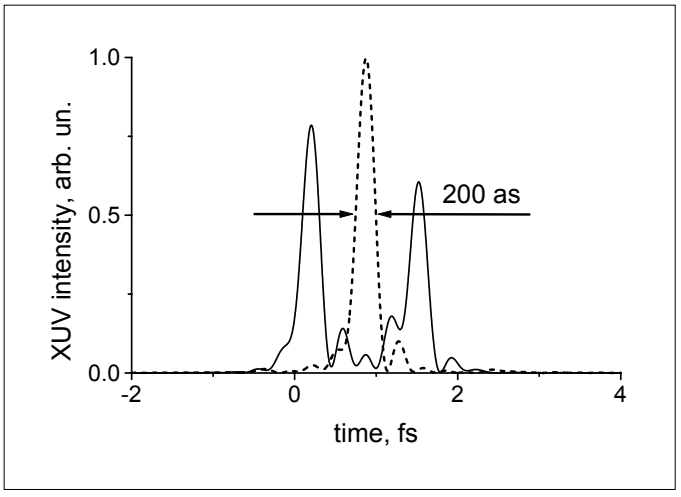


Fig. II.38 : *Profil temporel calculé en intensité des harmoniques 19 à 27 dans le cas de la porte étroite pour une impulsion de durée τ = 10 fs et un délai t_e= 13 fs pour deux phases absolues du fondamental ϕ = 0 (trait pointillé) et ϕ = π /2 (trait plein) [Strelkov* et al. *04].*

L'inconvénient majeur de la technique de modulation d'ellipticité en porte étroite est l'ionisation du milieu qui survient dans le front montant de l'impulsion sans produire des harmoniques. Le nombre d'atomes neutres participant s'en trouve réduit lorsque la polarisation du champ devient linéaire. En revanche, elle présente des atouts importants :

→ elle offre l'avantage de sélectionner de manière continue le nombre d'impulsions attosecondes.

→ elle reste insensible aux fluctuations en énergie du laser.

→ cette technique permet de confiner temporellement les harmoniques quel que soit leur ordre. En particulier c'est la seule technique existante pour générer une impulsion attoseconde à partir des harmoniques du plateau. En contrôlant la phase des harmoniques [Mairesse *et al.* 03], il est ainsi possible d'envisager de produire une impulsion isolée sub-100 as.

L'amélioration majeure à apporter au système pour produire une seule impulsion attoseconde par confinement temporel de l'émission harmonique est donc de mettre en place un système fournissant des impulsions fondamentales IR de 10 fs haute énergie. Dans ce cadre, nous avons développé un système de post-compression original présenté dans la partie suivante.

L'étape suivante consiste à mesurer temporellement l'impulsion harmonique. C'est dans cette perspective qu'un système de mesure d'impulsions attosecondes par autocorrélation a été développé au laboratoire. La principale difficulté est d'observer un effet non linéaire dans ce domaine de longueur d'onde avec une énergie très faible par impulsion. Ce point est développé dans le chapitre suivant. Il n'est pas assuré que cette solution fonctionne pour mesurer par autocorrélation une impulsion attoseconde unique, dans ce cas-là il faudra envisager d'utiliser une autre technique, de type caméra à balayage de fente, par exemple.

Troisième partie

Vers la génération d'une impulsion attoseconde unique

Chapitre 1

Post-Compression d'impulsions laser

Précédemment, nous avons vu que pour nous placer dans des conditions favorables pour produire une impulsion attoseconde unique par confinement temporel de l'émission harmonique, l'impulsion fondamentale doit être ultracourte (10 fs) et haute énergie (1 mJ). Les lasers Titane:Saphir permettent aujourd'hui de produire des impulsions lasers femtosecondes possédant une énergie de 20 mJ et plus. Bien que les oscillateurs puissent délivrer des impulsions de 5 fs [Morgner *et al.* 99, Sutter *et al.* 99], après amplification, la durée des impulsions est limitée à environ 20 fs, principalement à cause de la réduction spectrale par le gain. Les impulsions les plus courtes obtenues en sortie d'une chaîne laser, avec une énergie atteignant le milliJoule, sont de 17,5 fs [Cheng *et al.* 02]. Pour dépasser cette limite, des techniques de post-compression d'impulsion laser haute énergie ont été développées. Dans un premier temps, nous allons présenter le principe de la post-compression et dans un second temps les résultats de la technique de post-compression développée au CELIA.

1.1 Principes généraux de la post-compression

D'après le principe d'incertitude d'Heisenberg $\Delta\lambda\ \Delta t = constante$, l'élargissement spectral d'une impulsion offre la possibilité de réduire dans un même rapport la durée de l'impulsion. Toutes les techniques de post-compression d'impulsion laser reposent sur le même principe et sont réalisées en deux étapes.

1. Élargissement spectral de l'impulsion.
   Une impulsion limitée par transformée de Fourier est élargie spectralement lors de la traversée d'un milieu non linéaire dispersif. Le phénomène physique responsable de l'élargissement spectral est l'effet non linéaire d'automodulation de phase. Ce phénomène introduit une modulation de fréquence de l'impulsion. De plus, lorsque les impulsions ont une durée inférieure à 100 fs, leur spectre possède une largeur telle ($\Delta\lambda > 4nm$) que l'on ne peut plus négliger les variations de 1'indice de réfraction

entre les fréquences extrêmes du spectre. Les différentes fréquences ne voyant pas le même indice, elles ne voyagent pas à la même vitesse. Ce phénomène de "dispersion de vitesse de groupe" a pour effet d'allonger 1'impulsion et d'introduire un étalement des fréquences le long du profil temporel de 1'impulsion.

2. Compensation de la dérive de fréquence de l'impulsion.
   En appliquant une dérive de fréquence opposée, on peut compenser la modulation de fréquence introduite par automodulation de phase et neutraliser la dispersion de vitesse de groupe, les composantes fréquentielles sont remises en phase. L'impulsion est alors re-comprimée, la durée de l'impulsion initiale est réduite [Tomlinson *et al.* 84, Meinel 83, Grischkowsk *et al.* 82, Rudolph *et al.* 89].

La figure III.1 illustre le principe de la post-compression. À gauche, l'impulsion initiale sans dérive de fréquence.
L'automodulation de phase et la dispersion modifient les caractéristiques de l'impulsion incidente. Le spectre associé à l'impulsion s'élargit sous l'effet de l'automodulation de phase, tandis que dans le domaine temporel l'impulsion s'étire due fait de la dispersion. La dérive de fréquence est imposée par la combinaison de l'effet de dispersion et de l'automodulation de phase.
À droite, la dérive de fréquence est compensée, toutes les composantes fréquentielles sont en phase. Le spectre de l'impulsion est inchangé, par conséquent l'impulsion comprimée est plus courte que l'impulsion de départ.

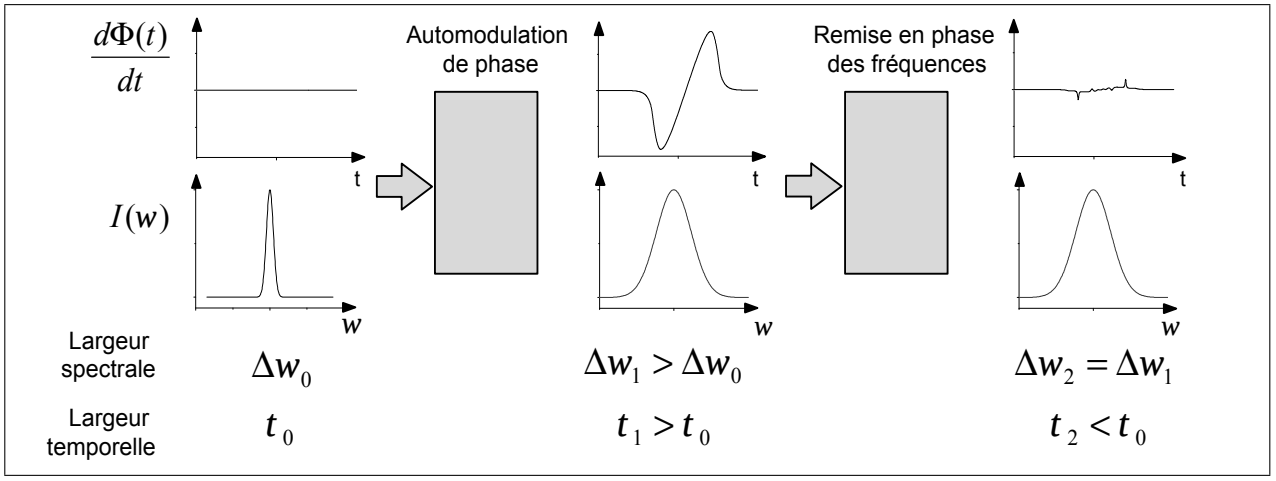


Fig. III.1 : *Principe schématique de la post-compression d'impulsions laser.*

Compresseur

La compensation de la dérive de fréquence est réalisée par un compresseur qui est, en

fait, une ligne à retard avec un délai dépendant de la fréquence. Son action s'analyse plus aisément dans le domaine fréquentiel. Après l'élargissement du spectre, l'impulsion s'écrit sous la forme suivante :

$$E(z,\omega) = A(\omega)e^{-i\Phi(\omega)} \tag{III.1}$$

L'effet du compresseur est décrit par une fonction de déphasage $\Psi(\omega)$, l'impulsion en sortie est alors donnée par :

$$E(z,\omega) = A(\omega)e^{-i\big(\Phi(\omega) + \Psi(\omega)\big)} \tag{III.2}$$

Pour un compresseur idéal, $\Psi(\omega) = -\Phi(\omega)$, toutes les composantes fréquentielles sont en phase. La durée minimale de l'impulsion est atteinte. En pratique, il est très difficile de réaliser un compresseur corrigeant parfaitement la phase de l'impulsion. Dans le but de mieux comprendre l'influence de la phase sur les impulsions, on développe la phase spectrale en série de Taylor.

$$\Phi(\omega - \omega_0) \approx \Phi(\omega_0) + \Phi^{'}(\omega_0) \times (\omega - \omega_0) + \frac{\Phi^{''}(\omega_0)}{2} \times (\omega - \omega_0)^2 + \frac{\Phi^{'''}(\omega_0)}{3!} \times (\omega - \omega_0)^3 \tag{III.3}$$

À partir de la transformée de Fourier inverse, on détermine le profil temporel de l'impulsion et l'action de chaque terme de la phase spectrale ainsi développée. Les premiers termes $\Phi(\omega_0)$ et $\Phi^{'}(\omega_0)$ du développement de la phase n'influent pas sur le profil temporel de l'impulsion. Le terme prépondérant agissant directement sur la durée de l'impulsion est le terme quadratique $\Phi^{''}(\omega_0)$. C'est principalement ce terme de la phase que le compresseur doit annuler pour obtenir une durée la plus courte possible.

$$\Psi^{''}(\omega_0) = -\Phi^{''}(\omega_0) \tag{III.4}$$

Les termes d'ordre supérieur vont distordre le profil, cependant leurs influences sont souvent négligeables pour des impulsions de durée supérieure à 10 fs. Un compresseur introduit un déphasage de la forme :

$$\Psi(\omega) \approx \Psi_0 - K \times \omega^2 \tag{III.5}$$

On utilise alors le terme de compresseur quadratique. La constante K est ajustable en variant la géométrie du compresseur et permet ainsi d'annuler la contribution d'ordre 2 de la phase de l'impulsion $\Phi^{''}(\omega_0)$.

On peut montrer que la transformée de Fourier d'une impulsion avec une dérive de fréquence $d\phi(t)/dt$ linéaire dans le domaine temporel (c'est à dire une phase temporelle $\phi(t)$ proportionnelle à t^2) possède une phase dans le domaine fréquentiel $\Phi(\omega)$ proportionnelle à

ω^2. Avec une impulsion à dérive de fréquence linéaire, ce compresseur est idéal. Par contre, pour une dérive de fréquence non linéaire, ce compresseur n'est plus parfait. La compensation est correcte si $\Phi(\omega)$ ne dévie pas trop d'un profil parabolique.
Il existe plusieurs types de compresseurs :

- ▷ les compresseurs à base de réseaux [Strikland *et al.* 85].
- ▷ les compresseurs à prismes [Cheng *et al.* 02, Fork *et al.* 84].
- ▷ des miroirs présentant une modulation de la période des couches d'indice dit miroirs "chirpés".
- ▷ les compresseurs composés d'un réseau et d'un miroir déformable [Zeek *et al.* 99].

automodulation de phase

Considérons un milieu où l'impulsion est uniquement sous l'influence de l'automodulation de phase. À partir de l'équation de propagation décrite dans l'annexe 2.4, on simule l'évolution de l'impulsion dans le domaine fréquentiel et temporel. La figure III.2 montre cette variation de fréquence dans le cas d'une impulsion Gaussienne, dans le cas où l'indice non linéaire n_2 est positif.
L'impulsion recomprimée est calculée en simulant le compresseur quadratique (on détermine le facteur K en interpolant la phase spectrale par une parabole et en prenant l'opposé du coefficient d'ordre 2.)

Un compresseur quadratique compense uniquement la région centrale où la dérive de fréquence est linéaire et positive alors que la dérive de fréquence de signe opposé des ailes ne peut pas être compensée. Ceci empêche une compression optimale. L'impulsion recomprimée présente des lobes assez importants qui peuvent être indésirables pour certaines applications.

La dispersion agit de deux manières; la première est l'étirement temporel de l'impulsion et la seconde est la linéarisation de la dérive de fréquence. La figure III.3 représente l'effet combiné de la dispersion de la vitesse de groupe et de l'automodulation de phase sur l'impulsion après propagation dans un matériau dispersif. La dérive de fréquence présente une région linéaire étendue, ce qui réduit les satellites de l'impulsion re-comprimée.

C'est la combinaison de l'effet de dispersion et d'automodulation de phase qui conduit aux meilleurs résultats pour obtenir des impulsions courtes et sans rebonds latéraux. Pour comparer l'influence de ces effets, on introduit deux longueurs caractéristiques [Agrawal 95] :

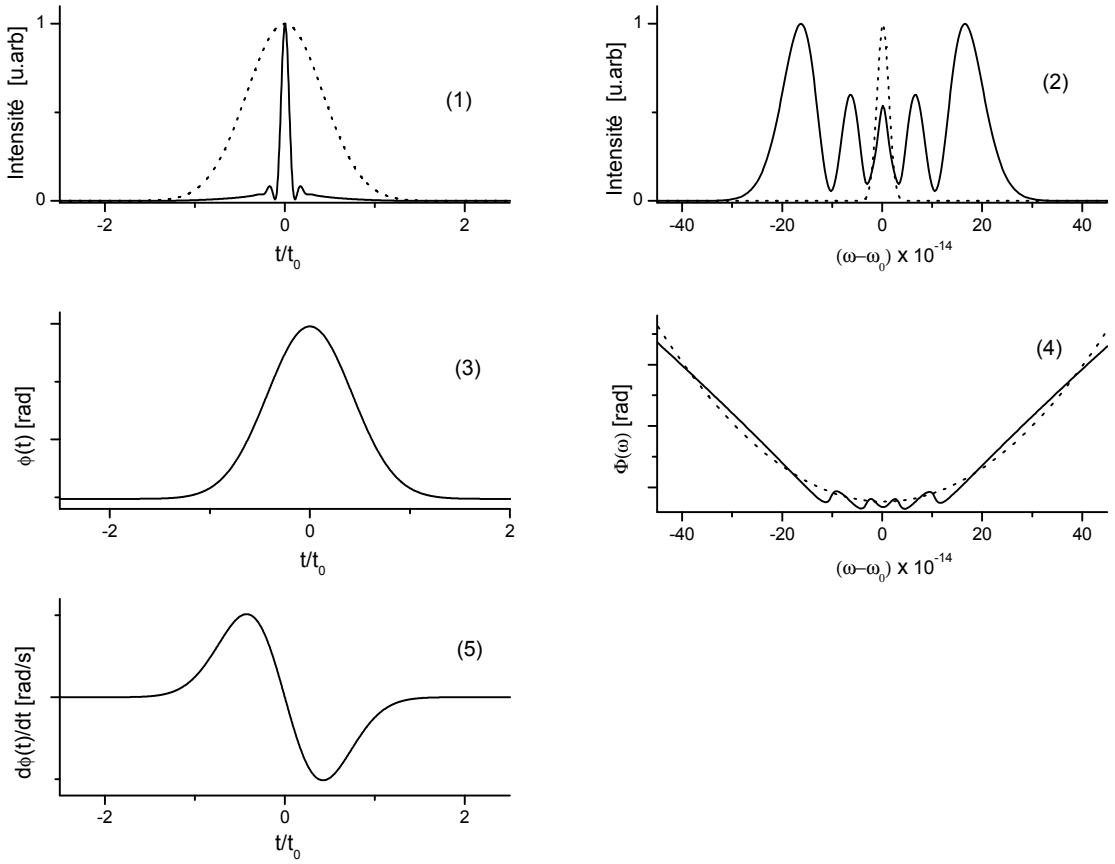


Fig. III.2 : *(1) Profil en intensité de l'impulsion initiale (pointillé) et de l'impulsion recomprimée par un compresseur quadratique (trait plein). (2) Spectre initial (pointillé) et le spectre élargi par automodulation de phase (plein). (3) Phase de l'impulsion après propagation. (4) Phase spectrale associée (plein), et son interpolation quadratique (pointillé) . (5) Dérive de fréquence temporelle de l'impulsion*

$$L_{NL} = \frac{\lambda A_{eff}}{2\,\pi\, n_2\, P_0} = \frac{\lambda}{2\,\pi\, n_2\, I_0} \quad \text{Longueur non linéaire}$$

$$L_D = \frac{\tau_0^2}{s\, k''_{(\lambda)}} \quad \text{Longueur de dispersion} \tag{III.6}$$

L_{NL} est la longueur caractéristique du milieu sans dispersion pour laquelle la phase non linéaire change de 1 rad. L_D correspond à la longueur du milieu pour laquelle la durée d'une impulsion incidente limitée par sa transformée de Fourier est doublée. n_2 est l'indice non linéaire en cm^2/W, P_0 est la puissance maximale en W et A_{eff} est l'aire effective du mode de propagation. Une bonne approximation dans les fibres monomodes en prenant la demi-largeur w_{eff} à $1/e^2$ du mode du champ est donnée par $A_{eff} = \pi\, w_{eff}^2$.

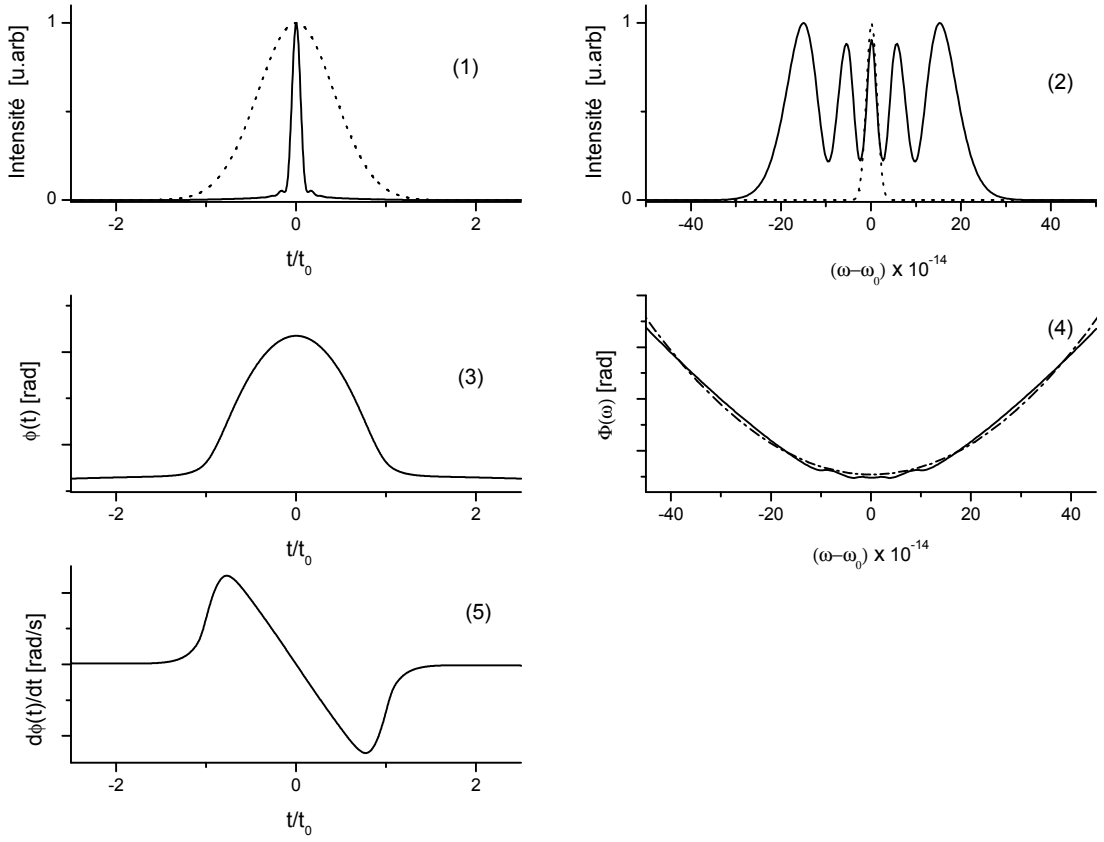


Fig. III.3 : *(1) Profil en intensité de l'impulsion initiale (trait pointillé) et de l'impulsion recomprimée par un compresseur quadratique (trait plein). (2) Spectre initial (trait pointillé) et le spectre élargi par automodulation de phase(trait plein). (3) Phase de l'impulsion après propagation. (4) Phase spectrale associée (trait plein), et son interpolation parabolique (trait pointillé). (5) Dérive de fréquence temporelle de l'impulsion.*

τ_0 est la largeur à mi-hauteur en intensité de l'impulsion, $s = 4\ln 2$ pour une impulsion Gaussienne et $k''_{(\lambda)}$ caractérise la dispersion de vitesse de groupe (fs^2/m).
La longueur optimale du milieu pour une linéarisation de la dérive de fréquence de l'impulsion et un spectre large est donnée par [Tomlinson *et al.* 84] :

$$L_{opt} \approx \sqrt{6\, L_{NL}\, L_D} \tag{III.7}$$

Cette condition résulte des calculs effectués pour une fibre monomode.

Il existe un autre problème inhérent à l'automodulation de phase : le profil *spatial* d'une impulsion n'est pas en général carré mais Gaussien. L'élargissment du spectre en sortie du milieu n'est pas homogène sur le faisceau ainsi que la dérive de fréquence. Cela empêche une compression homogène sur tout le faisceau. Cependant, il existe des solutions pour obtenir

un élargissement homogène sur tout le faisceau comme la propagation guidée dans une fibre ou le filtrage spatial du faisceau que nous avons utilisé ici.

1.1.1 L'état de l'art

Automodulation de phase dans un solide

Les premiers travaux de Claude Rolland et Paul Corkum [Rolland *et al.* 88] ont utilisé l'automodulation de phase dans un solide pour élargir le spectre de l'impulsion et un compresseur à réseau pour re-comprimer l'impulsion. Un filtre spatial de taille inférieure à celle du faisceau est placé après le matériau permettant de sélectionner uniquement le centre du faisceau où l'automodulation de phase est homogène. Après le filtre, le faisceau est spatialement uniforme. L'inconvénient majeur de cette technique est la transmission limitée à quelques pourcents. Cependant, cette technique permet d'obtenir des impulsions courtes avec conceptuellement aucune limite en énergie. Partant avec une impulsion de 92 fs et 300 μJ, Rolland *et al.* ont obtenu une impulsion de 19 fs et 7 μJ soit un facteur de compression atteignant presque 5.

Utilisation d'une fibre creuse remplie de gaz neutre

Mauro Nisoli *et al.* ont apporté une contribution majeure pour la post-compression d'impulsions lasers [Nisoli *et al.* 97, Nisoli *et al.* 96]. Ils ont utilisé une fibre creuse remplie de gaz. Le gaz dans la fibre réalise l'automodulation de phase. La propagation du faisceau guidée par la fibre conduit, d'une part, à une transmission d'environ 50% et, d'autre part, à un faisceau homogène spectralement et spatialement en sortie de fibre. Des impulsions de 5 fs avec une énergie de 500 μJ ont été produites par cette méthode. C'est aujourd'hui la technique qui produit les impulsions les plus courtes avec un maximum d'énergie. Récemment, en montant deux fibres en cascade, des impulsions de *3,8* fs ont été obtenues [Schenkel *et al.* 03].

1.2 Technique de post-compression développée au CELIA

Nous présentons une autre technique pour réaliser des impulsions sub-15 fs avec une énergie supérieure au milliJoule [Mével *et al.* 03]. L'automodulation de phase est réalisée dans un matériau solide (lame de BK7, S_iO_2, SF10, Saphir, CaF_2 ..). Le faisceau laser est focalisé à l'aide d'une lentille. La lame est placée entre le foyer et la lentille. Le contrôle des effets d'automodulation et de dispersion dans le matériau garantit une dérive de fréquence linéaire sur une grande partie du faisceau pour une re-compression optimale. Le faisceau est filtré par un trou installé au foyer. Cette technique, dérivée des travaux de Claude Rolland

et Paul Corkum, a la particularité de placer le filtre spatial non tout près du matériau mais au voisinage du foyer du faisceau. Après le filtrage spatial, le résultat en champ lointain est un élargissement spectral uniforme spatialement avec une transmission en énergie de 45%. Dans un premier temps, pour monter la faisabilité de cette technique, nous avons travaillé à bas flux.

1.2.1 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est représenté à la figure III.4. On utilise une partie de la chaîne laser du CELIA, le faisceau avant le compresseur est filtré spatialement avec un trou de diamètre de 200 μm, il est ensuite recollimaté par une lentille de focale 80 mm. Après le compresseur, la durée de l'impulsion est de 42 fs avec une énergie disponible de 500 μJ. La largeur spectrale de l'impulsion est de 30 nm. Le faisceau est focalisé par une lentille de focale 1,5 m. Au foyer de la lentille, on place un trou de diamètre $\Phi = 200$ μm. Une lame de BK7 d'épaisseur 3 mm est insérée entre le foyer et la lentille pour élargir le spectre. Avec ou sans la lame de BK7 la transmission du filtre est d'environ 40-45%. Le profil spatial du faisceau après le trou est une fonction de Bessel. Pour une énergie d'environ 400 μJ, l'autofocalisation est présente, il faut alors déplacer le trou de quelques centimètres vers la lame pour retrouver une transmission de 40-45%. Le faisceau est alors recollimaté par un miroir en or de focale 50 cm puis séparé en deux : une première partie est envoyée vers un spectromètre, la seconde partie est envoyée vers une ligne de compression à prismes. La mesure de la durée de l'impulsion en sortie du compresseur est réalisée par un autocorrélateur optique.

1.2.2 Élargissement effectif du spectre

La figure III.5 représente le spectre de l'impulsion avant la focalisation et le spectre en sortie du système après le trou de filtrage avec et sans la lame de BK7. On observe clairement l'élargissement du spectre de l'impulsion lorsque le faisceau se propage à travers la lame de BK7. Sans le BK7, le spectre est légèrement élargi quand le faisceau est focalisé dans l'air. C'est un effet marginal comparé à l'élargissement du spectre lorsqu'on met en place la lame. La largeur spectrale est de 30 nm pour le spectre d'entrée et de 96 nm pour le spectre de sortie. La lame de BK7 est placée à 10 cm avant le foyer. À cette position la taille du faisceau est $w = 280$ μm et l'éclairement crête du faisceau est estimé à 8.10^{12} W/cm^2. À cet éclairement, on observe la présence d'un continuum de lumière blanche dans la fenêtre. Néanmoins, son influence sur le faisceau laser et sur la transmission du filtre n'est pas observable.

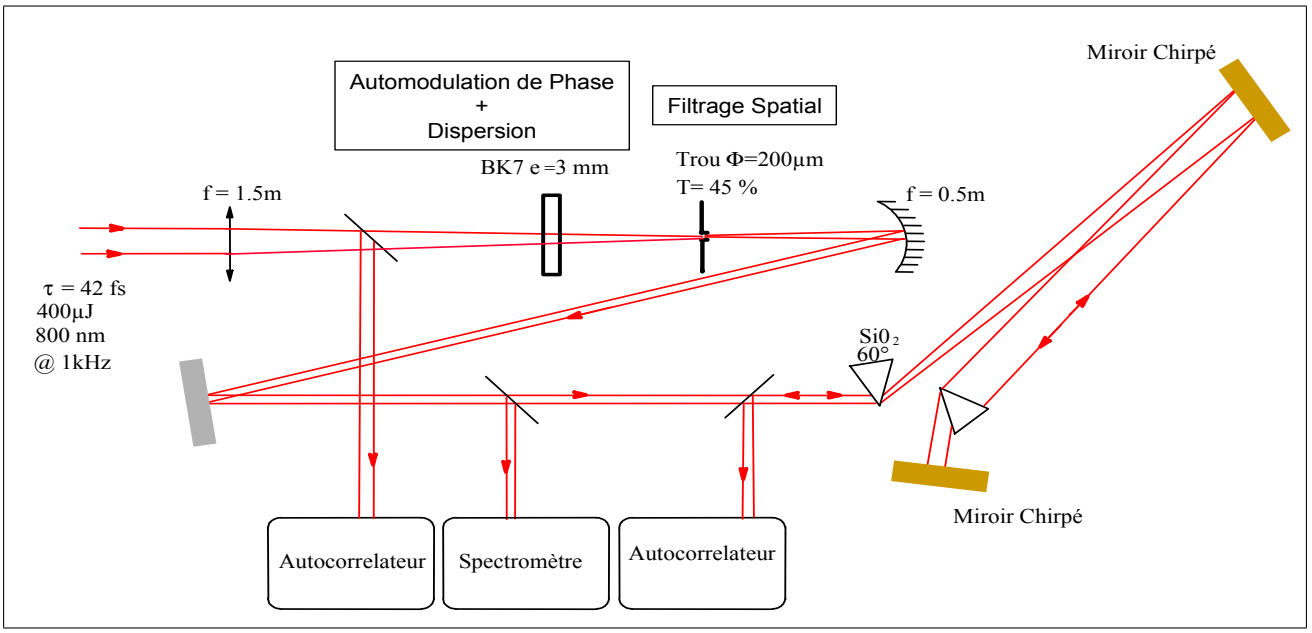


Fig. III.4 : *Dispositif expérimental de la post-compression.*

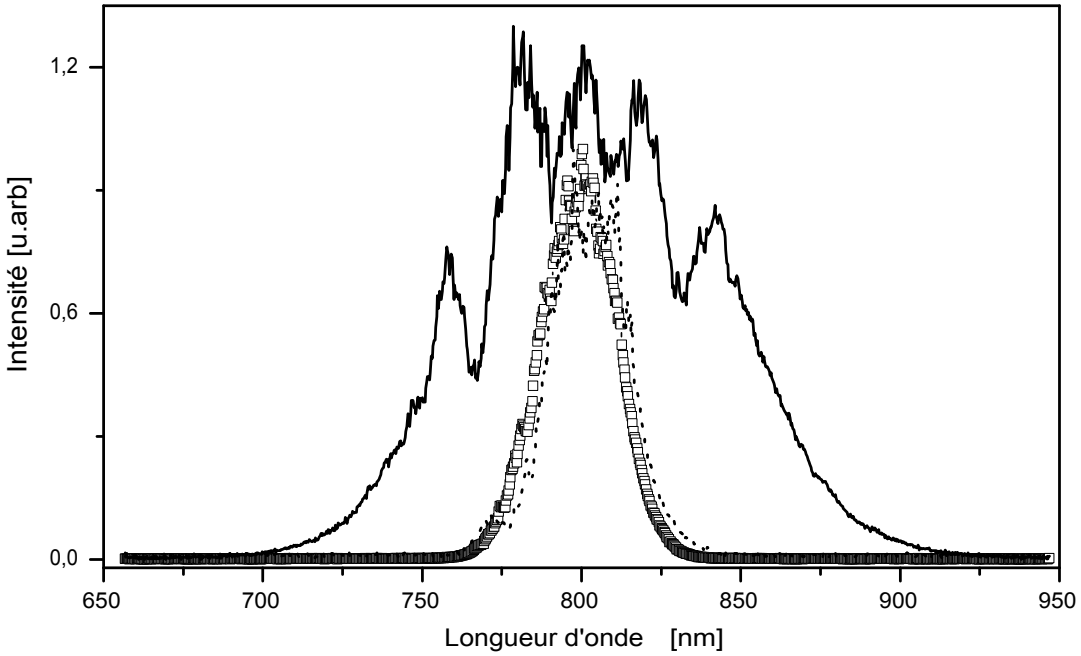


Fig. III.5 : *Spectre d'entrée, avant la focalisation dans l'air (□), après la focalisation sans la lame (pointillé). Spectre élargi après traversée de la lame de BK7 (trait plein).*

1.2.3 Homogénéité radiale du spectre

Dans le faisceau recomprimé et collimaté, nous avons mesuré l'évolution du spectre sur la section du faisceau après un trou de faible diamètre. La figure III.6 représente la largeur

spectrale des spectres en fonction de la position du trou par rapport au faisceau avec et sans le filtre spatial. Avec le filtre, on observe une largeur spectrale identique quelle que soit la position, jusqu'au 1 ^{ere} anneau du faisceau où nous mesurons une largeur spectrale de 75 nm. Sans le filtre spatial, la largeur spectrale est inhomogène sur la section du faisceau. La largeur spectrale est maximale au centre du faisceau puis diminue sur les bords. Aux extrémités du faisceau et sans le filtre spatial, la largeur du spectre est plus importante que celle du spectre d'entrée. Ceci s'explique par le fait que la mesure étant réalisée loin de la lame, la diffraction homogénéise déjà le spectre. Le champ total est la somme cohérente du champ diffracté par toutes les portions de la lame. Dès que l'on observe le faisceau loin de la lame, on ne peut plus déterminer d'où provient la portion du faisceau analysée. Si la mesure spectrale avait été effectuée en champ lointain, alors la largeur spectrale devrait être identique n'importe où. La notion de champ lointain et champ proche dépend de la distance d'observation d, comparée à $\mathrm{d}_{eff} = \Phi^2/\lambda$ (où Φ est le diamètre de l'objet diffractant). Sur la lame de BK7, nous avons $\Phi = \pi.w$ avec $w = 280\mu m$ soit d_{eff}= 96 cm. En analysant le faisceau à 60 cm après la lame, on se place dans le cas intermédiaire. Quand le filtre est inséré (Φ=200 μm), $d_{eff} \sim 5cm$, en analysant le faisceau 50 cm après la lame, nous nous plaçons en champ lointain.

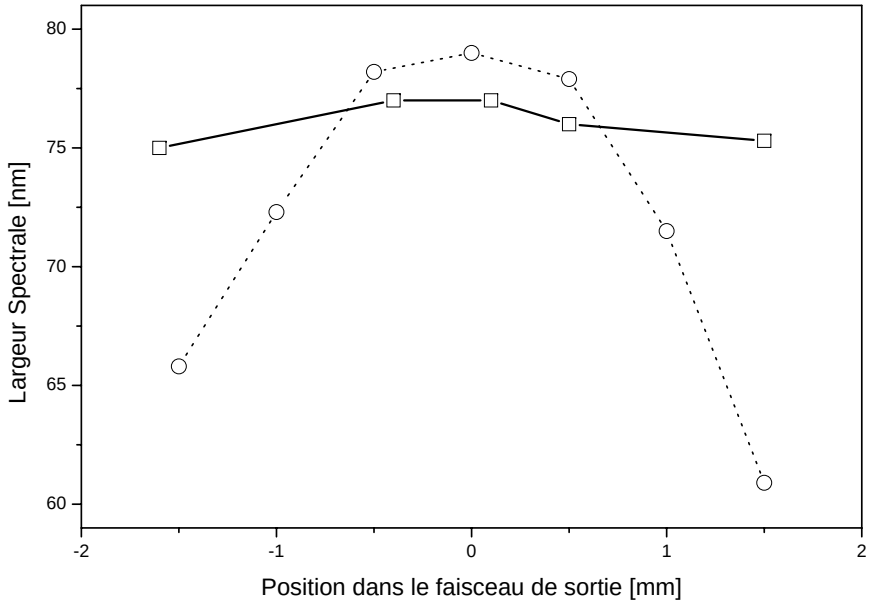


Fig. III.6 : *Largeur spectrale du faisceau en fonction de la position transverse du trou dans le faisceau après le filtre spatial (trait plein) et sans filtre(pointillé).*

1.2.4 Les durées obtenues

L'impulsion est recomprimée par une ligne à prisme composée de deux prismes en SiO2 (Â=60°) séparées de 2 m et de deux miroirs chirpés qui introduisent une compensation fixe

de -45 fs^2. L'autocorrélation de l'impulsion ainsi obtenue est représentée figure III.7, sa largeur à mi-hauteur est de 18,6 fs soit une impulsion de durée 12 fs en considérant un profil hyperbolique.

L'autocorrélation de l'impulsion initiale de largeur 60 fs est en trait plein sur la figure, on remarque que cette technique de post-compression a réduit la durée de l'impulsion initiale d'un facteur 3. À partir de la transformée de Fourier du spectre élargi de l'impulsion et en considérant la phase spectrale comme nulle, nous déterminons le profil temporel en intensité de l'impulsion et par là même son autocorrélation. La largeur temporelle de l'autocorrélation est de 17,3 fs. La mesure expérimentale est 1,07 plus grande que la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation calculée. L'impulsion ainsi re-comprimée est proche de sa limite de Fourier.

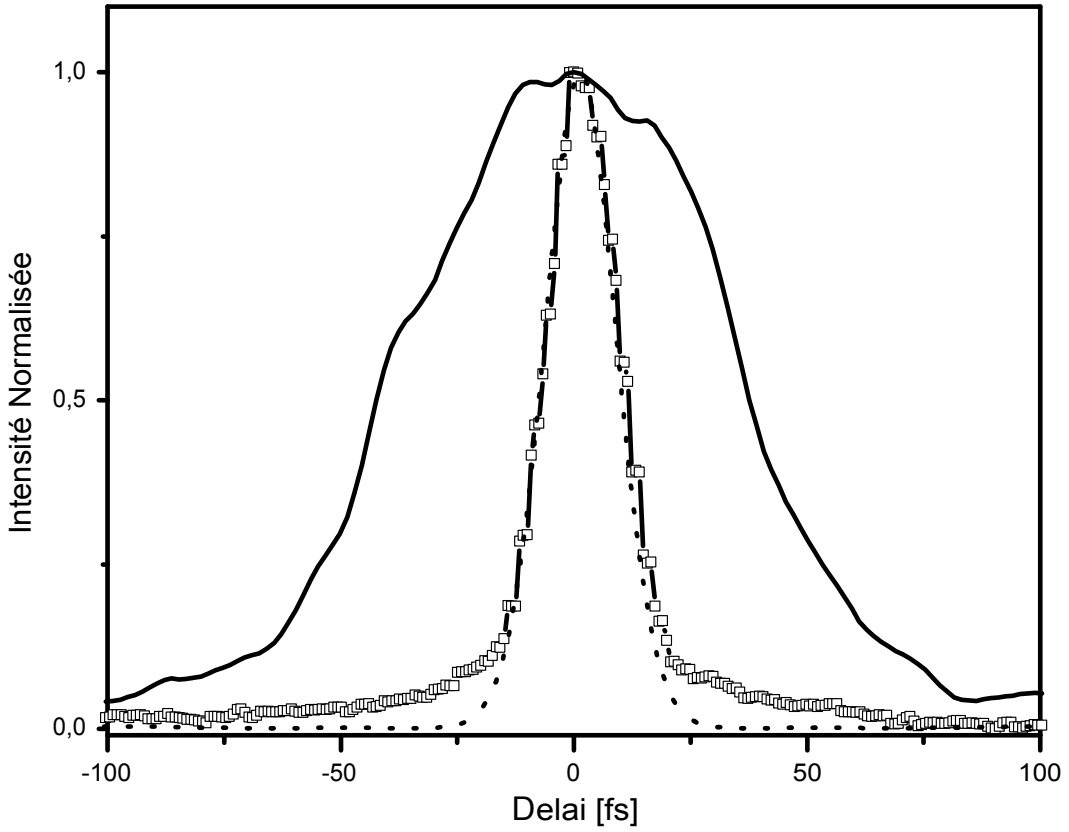


Fig. III.7 : *Traces d'autocorrélation de l'impulsion incidente (trait plein) de durée à mi-hauteur de 60 fs, de l'impulsion recomprimée de durée à mi-hauteur de 18,6 fs (□), et de l'impulsion calculée à partir du spectre élargi de durée à mi-hauteur de 17,3 fs (trait pointillé).*

1.2.5 Perspectives : hautes énergies

L'énergie peut être considérablement augmentée. L'éclairement crête est le paramètre principal pour l'effet d'automodulation de phase. En augmentant l'énergie d'un facteur 100 sur le matériau, il faudrait une taille de faisceau 10 fois plus importante pour garder le même éclairement maximal sur la lame et donc retrouver le même élargissement. Pour cela, il suffit de reculer la lame du foyer pour obtenir une taille de faisceau plus importante. Pour étayer cette idée, nous avons choisi de fixer une durée d'impulsion à 16 fs en sortie du système de post-compression avec une énergie de 200 μJ. Ensuite tout en augmentant l'énergie à 300 μJ puis à 400μJ, la lame est déplacée vers la lentille pour retrouver en sortie du système une durée identique (cf. figure III.8). Il est envisageable de travailler avec des énergies incidentes de 1 mJ et plus.

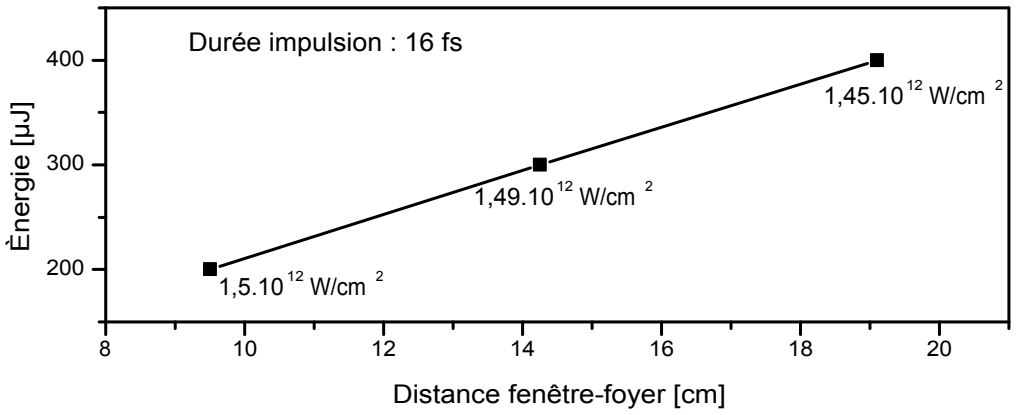


Fig. III.8 : *Déplacement de la lame pour différentes énergies, dans le but d'obtenir la même durée finale de 16 fs. L'éclairement maximal de l'impulsion estimé est indiqué sur la courbe.*

1.2.6 Hautes énergies

Nous avons réalisé plusieurs séries d'expériences à haute énergie (1-5 mJ) avec la collaboration de Gabriel Tempea. Le dispositif expérimental a été adapté pour travailler avec des flux importants (cf. figure III.9). Le filtrage spatial est placé sous vide afin d'éviter des effets non linéaires dans l'air. Il est réalisé à l'aide d'une fibre creuse conique ou d'un trou de 1 mm pour limiter un endommagement prématuré. Et enfin, nous avons substitué à la ligne à prismes des miroirs chirpés pour s'affranchir également des effets non linéaires dans les prismes. Le choix de la lame s'est tourné vers la silice avec une épaisseur de 3 mm. La silice représentait dans nos conditions expérimentales le meilleur compromis entre la dispersion, l'élargissement spectral et la tenue au flux.

Avec une énergie incidente 1,5 mJ et une durée d'impulsion de 38 fs, nous avons obtenu en sortie du système de post compression des impulsions de 500 μJ et de 14 fs soit 1,09 fois la limite de Fourier. La transmission du système est de 30 % et le facteur de compression est égal à 2,7.
Ensuite nous avons travaillé avec une énergie incidente de 5 mJ et une impulsion de 50 fs. La durée de l'impulsion initiale ne nous plaçait pas dans des conditions favorables pour obtenir une impulsion très courte. En sortie du système, nous avons obtenu une impulsion de 1,2 mJ et une durée de 19 fs avec une stabilité (pointé, durée, énergie) assez médiocre. La limite de Fourier du spectre donne une impulsion de 14 fs. Cette différence est due à une mauvaise compensation : nous avons constaté a posteriori que la dispersion des miroirs chirpés n'était pas celle attendue.

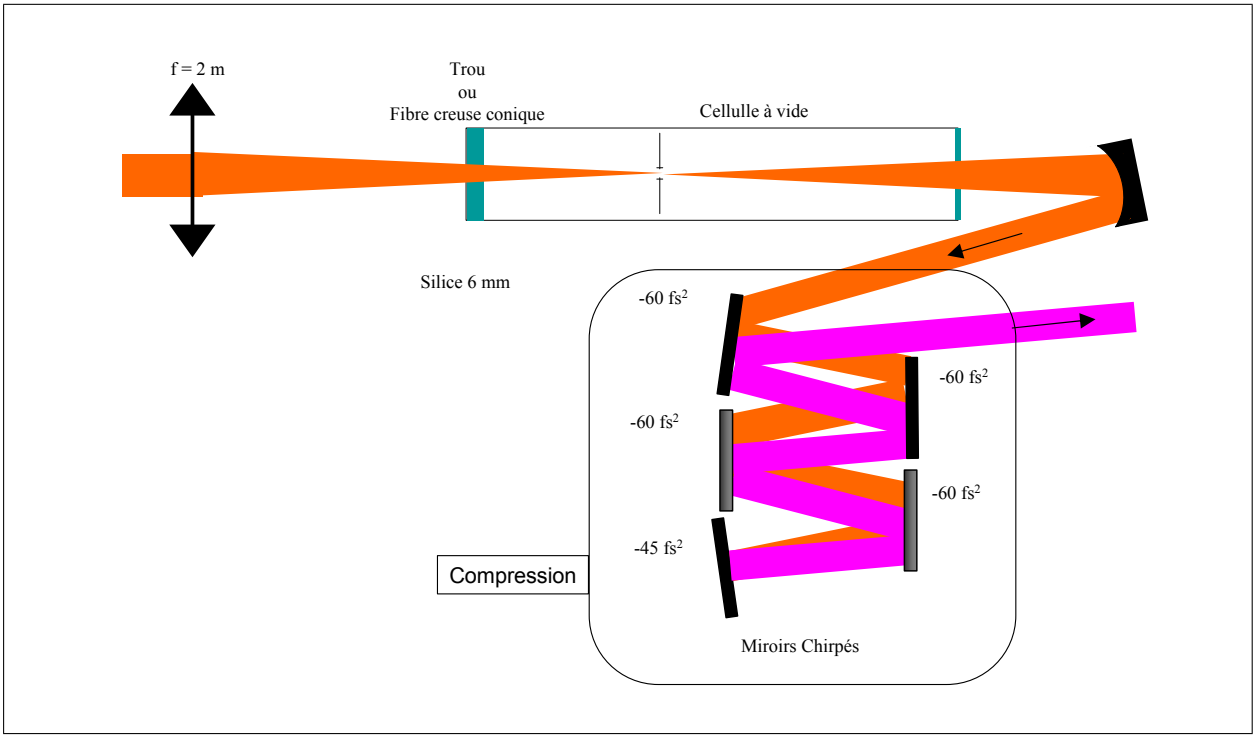


Fig. III.9 : *Dispositif expérimental haute énergie pour la post-compression.*

1.3 Conclusion

Le facteur de compression atteint avec cette technique est de l'ordre de 3 avec une transmission de 30 %. Cette technique reste une alternative séduisante par rapport à la technique utilisant une fibre creuse pour une post-compression haute énergie. À haute énergie, le saphir et la silice représentent le meilleur compris entre la dispersion, l'élargissement spectral et la

Impulsion de départ	Impulsion final	Compresseur	Commentaires
400 μJ 42 fs	70 μJ 12 fs	prismes	Stable. 50% énergie perdue par lame séparatrice
1,5 mJ 38 fs	500 μJ 14 fs	miroirs chirpés	Stable. Sous vide
5 mJ 50 fs	1,2 mJ 19 fs	miroirs chirpés	Problèmes de stabilité. Mauvaise compensation de l'impulsion

Tab. III.1 : *Résultats de la post-compression, en terme de durée et d'énergie.*

tenue au flux.

Objectivement, avec des énergies de l'ordre du milliJoule, il semble que la technique de la fibre creuse soit plus adaptée pour la simple raison que la transmission est plus élevée. Notre méthode semble bien dimensionnée pour la production d'impulsions de 10-15 fs au-delà du millijoule à partir de la future chaîne laser du CELIA 100 Hz, 200 mJ, 30 fs.
Un récapitulatif des résultats est présenté dans le tableau III.1.

Chapitre 2

Mesure temporelle des impulsions VUV

La mesure d'impulsions ultracourtes dans le domaine VUV reste délicate à mettre en œuvre. Après avoir exposé les différentes techniques de mesure existantes, nous allons nous intéresser à l'une d'elles : l'autocorrélation du second ordre nécessitant l'observation d'un processus non linéaire [Sekikawa *et al.* 99, Kobayashi *et al.* 00, Papadogiannis *et al.* 03b]. Avant d'utiliser un effet non linéaire pour réaliser une autocorrélation, il faut tout d'abord l'observer. Une grande partie de ce chapitre sera consacrée à la mise en évidence de la double ionisation de l'argon, du xénon et du krypton par absorption de deux photons harmoniques d'ordre supérieur à 11 ($\lambda < 72\ nm$) [Plumridge *et al.*].

2.1 Techniques existantes

La méthode d'inter-corrélation fut la première à être employée, son défaut réside dans sa résolution qui est limitée par l'impulsion infrarouge (cf. section 4.1, page 103). Cependant, cette technique peut-être étendue à la mesure des phases relatives entre harmoniques [Véniard *et al.* 96]. L'expérience consiste à obtenir un spectre de photoélectrons par superposition des impulsions VUV et infrarouges initialement synchronisées, puis à enregistrer la dépendance des amplitudes des bandes latérales en fonction de la phase relative de l'infrarouge variant au moyen d'un dispositif interférométrique. À partir de la modulation des bandes latérales, on extrait la différence de phase entre harmoniques successives. Cette expérience a été réalisée par Pierre-Marie Paul *et al.* [Paul *et al.* 01] pour les harmoniques 11 à 19 générées dans l'argon. Avec la phase moyenne et l'amplitude relative des harmoniques, il est alors possible de reconstruire le profil temporel de l'impulsion VUV représenté sur la figure III.10. Ce fut la première expérience confirmant sans ambiguïté que les harmoniques

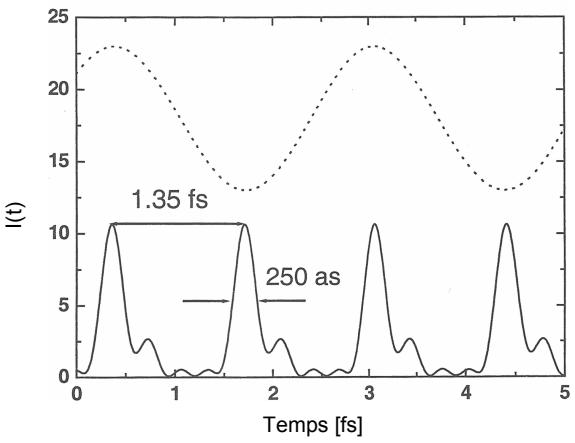


Fig. III.10 : *Profil temporel résultant de la somme des harmoniques 11 à 19. En pointillés le champ infrarouge déphasé arbitrairement. Figure tirée de la thèse de P.M. Paul.*

.

sont émises sous forme d'un train d'impulsions sub-femtosecondes. Par contre, cette mesure nécessite de résoudre spectralement les harmoniques et ne peut pas donc s'appliquer à la mesure d'une impulsion attoseconde isolée ($1\ as = 10^{-18}\ s$).

Une autre technique est dérivée de la caméra à balayage de fente. Le principe est le suivant : une impulsion d'électrons réplique conforme de l'impulsion lumineuse est créée par une photocathode. Après la propagation du paquet d'électrons, une rampe de déflection étale le paquet d'électrons spatialement en fonction de leur temps d'émission ce qui permet ainsi de caractériser temporellement et spatialement le paquet d'électrons. La résolution d'une caméra à balayage de fente classique est de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes en monocoup [Gallant *et al.* 00]. La mesure d'impulsions attosecondes nécessite d'apporter des modifications majeures pour dépasser cette limitation : une impulsion harmonique produit l'ionisation d'un gaz (qui joue le rôle de la photocathode) en présence d'un champ laser infrarouge (qui joue le rôle de la rampe de déflection) [Itatani *et al.* 02, Constant *et al.* 97]. Le signal de photo-électron est détecté perpendiculairement à la polarisation du laser dans un angle solide déterminé. Le photo-électron est éjecté par l'impulsion harmonique avec une vitesse V_0 de façon isotrope. En présence du champ laser, une composante V_1 perpendiculaire à l'axe du système de détection s'ajoute au mouvement des photo-électrons, cette vitesse dépend du temps de "naissance" du photo-électron dans le champ infrarouge. L'action du champ déflecteur est représentée sur la figure III.11, le signal de photo-électron se déplace vers des énergies cinétiques plus basses, et sa distribution s'étale.
Pour un délai fixe entre les impulsions infrarouge et VUV, le signal de photo-électrons est moyenné sur toutes les phases du champ infrarouge (IR). C'est uniquement l'enveloppe du

champ IR qui détermine le déplacement en énergie du signal de photo-électrons. Ce déplacement du centre de gravité du signal, en fonction du délai entre les impulsions VUV et infrarouge, permet d'estimer la durée de l'impulsion VUV. Des durées inférieures à la période optique du champ laser (2,66 fs) ont été mesurées [Drescher *et al.* 01] en générant les harmoniques avec une impulsion infrarouge de 7 fs. La résolution de la méthode est limitée par la caractérisation de l'impulsion sonde.
Si le délai entre l'impulsion VUV et IR est contrôlé avec une précision interférométique et si la durée de l'impulsion harmonique τ_x est inférieure à la demi période du champ laser ($T_0/2$), la largeur du signal de photoélectrons ΔW est modulée à la période $T_0/2$ (cf. figure : III.11). La profondeur de modulation permet de déduire la durée de l'impulsion harmonique. Une durée de 650 as a été mesurée par l'équipe de Ferenc Krausz [Hentschel *et al.* 01, Kienberger *et al.* 02]
.

Il existe également d'autres méthodes en cours de développement pour caractériser une impulsion VUV. Et notamment, la méthode SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) empruntée au domaine visible et transposée au domaine VUV [Quéré *et al.* 03, Muller 02].

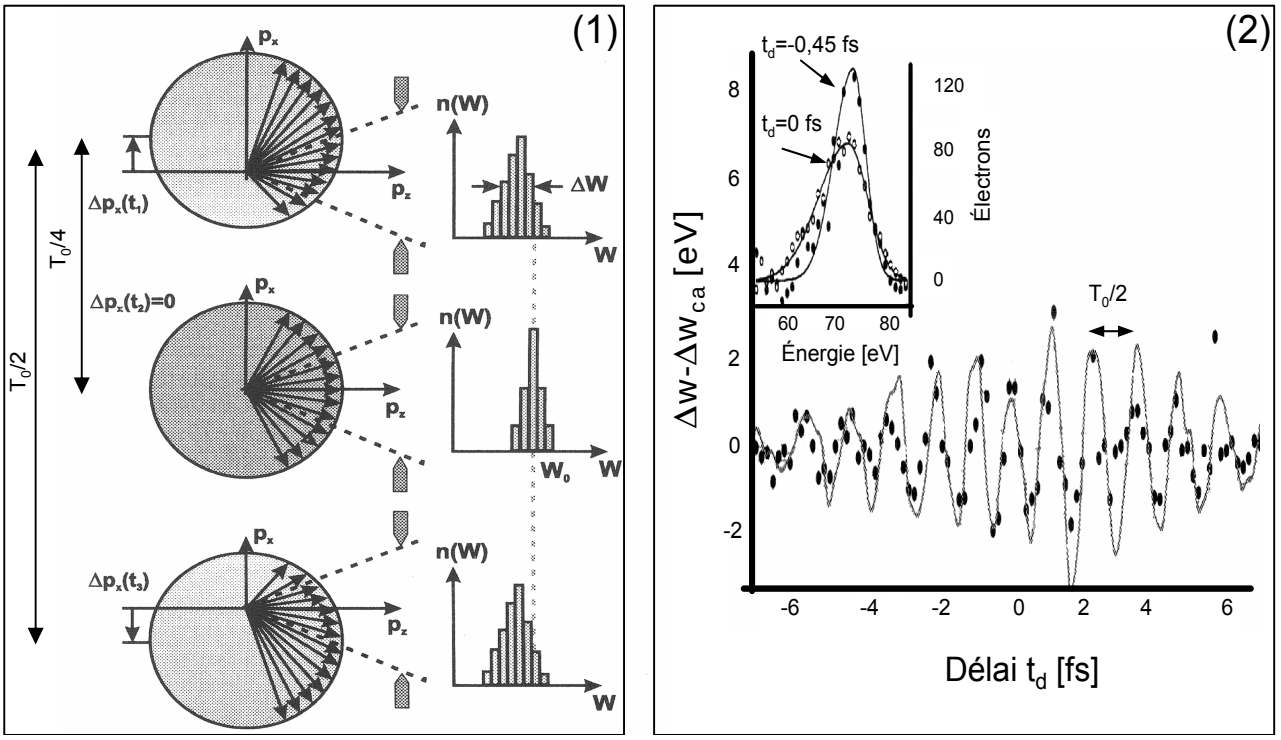


Fig. III.11 : *(1) Principe de la mesure d'une impulsion VUV. Le signal de photo-électrons est créé initialement par l'absorption d'un photon VUV avec une distribution angulaire impulsionnelle isotrope, il acquiert une impulsion δp_x en présence du champ laser infrarouge aux temps t_1, $t_2 = t_1 + T_0/4$, $t_3 = t_1 + T_0/2$. La distribution est déformée aux temps t_1 et t_3. Le signal des photo-électrons détecté s'étale et se déplace vers des énergies cinétiques plus basses. D'après [Hentschel* et al. *01].*
(2) Modulation de la largeur spectrale $\Delta W - \Delta W_{ca}$ où ΔW_{ca} est la valeur moyenne de ΔW sur un cycle. La figure en haut à gauche représente le spectre de photo-électrons obtenu pour deux délais t_d différents. D'après [Kienberger et al. *02].*

2.2 Autocorrélation du second ordre

Dans le domaine visible, la technique standard est l'autocorrélation (cf. section 3.1.2 page 47). Elle est basée sur l'utilisation d'un interféromètre et sur l'observation d'un effet non linéaire réalisée dans un cristal doubleur de fréquence. Dans le domaine VUV, il n'existe pas de cristal doubleur, par contre il existe des processus non linéaires équivalents comme l'ionisation atomique à deux photons. Cependant, il reste deux principaux problèmes à résoudre pour réaliser l'autocorrélation :

1. L'observation de la transition non linéaire par absorption de 2 photons VUV puisque d'une part les sections efficaces d'absorption sont très faibles ($\approx 10^{-50}\, cm^4.s$) et d'autre part l'intensité de l'impulsion VUV est relativement faible ($\approx 10^{11}\, W/cm^2$).

2. la division, la recombinaison et le contrôle du délai entre les 2 impulsions VUV.

Sur ce dernier point, il existe différentes approches. Une première méthode consiste à produire deux impulsions VUV identiques à partir de deux faisceaux infrarouges. Le délai relatif entre les impulsions VUV est alors obtenu via les impulsions infrarouges. L'inconvénient majeur de cette technique réside dans la réalisation de 2 sources harmoniques parfaitement identiques. Une seconde approche consiste à produire une seule impulsion VUV et à utiliser un interféromètre VUV.

L'autocorrélation d'un seul faisceau harmonique peut être basée sur un autocorrélateur de type interferomètre de Michelson. Cependant, le rayonnement VUV est absorbé par la plupart des matériaux, ce qui empêche d'utiliser des lames séparatrices classiques. Pour le moment, uniquement quelques lames séparatrices sont en développement pour ce domaine de longueurs d'ondes [Takahashi *et al.* 04]. De plus, pour garder un flux de photons important, le nombre de réflexions sur les miroirs doit être limité (les miroirs ayant des coefficients de réflectivité relativement bas pour les radiations VUV). La transposition de la technique d'autocorrélation au domaine VUV pour des impulsions ultra-courtes nécessite l'emploi d'un interféromètre sans traversée de matériau dispersif ou absorbant. À CELIA, un prototype basé sur la division de front d'onde et non d'amplitude a été réalisé et testé avec l'infrarouge [Constant *et al.* 01]. Il est constitué de 2 demi-miroirs sphériques qui réfléchissent chacun une moitié du faisceau et les focalisent au même point (cf. figure III.12). La translation d'un des demi-miroirs permet de contrôler le délai entre les deux impulsions. Le déplacement de l'un des deux miroirs changera l'alignement, les deux demi-faisceaux ne seront plus focalisés au même point. Toutefois, cet effet est négligeable si le déplacement est inférieur à la longueur de Rayleigh caractéristique de la focalisation. Pour l'harmonique 15 (53 nm) focalisée sur une tache de 6 μm la longueur de Rayleigh est de 2 mm, ce qui est très grand devant le déplacement d'environ 3 μm nécessaire pour mesurer une impulsion de 10 fs. Enfin, la résolution de cet autocorrélateur sera imposée par la géométrie non colinéaires des deux faisceaux (effet de rideaux dans les autocorrélateurs). L'utilisation d'une seule optique pour séparer recombiner et contrôler le délai entre les deux impulsions VUV reste un avantage en terme de flux de photons.

Un autre type d'autocorrélateur non-dispersif a été développé [Goulielmakis *et al.* 02]. Il offre une résolution attoseconde. Seulement la présence de plusieurs optiques défavorisent l'efficacité globale du système $\eta = 2{,}5.10^{-4}$. En contrepartie, une sélection spectrale des harmoniques à étudier est faisable et les deux faisceaux se propagent colinéairement.

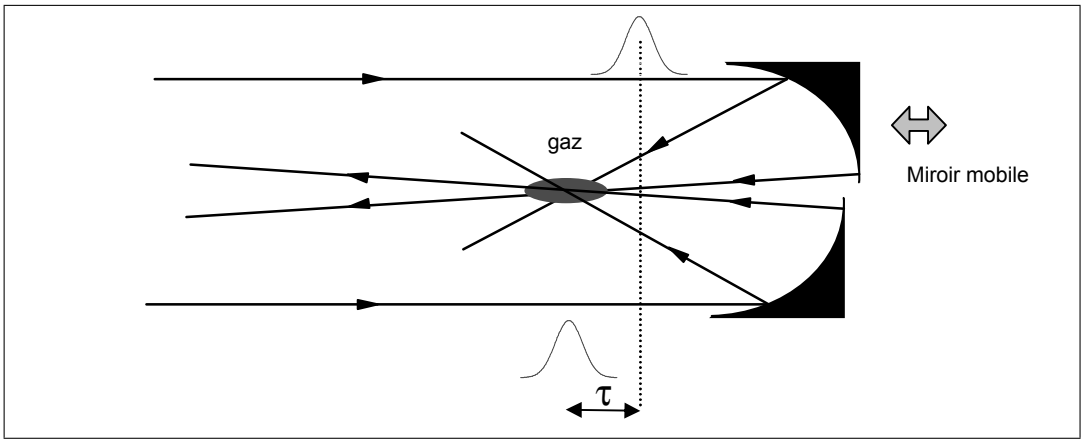


Fig. III.12 : *Autocorrélateur non-dispersif*

2.2.1 État de l'art

Les *premières expériences d'autocorrélation d'impulsions VUV* ont été réalisées par S. Wanatabe et Y. Kobayaoshi [Sekikawa *et al.* 99, Kobayashi *et al.* 98, Kobayashi *et al.* 00]. Ils ont mesuré respectivement la durée des harmoniques 7 et 9 générées à partir d'un laser Titane:Saphir. Les deux impulsions VUV sont générées avec 2 faisceaux infrarouges indépendants, le montage expérimental est représenté sur la figure III.13. Ils ont utilisé des transitions à 2 et 3 photons pour l'ionisation simple de l'hélium et de l'argon comme effet non linéaire pour réaliser l'autocorrélation. Leur système détectait les ions créés. La durée des impulsions mesurée pour l'harmonique 9 est de 27 fs et de 42 fs pour l'harmonique 7, alors que la durée de l'impulsion fondamentale est de 34 fs. Cette méthode nécessite le filtrage des harmoniques hautes qui ionisent le gaz par absorption d'un seul photon.

Dernièrement, une autocorrélation d'un train d'impulsions VUV a été réalisée en utilisant la technique des deux demi-miroirs [Tzallas *et al.* 03]. Une durée moyenne des impulsions attosecondes de 780 as a été mesurée.

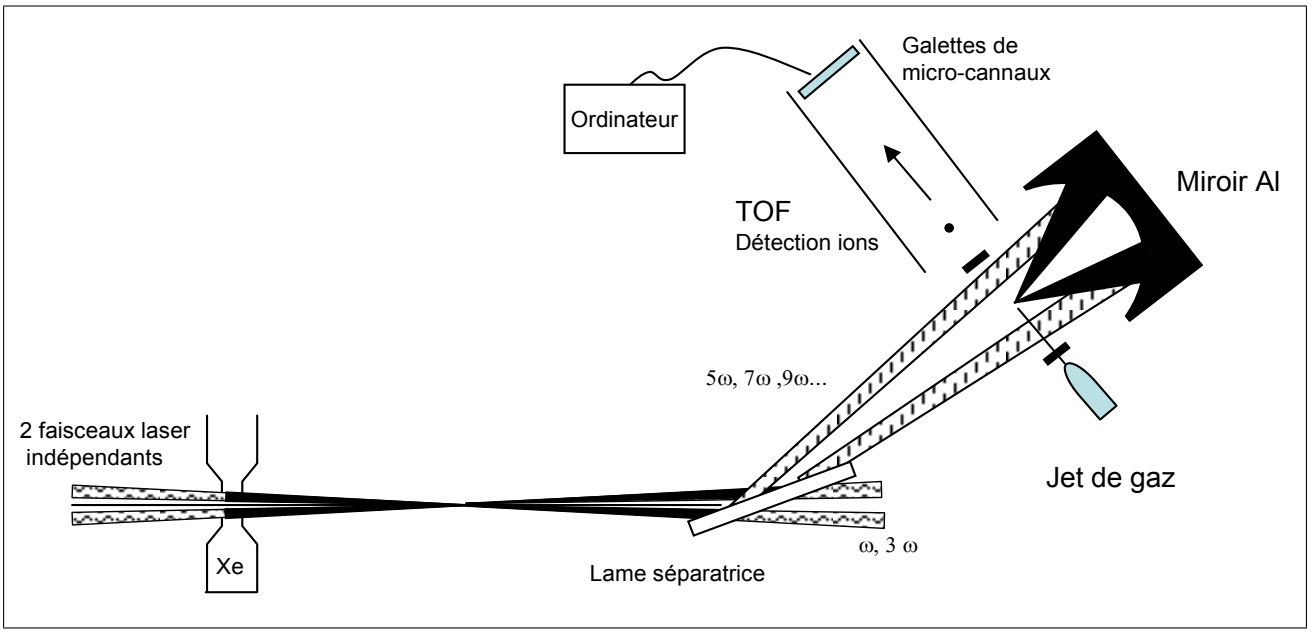


Fig. III.13 : *Dispositif expérimental utilisé par l'équipe de Watanabe.*

2.3 Transitions à deux photons

L'ionisation par absorption de 2 photons VUV est un effet non linéaire utilisable pour réaliser une autocorrélation. Un atome initialement dans son état fondamental, peut être ionisé par un rayonnement VUV de fréquence ω_{vuv} même si l'énergie est inférieure à l'énergie d'ionisation I_P. En effet, en absorbant deux photons, l'atome peut acquérir l'énergie nécessaire pour parvenir dans le continuum d'ionisation. On distingue deux processus : l'ionisation non résonnante qui s'effectue via un niveau "virtuel" de l'atome (cf. figure III.14-2) et l'ionisation résonnante qui s'effectue via un état intermédiaire réel faisant intervenir un état excité de l'atome (cf. figure III.14-1). La théorie et l'expérience montrent que le rendement d'ionisation augmente considérablement dans le cas d'un processus caractérisé par une étape résonnante (Resonant Enhanced Multi-Photon Ionisation, REMPI). Dans ce cas, la résolution temporelle est déterminée par la durée de vie du niveau résonnant.

Pour induire ces transitions, un faisceau VUV est focalisé dans un gaz rare et les photo-électrons émis sont détectés à l'aide d'un spectromètre à temps de vol (TOF cf. page 109). Lorsque le potentiel d'ionisation du gaz est connu ainsi que l'énergie des photons incidents, la mesure du spectre d'énergie des photo-électrons permet de discriminer les transitions par absorption de 1 ou de 2 photons sans ambiguïté. La probabilité pour un atome d'être ionisé dans une transition VUV est définie par le flux de photons incidents (Φ $[cm^{-2}.s^{-1}]$), la durée des impulsions VUV (τ $[s]$) et les sections efficaces à 1 ou 2 photons ($\sigma^{(1)}$ $[cm^2]$,$\sigma^{(2)}$ $[cm^4.s]$). Dans cette gamme de longueurs d'ondes, les sections efficaces à deux photons n'ont jamais été mesurées expérimentalement. Cependant, des publications théoriques traitant de ce sujet

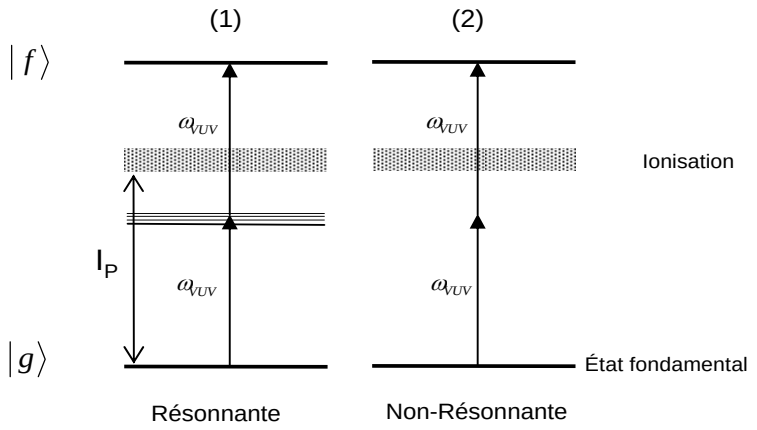


Fig. III.14 : *Ionisation à 2 photons VUV. Transition de l'état fondamental $|g>$ vers un état $|f>$ du continuum*

[McGuire 81, L'Huillier *et al.* 87] donnent des sections efficaces d'ionisation à deux photons $\sigma^{(2)}$ des gaz rares allant de 10^{-50} $s.cm^4$ hors résonance à quelques 10^{-48} $s.cm^4$ pour les transitions résonnantes. Le taux d'ionisation à deux photons s'écrit :

$$\Gamma^{(2)} = \sigma^{(2)}\ \Phi^2 \quad [s^{-1}] \tag{III.8}$$

Au regard des faibles sections efficaces dans cette région spectrale, le prérequis, pour observer une transition à 2 photons, est un éclairement VUV élevé. Typiquement, le nombre de photons par harmonique et par impulsion est de l'ordre de quelques 10^9. En raison des pertes dues aux optiques, on estime le nombre de photons dans la zone d'interaction à 10^8 par harmonique soit en considérant les harmoniques 13, 15 et 17 le nombre total de photons est de $N_{photons} = 3.10^8$ photons. Les impulsions harmoniques sont plus courtes que l'impulsion qui les génère, une durée de 10 fs semble être une estimation raisonnable pour une impulsion fondamentale de 30 fs. Les radiations VUV ont une bonne cohérence spatiale [Rundquist *et al.* 98a, Le Déroff *et al.* 98], permettant de les focaliser sur une tache focale assez petite [Le Déroff *et al.* 00, Kazamias *et al.* 03a] de diamètre 3 μm soit un waist de $w \approx 1$ μm. Le flux VUV obtenu au foyer d'un faisceau Gaussien est alors de :

$$\Phi = \frac{N_{photons}}{S\ \tau} = \frac{2\ N_{photons}}{\tau\ \pi\ w^2} = 1{,}9.10^{30}\ \mathrm{cm}^{-2}.s^{-1} \tag{III.9}$$

Avec $S = \frac{\pi\, w^2}{2}$, la surface du faisceau Gaussien au waist. Le flux de photons Φ est relié à l'éclairement I $[W/cm^2]$ par $\Phi = I/\hbar\omega$ où $\hbar\omega$ est l'énergie du photon $[J]$. L'éclairement associé est donc de $5{,}2.10^{12}$ W/cm^2.
En considérant $\sigma^{(2)} = 10^{-50}$ s.cm^4 et le flux précédemment calculé, la probabilité d'ionisation par tir et par atome est de :

$$P^{(2)} = \Gamma^{(2)}.\,\tau = 10^{-50} \times (1{,}9.10^{30})^2 \times 10.10^{-15} = 3{,}6.10^{-4} \qquad \text{(III.10)}$$

Une pression de 10^{-4} *mbar* dans la zone d'interaction permettrait de produire environ 18 photo-électrons tous les 100 tirs. Le volume d'interaction est déterminé par un cylindre de longueur égale au paramètre confocal et de diamètre égal à la taille du faisceau au waist.
La pression maximale de gaz que l'on peut utiliser sera limitée par l'apparition de l'effet de charge d'espace dans la zone d'interaction. Ce phénomène altère la résolution en énergie du TOF. Il dépend en grande partie du nombre d'électrons créés par l'ionisation des atomes à 1 photon VUV d'énergie supérieure au potentiel d'ionisation I_p. En pratique, pour éviter cet effet, le nombre de photo-électrons détectés par tir doit être inférieur à 100. En considérant le cas où le nombre de photons VUV permettant l'ionisation à un photon soit identique au nombre de photons VUV permettant l'ionisation à deux photons. Les sections efficaces à un photon $\sigma^{(1)}$ sont de l'ordre de 10^{-17} cm^2, la probabilité d'ionisation associée est de $P^{(1)} = 2.10^{-2}$. Cette probabilité est 5.10^3 plus importante que la probabilité de transition à deux photons. En détectant dans la limite haute 100 photo-électrons par tir dus à l'ionisation à un photon alors on détecterait $\frac{100}{5.10^3} = 2.10^{-2}$ photo-électrons par tir dus à l'ionisation à 2 photons. Soit avec la cadence de 1 kHz du laser, 20 photo-électrons dus à une transition non linéaire chaque seconde.
En tenant compte de l'efficacité du système de détection qui de l'ordre de 15% , on constate qu'il n'est pas si aisé d'observer une transition non linéaire dans le domaine VUV.

À ce jour, aucune mesure du signal de photo-électrons provenant d'une transition à 2 ou 3 photons VUV n'a été reportée, du fait qu'expérimentalement il est difficile de collecter et de discriminer ces électrons. Néanmoins, en adaptant la configuration à la détection des ions (plus facilement détectables), des transitions non linéaires ont déjà été observées pour les harmoniques basses de 3 à 9 [Descamps *et al.* 01, Kobayashi *et al.* 98, Xenakis *et al.* 96].

Nous avons choisi d'étudier la double ionisation de gaz rares mettant en jeu des harmoniques d'ordres plus élevés (q>11). Le schéma III.15 représente les 3 chemins possibles pour l'ionisation double du xénon. On notera que la double ionisation par absorption de 1+2 ou 2+1 photons VUV n'est pas prise en compte dans ce schéma-ci, la probabilité étant encore plus faible qu'une transition à 2 photons directe. La double ionisation directe requiert 2 photons VUV provenant des harmoniques 11 à 21. Les deux électrons du xénon sont simultanément éjectés avec des énergies cinétiques dont la somme est égale à l'énergie en excès au-dessus du seuil de double ionisation. Pour la double ionisation séquentielle, un électron est éjecté laissant l'ion Xe^+ dans un état stable. À partir de cet état, un autre photon peut être absorbé pour éjecter le second électron. Enfin, pour la double ionisation par absorption

d'un photon VUV, l'énergie des photons doit être supérieure à 33,3 eV, soit des photons provenants d'harmoniques d'ordre q>23.

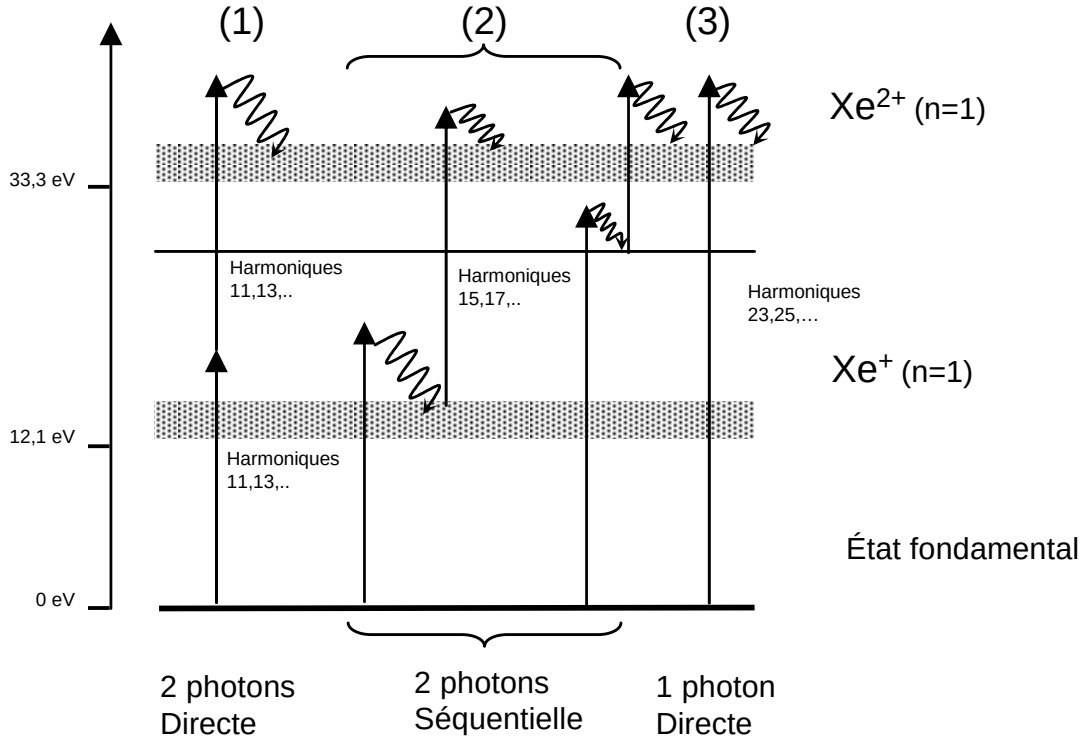


Fig. III.15 : *Double Ionisation du xénon. (1) transition directe à 2 photons VUV. (2)transition séquentielle à 2 photons VUV.(3) transition directe à 1 photon VUV*

Le schéma ci-dessus peut s'appliquer aussi bien à un gaz comme l'argon ou le krypton. Seulement, les ordres des harmoniques mis en jeu seront légèrement différents. Avec cette configuration, le principal problème est de différencier la double ionisation à un photon et celle à deux photons. Ceci peut s'effectuer en étudiant l'influence de l'intensité VUV sur le signal observé. La probabilité d'ionisation à 1 photon s'écrit :

$$P^{(1)} = \sigma^{(1)}\ \Phi\ \tau = \sigma^{(1)}_{Xe \Rightarrow Xe^{2+}}\ \frac{N_{photons}}{S} \tag{III.11}$$

Dans le volume d'interaction défini par $V = S.\triangle z$, (avec S: la surface du volume d'interaction) le nombre d'atomes est de :

$$N_{atomes} = \rho.V = \rho.S.\triangle z \tag{III.12}$$

Où ρ est la densité d'atomes pour une pression de 10^{-4} $mbar$ alors $\rho = 2{,}7.10^{12}\, at/cm^3$. Le nombre d'atomes ionisés par tir est de :

$$N^{(1)}_{ions} = N_{atomes}.P^{(1)} = \rho.\triangle z.N_{photons}.\sigma^{(1)}_{Xe \Rightarrow Xe^{2+}} \tag{III.13}$$

Le nombre d'atomes ionisés est indépendant de la surface, en d'autres termes le nombre d'atomes ionisés ne dépend pas du flux mais dépend uniquement du nombre de photons. En variant l'éclairement VUV sans changer le nombre de photons (on augmente la section S du faisceau harmonique), le signal délivré par le système de détection devrait rester identique. Par contre, dans l'éventualité d'une transition à deux photons où le nombre d'ions produits s'écrit :

- Ionisation Directe

$$N_{ions}^{(2dir)} = \rho.\triangle z.\frac{N_{photons}^2}{S\ \tau}\sigma_{Xe\Rightarrow Xe^{2+}}^{(2)} \tag{III.14}$$

- Ionisation Séquentielle

$$N_{ions}^{(2seq)} = \rho.\triangle z.\frac{N_{photons}^2}{S}\sigma_{Xe\Rightarrow Xe^{+}}^{(1)}\ \sigma_{Xe^{+}\Rightarrow Xe^{2+}}^{(1)} \tag{III.15}$$

Ici à la différence d'un processus à 1 photon, en diminuant l'éclairement, $N_{ions}^{(2seq)}$ et $N_{ions}^{(2dir)}$ décroîssent.

Dans le tableau suivant III.2, les potentiels de simple et de double ionisation des gaz rares sont répertoriés ainsi que l'énergie totale pour ioniser deux fois l'espèce considérée. On note qu'un moyen simple de limiter le processus de double ionisation par absorption de 1 photon VUV est de choisir un gaz avec une énergie totale de double ionisation élevée.

Xe^+	12,13 eV	Xe^{++}	21,21 eV	Xe→ Xe^{++}	33,34 eV
Kr^+	14 eV	Kr^{++}	24,36 eV	Kr→ Kr^{++}	38,36 eV
Ar^+	15,76 eV	Ar^{++}	27,63 eV	Ar→ Ar^{++}	43,49 eV
Ne^+	21,56 eV	Ne^{++}	40,96 eV	Ne→ Ne^{++}	62.52 eV
He^+	24,58 eV	He^{++}	54,42 eV	He→ He^{++}	79,10 eV

Tab. III.2 : *Potentiel d'ionisation simple et double pour le xénon, le krypton, l'argon, le néon et l'hélium. À droite l'énergie totale pour ioniser deux fois l'espèce considérée.*

2.3.1 Dispositif expérimental

Le montage utilisé est représenté schématiquement sur la figure III.16. Pour cette expérience, on disposait d'impulsions de 40 fs de durée, à une longueur d'onde centrale de 800

nm. L'énergie disponible est d'environ 3 mJ. Ce faisceau polarisé linéairement est focalisé par une lentille de 1,5 m dans une cellule remplie de gaz rare. La cellule a un diamètre de 400 μm et une longueur 15 mm. L'éclairement est suffisant pour générer les harmoniques d'ordres élevés. Après la cellule, les faisceaux infrarouge et harmonique se propagent colinéairement dans la direction du faisceau laser incident. Un filtre en aluminium d'épaisseur 1000 Å inséré dans le faisceau transmet entre 10 et 70% du flux VUV avec un taux d'extinction supérieur à 10^7 pour le faisceau IR. Le faisceau harmonique est focalisé par un miroir sphérique recouvert d'une couche de platine de focal f=50 mm. Ce miroir est utilisé légèrement hors axe, l'angle d'incidence est de 2,3°. Cet angle conduit à une séparation du faisceau incident et du faisceau refocalisé d'environ 2 mm au foyer. Dans la zone d'interaction, le gaz est injecté continûment par un tube de verre de diamètre 1,5 mm. Son extrémité est située à environ 10 mm au-dessus de la zone sensible. Dans ces conditions la densité du gaz est homogène dans toute la zone d'interaction. La pression est de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-4} $mbar$ dans la zone sensible. La détection des ions se fait grâce au spectromètre à temps de vol couplé à des galettes de micro-canaux. À l'entrée du spectromètre, une fente de 1 mm limite la région de détection des ions et définit une zone sensible. Le miroir est monté sur une translation permettant d'ajuster la position du foyer par rapport à la zone sensible.

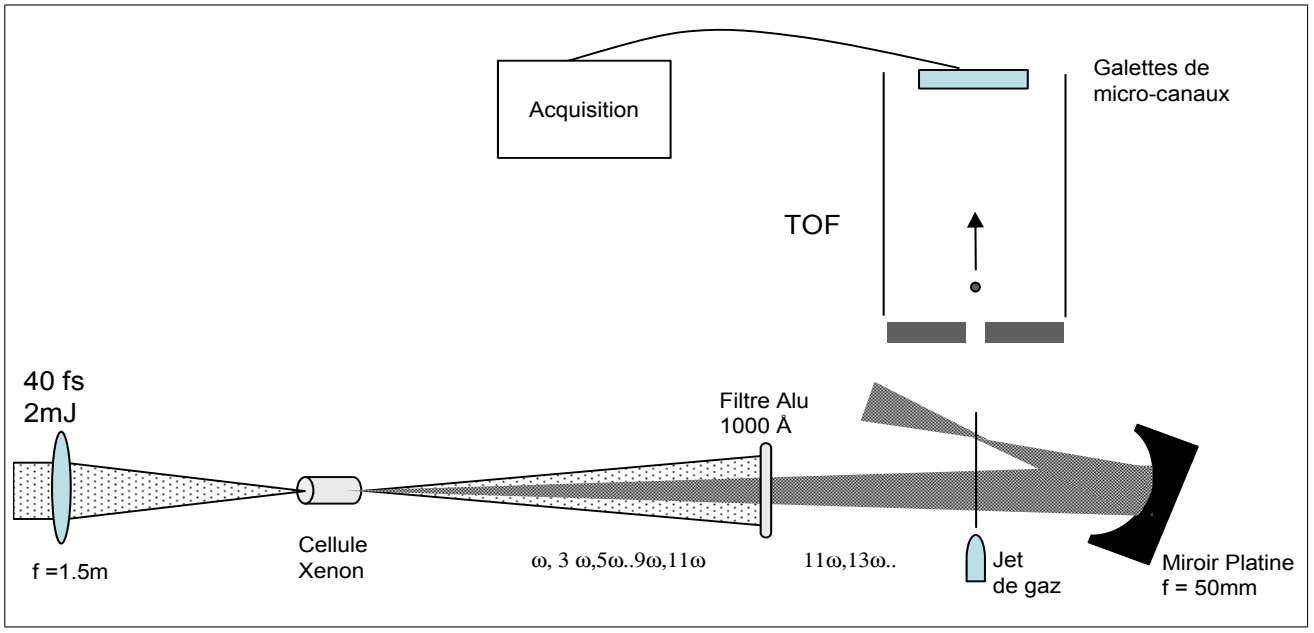


Fig. III.16 : *Dispositif expérimental pour l'observation d'une transition à 2 photons VUV.*

Spectromètre à temps de vol

Les ions formés au point focal des harmoniques sont accélérés sous une différence de potentiel, de typiquement 600 V. À la sortie de la grille A_1 (cf. figure III.17), ils possèdent tous la même énergie cinétique $\frac{1}{2}mv^2 = q(V_1(z)-V_2)$. Les ions de masses différentes ont des vitesses distinctes qu'ils vont conserver dans le tube de vol (le tube est une zone équipotentielle). Au cours du vol, les ions avec le même état de charge vont donc se séparer et arriver sur le détecteur à des instants différents, les plus légers arrivants les premiers. Le temps de vol des ions s'écrit :

$$t_{tof} \approx t_0 + (L_1 + \frac{L_2}{2})\sqrt{\frac{2m}{q(V_1(z) - V_2)}} \tag{III.16}$$

Où t_0 est un délai inhérent au système d'acquisition, m est la masse de l'ion, q est la charge de l'ion. La calibration du TOF s'effectue en suivant le temps de vol d'une espèce ionique en fonction de la tension accélératrice V_2. On obtient la loi empirique suivante pour les ions créés au foyer du faisceau :

$$t_{tof}(\mu s) \approx 0{,}798 + 0{,}436\sqrt{\left(\frac{2m}{qV_2}\right)_{[\mu s^2.m^{-2}]}} \tag{III.17}$$

Contrairement aux électrons, la collection des ions dans la zone sensible (zone définie par la géométrie du TOF) atteint pratiquement les 100 % et au niveau des galettes de micro-canaux l'efficacité est de 50% soit une efficacité globale de 50% pour la détection des ions.

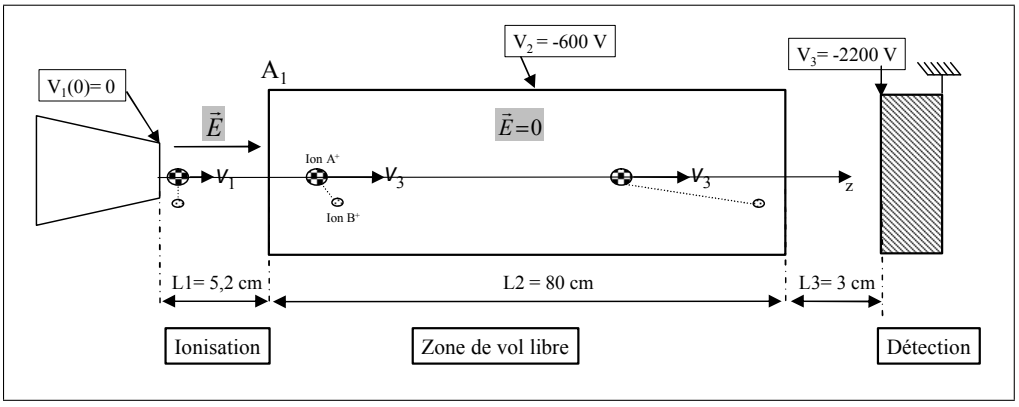


Fig. III.17 : *Spectromètre à temps de vol. L'ion A^+, plus lourd que l'ion B^+, a un temps de vol plus long que l'ion B^+.*

2.3.2 Caractéristiques du flux VUV

Spectre

Les harmoniques sont générées dans le xénon. Le dispositif expérimental ne permet pas de faire une mesure du spectre des harmoniques, ni d'estimer par une mesure directe le nombre de photons par harmonique. On utilise le spectromètre pour optimiser le flux harmonique : on maximise le signal détecté par les galettes de micro-canaux dû à l'ionisation simple du gaz présent dans la zone sensible. La cellule est placée 10 mm avant le foyer du faisceau infrarouge. La pression dans la cellule est d'environ 10 $mbar$ et l'énergie incidente sur la cellule est comprise entre 1,3 et 2,7 mJ. Le filtre en aluminium dont la transmission expérimentale est représentée sur la figure III.18, coupe les harmoniques basses jusqu'à l'harmonique 11. Sur cette même figure est représentée la réflectivité théorique du miroir de platine en incidence normale.

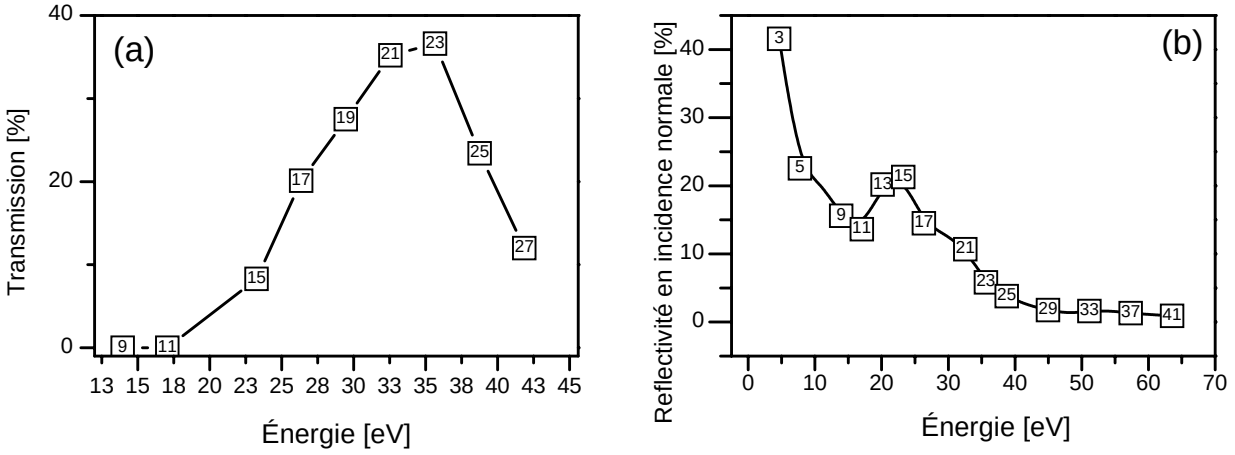


Fig. III.18 : *(a) Transmission expérimentale d'un filtre en aluminium d'épaisseur 1500 Å en fonction de l'énergie des photons incidents.*
(b) Réflectivité théorique du miroir en platine pour une incidence normale en fonction de l'énergie des photons incidents d'après [Palik 85]. Les ordres des harmoniques sont indiqués sur la courbe.

Un spectre des harmoniques produites dans le xénon est représenté sur la figure III.19 mesuré par le spectromètre à temps de vol. Cette mesure n'a pas été effectuée dans le temps imparti pour l'expérience. Les conditions expérimentales sont presque similaires : la cellule est identique, elle est située à environ 10 mm avant le foyer du laser. La pression est de 10 $mbar$ et l'énergie incidente de 1,6 mJ. En trait plein et épais, le spectre est corrigé de la réponse du filtre en aluminium d'épaisseur 1500Å et du miroir en Platine, en trait plein et fin, le spectre est corrigé de la réponse expérimentale du filtre en aluminium uniquement.

Les harmoniques d'ordres 13 à 21 sont les contributions majeures du rayonnement VUV au foyer.

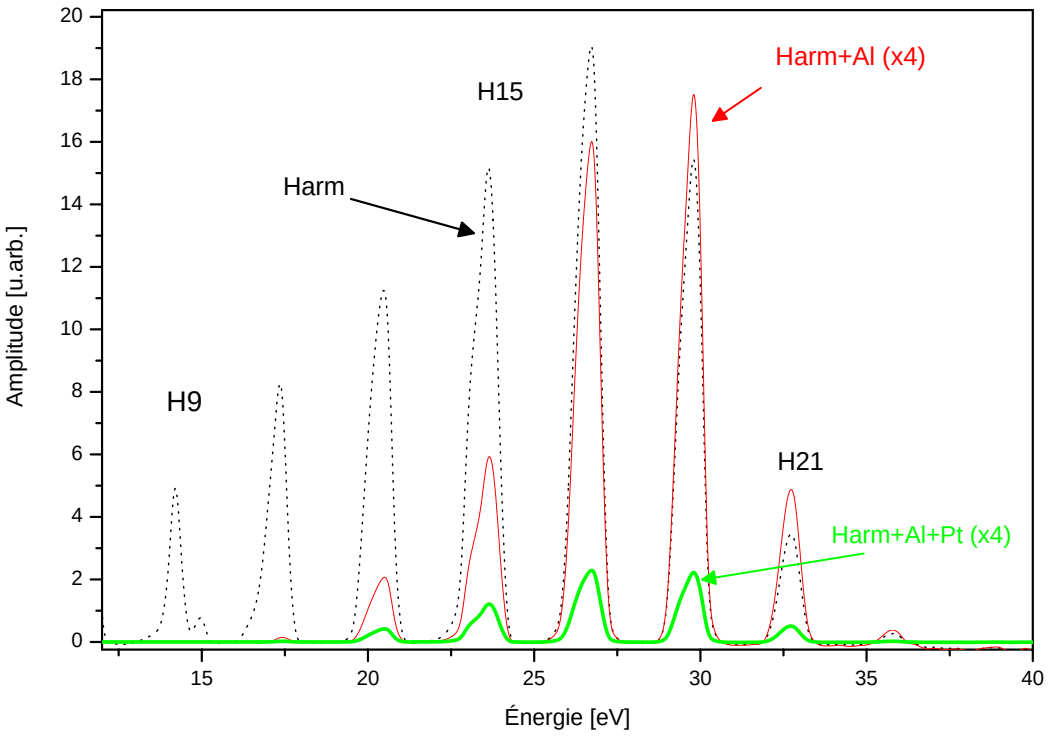


Fig. III.19 : *Spectres harmoniques générés dans le xénon. En sortie de la source harmonique(trait pointillé). Après le filtre en aluminium (× 4) (trait plein fin). Après le filtre en aluminium et le miroir en platine (× 4) (trait plein épais).*

Caractéristiques spatiales

Sur le miroir de focalisation, la demi-largeur du faisceau en $1/e^2$ est d'environ $w_1 = 1.3\,mm$. On en déduit le diamètre du waist du faisceau VUV focalisé à environ $w_0 \approx 1\ \mu m$. La distance entre la source harmonique et le miroir est d'environ 1 m. Le paramètre confocal pour l'harmonique 15 ($\lambda = 53\,nm$) est égal à $b = 2\,z_r = 157\,\mu m$.

2.3.3 Résultats expérimentaux

Le premier gaz utilisé pour la détection dans le TOF fut de l'argon. L'avantage de ce gaz est d'avoir principalement 1 isotope nettement majoritaire, facilitant l'exploitation des résultats.

Dans un premier temps, sans gaz dans la cellule et sans filtre en aluminium, nous avons utilisé la simple et la double ionisation multiphotonique de l'argon avec le faisceau IR pour repérer les temps de vol des ions Ar^+ (17,35 μs) et Ar^{2+} (12,30 μs) créés au foyer du faisceau

IR.
Le potentiel de simple ionisation de l'argon est de 15,8 eV, les principales harmoniques (13 à 21) ont des énergies supérieures à 20 eV. Avec le faisceau VUV, l'ionisation simple de l'argon se fait essentiellement par absorption d'un photon VUV. Le signal d'ions Ar^+ représenté sur la figure III.21 montre un premier pic avec un temps de vol de 17,38 μs correspondant au temps de vol obtenu avec le faisceau IR c'est-à-dire au foyer du faisceau refocalisé et un second pic avec un temps de vol plus court de 17,05 μs. Ce second pic provient principalement de l'interaction du faisceau direct traversant la zone sensible et du gaz d'argon.
Le faisceau harmonique direct et le faisceau refocalisé sont séparés spatialement, par conséquent les ions créés par le faisceau direct et le faisceau refocalisé sont sur différentes équipotentiels. En sortie de la zone d'accélération, la vitesse des ions est différente. Les ions issus de l'interaction du faisceau direct avec le gaz ont un temps de vol plus court que ceux créés au foyer du faisceau refocalisé ce qui permet de les discriminer (cf. figure III.20).

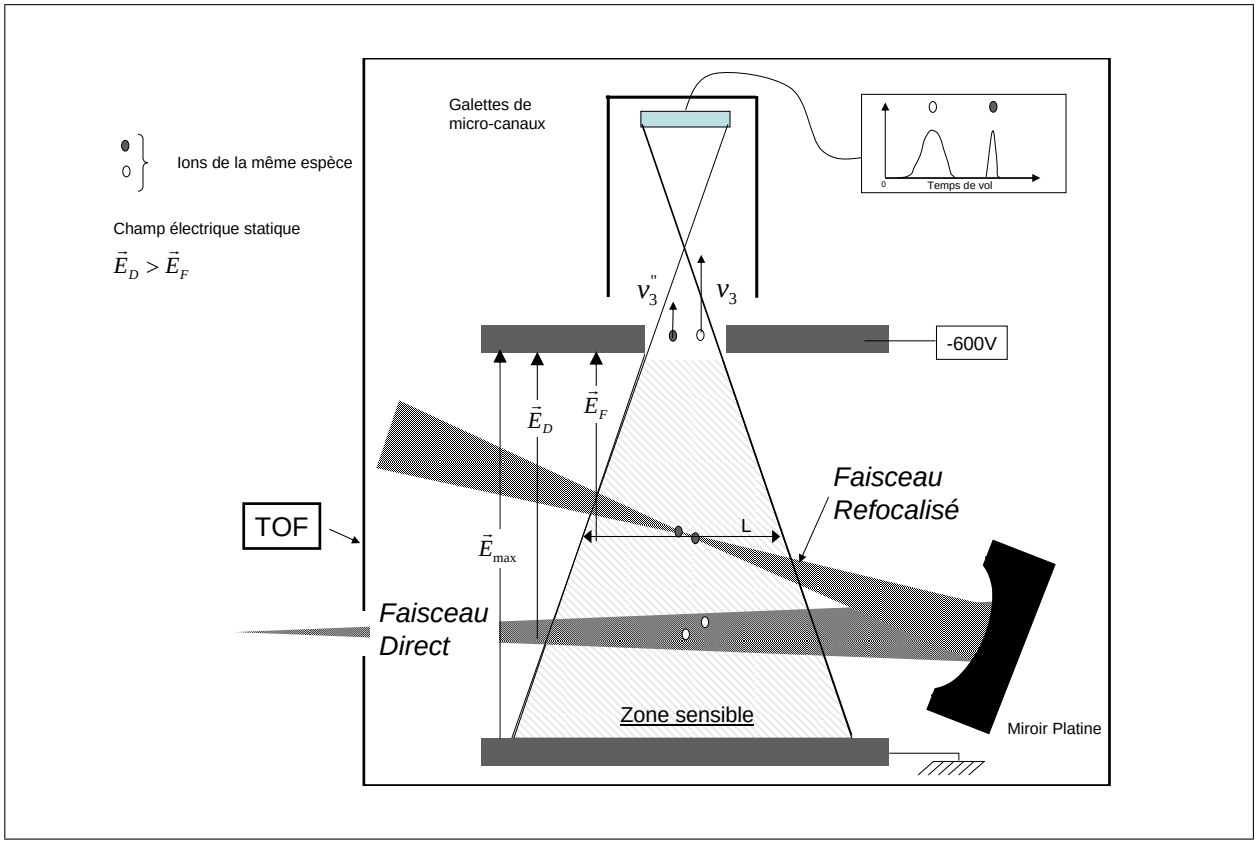


Fig. III.20 : *Zone sensible dans le TOF. Des ions créés dans la zone sensible sur différentes équipotentielles ont des temps de vol différents. La longueur de la zone sensible au foyer est L =1,5 mm.*

L'ionisation simple par absorption de 1 photon VUV de l'argon est un moyen d'estimer le nombre de photons intégré par harmonique. Ces ions sont principalement produits par le faisceau direct et non par le faisceau refocalisé. Les principales harmoniques pouvant ioniser le gaz sont les harmoniques 13 à 21, soit 5 harmoniques. Les harmoniques d'ordres plus élevés (q>21) ont une amplitude plus faible et sont négligées dans le processus d'ionisation.
La section efficace moyenne (sur H13 à H21) $\sigma^{(1)}_{(Ar \Rightarrow Ar^+)}$ est égale à environ 3,5.10^{-17} cm^2 [Samson *et al.* 02]. Le nombre d'ions détectés est de 15 ions/tir par le faisceau direct, en considérant une efficacité de détection de 50 %, le nombre d'ions produits est de 30 ions/tir. La pression dans la zone sensible est de 1,2.10^{-6} $mbar$. Le nombre de *photons par harmonique après* le filtre en aluminium est d'environ 3,5.10^7 (on suppose que toutes les harmoniques ont la même amplitude). Avec une réflectivité moyenne de 10% du miroir en platine pour les harmoniques considérées et une impulsion VUV de 10 fs, l'éclairement estimé au point focal de la source harmonique ($w_0 \approx 1\ \mu m$) (harmoniques 13 à 21) est 4.10^{11} W/cm^2.

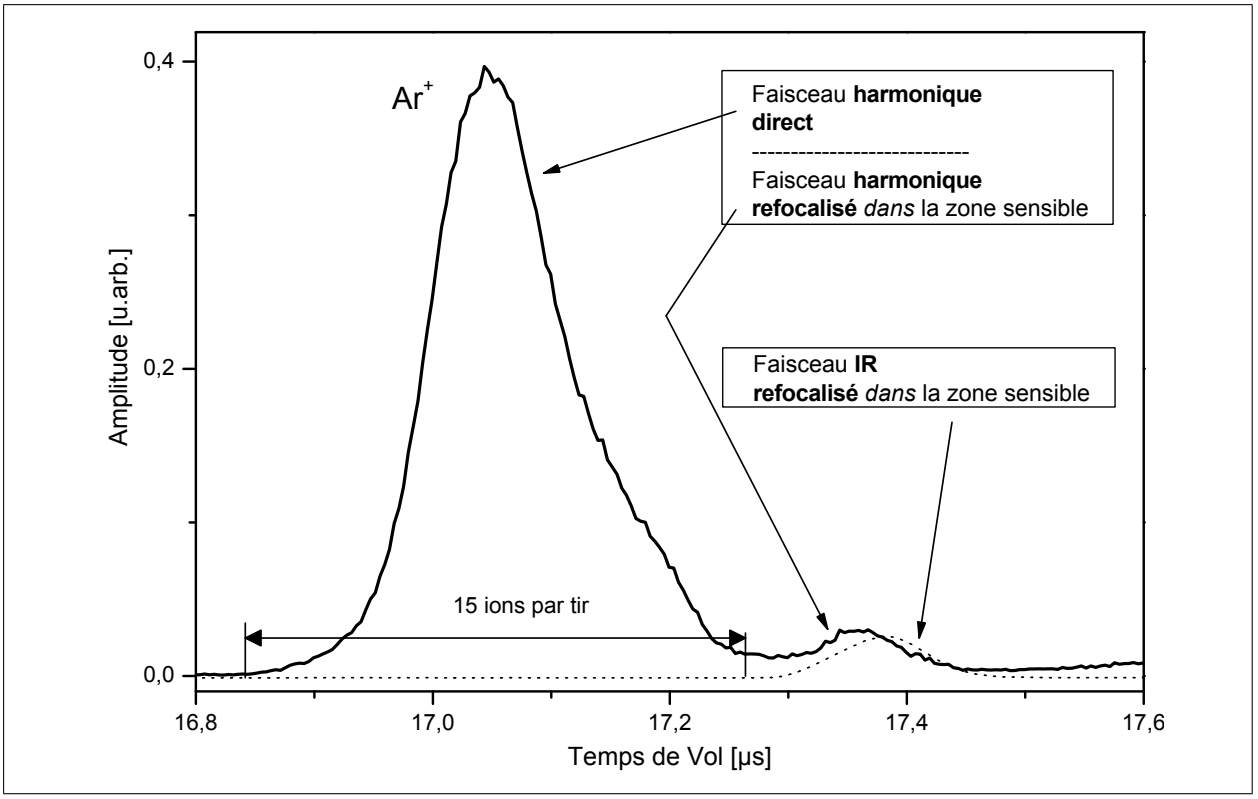


Fig. III.21 : *Temps de vol de Ar^+. Signal d'ions dû au faisceau harmonique refocalisé dans la zone de détection (z=0 mm, P(Ar)=1,2.10^{-6} mbar) (trait plein). La pression dans la cellule remplie de xénon est P(Xe)=8 mbar. L'énergie laser incidente sur la cellule est de 3 mJ.*
Signal d'ions dû au faisceau IR refocalisé dans la zone de détection (z=0 mm, P(Ar)=3.10^{-7} mbar) (trait pointillé)

Pour isoler le processus de double ionisation non linéaire à 2 photons VUV, il est impératif d'éliminer les processus de double ionisation impliquant le champ infrarouge et les harmoniques non désirées. Ces processus sont :

1-► L'ionisation multiphotonique due aux photons infrarouges.

2-► L'ionisation impliquant des photons VUV et IR.

3-► L'ionisation multiphotonique impliquant des harmoniques basses.

4-► L'ionisation à 1 photon avec des harmoniques hautes.

Le champ laser et les harmoniques basses sont éliminés essentiellement par le filtre en aluminium. Pour confirmer que notre système n'est pas perturbé par le champ infrarouge résiduel, nous vérifions qu'aucun signal d'ions n'apparaît lorsque le processus de génération d'harmoniques est stoppé (cellule sans gaz générateur) et le filtre en aluminium inséré.
Les harmoniques hautes impliquées dans un processus de double ionisation à 1 photon de l'argon ont des ordres supérieurs à 29. Ces harmoniques hautes sont générées peu efficacement dans le xénon et d'autre part le cœfficient de réflexion sur le miroir en platine est inférieure à 5% pour ces harmoniques. Au foyer du faisceau VUV, leurs contributions sont donc négligeables.

La figure III.22 représente un spectre en temps de vol des ions Ar^{2+} obtenu avec le flux harmonique. Le faisceau VUV est refocalisé dans la zone sensible (position du miroir en platine z=0 mm). La configuration de l'expérience est telle que l'on détecte deux signaux d'Ar^{2+}. Nous allons démontrer que le signal provenant du faisceau VUV direct avec un temps de vol de 12,06 μs est issu de la double ionisation à 1 photon de l'argon et que le signal du au faisceau VUV refocalisé avec un temps de vol de 12,20 μs est issu de la double ionisation à 2 photons de l'argon.

Ar^{2+}, faisceau direct

Pour le signal d'ions Ar^{2+} provenant du faisceau direct, on détecte environ 0,05 ions/tir. Il peut provenir a priori de l'absorption de 1 ou de 2 photons VUV, il semble toutefois que ce dernier cas soit peu plausible.
La double ionisation de l'argon par absorption de 1 photon VUV requiert des harmoniques d'ordre 29 et supérieur. En considérant le signal issu d'une transition à 1 photon et une section efficace de 3.10^{-17} cm^2, le nombre de photons serait approximativement de $1{,}5.10^4$ dans la zone d'interaction. Dans le spectre harmonique (cf. figure III.19) on ne les distingue pas, cependant elles peuvent être générées à partir des ions Xe^+. En outre, d'après la loi de coupure l'éclairement nécessaire pour générer l'harmonique d'ordre 33 dans le xénon est

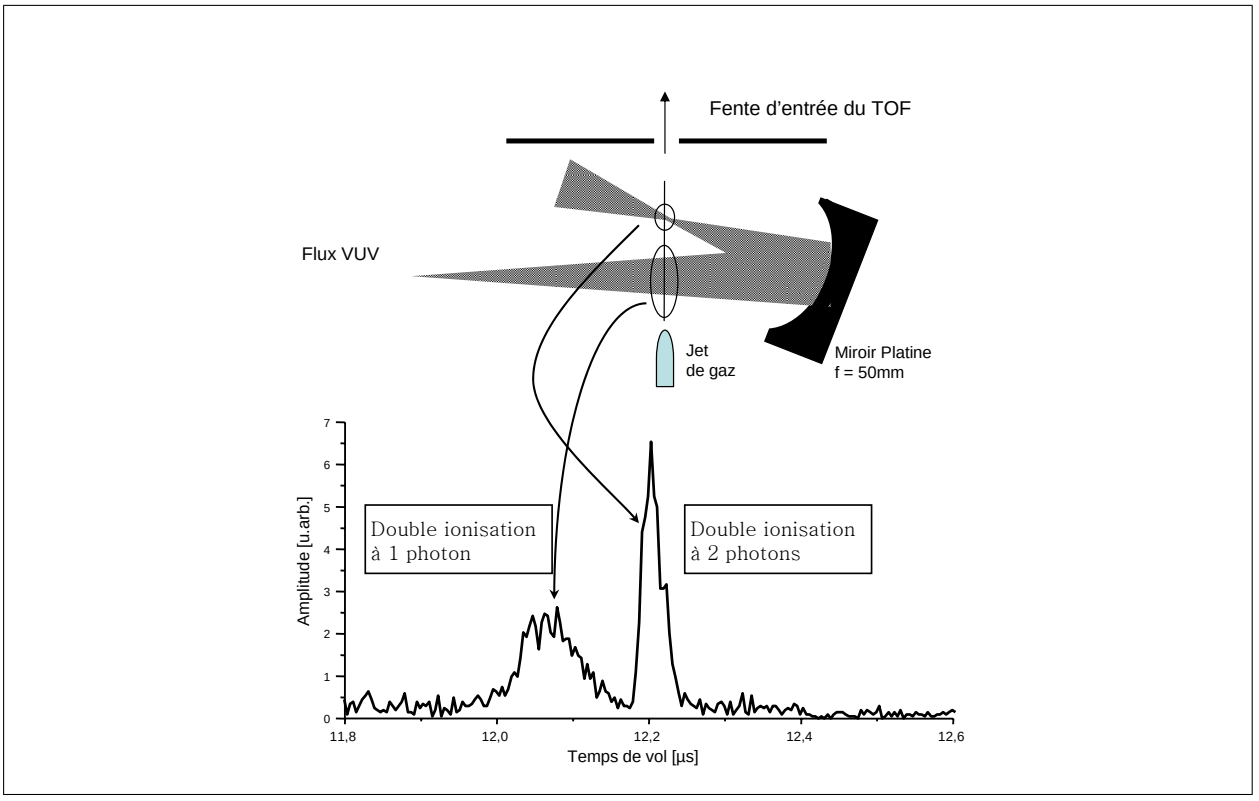


Fig. III.22 : *Temps de vol de Ar^{2+}. Le faisceau harmonique refocalisé se trouve dans la zone de détection (z=0 mm). La pression dans la zone d'interaction est P(Ar)=7.10^{-5} mbar. La pression dans la cellule remplie de xénon est P(Xe)=8 mb. L'énergie laser incidente sur la cellule est de 3 mJ.*

d'environ 2.10^{14} W/cm^2. Or avec une énergie de 2,5 mJ sur cible, une taille de faisceau en entrée de la cellule de 250 μm et une impulsion de durée 40 fs, l'éclairement est de l'ordre de 2,5.10^{14}W/cm^2. Enfin, une transition non linéaire à deux photons semble très peu probable puisque le flux de photons ($ph/cm^2.s$) est au moins 1000 fois plus faible qu'au foyer de la source harmonique. Ces hypothèses privilégient une transition à 1 photon.

Ar^{2+}, faisceau refocalisé

Une transition par absorption de 1 photon dépend essentiellement du nombre de photons présents dans la zone de détection alors qu'un processus à deux photons dépend de l'éclairement VUV. La vérification de la présence d'un processus non linéaire consiste à déplacer le miroir longitudinalement. Ce déplacement permet de faire varier l'intensité dans la zone sensible. Cette translation ne change pas l'efficacité de collection des ions par le système puisque d'une part la taille du faisceau harmonique reste encore inférieure à la zone de détection et d'autre part le léger déplacement latéral de la zone de création des ions dans le

potentiel accélérateur est minime (pour un déplacement longitudinal de 6 mm du miroir, le déplacement latéral est estimé inférieur à 0,3 mm).
On observe alors une disparition complète du signal d'ions provenant du faisceau refocalisé lorsque le foyer est déplacé hors de la zone sensible (position du miroir en platine z= 6 mm). En revanche le signal d'ions dû au faisceau harmonique qui ne dépend pas de l'éclairement mais uniquement du nombre de photons traversant la zone de collection reste inchangé (cf. figure III.23).
Le faisceau harmonique refocalisé ionise deux fois l'argon par absorption de deux photons VUV.

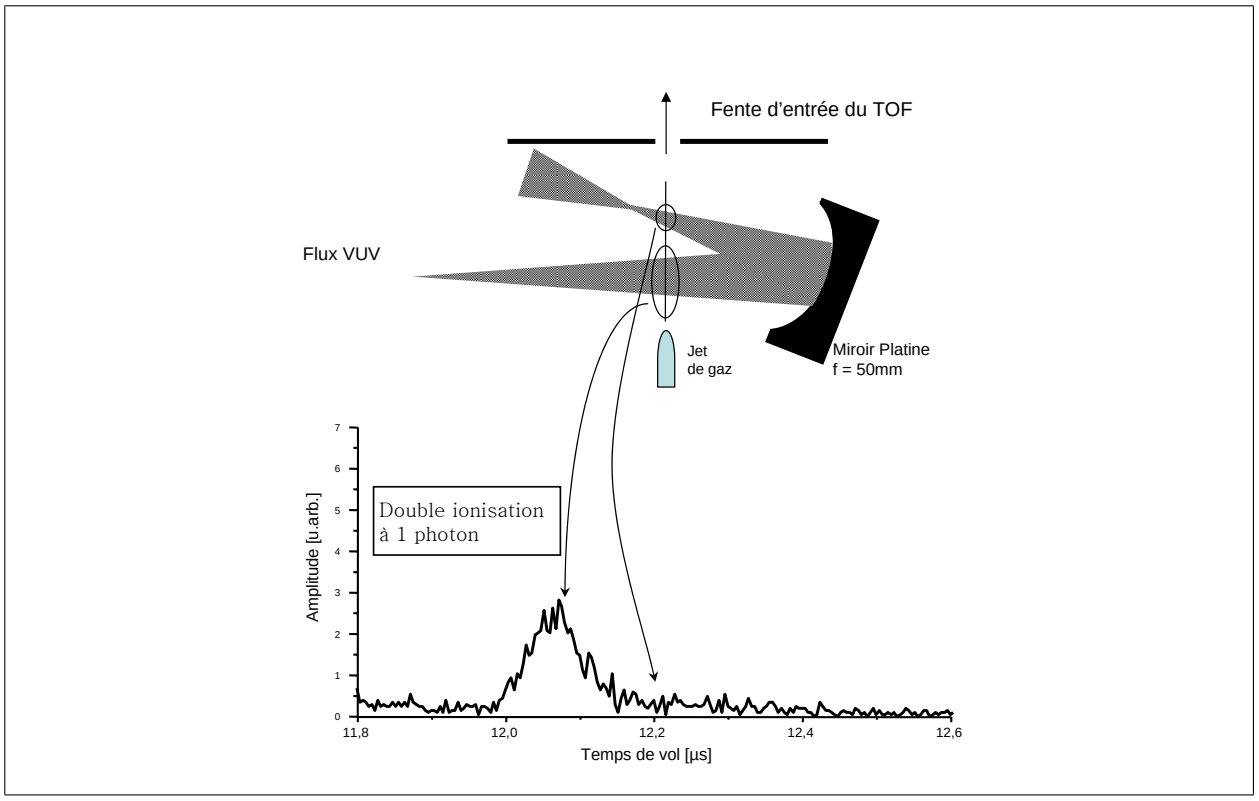


Fig. III.23 : *Temps de vol des ions Ar^{2+}. Le faisceau harmonique refocalisé se trouve hors la zone de détection (z=6 mm). La pression dans la zone sensible est P(Ar)=7.10^{-5} mbar.La pression dans la cellule remplie de xénon est P(Xe)=11 mbar. L'énergie laser incidente sur la cellule est de 3 mJ.*

Ionisation séquentielle ou directe ?

Dans nos expériences, la distinction entre l'ionisation directe et l'ionisation séquentielle est impossible. Néanmoins théoriquement, il est possible de connaître quel est le processus dominant.
Le flux incident dans la zone sensible s'écrit sous la forme suivante :

$$\phi(r,z,t) = \phi_0 \, \frac{w_0^2}{w(z)^2} \, \exp\left(-\frac{2\,r^2}{w(z)^2}\right) \, \exp\left(-4\,\ln 2\,\left(\frac{t^2}{\tau^2}\right)\right)$$

$$\text{Avec} \quad w(z)^2 = w_0^2\left(1+\frac{z^2}{z_r^2}\right) \qquad z_r = \frac{\pi\, w_0^2}{\lambda} \tag{III.18}$$

En considérant les variations spatio-temporelles du flux, le nombre d'ions produits provenant à l'ionisation directe est alors donné par :

$$N_{ions}^{(2dir)} = \rho\,\sigma^{(2)} \int_z\int_r\int_t \phi(r,z,t)^2\, 2\pi\, dr\, dz\, dt \tag{III.19}$$

La densité ρ est supposée homogène dans la zone sensible. On obtient alors :

$$N_{ions}^{(2dir)} = \frac{\rho\,\sigma^{(2)}}{\tau\,\lambda}\, N_{photons}^2 \sqrt{\frac{2\,\ln 2}{\pi}} \left[\arctan\left(\frac{z+L/2}{z_r}\right) - \arctan\left(\frac{z-L/2}{z_r}\right)\right]$$

$$\text{Avec} \quad N_{photons} = \phi_0\,\frac{\pi\, w_0^2}{2}\,\tau\sqrt{\frac{4\ln 2}{\pi}} \tag{III.20}$$

L est la longueur de la zone sensible (cf. figure III.20). Le nombre d'ions produits par l'ionisation séquentielle s'écrit sous la forme suivante :

$$N_{ions}^{(2seq)} = \frac{\rho\,\sigma_a^{(1)}\,\sigma_b^{(1)}}{\lambda}\, N_{photons}^2 \left[\arctan\left(\frac{z+L/2}{z_r}\right) - \arctan\left(\frac{z-L/2}{z_r}\right)\right] \tag{III.21}$$

Le nombre total d'ions détectés $N^{(2)} = \kappa(N_{ions}^{(2dir)} + N_{ions}^{(2seq)})$ avec κ constante relative à l'efficacité de détection du système. Le rapport entre l'ionisation directe et l'ionisation séquentielle en terme de probabilité s'écrit :

$$\frac{P^{(2seq)}}{P^{(2dir)}} = \sqrt{\frac{2\ln 2}{\pi}}\,\frac{\sigma_a^{(1)}\sigma_b^{(1)}\tau}{\sigma^{(2)}} \tag{III.22}$$

Avec les sections efficaces moyennes suivantes :

- $\sigma_{Ar\Rightarrow Ar^+}^{(1)} \approx 3{,}5.10^{-17}\,cm^2$ [Samson *et al.* 02].
- $\sigma_{Ar^+\Rightarrow Ar^{2+}}^{(1)} \approx 1{,}2.10^{-17}\,cm^2$ [Verner *et al.* 96].
- $\sigma_{Ar\Rightarrow Ar^{2+}}^{(2)} =?$ mais il existe $\sigma_{Xe\Rightarrow Xe^{2+}}^{(2)} = 5.10^{-50}\,cm^4.s$ [L'Huillier *et al.* 87].

Nous ne connaissons pas la section efficace de double ionisation de l'argon. Nous supposerons qu'elle est proche de celle du xénon, on obtient :

$$\frac{P_{2seq}}{P_{2dir}} = \frac{\tau_{[fs]}}{0{,}18} \tag{III.23}$$

A priori avec ces valeurs de sections efficaces, dans nos conditions expérimentales, l'ionisation séquentielle est dominante pour une impulsion de durée 10 fs.

Dans ce qui suit, à partir des données expérimentales et les formules III.20 et III.21 (pour $z = 0$), nous en déduisons le nombre d'ions créés par l'ionisation séquentielle et directe.
Les conditions expérimentales sont les suivantes : $\rho \approx 2.10^{12}\, atomes/cm^3$, $N_{photons} =$ 1,5.10^7, $w_0 = 1\ \mu m$, et L=1,5 mm. Le nombre d'ions produits expérimentalement est de 0,108. Nous obtenons les valeurs théoriques suivantes :

- Ionisation séquentielle : $N_{ions}^{(2seq)} = 0{,}1168$.
- Ionisation directe : $N_{ions}^{(2dir)} = 0{,}0009$.

La part du signal due à l'ionisation directe est très faible devant celle de l'ionisation séquentielle. D'autre part, le nombre d'ions créés par l'ionisation séquentielle est très proche du nombre d'ions mesurés.
Avec les hypothèses et les approximations que nous avons formulées, nous pouvons affirmer que le processus séquentiel est dominant dans cette expérience.

Signal Ar^{2+} en fonction de la position du miroir

Le nombre d'ions Ar^{2+} produits par tir en fonction du déplacement longitudinal du miroir (axe z) est illustré figure III.24. Les points expérimentaux sont ajustés par la courbe définie par la formule III.21 (trait plein sur la figure). Le meilleur ajustement correspond aux valeurs suivantes : $b = 2z_r = 136\mu m$ et L=1,49 mm qui sont très proches de nos estimations.

Xénon et Krypton

L'observation du signal d'ions issu de la double ionisation par absorption de 2 photons VUV, a été également effectuée avec le krypton et le xénon.
Les harmoniques sont générées également dans le xénon. La figure III.25 représente la mesure réalisée avec le xénon. Les différents pics sont les principaux isotopes du xénon (cf. tableau III.3). Tout comme avec l'argon, le signal d'ions dû à la transition à deux photons disparaît dès que le faisceau refocalisé se trouve hors de la zone sensible. La double ionisation multiphotonique en présence du champ laser se trouve également sur la figure. Le léger déplacement des pics entre le signal dû au faisceau VUV et au faisceau IR, provient des géométries différentes des faisceaux.

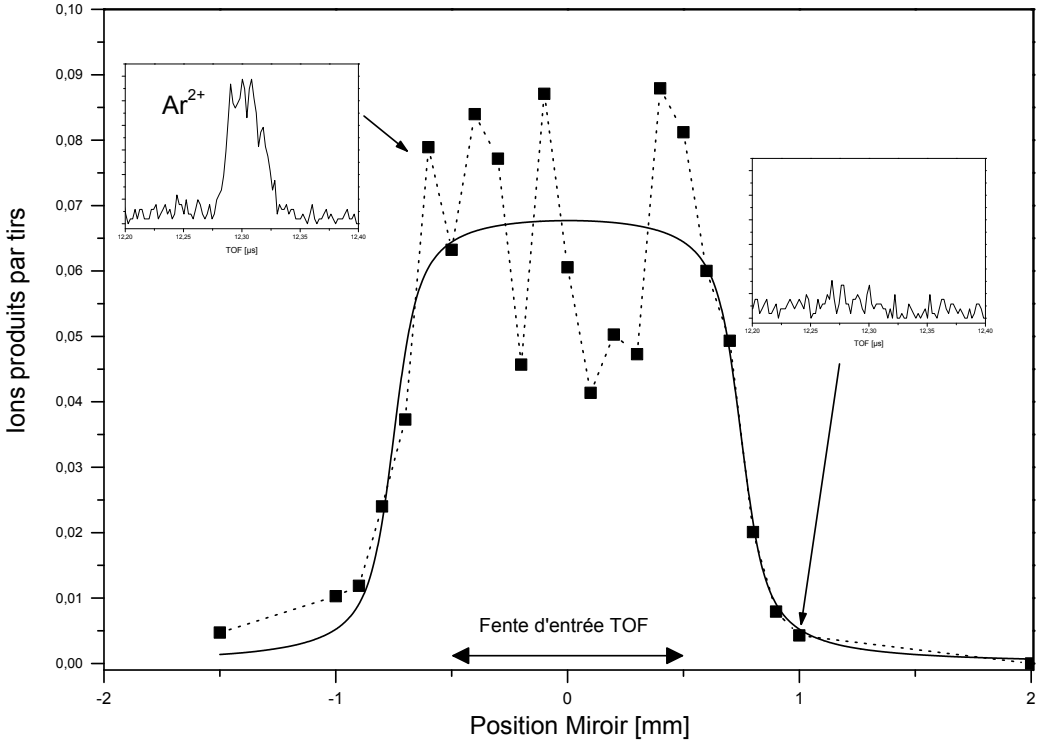


Fig. III.24 : *Nombre d'ions Ar^{2+} détectés en fonction du déplacement longitudinal du miroir en platine. Les points expérimentaux (en pointillé) sont mesurés sous les conditions suivantes : La pression dans la zone sensible est P(Ar)=8.10^{-5} mbar. La pression dans la cellule remplie de xénon est P(Xe)=9 mbar. Énergie incidente dans la cellule E= 2,6 mJ. La courbe théorique définie par la formule III.21 et donnant le meilleur ajustement est en trait plein.*

Isotopes	Abondance
^{129}Xe	26%
^{131}Xe	21%
^{132}Xe	26%
^{134}Xe	10%
^{136}Xe	9%

Tab. III.3 : *Principaux isotopes du xénon, nombre atomique = 54. Au total, il existe 8 isotopes stables.*

La figure III.25 représente la mesure réalisée avec le krypton. On observe trois pics principaux lorsque le faisceau VUV est refocalisé dans la zone sensible, le premier avec un temps

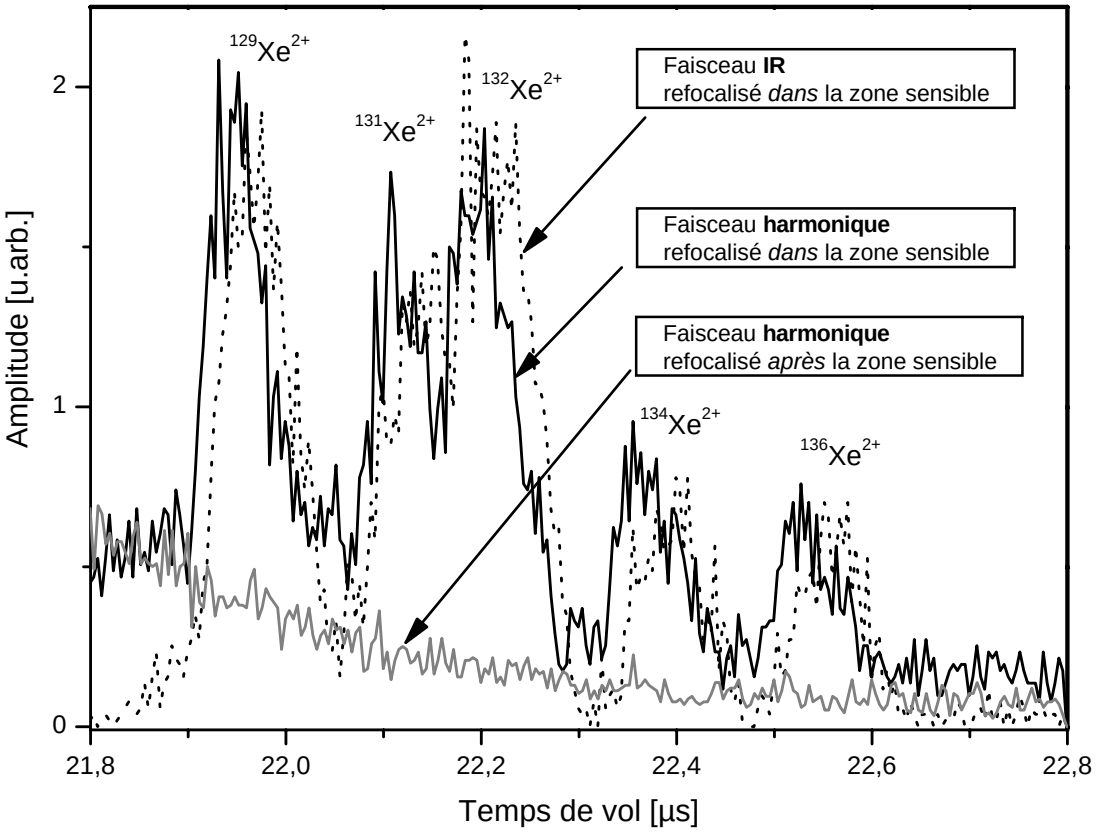


Fig. III.25 : *Temps de vol des ions Xe^{2+}. Signal d'ions (trait plein)du au faisceau harmonique refocalisé dans la zone sensible (z=0 mm). Signal d'ions (trait gris) dû au faisceau harmonique refocalisé hors de la zone sensible (z=6 mm). La pression dans la zone sensible est de P(Xe)=3.10^{-4} mbar. La pression dans la cellule de génération d'harmoniques remplie de xénon est P(Xe)=8 mbar. Énergie incidente sur la cellule E=2.5 mJ.*

Le signal d'ions dû au faisceau IR refocalisé dans la zone de détection (z=0 mm) (trait pointillé). La pression dans la zone sensible est P(Xe)=6.10^{-7} mbar.

de vol de 17,3 μs correspond à Ar^+ (gaz résiduel dans le TOF), les deux autres, avec respectivement des temps de vol de 17,73 μs et 17,94 μs, correspondent aux 2 principaux isotopes de Kr^{2+} (cf. tableau III.4). En déplaçant, le foyer harmonique hors de la zone sensible, il reste uniquement le pic d'ions issus de la simple ionisation de l'argon. La présence de l'argon dans la zone sensible montre encore une fois que le signal issu de l'ionisation simple à un photon (signal linéaire) ne dépend pas de l'éclairement du rayonnement VUV. Pour confirmer que ce pic à 17,3 μs correspond bien à Ar^+, nous avons changé le gaz dans la zone de détection du TOF par de l'argon et détecté le signal de simple ionisation avec le faisceau infrarouge seul.

La double ionisation du krypton à 1 photon issu du faisceau VUV direct est également visible

Isotopes	Abondance
^{82}Kr	11%
^{83}Kr	11%
^{84}Kr	57%
^{86}Kr	17%

Tab. III.4 : *Principaux isotopes du krypton, nombre atomique =36. Au total, il existe 5 isotopes stables.*

(cf. figure III.27). Le nombre d'ions de Kr^{2+} issu du faisceau refocalisé est de l'ordre de 0.05 ions/tir (somme des deux isotopes) avec une pression dans la zone sensible de P(Kr)=2.10^{-4} *mbar*. Le nombre d'ions détectés est à peu près identique à celui de Ar^{2+} avec une pression mesurée néanmoins plus faible P(Ar)=7.10^{-5} *mbar* dans la zone sensible. Par contre, le nombre d'ions de Kr^{2+} (1,73 ions/tir) issu du faisceau direct est beaucoup plus important que celui de l'Ar^{2+} (0.05 ions/tir). Cet écart est dû à la différence d'intensité entre les harmoniques qui ionisent deux fois le krypton (q>23) et celles qui ionisent deux fois l'argon (q>27).

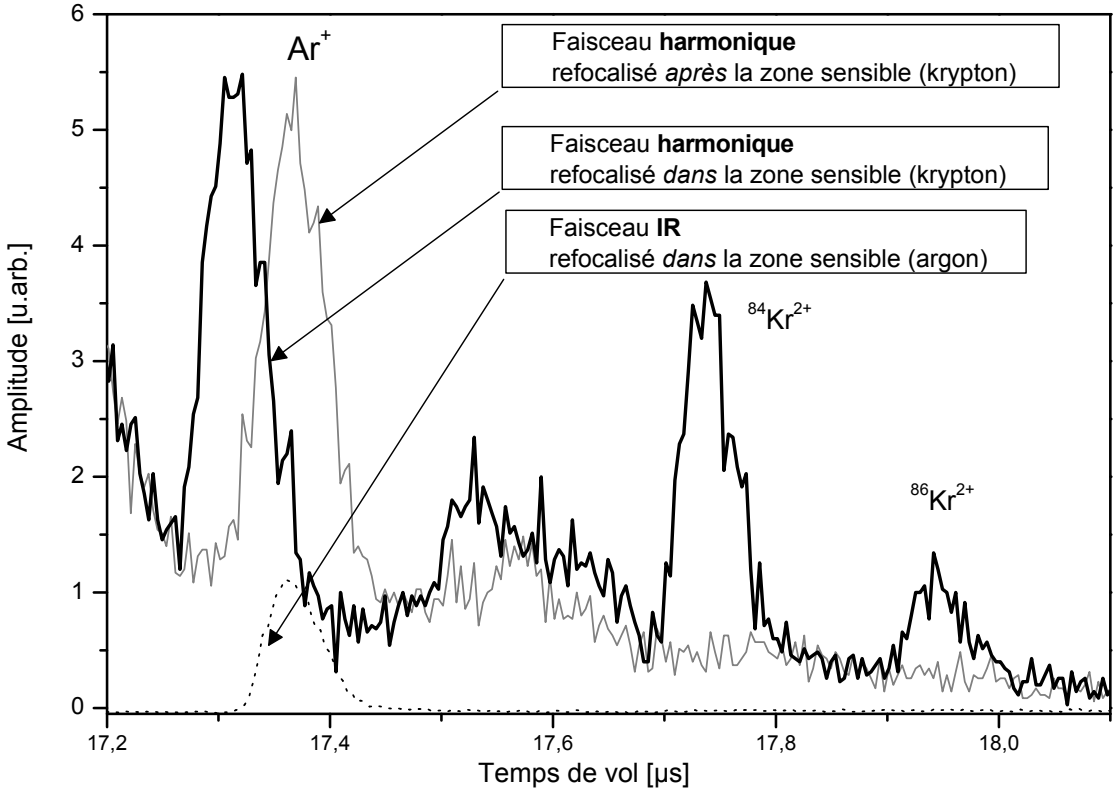


Fig. III.26 : *Temps de vol des ions Kr^{2+} et Ar^{+}. Signal d'ions (trait plein) dû au faisceau harmonique refocalisé dans la zone sensible (z=0 mm). Signal d'ions (trait gris) dû au faisceau harmonique refocalisé hors la zone sensible (z=6 mm). La pression dans la zone sensible est de P(Kr)=2.10^{-4} mbar. La pression dans la cellule de génération d'harmoniques remplie de xénon est P(Xe)=14 mbar. Énergie incidente sur la cellule E=2.5 mJ. Le signal d'ions du au faisceau IR refocalisé dans la zone de détection (z=0 mm) avec de l'argon comme gaz de détection P(Ar)=3.10^{-7} mbar.*

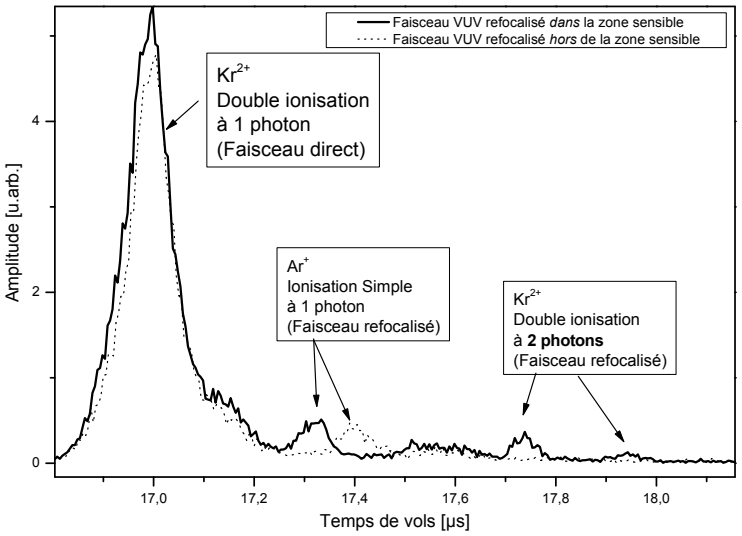


Fig. III.27 : *Temps de vol des ions Kr^{2+} et Ar^{+}. Signal d'ions (trait plein) dû au faisceau harmonique refocalisé dans la zone sensible (z=0 mm). Signal d'ions (trait pointillé) dû au faisceau harmonique refocalisé hors la zone sensible (z=6 mm). La pression dans la zone sensible est de P(Kr)=2.10^{-4} mbar. La pression dans la cellule de génération d'harmoniques remplie de xénon est P(Xe)=14 mbar. Énergie incidente sur la cellule E=2.5 mJ.*

2.4 Conclusion

Des transitions **non linéaires** dans le domaine VUV ont été observées en ionisant deux fois l'argon, le krypton et le xénon par génération d'harmoniques d'ordres élevés supérieur à 11 ($\lambda > 72\ nm$). Le niveau du signal observé est très faible, il peut être amélioré en utilisant :

- Un miroir avec une réflectivité plus importante dans le domaine VUV.
- Des harmoniques avec des énergies plus élevées. Aujourd'hui des harmoniques de l'ordre du microjoule sont réalisables, alors que l'énergie par harmonique disponible lors de cette expérience atteint seulement la nanojoule. Avec la future chaîne laser 100 Hz, 200 mJ, 30 fs en cours de réalisation au CELIA, ce niveau d'énergie par harmoniques sera bientôt à portée de main.

La part relative de l'ionisation séquentielle et directe n'est pas connue. De toute évidence, ce rapport est important pour effectuer une autocorrélation du second ordre, où le temps de vie de l'état intermédiaire doit être nul. Mais ces résultats ouvrent la voie à des expériences pompe-sonde utilisant des effets non linéaires dans le domaine VUV. L'étape suivante consiste bien évidemment à implémenter l'interféromètre attoseconde sur le spectromètre de temps de vol. Nous serons alors en mesure de discriminer les contributions des processus

séquentiel et direct. Leurs contributions relatives détermineront le contraste de la trace d'autocorrélation.

Cette étude a été effectuée en considérant le rayonnement harmonique comme incohérent. Or, il a été prouvé que la superposition d'harmoniques produit, dans le domaine temporel, un train d'impulsions attosecondes. Dans ce cas, l'intensité par impulsion est plus importante et favorise la part de l'ionisation directe [Papadogiannis *et al.* 03c]. Les calculs préliminaires ont montré qu'en considérant un train d'impulsions, on gagne un facteur 5 sur la part de l'ionisation directe à deux photons VUV.

Conclusion générale

Confinement temporel de l'émission harmonique

Nous avons testé une méthode de confinement temporel de la génération d'harmoniques d'ordres élevés par modulation de la polarisation de l'impulsion fondamentale.
Cette porte d'ellipticité est réalisée à l'aide de deux lames quart d'onde dont la particularité est un ajustement continu de la largeur de la porte sans modification du profil en intensité de l'impulsion. Le but est de créer une porte d'ellipticité de durée inférieure à la période optique du fondamental pour obtenir une seule impulsion attoseconde.
Dans un premier temps, nous avons observé dans le domaine spectral les effets du confinement. Le confinement de l'émission VUV conduit à un élargissement des spectres des harmoniques. À CELIA, nous avons observé un élargissement des harmoniques de la coupure compatible avec une porte d'ellipticité de durée 8,5 fs. Une collaboration avec le SPAM, à Saclay, nous a permis d'observer un élargissement des harmoniques du plateau et de confirmer le rôle important de la dérive de fréquence des harmoniques dépendant des conditions de génération et d'éclairement de l'impulsion fondamentale. Ensuite, au Lund Laser Center, nous avons réalisé avec l'équipe "Harmonique" une mesure temporelle des harmoniques par une méthode d'inter-corrélation montrant sans équivoque un confinement temporel de l'émission harmonique par modulation de la polarisation du fondamental.

Développement en cours et Perspectives :

La prochaine étape consiste désormais à adapter la technique pour des impulsions de 10-15 fs de manière à confiner l'émission harmonique à une seule impulsion attoseconde. Par rapport à la technique de génération attoseconde reposant sur des impulsions de 5 fs et une sélection spectrale des harmoniques de la coupure, la méthode de confinement tire parti du large spectre des harmoniques du plateau. On peut espérer gagner un ordre de grandeur sur la durée de l'impulsion attoseconde unique et atteindre le régime sub-100 as. Des expériences ont débuté en collaboration avec l'Université Technique de Vienne et le Lund Laser Center. Le but est d'observer la signature spectrale du confinement. En l'occurrence on s'attend à observer un spectre continu dans le plateau pour une durée de confinement de 2 fs et une phase absolue nulle. Pour un confinement analogue mais une phase de $\pi/2$ on doit retrouver

une modulation du spectre corrélée à la génération de deux impulsions attosecondes. Dans un deuxième temps, il faudra mettre en place une mesure temporelle par une technique de type "caméra à balayage attoseconde". En principe, une mesure de durée par autocorrélation peut aussi être envisagée. Mais il est nécessaire d'obtenir un flux harmonique suffisant pour l'observation d'un signal non linéaire. Les mesures d'efficacité de génération en présence du confinement nous diront si cette solution est réaliste ou non. Il apparaît en tout cas, au vu des résultats préliminaires, qu'une source laser délivrant des impulsions de 10 fs au delà de 1 mJ serait particulièrement bien adaptée à la génération d'une impulsion attoseconde par confinement de polarisation.

Compression d'impulsions laser haute énergie

La mise en place d'une source attoseconde au laboratoire demande une source d'impulsions IR de 10 fs. C'est dans ce cadre que nous avons développé une technique de post-compression d'impulsions. L'élargissement du spectre est réalisé par automodulation de phase dans une lame de verre et la dérive de fréquence est ensuite compensée par une ligne à dispersion négative. Lors des premiers essais à basse énergie, le spectre s'est élargi jusqu'à 96 nm permettant d'obtenir une impulsion de durée 12 fs soit 1,07 fois la limite de Fourier avec une énergie de 70 μJ à partir d'impulsions de 42 fs, d'énergie 400 μJ. Par la suite, des campagnes à haute énergie ont été entreprises, avec des résultats en dessous de nos espérances du fait de difficultés expérimentales. On a obtenu des impulsions de 19 fs avec une énergie de 1,9 mJ à partir d'impulsions de 50 fs (non limitées par leur transformée de Fourier) et d'énergie 5 mJ. Il s'avère qu'avec des énergies de l'ordre du milliJoule, le dispositif de post-compression dans une fibre creuse est plus adapté.

Perspectives :

Il nous semble qu'en raison de la transmission relativement modeste du dispositif, notre technique de post compression dans les verres soit plus adaptée pour des systèmes laser délivrant des énergies de l'ordre de 10 mJ et au delà. D'autre part, le facteur de compression demeure voisin de 3 et avec des impulsions incidentes de 30 fs on peut atteindre 10 fs mais 5 fs semblent hors de portée sauf peut-être en cascadant 2 dispositifs. En conclusion, notre méthode semble bien dimensionnée pour la production d'impulsions de 10-15 fs au-delà du millijoule à partir de la future chaîne laser 100 Hz, 200 mJ, 30 fs. Avec des énergies incidentes plus modestes, de l'ordre du mJ, la technique de post-compression dans des fibres est plus adaptée en raison de sa meilleure transmission. De plus, en raison des seuils d'ionisation élevés des gaz rares, des facteurs de compression de l'ordre de 5 peuvent être atteints

conduisant à des impulsions comprimées de 5-6 fs.

Processus non linéaire VUV

L'étude de l'ionisation double des gaz rares les plus lourds (Xe, Kr, Ar) à l'aide d'impulsions harmoniques focalisées a permis de mettre en évidence la présence d'un processus non linéaire. C'est la première fois, à notre connaissance, qu'un processus non linéaire impliquant des harmoniques d'ordres aussi élevés est mis en évidence.

Perspectives :

L'étape suivante consiste bien évidemment à implémenter l'interféromètre attoseconde sur le spectromètre de temps de vol. Nous serons alors en mesure de discriminer entre les contributions des processus séquentiel et direct. Leurs contributions relatives détermineront le contraste de la trace d'autocorrélation. Le but est d'amener ensuite progressivement cette mesure dans le régime sub-femtoseconde en confinant l'émission avec la porte de polarisation.

Annexes

Annexe A

Propagation d'une impulsion laser

Description du champ dans le domaine temporel et fréquentiel

Champ électrique

Le champ électrique $\mathbf{E}_{(r,z,t)}$ d'une impulsion est décrit par la fonction suivante :

$$\mathbf{E}_{(r,t)} = \frac{1}{2}\left[\underbrace{A_{(t)}\,e^{-i\alpha_{(t)}}\,e^{-i\omega_0 t}}_{1} \times \underbrace{A_{(r)}\,e^{i\alpha_{(r)}}}_{2} \times \underbrace{e^{i\mathbf{k}.\mathbf{r}}}_{3} + c.c\right] \tag{A.1}$$

où

1. est la composante temporelle du champ
2. est la composante spatiale transverse du champ
3. est la composante de propagation du champ

La représentation du champ électromagnétique dans le domaine temporel, soit $E_{(t)}$ est reliée par le théorème de Fourier au domaine fréquentiel (espace dual) soit $E_{(\omega)}$ par la relation suivante :

$$E_{(t)} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E_{(\omega)} e^{-i\omega t} d\omega \tag{A.2}$$

à laquelle correspond la relation réciproque.

$$E_{(\omega)} = \int_{-\infty}^{+\infty} E_{(t)} e^{i\omega t} dt \tag{A.3}$$

Phase spectrale et temporelle

Dans le domaine temporel et fréquentiel, une impulsion est décrite par son amplitude et sa phase.

$$E_{(t)} = |E_{(t)}|e^{i\phi_{(t)}}$$
$$E_{(\omega)} = |E_{(\omega)}|e^{i\Phi_{(\omega)}} \tag{A.4}$$

On définit la fréquence instantanée à l'aide de la relation suivante :

$$\omega_{(t)} = -\frac{\partial\phi_{(t)}}{\partial t} \tag{A.5}$$

Par exemple, avec une phase de la forme $\phi_{(t)} = -\omega_0 t - bt^2$, on a $\omega_{(t)} = \omega_0 + 2bt$. Cela signifie que les différentes composantes spectrales de l'impulsion n'arrivent pas simultanément, elles arrivent les unes après les autres, on dit que l'impulsion présente une dérive de fréquence linéaire.
Il existe dans le domaine spectral l'équivalent de la fréquence instantanée appelé le retard de groupe.

$$\tau_{(\omega)} = -\frac{\partial\Phi_{(\omega)}}{\partial\omega} \tag{A.6}$$

éclairement

L'éclairement, exprimé en $[W.cm^2]$, est lié à la valeur moyenne du champ au carré par la relation:

$$I = \frac{1}{Z_0}\langle E^2_{(t)}\rangle \tag{A.7}$$

où $Z_0 = \mu_0 c = (\varepsilon_0 c)^{-1} = 377\ \Omega$ est l'impédance du vide, c est la vitesse de propagation de l'onde dans le vide et μ_0 est perméabilité du vide. Pour un champ polarisé linéairement, on a :

$$I = \frac{1}{Z_0}\frac{E^2_{max}}{2} \tag{A.8}$$

Pour un champ d'ellitpicité ϵ

$$I = \frac{E^2_{max}}{Z_0}\frac{1+\epsilon^2}{2} \tag{A.9}$$

Relation temps-fréquence

Une des propriétés de la transformée de Fourier d'une impulsion est la relation existante entre la largeur temporelle et la largeur spectrale.
La largeur à mi-hauteur de la densité spectrale de puissance de l'impulsion $\partial\omega$ $[rad.s^{-1}]$ et la durée à mi-hauteur de l'impulsion en éclairement τ $[s]$ sont reliées par la relation suivante :

$$\tau.\Delta\omega \geq \zeta \tag{A.10}$$

Où ζ est une constante dépendante du profil temporel de l'impulsion. Dans le cas où les composantes fréquentielles seraient en phase, $\Phi(w) = 0$, la relation A.10 devient une relation

d'égalité , alors l'impulsion est dite limitée par sa transformée de Fourier (LTF). La largeur minimale théorique de l'impulsion est atteinte (tableau: A.1).

Profil temporel	Intensité	Largeur à mi-hauteur	ζ
Gaussien	$I_0\, e^{4\ln 2(\frac{t}{\tau})^2}$	τ	$4\ln 2$
Sécante hyperbolique	$I_0 \frac{1}{\cosh^2\left(2\ln(\sqrt{2}+1)\frac{t}{\tau}\right)}$	τ	$2\pi \times 0.315$

Tab. A.1 : *Produit temps-fréquence pour différents profils temporels*

Pour des impulsions LTF à chaque durée en intensité de l'impulsion correspond une largeur spectrale différente selon le profil temporel de l'impulsion considérée. Pour une longueur d'onde centrale de 800 nm, un récapitulatif est donné dans le tableau A.2.

	Largeur Spectrale	
Durée en intensité	Gaussien	Sécante hyperbolique
4 fs	235 nm	168 nm
10 fs	94 nm	67 nm
30 fs	31 nm	22 nm
45 fs	21 nm	15 nm

Tab. A.2 : *Profils temporels et limite du produit temps-fréquence pour* $\lambda = 800nm$

Équation de propagation

La lumière est une onde électromagnétique qui obéit aux équations de Maxwell. Dans un milieu diélectrique, homogène et anisotrope le champ électrique se propage selon l'équation A.11.

$$\Delta \mathbf{E}_{(r,t)} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}_{(r,t)}}{\partial^2 t} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{(r,t)}}{\partial^2 t} \tag{A.11}$$

où $\mathbf{P}$ est la polarisation du milieu: un matériau soumis à une onde électromagnétique $\mathbf{E}$ développe une polarisation induite qui détermine la réponse du milieu au champ extérieur. Elle se décompose en deux termes :

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL} \tag{A.12}$$

La polarisation linéaire $\mathbf{P}_L$ reste proportionnelle au champ $\mathbf{E}$. L'onde re-émise est alors de même fréquence que l'onde excitatrice. La polarisation macroscopique induite $\mathbf{P}_L$ s'exprime de façon linéaire avec le champ électrique. Dans le domaine fréquentiel la polarisation $\mathbf{P}_{L\,(r,\omega)}$ s'écrit :

$$\mathbf{P}_{L\,(r,\omega)} = \varepsilon_0 \chi^{(1)}_{(\omega)} : \mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)} \tag{A.13}$$

Où $\chi^{(1)}$ $[m.V^{-1}]$ est la susceptibilité diélectrique du milieu.
Les principaux phénomènes liés à la polarisation linéaire sont : indice de réfraction, dispersion, absorption ou amplification, biréfringence.

La polarisation non linéaire du milieu $\mathbf{P}_{NL}$ apparaît pour un fort éclairement lumineux. Le mouvement d'oscillation de l'électron autour de sa position d'équilibre devient anharmonique. De ce fait, dans le domaine fréquentiel la polarisation $\mathbf{P}_{NL\,(r,\omega)}$ est développée en fonction des puissances croissantes du champ électromagnétique $\mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)}$:

$$\mathbf{P}_{NL\,(\mathbf{r},\omega)} = \varepsilon_0 \chi^{(2)}_{(\omega)} : \mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)}\mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)} + \varepsilon_0 \chi^{(3)}_{(\omega)} : \mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)}\mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)}\mathbf{E}_{(\mathbf{r},\omega)} + ... \tag{A.14}$$

Au cours de la propagation du faisceau laser suivant la direction z, le profil transverse du champ évolue peu. Si l'on néglige son évolution, il s'ensuit :

$$\Delta \mathbf{E}_{(r,t)} \approx \frac{\partial^2 \mathbf{E}_{(r,t)}}{\partial^2 z} \tag{A.15}$$

L'équation de propagation devient :

$$\frac{\partial^2 \mathbf{E}_{(r,t)}}{\partial^2 z} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 \mathbf{E}_{(r,t)}}{\partial^2 t} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial^2 t}\left(\mathbf{P}_{L\,(r,t)} + \mathbf{P}_{NL\,(r,t)}\right) \tag{A.16}$$

On considérera une onde plane se propageant suivant l'axe z avec une polarisation linéaire suivant l'axe x :

$$\mathbf{E}_{(z,t)} = E_{(z,t)} e^{\,-i(\omega t - kz)}\mathbf{x} + c.c \tag{A.17}$$

Dans les sections suivantes, nous allons déterminer l'expression des deux contributions de la polarisation du milieu et étudier les modifications qu'elles induisent sur le champ électrique lors de sa propagation dans le matériau.

Contribution des différentes termes de l'équation de propagation

Dispersion

Dans l'équation de propagation A.16, on néglige le terme non linéaire ($\vec{P_{NL(r,t)}} = 0$). On applique l'approximation des enveloppes lentement variables, c'est-à-dire que les variations de l'amplitude E sont lentes à l'échelle d'une longueur d'onde :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial^2 z} \ll 2\,k\,\frac{\partial E}{\partial z} \tag{A.18}$$

L'équation de propagation s'écrit alors dans le domaine des fréquences :

$$k^2 E_{(r,\omega)} = \frac{\omega^2}{c^2}\,E_{(r,\omega)} \times \left(1 + \chi^{(1)}_{(\omega)}\right) \tag{A.19}$$

le vecteur d'onde est lié à la susceptibilité du milieu. On définit l'indice du milieu par la relation.

$$n^2_{(\omega)} = \chi^{(1)}_{(\omega)} + 1 \tag{A.20}$$

Ici, on ne tient pas compte de l'absorption, on considère que la partie imaginaire de $\chi^{(1)}$ est nulle. Les vecteurs d'onde se propageant dans le milieu devront vérifier la relation suivante :

$$k_{(\omega)} = \frac{\omega n_{(\omega)}}{c} \tag{A.21}$$

Une impulsion lumineuse se propageant suivant l'axe z s'écrit dans le domaine des fréquences :

$$E(z,\omega) = E(0,\omega)e^{ik_{(\omega)}z} \tag{A.22}$$

soit

$$E_{(z,t)} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E_{(z,\omega)}e^{-i\omega t}d\omega \tag{A.23}$$

En Considérant que l'indice de réfraction du milieu est constant $n_{(\omega)} = n$ on obtient alors

$$E_{(z,t)} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E_{(0,\omega)}e^{i(kz\,-\,\omega t)}d\omega = E_{(z,t-\frac{nz}{c})} \tag{A.24}$$

L'impulsion se propage sans déformation à la vitesse c/n. Pour un matériau réel, l'indice dépend de la longueur d'onde. Supposons une impulsion dont le spectre est centré en ω_0 et dont le vecteur d'onde varie peu avec ω, pour que l'on puisse effectuer un développement en série de Taylor :

$$k_{(\omega-\omega_0)} \approx k_{(\omega_0)} + k'_{(\omega_0)}\,(\omega-\omega_0) + \frac{1}{2}k''_{(\omega_0)}\,(\omega-\omega_0)^2 + ... \tag{A.25}$$

En utilisant le développement au 2ème ordre de $k_{(\omega)}$, l'expression du champ électrique dans le domaine temporel est obtenue par transformée de Fourier.

$$\mathbf{E}_{(z,t)} = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{E}_{(0,\omega)} e^{i(k_{(\omega_0)} + k'_{(\omega_0)}\Delta\omega + \frac{1}{2}k''_{(\omega_0)}\Delta\omega^2)z} e^{-i\omega t} d\omega \tag{A.26}$$

Où $\Delta\omega = \omega - \omega_0$. Après le changement de variable $\omega = \Delta\omega + \omega_0$, on a:

$$\begin{aligned} E_{(z,t)} &= A_{(z,t-k'(\omega_0)z)}\, e^{i\left(k_{(\omega_0)}z - \omega_0 t\right)} \\ \text{avec} \quad A_{(z,t)} &= \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} E_{(0,\omega)}\, e^{i\left(\frac{1}{2}k''_{(\omega_0)}\Delta\omega^2 z\right)}\, e^{-i\Delta\omega t} d\Delta\omega \end{aligned} \tag{A.27}$$

Dans le domaine temporel le champ obtenu est le produit d'une onde porteuse à la fréquence ω_0 et d'une fonction enveloppe. Dans le cas où $k"(\omega_0) = 0$, alors $E_{(z,t)}$ s'écrit sous la forme :

$$E_{(z,t)} = E_{\left(0,t-k'_{(\omega_0)}z\right)}\, e^{i(k_{(\omega_0)}z - \omega_0\, t)} \tag{A.28}$$

Les deux termes du produit se propagent donc sans déformation mais avec des vitesses différentes. La vitesse de propagation de la porteuse, appelée la vitesse de phase et notée v_φ

$$v_\varphi = \frac{\omega_0}{k_{(\omega_0)}} = \frac{c}{n_{(\omega_0)}} \tag{A.29}$$

Alors que l'enveloppe se propage à la vitesse de groupe notée v_g.

$$v_g = \frac{1}{k'_{(\omega_0)}} = \left[\frac{\partial\omega}{\partial k}\right]_{\omega=\omega_0} = \frac{c}{n_{g\ (\omega_0)}} \tag{A.30}$$

On a $k_{(\omega)} = \frac{\omega}{c}n_{(\omega)}$ et $k'_{(\omega)} = \frac{\omega}{c}\frac{\partial n}{\partial\omega} + \frac{n}{c}$ La relation entre l'indice de phase et de groupe est :

$$n_g = \omega\frac{\partial n_{(\omega)}}{\partial\omega} + n_{(\omega)} = n_{(\lambda)} - \lambda\frac{\partial n_{(\lambda)}}{\partial\lambda} \tag{A.31}$$

On remarque également que l'énergie se propage à la vitesse de groupe. En effet l'intensité s'écrit d'après l'équation A.28 $I_{(z,t)} = I_{(0,z/v_g)}$.
Considérons maintenant la quantité

$$k''_{(\omega_0)} = \left[\frac{\omega}{c}\frac{\partial^2 n}{\partial^2\omega} + \frac{2}{c}\frac{\partial n}{\partial\omega}\right]_{\omega=\omega_0} = \left[\frac{\partial}{\partial\omega}\frac{1}{v_g}\right]_{\omega=\omega_0} \tag{A.32}$$

comme étant non nulle, ce terme représente la dépendance spectrale de la vitesse de groupe, communément appelé la dispersion de vitesse de groupe. Dans le cas particulier d'une impulsion Gaussienne définie par :

$$A_{(0,t)} = e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2} \tag{A.33}$$

La transformée de Fourier de A.33 donne :

$$A_{(0,\Delta\omega)} = e^{-\left(\frac{\Delta\omega\,\tau}{2}\right)^2}\sqrt{\pi}\,\tau \tag{A.34}$$

Le champ électrique s'écrit après propagation d'une distance z:

$$E_{(z,t)} = \frac{\tau}{\widetilde{\tau}_{(z)}} e^{-\left(\frac{t-k'_{(\omega_0)}\,z}{\tau(z)}\right)^2} e^{i\Phi_{(z,t-k'_{(\omega_0)}\,z)}} e^{-i(\omega_0 t - k_{(\omega_0)} z)} \tag{A.35}$$

Avec la quantité complexe $\widetilde{\tau}_{(z)} = \tau - i\,2\,k''_{(\omega_0)}\,z$.
$\tau_{(z)}$ la durée de la Gaussienne au point z s'écrit sous la forme :

$$\tau_{(z)} = \tau\sqrt{1 + \frac{4(k''_{(\omega_0)}z)^2}{\tau^4}} \tag{A.36}$$

L'impulsion est "chirpée", elle va donc s'étaler au cours de la propagation suivant z, en fonction de la loi ci-dessus. La figure A.1 représente l'évolution de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion lors de la traversée de différents matériaux dispersifs.
La phase temporelle de l'impulsion $\Phi_{(z,t)}$ s'écrit :

$$\Phi_{(z,t)} = -2\frac{k''_{(\omega_0)}\,z\,t^2}{\left(\tau\tau_{(z)}\right)^2} \tag{A.37}$$

La fréquence instantanée s'écrit alors :

$$\omega_{(z,t)} = \omega_0 + 4\frac{k''_{(\omega_0)}\,z\,t}{\tau_0^2\tau_{(z)}^2} \tag{A.38}$$

La fréquence varie donc linéairement avec le temps. La dispersion laisse la densité spectrale inchangée, il n'y a pas de génération de nouvelles fréquences. La figure A.2 représente l'allure du champ électrique en considérant une dispersion de vitesse de groupe positive ($k''(\omega_0) > 0$). Le front avant de l'impulsion est associé aux fréquences basses (le rouge) qui se propagent plus rapidement. Sur le front arrière se situent les fréquences hautes (le bleu) qui se propagent lentement.

Automodulation de phase

On s'intéresse maintenant aux phénomènes non linéaires intervenant dans la propagation d'une impulsion ultracourte et l'on néglige la dispersion du milieu $\left(n_{(\omega)} = n\right)$. On prend en considération uniquement l'effet non linéaire d'ordre 3, $\chi^{(3)}$, lié aux effets de : génération de 3ème harmonique, mélange paramétrique à 4 ondes, et enfin celui qui nous intéresse l'effet

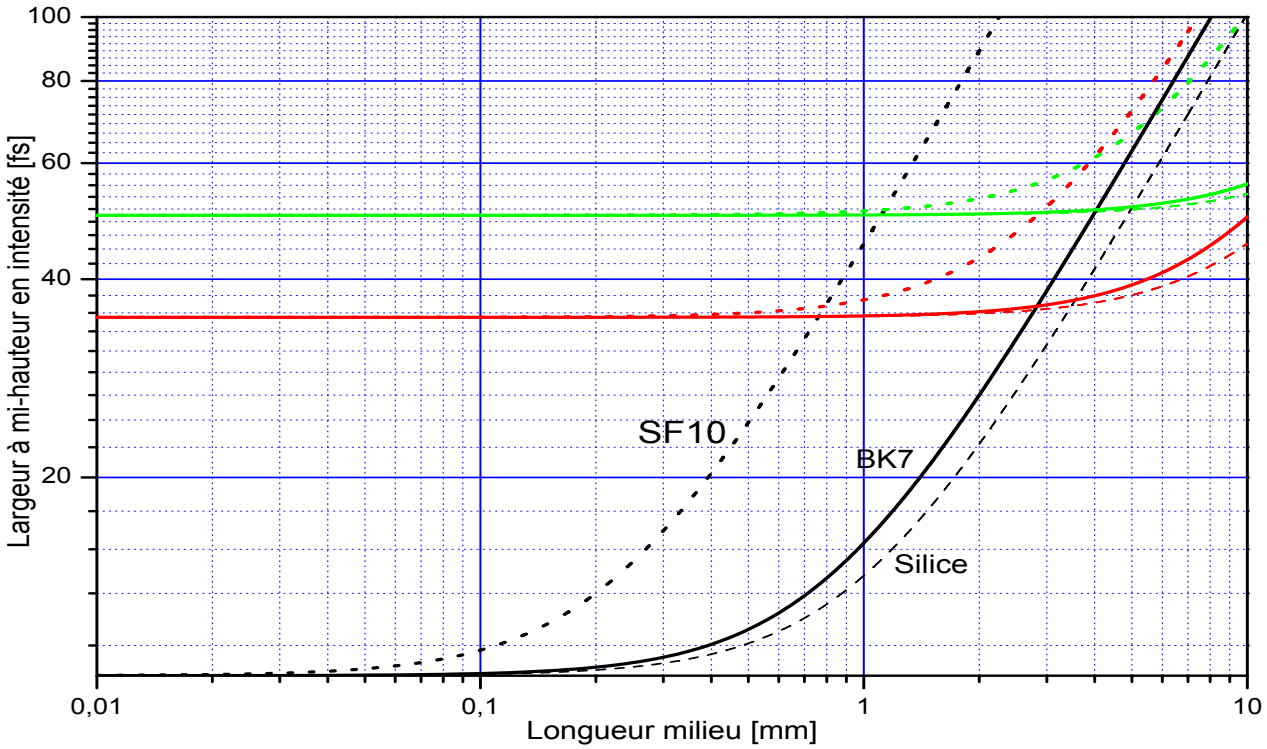


Fig. A.1 : *Élargissements temporels d'impulsions Gaussiennes de durée initiales 10,35,50 fs ($\lambda_0 =$ 800 nm) lors de la traversée de matériaux (BK7: $k"(\omega_0) = 445 fs^2/cm$, Silice$_2$: $k"(\omega_0) = 363 fs^2/cm$, SF10: $k"(\omega_0) = 1592 fs^2/cm$) en fonction de leurs longueurs respectives.*

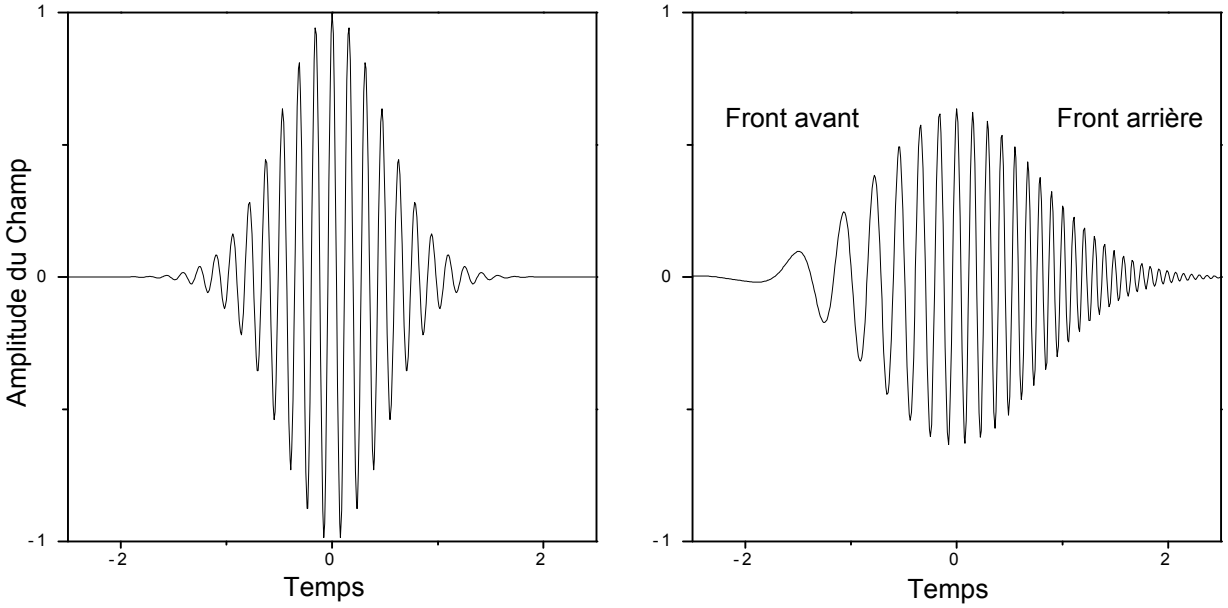


Fig. A.2 : *Champ électrique initiale et après propagation dans un milieu dispersif , on note dans le dernier cas l'étalement des fréquence et l'allongement de la durée*

Kerr optique. Les ordres supérieurs sont négligés et ainsi que processus non linéaire d'ordre 2 La polarisation non linéaire du milieu s'écrit :

$$\mathbf{P}_{NL\,(\mathbf{r},t)} = 2\,\varepsilon_0\,n\,n_2^*\,\langle E^2_{(\mathbf{r},t)}\rangle\,\mathbf{E}_{(\mathbf{r},t)} \tag{A.39}$$

où n_2^* $[m^2/V^2]$ est l'indice non linéaire du milieu. On notera d'autre part que dans l'expression ci-dessus, on ne tient pas compte du coefficient d'absorption donné par la partie imaginaire de $\chi^{(3)}$. L'effet Kerr agit sur la phase temporelle de l'onde, et a pour conséquence d'élargir le spectre en laissant inchangé le profil temporel de l'impulsion.

L'équation de propagation du champ dans un milieu non dispersif devient alors :

$$\frac{\partial^2\mathbf{E}_{(z,t)}}{\partial^2 z} = \frac{n}{c^2}\left[1 + 2\,n_2^*\,\langle E^2_{(z,t)}\rangle\right]\frac{\partial^2\mathbf{E}_{(z,t)}}{\partial^2 t} \tag{A.40}$$

La variation d'indice photoinduite introduit un terme de phase non linéaire dans l'expression du champ électrique solution de l'équation de propagation, relation : A.41. On nomme ce phénomène l'automodulation de phase puisque c'est l'intensité de l'impulsion qui induit ce déphasage non linéaire.

$$E_{(z,t)} = E_{(0,t)}e^{-i\omega_0(t - \frac{z}{c}\left[n + \,n_2^*\,\langle E^2_{(z,t)}\rangle\right])} \tag{A.41}$$

Plus communément, on écrit :

$$n_2^*\,\langle E^2_{(z,t)}\rangle = n_2\,I_{(z,t)} \implies n_2 = Z_0\,n_2^* \tag{A.42}$$

où n_2 $[m^2/W]$.
La phase non linéaire s'écrit :

$$\phi_{NL\,(z,t)} = n_2\,I_{(z,t)} \tag{A.43}$$

La phase temporelle de l'impulsion est donnée par

$$\phi_{(z,t)} = -\left(\omega_0\,t - \frac{\omega_0\,z}{c}\left[n + n_2\,I_{(z,t)}\right]\right) \tag{A.44}$$

La pulsation en sortie du milieu sera modulée par le terme suivant :

$$\omega_{(z,t)} = -\frac{\partial}{\partial t}\phi_{(z,t)} = \omega_0 \;-\frac{\omega_0\,z}{c}\left[n_2\,\frac{\partial I_{(z,t)}}{\partial t}\right] \tag{A.45}$$

La pulsation de l'onde porteuse varie au cours du temps par un terme proportionnel au coefficient non linéaire, à la dérivée temporelle de l'intensité et à la longueur du milieu. Dans le cas où l'indice non linéaire n_2 serait positif, le front avant de l'impulsion subit une variation de fréquence négative et le front arrière une variation positive. L'automodulation de phase crée de nouvelles fréquences étalées dans l'impulsion. La figure A.4 montre cette variation de fréquence dans le cas d'une impulsion Gaussienne.

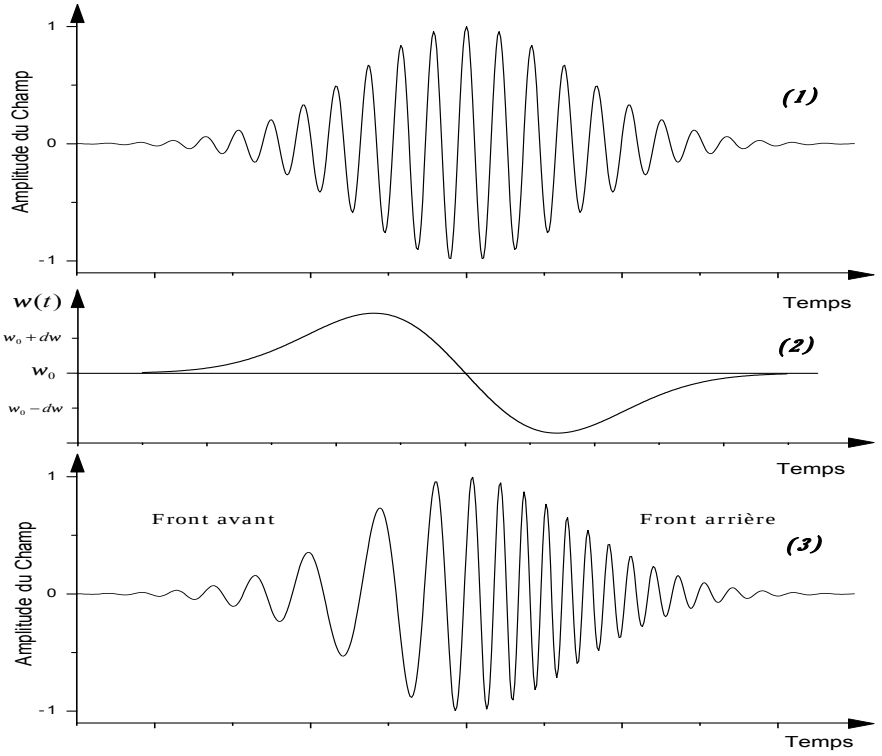


Fig. A.3 : *Impulsion se propageant à travers un milieu à effet Kerr*
(1) Le champ électrique initial. (2) La modulation de la fréquence subie par le champ électrique après propagation à travers le milieu. (3) Le Champ électrique après propagation

L'automodulation de phase élargit le spectre de l'impulsion, sans pour autant raccourcir la durée de l'impulsion puisque les nouvelles fréquences créées ne sont pas en phase. En général, le spectre dépend du profil temporel considéré et également de la dérive de fréquence initiale de l'impulsion. La figure montre les spectres pour une impulsion Gaussienne LTF pour différentes valeurs de $\phi_{NL}\max$.

Autofocalisation

On a supposé initialement que le profil spatial du faisceau ne subissait pas de déformation au cours de sa propagation et par conséquent nous avons négligé les variations du champ suivants ces coordonnées transverses. L'effet non linéaire dû à la variation de l'intensité de l'impulsion existe aussi dans le domaine spatial. Dans le cas d'un profil spatial Gaussien, le chemin optique parcouru par l'onde électromagnétique dans le matériau est plus important au centre du faisceau qu'aux bords ($n = n_0 + n_2 I_{(x,y,z,t)}$). La surface de l'onde tend par cet effet à devenir concave. Le milieu traversé est équivalent à une lentille convergente. Cet effet communément appelé autofocalisation, converge rapidement puisque la focalisation du faisceau au cours de la propagation accentue le processus. L'effet d'autofocalisation est

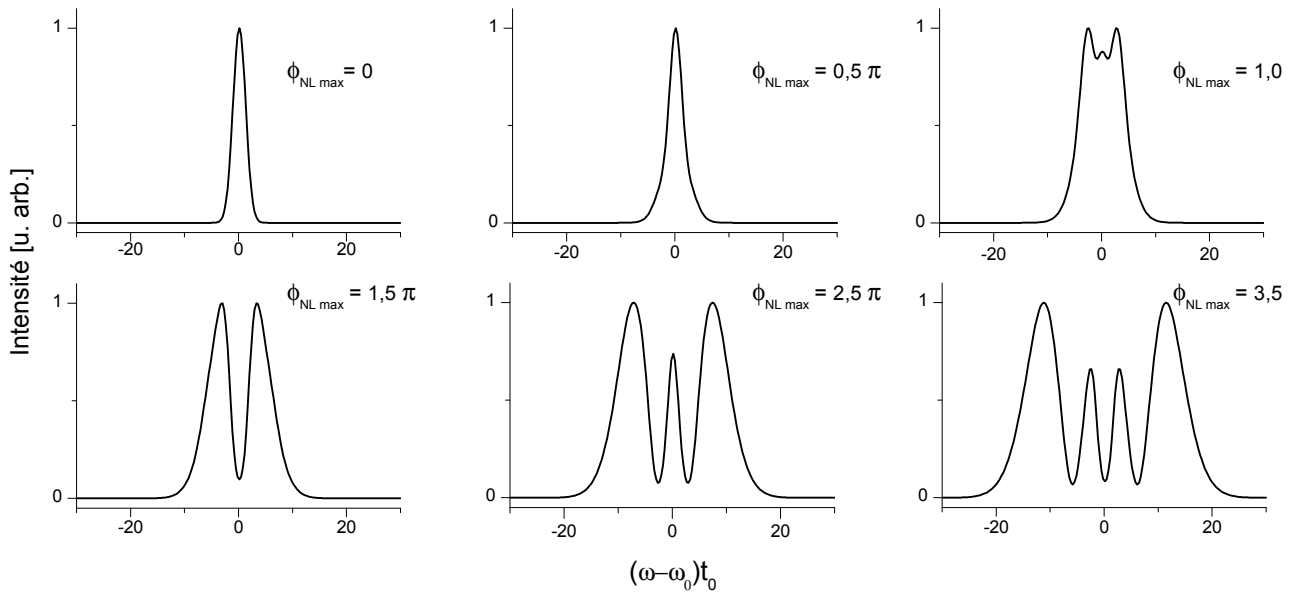


Fig. A.4 : *Élargissent spectral par automodulation de phase pour une impulsion LTF de 50 fs. Les spectres sont annotés par la valeur maximale de ϕ_{NL}.*

Matériau	Silice(1)	Quartz(2)	Ti:Sa(1)	BK7(3)	CaF_2(4)	SF10
n_2 $m^2/W]$	$2.76.10^{-20}$	$2{,}8.10^{-20}$	$3{,}09.10^{-20}$	$3{,}45.10^{-20}$	$1{,}9.10^{-24}$	
Gaz	Xe(5)	Air(1)	Kr(5)	Ar(5)	Ne(5)	He(5)
$n_2/P\,[m^2/W.bar]$	$8{,}6.10^{-23}$	$5{,}3.10^{-23}$	$2{,}78.10^{-23}$	$0{,}98.10^{-23}$	$0{,}06.10^{-23}$	$0{,}04.10^{-23}$

Tab. A.3 : *Indices non linéaire de matériaux et de gaz à λ = 800 nm.*
(1) *[Le Blanc 93].* (2) *[Altucci* et al. *98].* (3) *[Huang* et al. *92].*
(4) *[Millam* et al. *77].* (5) *[Nibbering* et al. *77].*

directement en concurrence avec la diffraction naturelle du faisceau, on définit une puissance critique $P_{cr} = \lambda^2/8\pi n\, n_2$ qui permet de différencier ces deux régimes. En définissant P_0 comme la puissance crête du faisceau, si $P_0 = P_{cr}$, l'autofocalisation et la diffraction se compensent : le faisceau reste identique. Par contre, si $P_0 > P_{cr}$, l'effet non linéaire est prédominant, il y a autofocalisation du faisceau, ce cas là est représenté dans la figure A.5 suivant une coordonnée transverse.

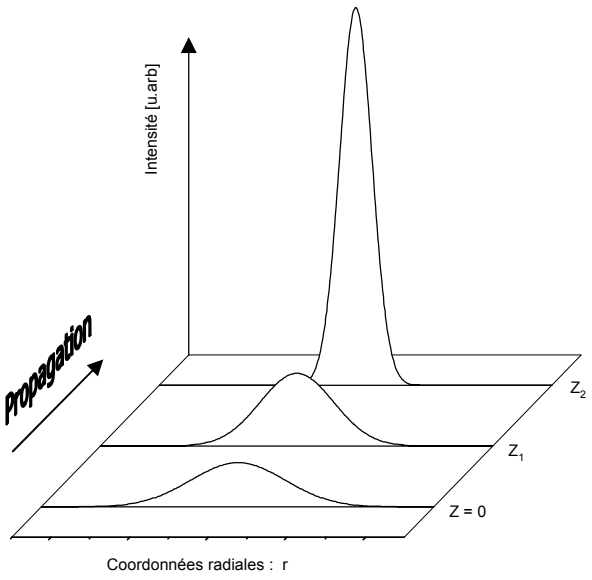


Fig. A.5 : *Autofocalisation pour un faisceau Gaussien* $P_0 > P_{cr}$

Dans le cas où la dispersion, l'automodulation de phase et l'autofocalisation sont pris en compte, la résolution de l'équation de propagation ne mène pas à une solution analytique excepté pour des cas particuliers. Une approche numérique est nécessaire pour résoudre ce type d'équation, afin de tenir compte conjointement des effets de dispersion et d'automodulation de phase.

Annexe B

Déphasage après la traversée d'une lame anisotrope uniaxe

Soit une lame anisotrope d'épaisseur **e** à faces parallèles caractérisée par ses indices principaux. Une onde plane incidente provenant d'un milieu isotrope d'indice $n_0 = 1$ avec un angle d'incidence i par rapport à la normale de lame donne naissance à deux ondes polarisées rectilignes et orthogonales. À ces deux ondes réfractées de direction AB' et AB'' sont associés les indices n' et n'' et les angles de réfraction θ' et θ'' (cf. figure B.1). Le déphasage Φ, en sortie de la lame, entre ces deux ondes est donné par :

$$\Phi = 2\pi\left[\frac{AB'}{\lambda'} + \frac{B'C}{\lambda_0} - \frac{AB''}{\lambda''}\right] \tag{B.1}$$

Où

$$\lambda' = \frac{\lambda_0}{n'} \qquad \lambda'' = \frac{\lambda_0}{n''} \tag{B.2}$$

Avec

$$AB' = \frac{e}{\cos\,\theta'} \qquad AB'' = \frac{e}{\cos\,\theta''} \tag{B.3}$$

Et

$$B'C = e\big[\tan\,\theta' - \tan\,\theta''\big]\sin\,i \tag{B.4}$$

En insérant B.3 et B.4 dans B.1, on obtient :

$$\Phi = 2\pi\,e\left[\frac{1}{\cos\,\theta'}\big(\frac{1}{\lambda'} + \frac{\sin\,\theta'\sin\,i}{\lambda_0}\big) - \frac{1}{\cos\,\theta''}\big(\frac{1}{\lambda''} + \frac{\sin\,\theta'\sin\,i}{\lambda_0}\big)\right] \tag{B.5}$$

Soit en utilisant les lois de réfraction de Descartes $sin\,i = n'\cos\,\theta'$ et $\sin\,i = n''\cos\,\theta''$, on arrive à:

$$\Phi = \frac{2\pi\,e}{\lambda_0}\big[n'\cos\,\theta' - n''\cos\,\theta''\big] \tag{B.6}$$

Ce qui équivaut à:

$$\Phi = \big(k'_z - k''_z\big)e \tag{B.7}$$

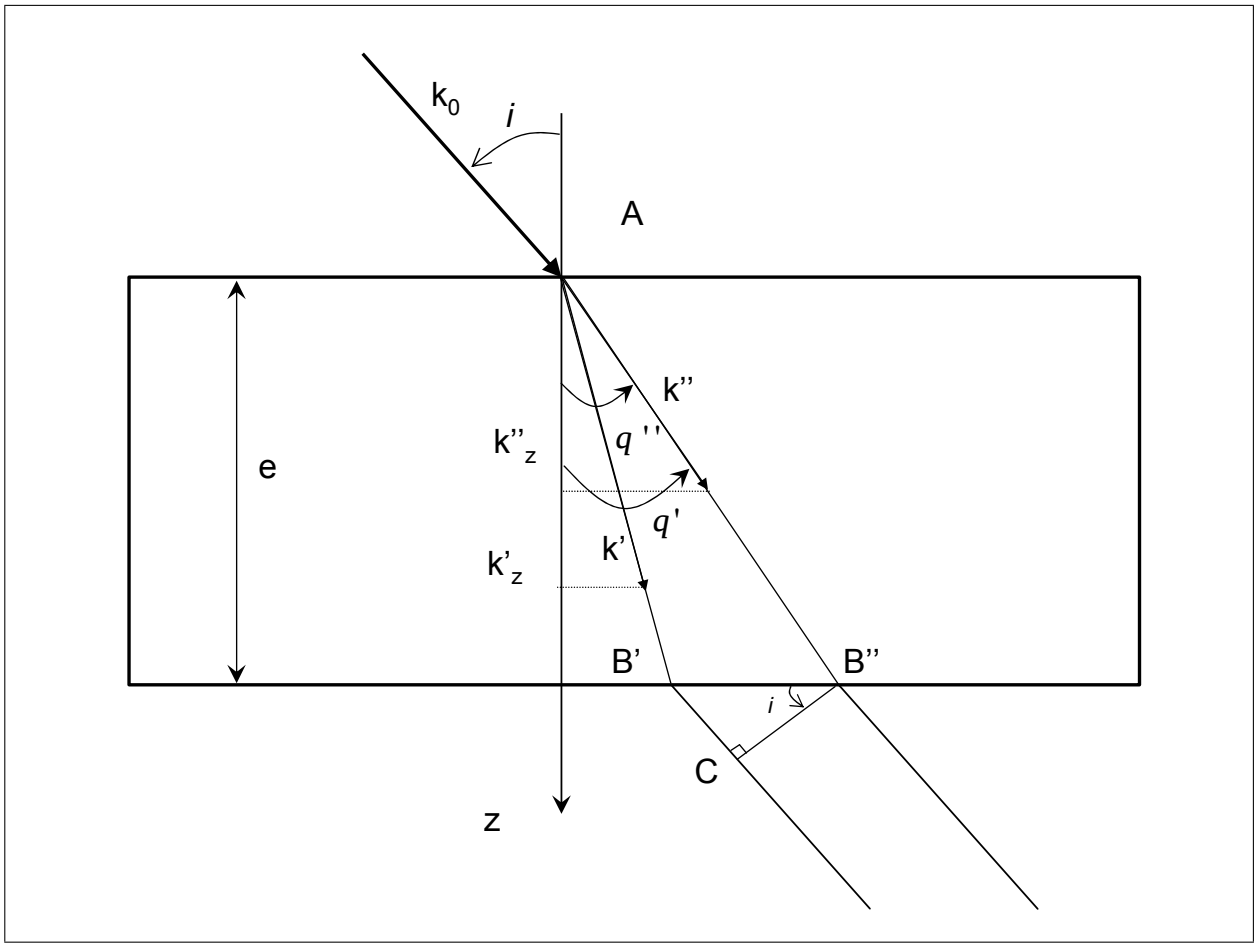


Fig. B.1 : *Lame anisotrope d'épaisseur* **e** *à faces parallèles caractérisée par ses indices principaux. Une onde plane incidente provenant d'un milieu isotrope d'indice* $n_0 = 1$ *avec un angle d'incidence i par rapport à la normale de lame donne naissance à deux ondes polarisées rectilignes et orthogonales*

Dans notre cas, on s'intéresse à une lame anisotrope uniaxe dont l'axe optique est parallèle à la lame. Dans ces conditions l'équation de la sphère des indices C_o et l'ellipsoïde des indices C_e s'écrivent dans le repère $Oxyz$:

$$\begin{aligned} x^2 + y^2 + z^2 &= n_o^2 && (C_o) \\ \frac{x^2}{n_o^2} + \frac{y^2}{n_e^2} + \frac{z^2}{n_e^2} &= 1 && (C_e) \end{aligned} \tag{B.8}$$

Le rayon incident parallèle eu vecteur d'onde k_0 fait un angle i avec la normale de la lame (Oz) et fait un angle α avec le plan xOz. Les coordonnées du point M qui est l'intersection

du vecteur d'onde avec la sphère des indices du milieu isotrope sont données par :

$$\begin{aligned} x &= \sin\, i\ \cos\, \alpha \\ y &= \sin\, i\ \sin\, \alpha \\ z &= \cos\, i \end{aligned} \tag{B.9}$$

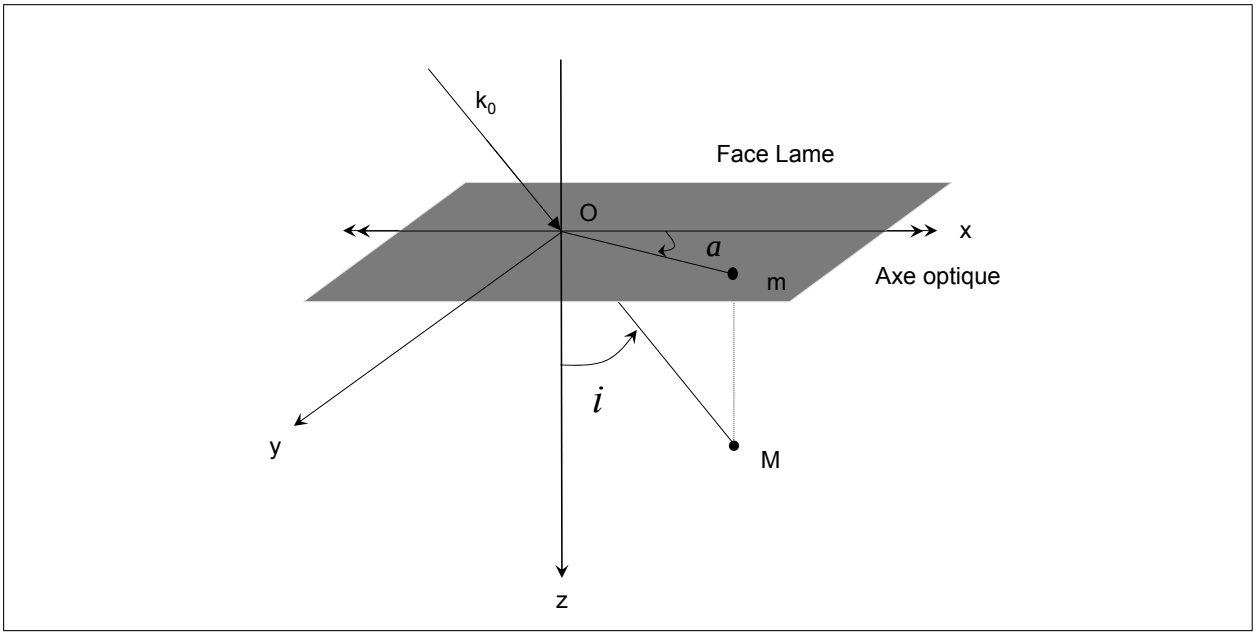


Fig. B.2 :

Les composantes k'_z et k''_z suivant Oz des vecteurs d'onde ordinaires et extraordinaire sont données à une constante près k_0 par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} z_o^2 &= n_o^2 - \sin^2\, i \\ z_e^2 &= n_e^2 \left[1 - \sin^2\, i \left(\frac{\cos^2\, \alpha}{n_o^2} + \frac{\sin^2\, \alpha}{n_e^2} \right) \right] \end{aligned} \tag{B.10}$$

Le déphasage s'exprime par $\Phi = k_0 e(z_e - z_o)$ soit :

$$\Phi = \frac{2\pi\, e}{\lambda_0} \left[n_e \sqrt{1 - \sin^2\, i \left(\frac{\cos^2\, \alpha}{n_o^2} + \frac{\sin^2\, \alpha}{n_e^2} \right)} - n_o \sqrt{1 - \frac{\sin^2\, i}{n_o^2}} \right] \tag{B.11}$$

Cette dernière relation montre que le déphasage dépend à la fois de l'angle d'incidence i et de l'orientation de l'axe optique par rapport au plan d'incidence.
En tournant la lame autour de l'axe Oy, les coordonnées du point M s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} x &= \sin\, i \\ y &= 0 \\ z &= \cos\, i \end{aligned} \tag{B.12}$$

Imaginons que les axes propres de la lame soient $Ox'y'z'$ tel que par rapport aux axes $Oxyz$ (représentant le référentiel du laboratoire), la rotation d'un angle ϑ change les axes xOy en $x'Oy'$ (cf. figure B.3). Les coordonnées d'un point quelconque (x,y,z) dans le repère $Oxyz$ s'écrivent dans le repère $Ox'y'z'$ sous la forme suivante :

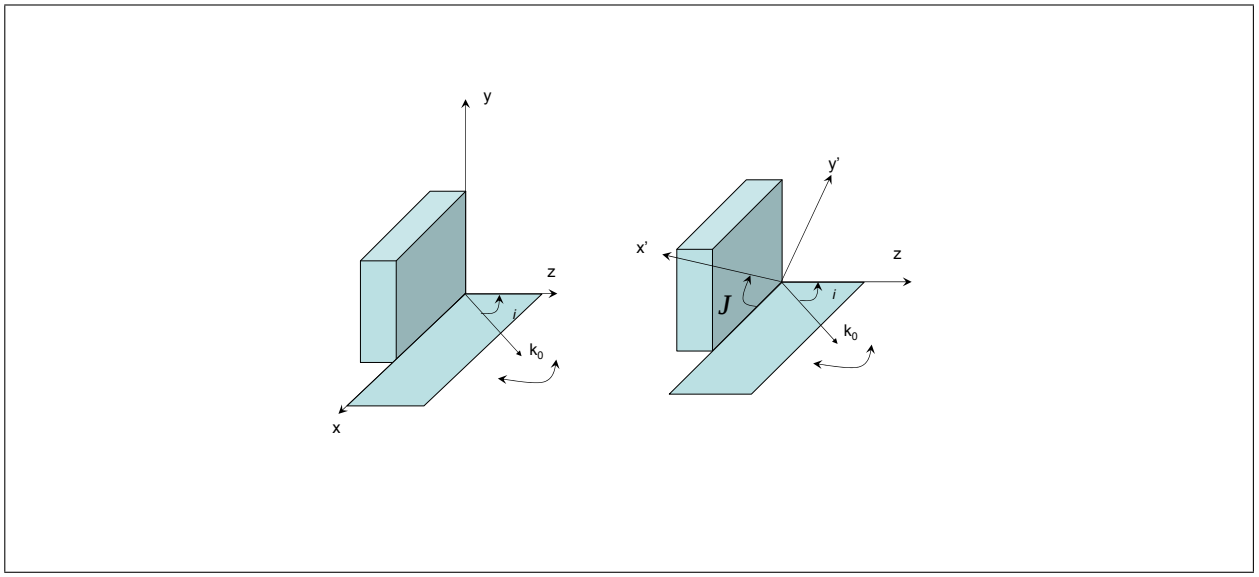


Fig. B.3 : *Configuration des axes de la lame, les axes optiques de la lame sont $Ox'y'z'$. Les axes $Oxyz$ représentent le référentiel du laboratoire.*

$$\begin{aligned} x' &= x\, \cos\, \vartheta + y\, \sin\, \vartheta \\ y' &= y\, \cos\, \vartheta - x\, \sin\, \vartheta \\ z' &= z \end{aligned} \tag{B.13}$$

Les coordonnées du point M s'écrivent dans ce nouveau repère :

$$\begin{aligned} x' &= \sin\, i\ \cos\, \vartheta \\ y' &= -\sin\, i\ \sin\, \vartheta \\ z' &= \cos\, i \end{aligned} \tag{B.14}$$

On note l'analogie évidente entre la relation B.9 et B.14. En modifiant l'angle i du faisceau incident sur la lame, le déphasage Φ s'écrit :

$$\Phi = \frac{2\pi\, e}{\lambda_0}\left[n_e\sqrt{1-\sin^2\, i\left(\frac{\cos^2\,\vartheta}{n_o^2}+\frac{\sin^2\,\vartheta}{n_e^2}\right)} - n_o\sqrt{1-\frac{\sin^2\, i}{n_o^2}}\right] \tag{B.15}$$

Le déphasage s'écrit alors en considérant une rotation $\vartheta = 45°$:

$$\Phi = \frac{2\pi\, e}{\lambda_0}\left[n_e\sqrt{1-\frac{\sin^2\, i}{n_{ee}^2}} - n_o\sqrt{1-\frac{\sin^2\, i}{n_o^2}}\right] \tag{B.16}$$

Avec

$$\frac{1}{n_{ee}^2} = \frac{\sqrt{2}}{2}\left(\frac{1}{n_o^2}+\frac{1}{n_e^2}\right) \tag{B.17}$$

Bibliographie

Bibliographie

[Agrawal 95] Agrawal P.,
Nonlinear fiber optics, Third Edition, Academic Press, 1995.

[Altucci *et al.* 03] Altucci C., Bruzzese R., de Lisio C., Nisoli M., Priori E., Stagira S., Pascolini M., Cerullo G., Poletto L., Villoresi P., Tosa V. and Midorikawa K.,
Phase-matching analysis of high-order harmonics generated by truncated bessel beams in the sub-10-fs regime, Phys. Rev. A **68** (2003), 33806.

[Altucci *et al.* 96] Altucci C., Starczewski T., Mével E., Wahlström C.-G., Carré B. and L'Huillier A.,
Influence of atomic density in high-order harmonic generation, J. Opt. Soc. Am. B **13** (1996), no. 1, 148.

[Altucci *et al.* 98] Altucci C., Delfin C., Roos L., Gaarde M.B., L'Huillier A., Mercer I. and Starczewki T. Wahlström C.G.,
Frequency-resolved time-gated high-order harmonics, Phys. Rev. A **58** (1998), no. 5, 3934.

[Ammosov *et al.* 86] Ammosov M.V., Delone N.B. and Krainov V.P.,
Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field, J.E.T.P. **64** (1986), no. 6, 1191.

[Antoine *et al.* 96a] Antoine Ph., L'Huillier A. and Lewenstein M.,
Attosecond pulse trains using high-order harmonics, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), no. 7, 1234.

[Antoine *et al.* 96b] Antoine Ph., L'Huillier A., Salières P. and Lewenstein M.,
Theory of high-order harmonic generation by an elliptically polarized laser field, Phys. Rev. A **53** (1996), no. 3, 1725.

[Antoine *et al.* 97a] Antoine Ph., Milosevic D.B., L'Huillier A., Gaarde M.B., Salières P. and Lewenstein M.,
Generation of attosecond pulses in macroscopic media, Phys. Rev. A **56** (1997), no. 6, 4960.

[Antoine *et al.* 97b] Antoine Ph., Carré B., L'Huillier A. and Lewenstein M. *Polarization of high-order harmonics*, Phys. Rev. A **55** (1997), no. 2, 1314.

[Auguste *et al.* 92] Auguste T., Monot P., Lompré L.-A., Mainfray G. and C. Manus, *Defocusing effects of a picosecond terawatt laser pulse in an underdense plasma*, Opt. Com. **89** (1992), 145.

[Bagnoud 99] Bagnoud V., *Étude et réalisation d'une chaine laser femtoseconde kilohertz térawatt. etudes de l'accord de phase spectrale, amplification de puissance en présence de charge thermique.*, Ph.D. thesis, Université Bordeaux I, 1999.

[Balcou *et al.* 92] Balcou Ph., Cornaggia C., Gomes A.S.L., Lompre L.A. and L'Huillier A., *Optimizing high-order harmonic generation in strong fields*, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **25** (1992), 4467.

[Balcou *et al.* 97] Balcou Ph., Salières P., L'Huillier A. and Lewenstein M., *Generalized phase-matching conditions for high harmonic: The role of field-gradient forces*, Phys. Rev. A **55** (1997), no. 4, 3204.

[Baltuska *et al.* 03] Baltuska A., Uiberacker M., Hentschel M., Goulielmakis E., Gohle Ch., Holzwarth R., Yakovlev V.S, Scrinzi A., Hänsch T.W. and Krausz F., *Attosecond control of electronic processes by intense light fields*, Nature **421** (2003), 611.

[Bandrauk *et al.* 02] Bandrauk A.D., Chelkowski S. and Shon N.H., *Measuring the electric field of few-cycle laser pulses by attosecond cross correlation*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), no. 28, 283903.

[Bellini *et al.* 98] Bellini M., Lyngå C., Tozzi A., Gaarde M.B., Hänsch T.W., L'Huillier A. and Wahlström C.G., *Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), no. 2, 297.

[Bouhal *et al.* 97] Bouhal A., Evans R., Grillon G., Mysyrowicz A., Breger P., Agostini P., Constantinescu R.C., Muller H.G. and von der Linde D., *Cross-correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high-order harmonics*, J. Opt. Soc. Am. B **14** (1997), no. 4, 950.

[Budil *et al.* 93] Budil K.S., Salière P., L'Huillier A., Ditmire T. and Perry N.D., *Influence of ellipticity on harmonic generation*, Phys. Rev. A **48** (1993), no. 5, 3437.

[Burnett *et al.* 94] Burnett N.H., Kan C. and Corkum P.B., *Ellipticity and polarization effects in harmonic generation in ionizing neon*, Phys. Rev. A **51** (1994), no. 5, R33418.

[Chang *et al.* 97] Chang Z., Rundquist A., Wang H., Murnane M.M. and Kapteyn H.C., *Generation of coherent soft X-rays at 2.7 nm using high harmonics*, Phys. Rev. Lett. **79** (1997), no. 16, 2967.

[Cheng *et al.* 02] Cheng Z., Krauzs F. and Spielmann Ch., *Compression of 2 mj kilohertz lasers pulses to 17.5 fs by pairing double-prism compressor : analysis and performance*, Opt. Com. **201** (2002), 145.

[Christov *et al.* 96] Christov I.P., Zhou J., Peatross J., Rundquist A., Murnane M.M. and Kapteyn H. C., *Nonadiabatic effects in high-harmonic generation with ultrashort pulses*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), no. 9, 1743.

[Christov *et al.* 97] Christov I.P., Murnane M.M. and Kapteyn H.C., *High-harmonic generation of attosecond pulses in the single-cycle regime*, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 1251.

[Constant *et al.* 01] Constant E., Mével E., Bagnoud V. and Salin F., *Toward sub-femtosecond pump probe experiments : a dispersion less autocorrelator with attosecond resolution*, Journal de physique IV (2001), 537.

[Constant *et al.* 97] Constant E., Taranukhin V.D., Stolow A. and Corkuml P.B., *Methods for the measurment of the duration of high harmonic pulses*, Phys. Rev. A **56** (1997), 3870.

[Constant *et al.* 99] Constant E., Garzella D., Breger P., Mével E., Dorrer Ch., Le Blanc C., Salin F. and Agostini P., *Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : Model and experiment*, Phys. Rev. Lett. **82** (1999), no. 8, 1668.

[Constant 97] Constant E., *Champs laser intenses ultracourts : application à la mesure et création d'impulsions attosecondes et à l'imagerie de paquets d'ondes d'ondes moléculaires par explosion coulombienne*, Ph.D.

thesis, Faculté des Sciences Université de Sherbrooke, Québec, Canada, 1997.

[Corkum *et al.* 93] Corkum P.B., Burnett N.H. and Ivanov M.Y., *subfemtosecond pulses*, Optics letter **19** (1993), no. 22, 1870.

[Corkum 93] Corkum P.B., *Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization*, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), no. 3, 1994.

[de Bohan *et al.* 98] de Bohan A., Antoine Ph., Milosevic D.B. and Piraux B., *Phase-dependent harmonic émission with ultrashort laser pulses*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998), 1837.

[Delfin *et al.* 99] Delfin C., Altucci C., De Filippo F., de Lisio C., Gaarde M.B., L'Huillier A., Roos L. and Wahlström C.G., *Influence of medium length on high-order harmonic generation*, J. Phys. B **32** (1999), 5397.

[Descamps *et al.* 00] Descamps D., Lyngå C., Norin J., L'Huillier A., Wahlström C.G., Hergott J.-F., Merdji H., Salières P., Bellini M. and Hänsch T.W., *Extreme ultraviolet interferomerty measurments with high-order harmonics*, Opt. Lett. **25** (2000), no. 2, 135.

[Descamps *et al.* 01] Descamps D., Roos L., Delfin C., L'Huillier A. and Wahlström C.G., *Two and three-photon ionization of rare gases using femtosecond harmonic pulses generated in a gas medium*, Phys. Rev. A **64** (2001), 031404.

[DeVries 90] DeVries P.L., *Calculation of harmonic generation during the multiphoton ionization of the hydrogen atom*, J. Opt. Soc. Am. B **7** (1990), 517.

[Dietrich *et al.* 94] Dietrich P., Burnett N.H., Ivanov M.Y. and Corkum P.B., *High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light*, Phys. Rev. A **50** (1994), no. 5, R3585.

[Ditmire *et al.* 95] Ditmire T., Nguyen H. Crane J.K., DaSilva L.B. and Perry M.D., *Energy-yield and conversion-efficiency measurements of high-order harmonic radiation*, Phys. Rev. A **51** (1995), no. 2, R902.

[Ditmire *et al.* 96] Ditmire T., Gumbrell E.T., Smith R.A, Tisch J.W.G., Meyerhofer D.D. and Hutchinson H.R., *Spatial coherence measurements of soft x-ray radiation produced*

by high-order harmonic generation, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), no. 23, 4756.

[Drescher *et al.* 01] Drescher M., Hentschel M., Keinberger R., Tempea G., Spielmann C., Reider G.A., Corkum P. and Krausz F.,
X-ray pulses approaching the attosecond frontier, Science **291** (2001), 1923.

[Drescher *et al.* 02] Drescher M., Hentschel M., Kienberger R., Uiberacker M., Yakovlev V.S., Scrinzi A., Westerwalbesloh Th., Kleinberg U., Heinzmann U. and Krausz F.,
Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy, Nature **419** (2002), 803.

[Duncan *et al.* 90] Duncan A.J., Finch A. and Sibbertt W.,
The effect of optically active devices on the polarisation porperties of ultrashort pulses, J. Phys. B. **23** (1990), 611.

[Farkas *et al.* 92] Farkas Gy. and Tó th Cs.,
Proposal for attsecond light pulse generation using laser induced multiple harmonic conversion processes in rare gases, Phys. Rev. A **168** (1992), 447.

[Ferray *et al.* 88] Ferray M., L'Huillier, A Li X.F., Lompre L.A., Mainfray G. and Manus C.,
Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **21** (1988), L31.

[Fork *et al.* 84] Fork R.L. and Martinez O.E.,
Negative dispersion using pairs of prisms, Optics Letters **9** (1984), 150.

[Gaarde *et al.* 02a] Gaarde M.B. and Schafer K.J.,
Quantum path distribution for high-order harmonics in rare gas atoms, Phys. Rev. A **65** (2002), 31406.

[Gaarde *et al.* 02b] ———,
Space-time considerations in the phase locking of high harmonics, Phys. Rev. Lett. **89** (2002), no. 21, 213901.

[Gaarde *et al.* 99] Gaarde M.B., Salin F., Constant E., Balcou Ph., Schafer K.J., Kulander K.C. and L'Huillier A.,
Spatiotemporal separation of high harmonic radiation into two quantum path components, Phys. Rev. A **59** (1999), no. 2, 1367.

[Gallant *et al.* 00] Gallant P., Forget P., Dorchies F., Jiang Z., Kieffer J.C., Jaanimagi P.A., Rebuffie J.C., Goulmy C., Pelletier J.F. and Sutton

M.,
Characterization of a subpicosecond x-ray streak camera for ultrashort laser-produced plasmas experiments, Review Of Scientific Instruments **71** (2000), 3627.

[Geoffroy *et al.* 03] Geoffroy G., Guizard S., Belsky A., Constant E. and Martin P.and Mével E.,
La photoémission vuv résolue en temps sur des solides isolants, J. Phys. IV France, vol. 108, 2003, p. 119.

[Gibson *et al.* 95] Gibson E.A., Paul A., Wagner N., Tobey R., Backus S., Christov I.P., Murnane M.M. and Kapteyn H.C.,
High-order harmonic generation up to 250 eV from highly ionized argon, Phys. Rev. A **92** (1995), no. 3, 33001.

[Gisselbrecht *et al.* 00] Gisselbrecht M., Descamps D., Lyngå C., L'Huillier A., Wahlström C.G. and Meyer M.,
Absolute photoionization cross sections of excited he states in the near-threshold region, Phys. Rev. Lett. **82** (2000), no. 23, 4607.

[Glover *et al.* 96] Glover T.E., Schoenlein R.W., Chin A.H. and C.V. Shank,
Observation of laser assisted photoelectric effect and femtosecond high order harmonic radiation, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), no. 14, 2468.

[Goulielmakis *et al.* 02] Goulielmakis E., Nersisyan G., Papadogiannis N.A., Charalambidis D., Tsakiris G.D. and Witte K.,
A dispersionless michelson interferemeter for the characterization of attosecond pulses, Appl. Phys B **74** (2002), 197.

[Grischkowsk *et al.* 82] Grischkowsk D. and Balant A.C.,
Generation of chirped pulses in optical fibers suitable for an effective pulse compression, Appl. Phys. Lett. **41** (1982), no. 1, 1.

[Harris *et al.* 93] Harris S.E., Macklin J.J and Hänsch T.W.,
Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation, Optics Com. **100** (1993), 487.

[Hentschel *et al.* 01] Hentschel M., Kienberger R., Spielmann Ch., Reider G.A., Milosevic N., Brabec T., Corkum P., Heinzmann U., Drescher M. and Krausz F.,
Attosecond metrology, Nature **414** (2001), 509.

[Hergott *et al.* 02] Hergott J.F., Kovačev M., Merdji H., Hubert C., Mairesse Y., Jean E., Breger P., Agostini P., Salières P. and Carré B.,

Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range, Phys. Rev. A **66** (2002), 21801.

[Hergott 01] Hergott J.F.,
Optimisation de la génération d'harmoniques d'ordres élevés et application à l'interférométrie UVX résolue en temps, Ph.D. thesis, Université Paris XI Orsay, 2001.

[Holland 92] Holland J.H,
Adaptation in natural and artificial systems, Ann Arbor :The University of Michigan Press, 1992.

[Huang *et al.* 92] Huang D., Ulman M., Acioli L.H., Haus H.A. and Fujimoto J.G.,
Self-focusing-induced saturable loss for laser mode locking, Opt. Lett. **17** (1992), no. 7, 511.

[Itatani *et al.* 02] Itatani J., Quéré F., Yudin G.L., Ivanov Yu.M., Krausz F. and Corkum P.B.,
Attosecond streak camera, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), no. 17, 173903–1.

[Ivanov *et al.* 95] Ivanov M., Corkum P.B., Zuo T. and Bandrauk A.,
Routes to control of intense-field atomic polarizability, Phys. Rev. Lett. **74** (1995), no. 15, 2933.

[Kan *et al.* 95] Kan C., Capjack C.E., Rankin R. and Burnett N.H.,
Spectral and temporal structure in high harmonic emission from ionizing atomic gases, Phys. Rev. A **52** (1995), 4336.

[Kan *et al.* 97] Kan C., Burnett N.H., Capjack C.E. and Rankin R.,
Coherent xuv generation from gases ionized by several cycle optical pulses, Phys. Rev. Lett. **79** (1997), 2971.

[Kaplan 94] Kaplan A.E.,
Subfemtosecond pulses in mode-locked 2 pi solitons of the cascade stimulated raman scattering, Phys. Rev. Lett. **12** (1994), 1243.

[Kazamias *et al.* 03a] Kazamias S., Douillet D. Valentin C., Lefrou Th. Grillon G., , Muloot G., Augé F., Mercère P., Zeitoun Ph. and Balcou Ph.,
Optimization of the focused flux of high harmonics, The European Physical Journal D **90** (2003), no. 19, 193901.

[Kazamias *et al.* 03b] Kazamias S., Douillet D., Weihe F., Valentin C., Rousse A., Sebban S., Grillon G., Augé F., Hulin D. and Balcou Ph.,
Global optimization of high harmonic generation, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), no. 19, 193901.

[Keldysh 65] Keldysh L.V.,
Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, Sovietic Physic JETP **20** (1965), 1307.

[Kienberger *et al.* 02] Kienberger R., Hentschel M., Uiberacker M., Spielmann Ch., Kitzler M., Scrinzi A., Weiland M., Westerwalbesloh Th., Kleineberg U., Heinzmann U., Drescher M. and Krausz F.,
Steering atoosecond electron wavce packets with light, Science **297** (2002), 1144.

[Kienberger *et al.* 04] Kienberger R., E. Goulielmakis, Uiberacker M., Baltuska A., Yakovlev V., Bammer, Scrinzi F.A., Westerwalbesloh TH., Kleineberg U., Heinzmann U., Drescher M. and Krausz F.,
Atomic transient recorder, Nature **427** (2004), 817.

[Kobayashi *et al.* 00] Kobayashi Y., Ohno T., Sekikawa T., Nabekawa Y. and Watanabe S.,
Pulse width measurement of high-order harmonics by autocorrelation, Appl. Phys B **70** (2000), 389.

[Kobayashi *et al.* 98] Kobayashi Y., Sekikawa T., Nabekawa Y. and Watanabe S.,
27-fs extreme ultraviolet pulse generation by high-order harmonics, Optics Letters **23** (1998), no. 1, 64.

[Kovačev *et al.* 03] Kovačev M., Mairesse Y., Priori E., Merdji H., Tcherbakoff O., Monchicourt P., Breger P., Mével E., Constant E., Salières P., Carré B. and Agostini P.,
Temporal confinement of the harmonic émission through polarization gating., The European physcal Journal D **26** (2003), 79.

[Krause *et al.* 92] Krause J.L., Schafer K.J. and Kulander C.,
High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime, Phys. Rev. Lett. **68** (1992), 3535.

[Krausz 02] Krausz F.,
Tracking light oscillations : Attosecond spectroscopy comes of age, Optics & Photonics News **13** (2002), no. 5, 62.

[Kulander *et al.* 93] Kulander K., Schafer K. and Krause J.,
Super Intense Laser-Atom Physics, B, vol. 316, Plenum Press, 1993.

[Lambropoulos *et al.* 98] Lambropoulos P., Maragakis P. and Cormier E.,
Atoms in short, intense laser pulses : a review of recent progress in ab initio approaches, Laser- Physics **8** (1998), 625.

[Larsson *et al.* 95] Larsson J., Mével, Zerne R., L'Huillier A., Wahlstrom C.-G. and Svanberg S.,
Two-colour time-resolved spectroscopy of helium using high-order harmonics, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **28** (1995), L53.

[Le Blanc 93] Le Blanc C.,
Principe et réalisation d'une sourece laser térawatt femtoseconde basée sur le saphir dopé au titane. caractérisation des impulsions produites et demonstration durégime d'intensité au niveau de 10^{18} *w/cm*^{2}, Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique, 1993.

[Le Déroff *et al.* 00] Le Déroff L., Salières P., Carré B., Joyeux D. and Phalippou D.,
Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a fresnel-mirror interferometer, Phys. Rev. A **61** (2000), no. 19, 43802.

[Le Déroff *et al.* 98] Le Déroff L., Salières P. and Carré B.,
Beam-quality measurement of a focused high-order harmonic beam, Opt. Lett. **23** (1998), 1544.

[Lewenstein *et al.* 93] Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M. Yu., L'Huillier A. and Corkum P.B.,
Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), no. 3, 1994.

[Lewenstein *et al.* 95] Lewenstein M., Salières P. and L'Huillier A.,
Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation, Phys. Rev. A **52** (1995), no. 6, 4747.

[L'Huillier *et al.* 03] L'Huillier A., Descamps D., Johansson A., Norin J., Mauritsson and Wahlström C.-G.,
Applications of high-order harmonics, Eur. Phys. J. D (2003), Published online.

[L'Huillier *et al.* 87] L'Huillier A. and Wendin G.,
Many-body approach to two and three photon double ionization and excitation of xenon, Phys. Rev. A **36** (1987), no. 12, 5632.

[L'Huillier *et al.* 90] L'Huillier A., Li X.F. and Lompré L.A.,
Propagation effects in high-order harmonic generation in rare gases, J. Opt. Soc. Am. B **7** (1990), no. 4, 527.

[L'Huillier *et al.* 92a] L'Huillier A., Lompré L-A., Mainfray G. and Manus C.,
Atoms in intense laser fields, Advances in Atomic, Molecular, And Optical Physics, vol. Supplement 1, p. 139, Academic Presse, INC., 1992.

[L'Huillier *et al.* 92b] L'Huillier A., Balcou P., Candel S., Schafer K.J. and Kulander K.C.,
Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm, Phys. Rev. A **46** (1992), 2778.

[L'Huillier *et al.* 93a] L'Huillier A., Lewenstein M., Salières P., Balcou Ph., Ivanov M. Yu., Wahlström C.G. and Larsson J.,
High-order harmonic-generation cutoff, Phys. Rev. A **48** (1993), no. 5, R3433.

[L'Huillier *et al.* 93b] L'Huillier A. and Balcou Ph.,
High-order harmonic-generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), no. 6, 774.

[Liang *et al.* 94] Liang Y., Augst S., Chin L., Beaudoin Y. and Chaker M.,
High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using picosecond laser pulses-a comparaison, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. **27** (1994), 5119.

[Long *et al.* 95] Long S., Becker W. and McIver J.K.,
Model calculations of polarization-dependent two-color high-harmonic generation, Phys. Rev. A **53** (1995), no. 3, 2262.

[López-Martens *et al.* 04] López-Martens R., Mauritsson J., Johnsson P., L'Huillier A., Tcherbakoff O., Zaïr A., Mével E. and Constant E.,
Time-resolved ellipticity gating of high-order harmonic emission, Physical Review A **69** (2004), 053811.

[Lyngå *et al.* 96] Lyngå C., L'Huillier A. and Wahlström C-G.,
High-order harmonic generation in molecular gases, J. Phys. B **29** (1996), 3293.

[Lyngå *et al.* 99] Lyngå C., Gaarde M. B., Delfin C., Bellini M., Hänsch T.W., L'Huillier A. and Wahlström C-G.,
Temporal coherence of high-order harmonics, Phys. Rev. A **60** (1999), no. 6, 4823.

[Macklin *et al.* 93] Macklin J.J., Kmetec J. D. and Gordon III C.L.,
High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses, Phys. Rev. Lett. **70** (1993), no. 6, 766.

[Mairesse *et al.* 03] Mairesse Y., Bohan A., Frasinski L.J., Merdji H., Dinu L.C., Monchicourt P., Breger P., Kovačev M., Taïeb R., Carré B., H.G. Muller, Agostini P. and Salières P.,
Attosecond synchronization of high-harmonic soft X-rays, Science **302** (2003), 1540.

[McGuire 81] McGuire C.,
Two and three-photon ionization in the noble gases, Phys. Rev. A **24** (1981), no. 2, 835.

[McPherson *et al.* 87] McPherson A., Gibson G., Jara H., Johann U., Luk T.S., McIntyre I.A., Boyer K. and Rhodhes C.K.,
Studies of multiphoton production of vacuumm-ultraviolet radiation in the rare gases, J. Opt. Soc. Am. B **4** (1987), no. 4, 595.

[Meinel 83] Meinel R.,
Generation of chirped pulses in optical fibers suitable for an effective pulse compression, Optics Communications **47** (1983), no. 5, 343.

[Mével *et al.* 00] Mével E., Constant E., Garzella D., Breger P., Dorrer C., LeBlanc C., Salin F. and Agostini P.,
Optimizing high order harmonic generation in absorbing gases, Multiphoton Processes : ICOMP VIII, 8th International Conference (Dimauro L.F., Freeman R.R and Kulander K.C., eds.), 2000, p. 373.

[Mével *et al.* 03] Mével E., Tcherbakoff O., Salin F. and Constant E.,
Extracavity compression technique for high-energy femtosecond pluses, J. Opt. Soc. Am. B **20** (2003), no. 1, 106.

[Millam *et al.* 77] Millam D., Weber M.J. and Glass A.J.,
Non linear index of flouride crystals, Appl. Phys. Lett. **31** (1977), no. 12, 822.

[Morgner *et al.* 99] Morgner U., Kärtner F. X., Cho S.H., Chen Y.and Haus H.A., Fujimoto J.G., Ippen E.P., Scheuer V., Angelow G. and Tschudi T.,
Sub-two-cycle pulses from a kerr-lens mode-locked ti:sapphire laser, Opt. Lett. **24** (1999), 411.

[Muller 02] Muller H.G.,
Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions, Appl. Phys. B. **74** (2002), S17.

[Nakajima *et al.* 02] Nakajima T. and Nikolopoulos L.A.A.,
Use of helium double ionization for autocorrelation of an XUV pulse, Phys. Rev. A **66** (2002), 41402.

[Nibbering *et al.* 77] Nibbering E.T.J., Grillon G., Franco M.A., Prade B.S. and Mysyrowicz A.,

Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2 , and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses, J. Opt. Soc. Am. B **14** (1977), no. 3, 650.

[Nisoli *et al.* 02] Nisoli M., Priori E., Sansone G., Stagira S., Cerullo G., De Silvestri S., Altucci C., Bruzzese R., de Lisio C., Villoresi P., Poletto L., Pascolini M. and Tondello G.,
High-brightness high-order harmonic generation by truncated bessel beams in the sub-10-fs regime, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), no. 3, 33902.

[Nisoli *et al.* 96] Nisoli M., De Silvestri S. and Svelto O.,
Generation of high energy 10 fs pulses by new pulse compression technique, Appl. Phys. Lett. **68** (1996), no. 20, 2793.

[Nisoli *et al.* 97] ———,
Compression of high-energy laser pluses below 5 fs, Optics Letters **22** (1997), no. 8, 522.

[Palik 85] Palik Ed.,
Handbook of optical constants of solid, Academic press, 1985.

[Papadogiannis *et al.* 03a] Papadogiannis N.A., Nersisyan G., Goulielmakis E., Decros M., Tatarakis M., Hertz E., Nikolopoulos L.A.A. and Charalambidis D., Proceedings GCL/HPL, to be published in SPIE (2003).

[Papadogiannis *et al.* 03b] Papadogiannis N.A., Nersisyan G., Goulielmakis E., Rakitzis T.P., Hertz E., Charalambidis D., Tsakiris G.D. and Witte K.,
Temporal characterization of short-pulse third-harmonic generation in an atomic gas by a transmission-grating michelson interferometer, Optics Letters **27** (2003), no. 17, 15611.

[Papadogiannis *et al.* 03c] Papadogiannis N.A., Nikolopoulos L.A.A, Charalambidis D., Tsakiris G.D., Tzallas P. and Witte K.,
Two-photon ionization of He trough a superposition of higher harmonics, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), 133902.

[Paul *et al.* 01] Paul P.M., Toma E.S., Breger P., Mullot G., Augé F., Balcou Ph., Muller H.G. and Agostini P.,
Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation, Science **292** (2001), 1689.

[Paul *et al.* 03] Paul A., Bartels R.A., Tobey R., Green H., Weimann S., Christov I.P., Murnane M. M., Kapteyn H. C. and Backus S.,

Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light, Nature **421** (2003), 51.

[Piraux *et al.* 94] Piraux B. and Shakeshaft R.,
Norm of the wave function on a complex basis, Phys. Rev. A. **49** (1994), 3903.

[Platonenko *et al.* 99] Platonenko V.T. and Strelkov V.V.,
Generation of a single attosecond soft X-ray pulse, Laser Physics **9** (1999), no. 2, 575.

[Plumridge *et al.*] Plumridge J., Tcherbakoff O., Mével E. and Constant E.,
XUV induced non-linear ionisation of rare gases, to be plubished.

[Quéré *et al.* 03] Quéré F., Itatani J. and Corkum P.B.,
Attosecond spectral shearing interferometry, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), no. 7, 073902–1.

[Rolland *et al.* 88] Rolland C. and Corkum C.,
Compression of high-power optical pulses, J. Opt. Soc. Am. B **5** (1988), 641.

[Roos *et al.* 99] Roos L., Constant E., Mével E., Balcou Ph., Descamps D., Gaarde M.B., Valette A., Hartounian R. and L'Huillier A.,
Controlling phase matching of high-order harmonic generation by manipulating the fundamental field, Phys. Rev. A **60** (1999), 5010.

[Roos 01] Roos Lena,
Opimisation and application of intense high-order harmonic pulses, Atomic physics, Lund Institute of Technology, 2001.

[Rudolph *et al.* 89] Rudolph W. and Wilhelmi B.,
Light pulse compression, Harwood Academic Plublishers, 1989.

[Rundquist *et al.* 98a] Rundquist A., Durfee C.G., Chang Z., Herne C., Backus S., Murnane M.M. and Kapteyn H.C.,
Phase-matched generation of coherent soft X-ray, Science **280** (1998), 141.

[Rundquist *et al.* 98b] Rundquist A., Durfee III C.G., Chang Z., Herne C., Backus S., Murnane M.M. and Kapteyn H.C.,
Generation of coherent soft X-rays at 2.7 nm using high harmonics, Science **280** (1998), 1412.

[Salières *et al.* 95] Salières P., L'Huillier A. and Lewenstein M.,
Coherence control of high-order harmonics, Phys. Rev. Lett. **74** (1995), no. 19, 3776.

[Salières *et al.* 96] Salières P., Ditmire T., Perry M.D., L'Huillier A. and Lewenstein M.,
Angular distributions of high-order harmonics generated by femtosecond laser, J. Phys. B **29** (1996), 4771.

[Salières *et al.* 99] Salières P., Le Déroff L., Auguste T., Monot P., d'Oliveira P., Campo D., Hergott J.F., Merdji H. and Carré B.,
Frequency-domain interferometry in the XUV with high-order harmonics, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), no. 26, 5483.

[Salières 95] Salières P.,
Propriétés de cohérence de la génération harmonique en champ laser intense, Ph.D. thesis, Université Paris 6, 1995.

[Samson *et al.* 02] Samson J.A.R and Stolte W.C.,
Precision measurement of the total photoionization cross-sections of He, Ne, Ar and Xe, Journal of Electron Spectroscopy **123** (2002), 265.

[Schafer *et al.* 97] Schafer K.J. and Kulander C.,
High harmonic generation from ultrafast pump lasers, Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 638.

[Schenkel *et al.* 03] Schenkel B., Biegert J., Keller U., Vozzi C., Nisoli M., Sansone G., Stagira S., De-Silvestri S. and Svelto O.,
Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum, Opt. Lett. **28** (2003), no. 20, 1987.

[Schins *et al.* 94] Schins J.M., Breger P., Agostini P., Constantinescu R.C., Muller H.G., Grillon G., Antonetti A. and Mysyrowicz A.,
Observation of laser-assisted auger decay in argon, Phys. Rev. Lett. **73** (1994), 2180.

[Schins *et al.* 95] Schins J.M., Breger P., Agostini P., Constantinescu R.C., Muller H.G., Bouhal A., Grillon G., Antonetti A. and Mysyrowicz A.,
Cross-correlation measurements of femtosecond extreme-ultraviolet high-order harmonics, J. Opt. Soc. Am. B **13** (1995), no. 1, 197.

[Schnürer *et al.* 98] Schnürer M., Cheng Z., Sartania S., Hentschel M., Tempea G., Brabec T. and Krausz F.,
Guiding and high-harmonic generation of sub-10-fs pulses in hollow-core fibers at 10^{15} W/cm^2, Appl. Phys. B **67** (1998), 263.

[Schnürer *et al.* 99] Schnürer M., Cheng Z., Hentschel M., Tempea G., Kálmán P., Brabec T. and Krausz F.,
Absorption-limited generation of coherent ultrashort soft X-ray pulses, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), no. 4, 722.

[Schulze *et al.* 98] Schulze D., Dö rr M., Sommerer G., Ludwig J., Nickles P.V., Schlegel T., Sandner W., Drescher M., Kleineberg U. and Heinzmann U.,
Polarization of the 61st harmonic from 1053-nm laser radiation in neon, Phys. Rev. A **57** (1998), 3003.

[Sekikawa *et al.* 99] Sekikawa T., Ohno T., Sekikawa T., Nabekawa Y. and Watanabe S.,
Pulse compression of high-order harmonic by compensating the atomic dipole phase, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), no. 13, 2564.

[Sheely *et al.* 99] Sheely B., Martin J.D.D., DiMauro L.F., Agostini P., Schafer K.J., Gaarde M.B. and Kulander K.C.,
High harmonic generation at long wavelenght, Phys. Rev. Lett. **83** (1999), no. 25, 5270.

[Shen 84] Shen Y.R.,
The principles of nonlinear optics, John Wiley & Sons, 1984.

[Sokolov *et al.* 00] Sokolov A.V., Walker D.R., Yavuz D.D., Yin G.Y. and Harris S.E.,
Raman generation by phased and antiphased molecular states, Phys. Rev. Lett. **85** (2000), 562.

[Sorensen *et al.* 00] Sorensen S., Björneholm O., Buil S., Descamps D., Kihlgren T., L'Huillier A., Norin J., Öhrwall G., Sundin S., Svenson S. and Wahlström C.-G.,
Femtosecond pump-probe photoelectron spectroscopy of predissociative states in acetylene, J. Chem. Phys. **112** (2000), no. 17, 1.

[Spielmann *et al.* 97] Spielmann Ch., Burnett N. H., Sartania S., Koppitsch R., Schnürer M., Kan C., Lenzner M., Wobrauschek P. and Krausz F.,
Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses, Science **278** (1997), 661.

[Strelkov *et al.* 04] Strelkov V., Zaïr A., Tcherbakoff O., López-Martens R., Cormier E., Mével E. and Constant E.,
Generation of attosecond pulses with ellipticity-modulated fundamental, Applied Physics B **78** (2004), 879.

[Strikland *et al.* 85] Strikland G. and Mourou G.,
Compression of amplified chirped optical pulses, Opt. Com. **56** (1985), no. 3, 219.

[Sutter *et al.* 99] Sutter D.H., Steinmeyer G., Gallmann L., Matuschek N., Morier-Genoud F., Keller U., Scheuer V., Angelow G. and Tschudi T.,
Semiconductor saturable-absorber mirror-assisted kerr-lens mode-locked ti:sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime, Opt. Lett. **24** (1999), 631.

[Takahashi *et al.* 02] Takahashi E., Nabekawa Y. and Midorikawa K.,
Genration of 10 μJ coherent extreme-ultraviolet light pulse by use of high-order harmonics, Opt. Lett. **27** (2002), no. 21, 1920.

[Takahashi *et al.* 04] Takahashi E.J., Hasegawa H., Nabekawa Y. and Midorikawa K.,
High-throughput, high-damage-threshold broadband beam splitter for high-order harmonics in the extreme-ultraviolet region, Optics Letters **29** (2004), 507.

[Tamaki *et al.* 00] Tamaki Y., Itatani J., Obara M. and Midorikawa K.,
Optimization of conversion efficiency and spatial quality of high-order harmonic generation, Phys. Rev. A. **62** (2000), 63802.

[Tcherbakoff *et al.* 03] Tcherbakoff O., Mével E., Descamps D., Plumridge J. and Constant E.,
Time-gated high-order harmonic generation, Phys. Rev. A **68** (2003), 43804.

[Tisch *et al.* 91] Tisch J.W.G., Smith R.A., Muffett J. E., Ciarrocca M., Marangos J.P. and Hutchinson M.H.R.,
Angularly resolved high-order harmonic generation in helium, Phys. Rev. A **49** (1991), no. 1, R28.

[Tomlinson *et al.* 84] Tomlinson W.J., Dtolen R.H. and Shank C.V.,
Compression of optical pulses chirped by self-phase modulation in fibers, J. Opt. Soc. Am. B **1** (1984), no. 2, 139.

[Tzallas *et al.* 03] Tzallas P., Charalambidis D., Papadogiannis N.A., Witte K. and Tsakiris G.D.,
Direct observation of attosecond light bunching, Nature **426** (2003), 267.

[Verner *et al.* 96] Verner D.A., Ferland G.J., Korista K.T. and Yakovlev D.G.,
Atomic data for astrophysics. ii. new analytic fits for photoionization cross sections of atoms and ions, Astrophysical Journal **465** (1996), 487.

[Véniard *et al.* 96] Véniard V., Taïeb R. and Maquet A.,
Phase dependence of (N+1) IR-XUV photoionization of atoms with higher harmonics, Phys. Rev. A **54** (1996), no. 1, 721.

[Wahlström *et al.* 93] Wahlström C.G., Larsson J., Persson A., Starczewski T., Svanberg S., Salières P., Balcou Ph. and L'Huillier A.,
High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser, Phys. Rev. A **48** (1993), no. 6, 4709.

[Wahlström *et al.* 95] Wahlström C.G., Borgström S., Larsson J. and Pettersson S.G.,
High-order harmonic generation in laser produced ions using a near-infrared laser, Phys. Rev. A **51** (1995), no. 1, 585.

[Weihe *et al.* 95] Weihe F.A., Dutta S.K., Korn G., Du D., Bucksbaum P.H. and Shkolnikov P.L,
Polarization of high-intensity high harmonic generation, Phys. Rev. A **51** (1995), no. 5, 3433.

[Xenakis *et al.* 96] Xenakis D., Faucher O., Charalambidis D. and Fotakis C.,
Observation of two-xuv-photon ionization using harmonic generation from a short intense laser pulse, J. Phys. B **29** (1996), L457.

[Zeek *et al.* 99] Zeek E., Maginnis K., Backus S., Russek U., Murnane M., Mourou G. and Kapteyn H.,
Pulse compression by use of deformable mirrors, Optics Letters **24** (1999), no. 7, 493.

[Zerne *et al.* 97] Zerne R., Altucci C., Bellini M., Gaarde M.B., Hänsch T.W., L'Huillier A., Lyngå C. and Wahlström C.-G.,
Phase-locked high-order harmonic sources, Phys. Rev. Lett. **79** (1997), no. 6, 1006.

[Zewail 00] Zewail A.H.,
Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond, J. Phys. Chem. A **104** (2000), no. 24, 5660.

[Zhavoronkov *et al.* 02] Zhavoronkov N. and Korn G.,
Generation of single intense short optical pulses by ultrafast molecular phase modulation, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 203901.

[Zhou *et al.* 96] Zhou J., Peatross J., Murnane M. M. and Kapteyn H. C.,
Enhanced high-harmonic generation using 25 fs laser pulses, Phys. Rev. Lett. **76** (1996), no. 5, 752.

Articles

Extracavity compression technique for high-energy femtosecond pulses

E. Mével, O. Tcherbakoff, F. Salin, and E. Constant

Centre Lasers Intenses et Applications, Université Bordeaux 1, 33 405 Talence Cedex, France

Received April 17, 2002; revised manuscript received September 4, 2002

We introduce a new extracavity pulse-compression technique suitable for generating high-energy femtosecond pulses. This technique is based on spectral broadening by self-phase modulation in bulk media followed by far-field spatial filtering, which provides a uniform spectral broadening over the spatial profile combined with a transmission of 50%. In principle, this technique allows compression of pulses with energy up to ~100 mJ by a factor of 3–5. In a proof-of-principle experiment, we compressed a 42-fs, 480-μJ pulse to a 14-fs, 220-μJ pulse. © 2003 Optical Society of America

OCIS codes: 320.5520, 190.7110.

1. INTRODUCTION

With the appearance of titanium-doped sapphire crystals, it has become possible to amplify femtosecond pulses to energy levels of the order of 1 J or higher. However, although pulses as short as 5 fs can be generated from an oscillator,[1,2] the duration of the pulses after amplification is limited to ~20–30 fs mainly because of gain narrowing. Since the feasibility of high-energy sub-10-fs pulses is of great interest for the study of strong-field ultrafast processes,[3,4] the development of postcompression techniques is an active field of research in femtosecond science.[5–7] For instance, high-energy sub-10-fs pulses could be a simple way to generate only 1- or 2-attosecond extreme-ultraviolet pulses though high-order harmonics.[8–11]

In their pioneering work C. Rolland and P. B. Corkum[5] used self-phase modulation (SPM) in bulk media to broaden the spectrum of femtosecond pulses combined with a grating compressor to recompress the pulses. A spatial filter located in the near field, just after the bulk material, was used to select the central part of the beam, where the SPM is spatially homogeneous. This near-field spatial filtering leads to a spatially uniform beam provided that the pinhole is chosen to be much smaller than the beam diameter. Unfortunately, this requirement limits the transmission of the postcompression system to a few percent. However, conceptually, this technique allows one to obtain ultrashort pulses with no fundamental limit on the maximum achievable pulse energy. With this technique, starting with pulses of 92 fs having an energy of 300 μJ, Rolland and Corkum[5] obtained pulses of 19 fs with an energy of 7 μJ.

The next major breakthrough in this field was achieved by M. Nisoli *et al.*,[7] who used a gas-filled hollow-core fiber for extracavity pulse compression. Again, SPM introduced by the gas broadens the pulse spectrum, which can be recompressed to a very short duration. With this technique the guided propagation of the beam results in a uniform spatial profile, and the energy transmission is ~50%. Pulses shorter than 5 fs were obtained with this method[7] with energies of ~500 μJ. This technique could also be used to postcompress sub-10 fs pulses with energies higher than a millijoule. Technical constraints have prevented this so far, since this method would require very long capillaries (several meters long), which are impractical. The sub-10-fs pulses energies that are obtained with this technique are therefore still restricted to the submillijoule level.

Here we introduce an alternative technique that can provide high-energy sub-10-fs pulses. SPM is induced by a dispersive bulk media placed far before the focus of the converging laser beam (typically at a distance d that is significantly larger than the Rayleigh range z_R, i.e., d from $3z_R$ to $10z_R$). The dispersion of the bulk material ensures that the output chirp can be linearized (by controlling the combined effect of SPM and dispersion), thus permitting a suitable compression with a negative dispersion device. In contrast with the work of Rolland and Corkum,[5] the beam is then spatially filtered by a pinhole located near the focus away from the bulk piece (far field). The result is a beam with spatially uniform spectral broadening combined with high throughput (~45% transmission). This is the key advantage of this technique. As the pinhole is located far from the bulk media near the focus, the different areas of the beam section that have experienced different spectral broadening are homogeneously distributed over the pinhole surface. Then using a diffracting pinhole ensures a spatially homogeneous broadened spectrum in the far field of the pinhole that is compatible with high throughput (note that the diffraction is necessary: If the pinhole matches the Gaussian mode at focus, one recovers a spatially inhomogeneous spectrum in the far field). As is described below, this technique could potentially be used to obtain sub-10-fs pulses with energies as high as several joules. Here we present a proof-of-feasibility experiment that was performed with a modest pulse energy (480 μJ), low enough to perform the experiment in air.

0740-3224/2003/010105-04$15.00 © 2003 Optical Society of America

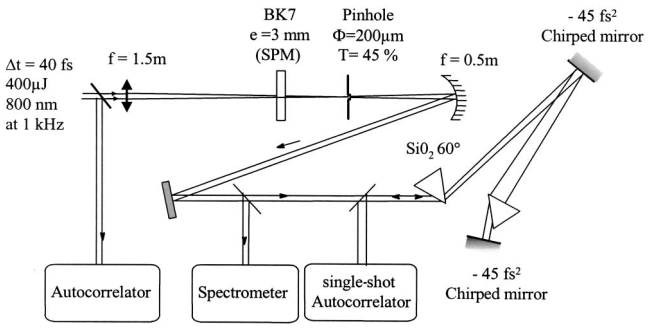


Fig. 1. Schematic of the experimental setup.

2. LASER SYSTEM AND EXPERIMENTAL ARRANGEMENT

The experimental setup used for pulse postcompression is presented in Fig. 1. A small part of the 1-kHz Centre Lasers Intenses et Applications femtosecond laser chain[12] is spatially filtered (pinhole diameter $\phi = 200\ \mu$m), collimated (lens focal length $f = 80$ cm), and sent through a grating compressor. After compression the pulses have an energy of up to 500 μJ, a bandwidth of ~30 nm, and a duration of 42 fs ($1.3 \times$ the Fourier limit). This beam is focused by an $f = 1.5$ m lens onto a spot, where a 200-μm-diameter pinhole is positioned to act as a spatial filter. A bulk medium (3-mm-thick BK7 plate) is inserted between the lens and the spatial filter to broaden the pulse spectrum. The transmission of the pinhole is 45%–50%, and the spatially filtered beam has a Bessel shape. When the plate is inserted, self-focusing takes place for energies above 400 μJ. Therefore the pinhole must be moved slightly (typically by a few centimeters) closer to the bulk to recover the same transmission. The beam is then collimated by a 50-cm-focal-length gold-coated mirror. A first beam splitter is used to send part of the beam to a spectrometer in order to monitor the spectrum. The transmitted beam is sent first to a mixed, chirped mirror-prism compressor (consisting of two SiO_2 prisms with apex angles of 60° and two -45-fs^2 chirped mirrors) and finally to an intensity autocorrelator[13] (a dispersionless autocorrelator equipped with a 10-μm-thick BBO crystal).

3. EXPERIMENTAL RESULTS

Figure 2 shows the spectra of the incoming pulse and of the outgoing pulse (after spatial filtering) with and without the bulk plate. In this figure one can see that there is clear spectral broadening when the beam propagates through the BK7 plate. Without the bulk plate the spectrum is slightly enlarged when the beam is focused in air, but this effect is marginal compared with the broadening induced by the glass piece. The width of the different spectra are (estimated after smoothing) 30 and 96 nm. To obtain the 96-nm-wide spectrum, the BK7 piece was located 10 cm before the laser focus. At this position the beam size was $W = 280\ \mu$m, and the estimated peak intensity was 8×10^{12} W/cm^2. At this intensity continuum generation occurred, but the light emitted through continuum generation was emitted in a wide angle and was filtered out by the spatial filter. This continuum generation did not significantly reduce the transmitted energy. Note that even after days of experiments the bulk plate was not damaged.

Also shown in Fig. 2 (inset) is the spectral width (estimated with a Gaussian fit) of a spectrally broadened pulse (obtained with $E = 350\ \mu$J, $I \sim 6 \times 10^{12}$ W/cm^2) recorded at several transverse positions after the collimating mirror with and without spatial filtering. Even in the first ring of the Bessel beam, the spectral width was 75 nm. This shows that when the spatial filter is inserted, the spectral width is identical in all the parts of the beam.

When the spatial filter is removed, the spectrum depends on the radial position. Its width is maximum at the center of the beam and decreases toward its edges. Note, however, that even without the spatial filter the spectral width is everywhere larger than the width of the incoming pulse. This can be explained in that the spectrum is measured away from the bulk plate and diffraction already homogenizes the beam. The total field is the coherent sum of the field diffracted by the different portions of the plate, and as soon as we observe the beam away from the plate, one cannot determine where the ray propagated in the plate. If the spectral measurement were done at an infinite distance from the bulk plate (i.e., in the far field), the spectral width would be the same everywhere. The notion of far, intermediate, and near fields depends on the distance of observation, d, as compared with $d_{\mathrm{ff}} = \phi^2/\lambda$ (where ϕ is the diameter of the diffracting object). Without the spatial filter ϕ is the size of the beam on the plate ($\phi = \pi W$ with $W \sim 280\ \mu$m), and the far-field distance is $d_{\mathrm{ff}} \sim 1$ m. Observing the beam 60 cm after the plate puts us in the intermediate-field case. When the spatial filter is inserted, it diffracts the beam, and the far-field distance becomes $d_{\mathrm{ff}} = 5$ cm. Observing the beam 50 cm after the pinhole puts us in the far-field region ($d \gg d_{\mathrm{ff}}$), where the beam was homogeneous as shown in Fig. 2.

Figure 3 shows the autocorrelation trace of the postcompressed pulse with a full width at half-maximum (FWHM) of 18.6 fs. The width of the autocorrelation trace of the incoming pulse being 60 fs, this shows that

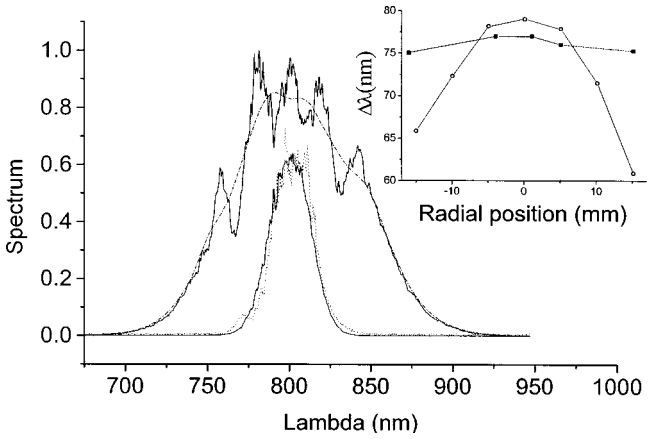


Fig. 2. Spectrum of the input pulse before focalization in air (solid curve) and after (dotted curve). Spectrum of the spectrally broadened pulse (direct spectrum) and after smoothing (dotted–dashed curve). The inset shows the spectral width of the beam after spatial filtering (Bessel beam with its first zero at $r = 23$ mm) (filled squares) and without spatial filtering (open circles).

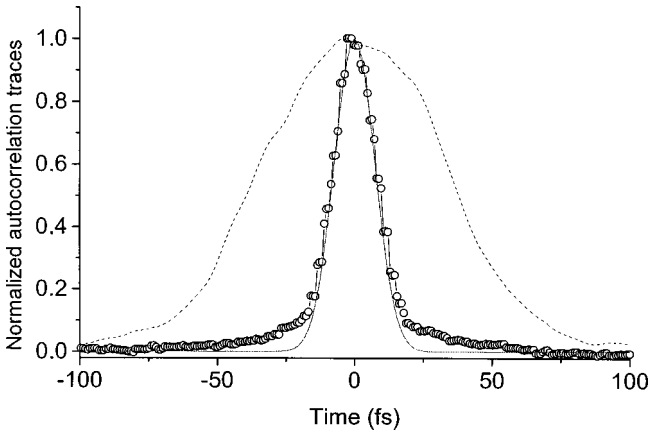


Fig. 3. Autocorrelation traces of the incoming pulse (FWHM = 60 fs) (dashed curve), of the recompressed pulse (FWHM = 18.6 fs) (open circles) and of the broadened pulse with perfect recompression (FWHM = 17.3 fs) (solid curve).

the pulse duration is significantly reduced with this postcompression system (here by a factor of ~3).

To recompress the output pulse, the residual chirp was removed with a compression prism line consisting of two SiO_2 60° prisms (double path) separated by 2 m and a pair of -45-fs^2 chirped mirrors. Taking into account the finite size of the beam in the prisms, the negative group-velocity dispersion (GVD) induced by this prism line is -400 to $-600\ \text{fs}^2$. Note that this GVD is relatively small and can be removed entirely with only a few bounces in a negative-GVD chirped-mirrors compressor.

Also shown in Fig. 3 is a reconstructed Fourier-limited autocorrelation trace (FWHM = 17.3 fs). This trace was obtained with the recorded spectrum by assuming that all its frequencies are in phase. By taking the squared inverse Fourier transform of the square root of the spectrum (in the frequency domain), we can estimate the temporal pulse shape and the minimum pulse duration achievable with this spectrum (the Fourier-limited pulse). This pulse duration was 11 fs (FWHM), and its autocorrelation trace has a FWHM of 17.3 fs. The measured autocorrelation FWHM is 1.07 times larger than the reference one, and we can therefore estimate that the output pulse duration is $1.07 \times 11\ \text{fs} = 12\ \text{fs}$ (a standard sech^2 profile leads to the same pulse duration).

Starting with pulses of 400 μJ, 42 fs, this recompression scheme allowed us to obtain pulses having a duration of 12 fs and an energy of 70 μJ. The output energy could readily be doubled by removing the 50% beam splitter used to feed the spectrometer and by using another compression system such as chirped mirrors instead of a prism line. This was not easily achievable with this setup because of nonlinear processes occurring in the SiO_2 prisms for too-high pulse energies.

This proof-of-feasibility experiment shows that high-energy femtosecond pulses are clearly recompressible with this postcompression technique, and we obtained a compression factor larger than 3 associated with a ~50% energy transmission. The output pulse duration (12 fs) is also very close to the minimum pulse duration (11 fs) compatible with the broadened spectrum, which shows that the output chirp was well compensated even with a simple prism line compressor.

4. IMPROVEMENTS AND PERSPECTIVES

This proof-of-feasibility experiment can be improved in many ways. For instance, the output bandwidth and the output energy can significantly be increased.

The maximum bandwidth of the outgoing pulse could be increased by use of another bulk material that could give a broader output spectrum, but no systematic check has been made here. Injecting shorter pulses having a broader bandwidth into this system should also broaden the output pulse bandwidth. For instance, by injecting the state-of-the-art amplified 20-fs pulses in this setup, one should get spectral widths large enough to obtain 5–7-fs pulses. The compression of such pulses would require a negative GVD line more sophisticated than our prism line.

The energy of the postcompressed pulses can also be significantly increased with this technique. Indeed, for the nonlinear step, the only important parameter is the peak intensity of the beam incident onto the bulk material for a given plate material and thickness. Increasing the energy by a factor of 100 while keeping the same intensity on the bulk plate would only require increasing the size of the beam on the plate by a factor of 10. This can be done by moving the bulk piece further from focus. However, compression of higher energy pulses would require performing the experiment under vacuum to avoid SPM in air after the bulk material.

We confirmed that this scheme could be scaled to higher energies by recompressing pulses with lower energies and then increasing the pulse energy. We chose to compress 200-μJ pulses to 16 fs and optimized the prism line to get this output pulse duration. We then changed the incoming pulse energy to 300 and 400 μJ and simply moved the bulk piece (away from focus) to get a 16-fs output pulse without any other changes. In all of these cases we could have obtained the same output pulse duration simply by controlling the plate position. By extrapolating these results to higher energies, it should be relatively straightforward to spectrally broaden pulses with energies higher than a joule.

The compression of such high-energy pulses is clearly inpractical with a prism line, but the GVD to be removed is relatively small. Therefore compression could be achieved with some chirped mirrors or by using a grating compressor. Using eight bounces on a -60-fs^2 chirp mirror plus one bounce on -45-fs^2 chirped mirror, we have recently achieved compression to 14 fs at 220 μJ from incident 42-fs, 480-μJ pulses.

Ultimately the maximum pulse energy will be limited by the spatial filtering step, since short high-energy pulses can easily damage spatial filters. However, hollow-capillary dielectric tubes can also be used as spatial filters and can guide pulses with energies higher than 50–100 mJ in the femtosecond domain.

Note also that in some cases the spatial filtering step is not necessary and could even be removed. For instance, one could spectrally broaden a collimated beam with a glass plate, compress it with chirped mirrors, and focus the beam afterward. At focus the beam would be in the far field without any spatial filtering. In this case the maximum energy of the compressed pulse could go above

the joule level. Also, in many strong-field experiments the experiment in itself acts as a spatial filter, since the observed signal is emitted by the central part of the beam, where the intensity is maximum. For instance, one can use such a postcompressed pulse to generate a high-order harmonic. The cutoff harmonics would then naturally be emitted only by the central part of the beam. Using sub-10-fs pulses with hundreds of millijoules would be a very useful tool for efficiently generating attosecond pulses.

5. CONCLUSIONS

We present in this paper a new extracavity compression technique that allowed us, with a simple system, to obtain 12-fs pulses with an energy of 70 μJ and 14-fs pulses with an energy of 220 μJ. This scheme is robust and easy to use. The maximum energy of the pulses that can be recompressed with this system is very high, and sub-10-fs pulses with energies higher than 100 mJ could be achieved. Obtaining such pulses will have an important effect in the short-pulse community. For instance, in the domain of high-order harmonic generation, such systems would be simple tools for efficiently generating subfemtosecond pulses[8] or photons in the water window[3,4] (2.2–4.4 nm).

ACKNOWLEDGMENTS

The authors gratefully acknowledge stimulating and helpful discussions with P. B. Corkum, S. De Silvestri, C. G. Wahlström, T. Brabec, and our colleagues at Centre Lasers Intenses et Applications. This study was supported by the Région Aquitaine, the European Regional Development Fund (FEDER) and the European network "ATTO" n°HPRN-2000-00133.

REFERENCES

1. U. Morgner, F. X. Kärtner, S. H. Cho, Y. Chen, H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, "Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser," Opt. Lett. **24**, 411–413 (1999).
2. D. H. Sutter, G. Steinmeyer, L. Gallmann, N. Matuschek, F. Morier-Genoud, U. Keller, V. Scheuer, G. Angelow, and T. Tschudi, "Semiconductor saturable-absorber mirror-assisted Kerr-lens mode-locked Ti:sapphire laser producing pulses in the two-cycle regime," Opt. Lett. **24**, 631–633 (1999).
3. Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, and F. Krausz, "Generation of coherent x-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses," Science **278**, 661–664 (1997).
4. Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, "Generation of coherent soft x rays at 2.7 nm using high harmonics," Phys. Rev. Lett. **79**, 2967–2970 (1997).
5. C. Rolland and P. B. Corkum, "Compression of high-power optical pulses," J. Opt. Soc. Am. B **5**, 641–647 (1988).
6. S. Sartania, Z. Cheng, M. Lenzner, G. Tempea, Ch. Spielmann, F. Krausz, and K. Ferencz, "Generation of 0.1-TW 5-fs optical pulses at a 1-kHz repetition rate," Opt. Lett. **22**, 1562–1564 (1997).
7. M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipocs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, "Compression of high-energy pulses below 5 fs," Opt. Lett. **22**, 522–524 (1997).
8. P. B. Corkum, H. H. Burnett, and M. Y. Yvanov, "Subfemtosecond pulses," Opt. Lett. **19**, 1870–1872 (1994).
9. P. Antoine, D. B. Milošević, A. L'Huillier, M. B. Gaarde, P. Salières, and M. Lewenstein, "Generation of attosecond pulses in macroscopic media," Phys. Rev. A **56**, 4960–4969 (1997).
10. I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, "Generation and propagation of attosecond x-ray pulses in gaseous media," Phys. Rev. A **57**, R2285–R2288 (1998).
11. M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum, and F. Krausz, "X-ray pulses approaching the attosecond frontier," Science **291**, 1923–1927 (2001).
12. V. Bagnoud and F. Salin, "Amplifying laser pulses to the terawatt level at 1-kilohertz repetition rate," Appl. Phys. B **70**, S165–S170 (2000).
13. E. Constant, E. Mével, A. Zaïr, V. Bagnoud, and F. Salin, "Towards subfemtosecond pump–probe experiments: a dispersionless autocorrelator with attosecond resolution," J. Phys. IV **11**, 537–540 (2001).

Time-gated high-order harmonic generation

O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge, and E. Constant
Centre Lasers Intenses et Applications, UMR 5107, CNRS, Université Bordeaux I, 33405 Talence cedex, France
(Received 10 April 2003; published 6 October 2003)

We generate high-order harmonics by using an 800-nm fundamental pulse whose polarization evolves with time. Controlling the ellipticity modulation of the fundamental field allows us to continuously confine the harmonic emission from an estimated minimum value of 7 fs (1 fs$=10^{-15}$ s) up to more than the 35 fs input pulse duration. Depending on the observed harmonic, the harmonic spectrum can show either a narrowing or a broadening when the ellipticity is changed in good agreement with an effective confinement of the high-order harmonic generation.

DOI: 10.1103/PhysRevA.68.043804 PACS number(s): 42.65.Ky, 32.80.Wr

High-order harmonic generation (HHG) has long been predicted to be a potential source for attosecond pulsed emission [1,2]. It was a major experimental breakthrough when it was demonstrated that the harmonics are effectively emitted in a train of attosecond pulses [3] from which a single attosecond burst of XUV light can be extracted [4]. So far, only state of the art 5–7 fs intense fundamental pulses [5,6] allowed the production of isolated subfundamental optical cycle XUV pulses [4] after the selection of near cutoff harmonics [7]. An alternative way to generate isolated XUV attosecond pulses [2] is to rapidly modulate the polarization of the fundamental pulse and use the strong ellipticity dependence of HHG [8] for confinement. If its polarization remains linear for a time much shorter than the pulse duration, the harmonic emission can then be strongly confined. In this way, even relatively long pulses ($\sim$15 fs) could be used for single attosecond pulse emission. Furthermore, we show here that modulating the polarization allows continuous control of the XUV pulse duration. A first attempt of HHG with a polarization modulated pulse was performed in LUND [9] by using nonlinear effects to control the fundamental ellipticity. A confinment of the HHG was then observed but the strong nonlinearity involved in the polarization modulation process made it hardly controllable for the emission of a single attosecond pulse. Similarly, another test was recently performed with two orthogonally polarized laser pulses with different frequencies [10] and showed harmonic confinement but was hardly downscalable for attosecond pulse emission.

In this paper we introduce a linear technique for controlling the ellipticity modulation and we present experimental evidence of a continuously controllable temporal confinement of HHG down to a minimum duration of $\sim$7 fs by using a 35-fs fundamental pulse. This confinement is observed by studying the harmonic spectrum while controlling the ellipticity of the fundamental field. We first present the experimental technique used to create a flat top intensity profile pulse with a time-dependent polarization. We then describe the experimental setup and experimental findings for both the plateau and cutoff harmonics and show that these observations are in good agreement with an effective controllable confinement of HHG. Finally, we conclude with the possible implications of this technique.

The linear method used here to modulate the ellipticity of the fundamental pulse consists in transmitting femtosecond pulses through two quartz quarter wave plates. The first thick quartz plate splits the $\tau_0=35$ fs incoming linearly polarized pulse in two, delayed, linearly polarized pulses with perpendicular polarization (Fig. 1). At a central wavelength of 800 nm, the 1.05-mm-thick plate results in a delay, $\delta t=31.3$ fs, in between these two pulses and a dephasing of 47 $\pi/2$ (multiple-order quarter wave plate). The outcoming field is circularly polarized at the time when the two perpendicular fields have the same amplitude. When the incident polarization is at 45° of the axis of the first plate ($\theta_1=45°$), the total field is therefore circularly polarized at the center of the outgoing pulse. At the beginning and end of this pulse, the field is linearly polarized. Using a multiple order quarter wave plate allows us, therefore, to create a pulse having a polarization that continuously evolves from linear to circular and back to linear [11]. Transmitting this pulse through an additional zero-order quarter wave plate (with its axis at $\theta_2=45°$ of those of the first plate) changes the circular field in linear and the linear field in circular. The combination of these two plates (with $\theta_1=\theta_2=45°$) changes an input linearly polarized pulse into a polarization modulated pulse whose polarization changes from circular to linear and back to circular (Fig. 1).

While this polarization evolution strongly depends on the dephasing between the two outgoing pulses, the intensity profile (transmitted energy per unit of time) of the output

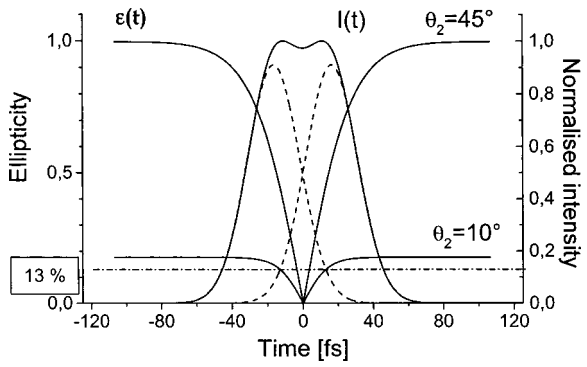


FIG. 1. Pulse intensity profile (full line) and time-dependent ellipticity for two angles ($\theta_2=45°$ and $\theta_2=10°$) of the zeroth-order quarter wave plate. The crossed polarized 35 fs Gaussian pulses separated by 31.4 fs are shown (dotted lines). The 13% ellipticity defining the gate width is indicated.

 ©2003 The American Physical Society

pulse only depends on the delay, δt. For $\delta t \approx \tau_0$, the intensity is close to maximum at the center of the pulse and remains constant during τ_0, creating therefore a pulse with a flat top intensity profile (Fig. 1).

The temporal domain in which the electric field is close to linear (ellipticity smaller than 13%) defines a temporal gate inside which HHG can occur efficiently. We choose this 13% criterion since we observed that a (constant) 13% ellipticity of the fundamental field reduced by 50% the emission efficiency for the plateau harmonics (order $q=19$ and 27) generated in argon as compared to harmonics generated with a zero ellipticity. The width of this temporal gate, τ_G, is imposed by the duration τ_0 of the input pulse (supposed as Gaussian in this paper), the delay δt, and by the angles θ_1 and θ_2. For $\theta_1=\theta_2=45°$ and $\delta t \approx \tau_0$ (which corresponds to the so-called "narrow gate" in this manuscript) this width is equal to $\tau_0/5$ ($\tau_g=7$ fs for $\tau_0=35$ fs). Controlling the width of this gate without any other changes allows us to observe the effect of a temporal confinement of HHG on the harmonic spectra. Changing the angle θ_2 allows us to change this gate width without changing the output pulse intensity profile. Indeed, at the center of the outgoing pulse, the polarization is linear for any angle θ_2 while at other times during the pulse the degree of ellipticity depends on θ_2. Changing θ_2 changes the time at which the 13% ellipticity criteria is achieved and hence the gate width. In the case of $\theta_2=0$, the output field is always linearly polarized and HHG can occur throughout the full output pulse (this configuration $\theta_1=45°$, $\theta_2=0°$ will be referred to as "large gate"). Simply varying θ_2 by rotating the zero-order quarter wave plate allows us, therefore, to vary continuously the gate width from a minimum value ($\tau_0/5$) to the full pulse ($\sim 2\tau_0$) without changing significantly the intensity profile of the outgoing pulse.

This analysis is valid only for well-defined wavelengths at which the two plates are quarter wave plates. However, multiple order wave plates are chromatic and this analysis holds only if the field instantaneous frequency is constant, i.e., if the two output pulses are Fourier limited short pulses. Since this technique is linear, it is only important that the pulses are unchirped in the HHG cell and the input pulse can be chirped to compensate for the dispersion of the plates. This precompensation is possible only if one can neglect the dispersion difference between the two axes of the plate which is indeed negligible here (for a 35 fs unchirped input pulse, the output pulse duration differs only by 0.02 fs if the pulse propagates along the slow or fast axis). For shorter pulses (~ 15 fs), thinner plates (0.5 mm) can be used and the same analysis holds.

In the present experiment we checked that the output pulse duration was minimum where harmonics are generated by inserting a doubling BBO crystal after the wave plates and the focusing lens (see the text below). The compressor was tuned so that the doubled signal was maximum and hence the pulse had its minimum duration in the HHG cell.

Apart from the two quartz wave plates, the setup used for HHG was standard. After passing through the plates, the 800-nm beam was focused by a 1.5-m focal length lens onto a 15-mm-long gas cell (filled with argon) located at focus.

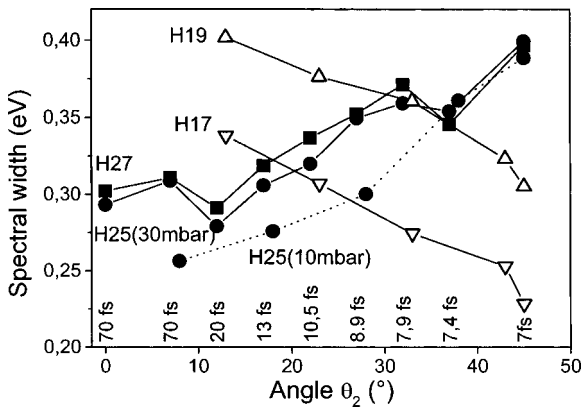


FIG. 2. Evolution of the spectral width of the plateau ($q=17$ and 19) and near cutoff ($q=25$ and 27) harmonics as a function of the zeroth-order quarter wave-plate angle (θ_2). The large and narrow gate, respectively, correspond to $\theta_2=0°$ and $\theta_2=45°$. The theoretically estimated gate width is indicated. Harmonics are generated with 1.1 mJ in 30 mbar of argon (full lines) and 1.4 mJ, 10 mbar of argon (dotted line).

The harmonic beam was analyzed by a grazing incidence XUV spectrometer ($f=1$ m toroidal mirror and flat grating, 470 g/mm, deviation$=165°$) equipped with a back illuminated charge-coupled device (CCD) camera (protected from the IR stray light by an 1000-Å-thick aluminum filter mounted on a mesh). The observed harmonic order ranged from 15 to 35. We concentrate on results obtained with a low pulse energy (1.1 to 1.4 mJ after compression) and a low argon pressure (9 and 30 mbar) in order to avoid spectral modifications due to ionization. The only parameter was the gate width controlled by changing θ_2.

For the plateau harmonics, we could observe a spectral narrowing of the individual harmonics when the gate width was decreased (Fig. 2) as was already observed in [9]. This is in contradiction with the intuitive thinking that a temporal confinement of the HHG should lead to an increase of the harmonic spectral width but it can be explained by considering the influence of the intensity dependent atomic phase. In contrast, for the cutoff harmonics, we could observe a spectral broadening of the harmonics when the gate width was decreased (Fig. 2). For the 29th harmonic, for instance, the spectral width (estimated with a Gaussian fit) changed from 300 meV for the large gate configuration to 400 meV for the narrow gate.

These observations were robust and all the cutoff harmonics showed such a spectral broadening. Reducing the pressure from 30 to 9 mbar (while increasing the energy from 1.1 to 1.4 mJ to maintain a reasonable level for the harmonic signal) allowed us to observe the same effect (Fig. 2). At this low energy level, this result confirms the negligible effect of ionization of the medium on the spectral modifications and that the observed changes are induced by the temporal confinement. Furthermore, for these low energies and low pressures, the spectrum of the fundamental pulse was not changed by propagation in the generating gas medium.

To further check these observations, we also selected two harmonics (25th and 27th) and changed the laser energy in order to put these harmonics either in the plateau region

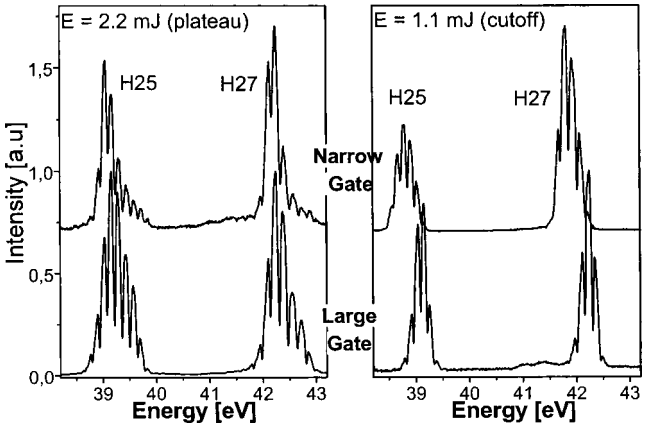


FIG. 3. Spectra of the 25th and 27th harmonics generated in 30 mbar of argon in the narrow (top) and large (bottom) gate configuration. (a) When these harmonics are in the plateau. (b) When they lie in the cutoff region. The rapid modulations in the spectra are due to the mesh supporting the Al filter.

($E_{\text{laser}}=2.2$ mJ) or close to the cutoff ($E_{\text{laser}}=1.1$ mJ). Similarly to our previous observations, when the harmonics are in the plateau, their spectral width decreases when the gate width is reduced (Fig. 3). When those harmonics are in the cutoff region, their spectral width increases when the gate width is decreased (Fig. 3).

We also followed the efficiency of HHG as a function of the gate width and this efficiency did not dramatically change. Usually for the plateau harmonics, the efficiency decreased when the gate width was decreased but for the cutoff harmonics, the behavior was more complex and there were even some low-energy specific configurations where the HHG efficiency was larger in the narrow gate configuration than in the large gate configuration.

The results presented here are consistent with a temporal confinement of the HHG induced by the modulation of the fundamental polarization and with the current understanding of high-order harmonic generation, especially by considering the crucial effect of the intensity-dependent atomic dipole phase [12]. For the plateau harmonics two quantum paths ("short" and "long") are involved in the HHG process and it was shown that they can be considered separately to explain experimental findings [13]. For the cutoff harmonics, these two quantum paths merge into a single one.

For a given harmonic, the phase of the atomic dipole is proportional to the laser intensity and evolves as $\varphi^{(i)}=\alpha^{(i)}I$, where I is the laser intensity [13]. For the plateau harmonics, $\alpha^{(1)}=2.5$ cm^2/W (with I in units of 10^{14} W/cm^2) for the short quantum path and $\alpha^{(2)}=25$ cm^2/W for the long quantum path. For the cutoff harmonics, $\alpha^{(c)}=12$ cm^2/W. For a pulse with intensity $I(t)$, the phase of the harmonic dipole is $\varphi_q=-q\omega_0 t-\alpha I(t)$, and the corresponding instantaneous harmonic frequency, $\omega_q(t)=q\omega_0+\alpha dI/dt$, changes with time. To estimate this frequency change, one needs to know the intensity profile (considered here as Gaussian) and peak intensity of the pulse. Observing the 33rd harmonic implies that the peak intensity is at least equal to 1.86×10^{14} W/cm^2 (calculated by using the cutoff law [14]) and we consider in the following a peak intensity of 2×10^{14} W/cm^2 (a perfect focussing of the 1.1 mJ pulse by the 1 m lens with a beam size $W=8$ mm would lead to a peak intensity of $\sim10^{15}$ W/cm^2).

In the large gate configuration, the plateau harmonics can be generated as I changes in the leading and falling edge of the pulse, and ω_q changes significantly during the emission process. For instance, the 17th harmonic can be generated for $I>6\times10^{13}$ W/cm^2 (for times -38 fs$<t<38$ fs) and its instantaneous frequency ω_{17} changes by ~2.4 eV. Note that this 2.4 eV is an overestimate of the harmonic spectral width since the generation efficiency changes with I as well as α. Still, this width is so large that this effect should be predominant and impose the plateau harmonic spectral width. Confining the plateau harmonic emission to a few femtoseconds would result in confining the possible values of dI/dt during emission and therefore a narrowing of the spectrum as observed here and as was already observed and fully detailled in a former experiment [9]. For the short quantum path, the instantaneous frequency change is much smaller and a temporal confinement of the harmonic generation should lead to a broadening of the spectrum (as we recently observed in an other experiment [15]) which is inconsistent with our observation. However, the relative efficiency between the two quantum paths emission strongly depends on the generation configuration (gas pressure and laser focusing geometry) and the long quantum path seems to be the dominant one here (this is further confirmed since here the plateau harmonics are naturally spectrally broader than the cutoff harmonics). A temporal confinement of the plateau harmonic emission results therefore in a spectral narrowing as observed here, and the minimum bandwidth (0.26 eV) is consistent with a temporal confinement of ~7 fs (estimated, for Gaussian pulses, through the relation $\Delta E\ \delta t_{\text{hhg}}=1.8$, with ΔE in eV and δt_{hhg} in fs). Note that if the confinement was on the order of 1 fs, one should also observe a spectral broadening for these plateau harmonics.

For the cutoff harmonics, the situation is different since $\alpha^{(c)}$ is smal and these harmonics can only be generated around the peak of the pulse where dI/dt is small. The intensity-dependent frequency shift is therefore smaller than for the plateau harmonics. As the HHG is confined to a few fs, the spectrum of these harmonics should be enlarged as observed here.

To estimate the enlargement due to confinement, we considered that the cutoff harmonics have a natural bandwidth ΔE_0 that can be due to the laser bandwidth, the atomic phase induced frequency chirp, and nonlinear effects in the gas medium. The confinement of the harmonic emission to δt_{hhg} also enlarges the bandwidth by ΔE_{conf} (with $\Delta E_{\text{conf}}\ \delta t_{\text{hhg}}=1.8$). Considering ΔE_0 and ΔE_{conf} as independent leads to a total width ΔE of $\Delta E=\sqrt{\Delta E_0^2+\Delta E_{\text{conf}}^2}$. For the cutoff harmonics [see Fig. 2(b)], the bandwidth changes from 0.3 (large gate) to 0.4 eV (narrow gate) which corresponds to $\Delta E_{\text{conf}}=0.26$ eV, consistent with a temporal confinement of 7 fs. Again, this is in good agreement with the estimated minimum gate width, $\tau_g=7$ fs.

The simultaneous observation of a spectral narrowing for the plateau harmonics and a spectral broadening for the cutoff harmonics as the gate width is decreased are therefore consistent with an effective temporal confinement of the HHG inside the polarization controlled temporal gate. Although the spectral modifications are only an indirect signature of confinement and the exact duration of the emission cannot be directly measured here, these experimental observations are consistent with a confinement inside a temporal gate having a minimum duration of ~ 7 fs as expected by theory.

Using a simple linear setup to modulate the ellipticity led to experimental observations consistent with a controllable confinement of the high-order harmonic emission for both the plateau and cutoff harmonics. The essence of this technique is to continuously control the harmonic emission from a maximum value down to a small fraction ($\sim 1/5$) of the input pulse duration. This opens new perspectives for the use of widely available ''long'' fundamental pulses in the attophysics domain and using high energy sub-15 fs pulses [5,16] should lead to the emission of an isolated attosecond pulse [17]. Furthermore, continuously controlling the number of attosecond pulses in an attosecond pulse train could ultimately be used directly to perform pump probe experiments by using directly the different attosecond pulses as pumps and probes which would remove the need to create two identical replica with XUV optics.

We gratefully acknowledge discussions with Thomas Brabec and P. B. Corkum. This study was supported by the Région Aquitaine, the European Regional Development Funds (FEDER), and the European network ''ATTO'' No. HPRN-2000-00133.

[1] G. Farkas and C. Toth, Phys. Lett. A **168**, 447 (1992); S. E. Harris, J. J. Macklin, and T. W. Hansch, Opt. Commun. **100**, 487 (1993).
[2] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, Opt. Lett. **19**, 1870 (1994). M. Y. Ivanov *et al.*, Phys. Rev. Lett. **74**, 2933 (1995).
[3] P. M. Paul *et al.*, Science **292**, 1689 (2001).
[4] M. Hentschel *et al.*, Nature (London) **414**, 509 (2001).
[5] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, Appl. Phys. Lett. **68**, 2793 (1996).
[6] S. Sartania *et al.*, Opt. Lett. **22**, 1562 (1997).
[7] I. P. Christov, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, Phys. Rev. Lett. **78**, 1251 (1997).
[8] K. S. Budil *et al.*, Phys. Rev. A **48**, R3437 (1993).
[9] C. Altucci *et al.*, Phys. Rev. A **58**, 3934 (1998).
[10] N. A. Papadogiannis *et al.*, in Proceedings GCL/HPL, 2002 (unpublished).
[11] A. J. Duncan, A. Finch, and W. Sibbett, J. Phys. B **23**, 611 (1990).
[12] M. Lewenstein, P. Salières, and A. L'Huillier, Phys. Rev. A **52**, 4747 (1995).
[13] M. B. Gaarde *et al.*, Phys. Rev. A **59**, 1367 (1999).
[14] A. L'Huillier *et al.*, Phys. Rev. A **48**, R3433 (1993).
[15] M. Kovacev *et al.*, Eur. Phys. J. D (to be published).
[16] E. Mével *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B (to be published).
[17] V. T. Platonenko and V. V. Strelkov, J. Opt. Soc. Am. B **16**, 435 (1999).

Eur. Phys. J. D **26**, 79–82 (2003)
DOI: 10.1140/epjd/e2003-00202-x

THE EUROPEAN PHYSICAL JOURNAL D

Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating

M. Kovačev[1], Y. Mairesse[1], E. Priori[2], H. Merdji[1], O. Tcherbakoff[3], P. Monchicourt[1], P. Breger[1], E. Mével[3], E. Constant[3], P. Salières[1,a], B. Carré[1], and P. Agostini[1]

[1] Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA-DSM-DRECAM, Centre d'Études de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France
[2] INFM, Dipartimento di Fisica, Politecnico, Piazza Leonardo da Vinci 32, 20133 Milano, Italy
[3] CELIA, Université Bordeaux 1, Cours de la Libération, 33405 Talence, France

Received 25 November 2002
Published online 8 July 2003 – © EDP Sciences, Società Italiana di Fisica, Springer-Verlag 2003

Abstract. We show experimentally that a simple optical setup is able to reduce the duration of the harmonic emission generated by "long" (many optical cycles) laser pulses. By controlling the time-dependent ellipticity during the laser pulse, one can confine the harmonic emission to a narrow temporal window where the polarization is quasi-linear. The results obtained and their comparison with a simple model show a shortening of a factor 2 for harmonics located in the plateau region. Using shorter laser pulses of 15–20 fs duration should make it possible to isolate a single attosecond pulse.

PACS. 42.65.Ky Frequency conversion; harmonic generation, including higher-order harmonic generation – 32.80.Wr Other multiphoton processes

1 Introduction

High order harmonic generation has led recently to the first experimental demonstration of attosecond pulses [1,2]. In [1], the authors showed that the harmonic emission, under appropriate experimental conditions, takes the form of a train of attosecond pulses, with peaks (250 as) separated by half the laser period (1.35 fs in the case of a Ti:sapphire laser). This temporal structure can be understood easily within the framework of the semi-classical model [3,4], that describes the harmonic emission as a three-step process: tunneling ionization in the intense laser field, then acceleration of the freed electron and finally radiative recombination with the parent ion. Attosecond bursts are emitted at each electron-ion re-collision, with a periodicity given by half the laser period. Phase matching in the macroscopic medium helps in selecting a single burst per half cycle [5,6].

Different methods have been proposed to generate a single attosecond pulse instead of the full train. One uses the fast intensity dependence of the harmonic efficiency in the cutoff region. The generation by an ultrashort (7 fs) laser pulse has led to an isolated 650-attosecond pulse [2]. These pulses, however, have very low energy for two main reasons: first, the short laser pulses needed are obtained by hollow fiber post-compression [7], which limits their energy to less than 1 mJ. Second, the technique requires to select only the highest harmonics generated in light rare gases, for which the efficiency is low. An alternative method, based on the strong ellipticity dependence of the harmonic efficiency, would allow the generation of intense attosecond pulses. When the polarization of the laser is not linear, the re-collision probability of the electron with its parent ion, and thus the intensity of the harmonic emission, decrease rapidly with the ellipticity ϵ of the laser pulse. Experimental and theoretical studies have confirmed this fast decrease [8,9]. Using a laser pulse whose degree of ellipticity varies sufficiently rapidly in time on the scale of the laser period, would give the possibility to prevent all re-collisions except for one, thus resulting in a single attosecond burst [10]. A first attempt in this direction was performed in Lund [11], where a temporal gate was obtained by time delaying two chirped, orthogonally-polarized laser pulses. More recently, such a gate was obtained by superposing two orthogonally-polarized laser pulses with slightly different carrier frequencies [12]. However these methods do not allow a fine control of the duration of the gate. Another technique for realizing the polarization gating was independently proposed by Constant [13] and by Platonenko and Strelkov [14], that allows to vary in a continuous way the duration of the temporal gate. In theory this may lead to sub-femtosecond values of the harmonic pulse duration. A first implementation of this technique using fixed delays has recently been made in Bordeaux [15]. In this article, we present a proof of principle experiment where a simple

[a] e-mail: salieres@drecam.cea.fr

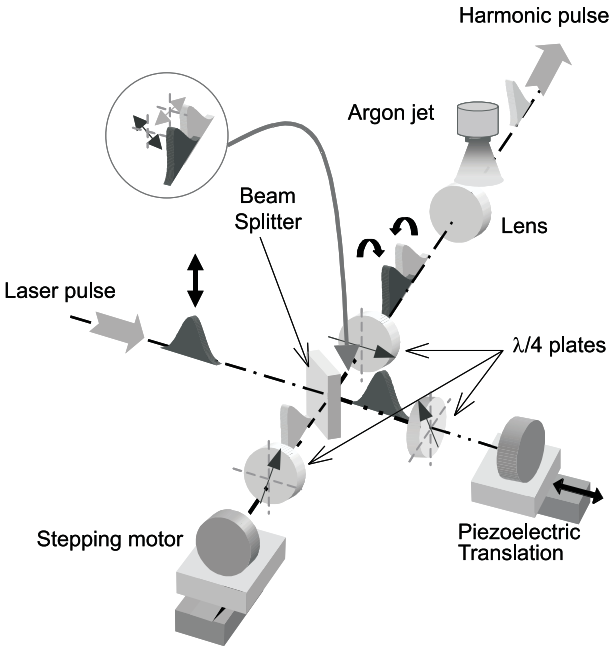


Fig. 1. Experimental setup used to generate the polarization gate. An intense IR laser pulse is split into two time-delayed, counter-circularly-polarized pulses, that are focused into an argon jet.

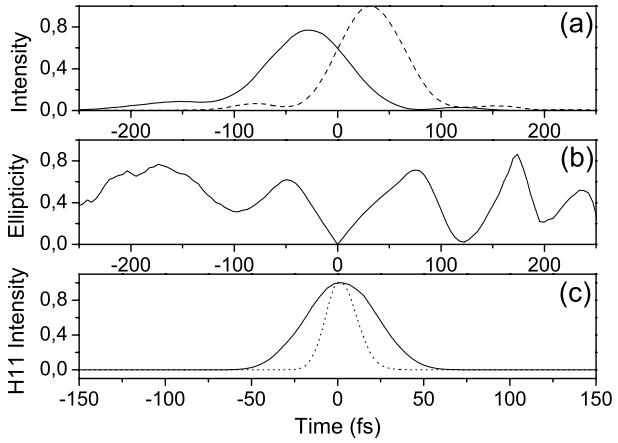


Fig. 2. (a) Temporal profile of the two laser pulses exiting the Michelson. (b) Absolute value of the ellipticity as a function of time, after the third QWP for a 60-fs delay. (c) Simulated temporal profile of H11 for a zero delay (solid line) and a 60-fs delay (dashed line).

optical scheme gives a time varying polarization resulting in a temporal confinement of the harmonic emission.

2 Experimental setup

The experimental setup is shown in Figure 1. It is based on a Michelson interferometer that produces two replicas of the input laser pulse with a delay τ adjustable with a high precision thanks to a stepping motor and a piezoelectric translation. In each arm of the interferometer is placed a zero-order quarter-wave plate (QWP): being crossed twice, the QWPs act like half-wave plates (HWPs) and they turn the polarization direction of the incoming radiation of $\simeq \pm\pi/4$. The QWPs are oriented in such a way that the two delayed pulses exit the Michelson with orthogonal linear polarizations. After the interferometer, the laser pulses cross a final third QWP that changes the linear polarizations into right and left circular polarizations respectively. The superposition of the two time-delayed, circularly-polarized pulses results in a polarization that varies from circular to linear and back to circular, thus generating a gate whose duration depends on the delay τ. Note that the polarization gate is determined here by the variation of the relative amplitude of the laser pulses, in contrast to the method used in [11] that was relying on the variation of their relative phase.

We have characterized the two laser pulses exiting the interferometer with SPIDER measurements. Their temporal profiles are shown in Figure 2a. The initial laser pulse had a duration of 50 fs, but propagation through the QWPs and the beam splitter of the interferometer broadened the pulses to about 80 fs. The two pulses were not strictly identical because of the lack of a compensator plate. With the additional information of their temporal phase, we can construct the temporal evolution of the ellipticity after the third QWP for a given delay. Its absolute value is shown in Figure 2b for a 60 fs delay. A gate of nearly linear polarization is opened when the two pulses have similar intensity. Note that another gate appears around 120 fs due to the presence of post-pulses. But the very low intensity ensures that no harmonic emission is produced there.

After the third QWP, the laser beam is focused at $f\#52$ by a 750 mm lens into a 50 torr argon jet. In order to minimize effects such as harmonic chirp, ionization-induced blue-shift and laser defocusing, that can make the interpretation of the results very difficult, we limit the peak intensity at zero delay to the rather low value of $\sim 1 \times 10^{14}$ W/cm^2. The harmonic radiation is analyzed by a plane-grating spectrometer, composed of a toroidal mirror and a grazing incidence grating, and detected with a photo-multiplier.

3 Experimental results

The first measurements consisted in recording the harmonic signal as a function of the applied delay. The solid line in Figure 3 shows the case of the 11th harmonic (H11). At zero delay, the polarization is always linear, and should correspond to the maximum conversion efficiency. This is not the case in our measurement, probably because of intensity fluctuations in the laser beam, rather than an anomalous ellipticity dependence like that reported in [16]. At large delays, the signal decreases rapidly down to zero, showing pronounced oscillations. The latter are related to the orientation of the polarization: when the delay τ varies by half an optical cycle $T/2$, the polarization plane of the laser light turns of 90 degrees at the center of the gate

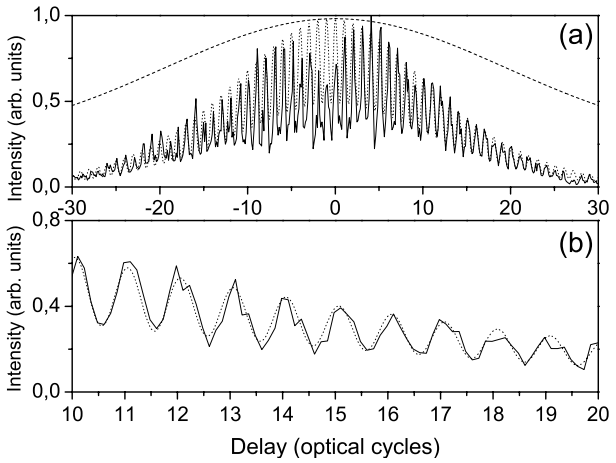


Fig. 3. (a) Variation of the harmonic signal (H11) as a function of the delay. The solid line shows the experimental trace and the short-dashed line represents the simulated curve. The long-dashed line represents the simulated intensity envelope when $\beta_q = 0$. (b) Enlargement of (a) showing the good agreement between the experimental trace and the simulated curve.

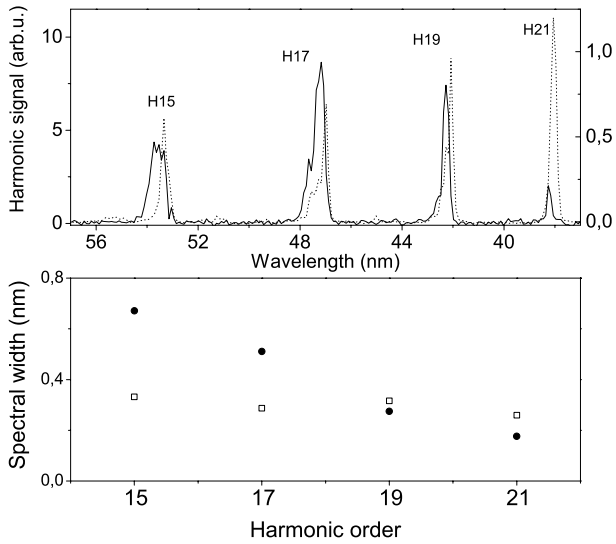


Fig. 4. (a) Experimental harmonic spectra obtained at zero delay (dashed) and 60 fs delay (solid). (b) Spectral widths at zero delay (open squares) and 60 fs delay (full circles).

(when $\epsilon = 0$) and so does the polarization plane of the harmonics. The transmission efficiency of the spectrometer is polarization-dependent (about a factor 2 difference between s and p polarizations), therefore the measured signal oscillates with period T. The decrease of the harmonic signal is the result of two effects: as the delay increases, the polarization gate becomes narrower and the laser intensity gets smaller, both resulting in a weaker generation efficiency. To determine the dominant effect, we measured the same trace as in Figure 3 but with the neutral axes of the third QWP aligned along the polarizations of the pulses exiting the Michelson. The polarization of the total pulse thus remains linear whatever the delay and we can quantify the influence of the decreased laser intensity. For a delay of 30 optical cycles, the harmonic signal is decreased by only a factor 2. Consequently, the fast decrease observed in Figure 3 is mainly the result of the polarization gating.

A signature of the shortening of the harmonic pulse could be found also in the broadening of its spectrum. However this broadening is difficult to observe owing to the fact that the harmonic pulses are not at the Fourier transform limit, but present a negative "intrinsic" chirp [17]. This chirp results in a spectral broadening, all the more important as the laser intensity is high. When the temporal gate is narrowed at large delays, the laser intensity during the harmonic generation is decreased, and so is the spectral broadening. This process can hide completely the desired effect, and even produce the opposite result of a narrowing of the spectrum at large delays, as observed in [11]. Moreover the interplay between the laser chirp and the intrinsic harmonic chirp may complicate significantly the interpretation of the results [18]. In order to minimize the influence of the intrinsic chirp, we used a low laser intensity, a heavy rare gas as generating medium (argon) and we studied low harmonic orders. Furthermore, the generating conditions were chosen so that the "short trajectory" contribution to the harmonic generation process be phase matched (gas jet placed after the laser focus) [5,6]. This was verified by measuring the far-field profile of the harmonic beam: no outer ring was observed around the central spot [19]. With these precautions, we obtained the results presented in Figure 4. A clear spectral broadening of a factor 2 is observed for the harmonics of the plateau region (H15 and H17) at 60-fs delay. This gives indication of a temporal confinement of the harmonic emission. The fact that no spectral broadening is observed for high orders may be explained by the increase of the harmonic chirp in the cutoff region when the "short trajectory" is selected [19].

4 Simulations

We have developed a simplified model based on experimental measurements of the dependence of the harmonic signal on laser intensity and ellipticity. We assume that the measured signal corresponding to harmonic q is given by

$$S_q = A \int_{-\infty}^{+\infty} I_0(t)^{q_{\text{eff}}} \mathrm{e}^{-\beta_q \epsilon(t)^2} g(\theta(t)) \mathrm{d}t \qquad (1)$$

where A is a normalization constant, $I_0(t)$ the laser intensity, q_{eff} an effective nonlinear order, equal to 3 for a plateau harmonic [20] and

$$g(\theta) = 1 - \frac{1}{4}[1 + \cos(2\theta)] \qquad (2)$$

is the empirical function that expresses the efficiency of the spectrometer as a function of the orientation of the harmonic polarization plane. We assume that the harmonics are always linearly polarized along the major axis of

the polarization ellipse of the fundamental: this is a good approximation as long as $\epsilon \ll 1$; when the ellipticity is important, harmonic generation is very weak, therefore the produced error is negligible. The Gaussian decrease $e^{-\beta_q \epsilon^2}$ of the harmonic signal as a function of the ellipticity ϵ depends on the harmonic order and the nonlinear medium [8,9]: β_q is a constant that increases with q and whose value lies typically between 15 and 60. In our experiments we measured a value of $\beta_q \approx 35$.

The comparison of the simulation using the above formula with the experimental-curve is shown in Figure 3. The good agreement indicates that our model, despite its simplicity, describes correctly the polarization gating. Furthermore, it demonstrates that this experimental setup allows an accurate control of the polarization gate, through the use of the piezoelectric translation. By switching off the ellipticity dependence in equation (1), we can study the influence of the decreased laser intensity on the harmonic signal at large delays. The envelope of such a trace is shown in long-dashed curve in Figure 3. It decreases much more slowly, in agreement with the measurements performed with the third QWP turned 45 degrees. Therefore it cannot explain the fast decrease of the harmonic signal. The main reason for the latter is rather the shortening of the polarization gate when increasing the delay, which demonstrates the efficiency of our polarization gating scheme. In Figure 2c are shown the simulated harmonic temporal profiles for a zero delay (solid) and a 60-fs delay (dashed). The duration of the XUV pulse is reduced by a factor of 2.3, from 49 to 21 fs, which is consistent with the measured spectral broadening of a factor 2.

5 Conclusion

In conclusion we have presented a proof of principle experiment of a new technique of polarization gating. We showed clear evidence of control of the time-dependent ellipticity of the fundamental laser beam. Both the decrease of the harmonic signal at large delay and the spectral broadening indicate a temporal confinement of the harmonic emission. The main limitation of this technique lies in the fact that, when increasing the delay, on the one hand the laser intensity during the gate — and thus the harmonic signal — decreases, and on the other hand an increasing part of the laser energy ionizes the nonlinear medium without contributing to the harmonic generation. When starting from 80 fs pulses, the delay necessary to reduce the gate duration below the optical period is so large that the harmonic efficiency is very low. The generation of an intense isolated attosecond pulse thus requires laser pulses lasting 15–20 fs, which is less demanding than the 5–7 fs necessary at present [2]. Note that a new technique of pulse post compression at 15 fs above the mJ level is currently under development [21]. Our simulations, validated by the comparison with experimental results, suggest the possibility of generating attosecond pulses with energy in the nJ range using the generating conditions that have recently allowed microjoule femtosecond harmonic emission [22].

M.K. acknowledges the financial support provided through the European Community's Human Potential Program under contract HPRN-CT-2000-00133, ATTO.

References

1. P.M. Paul, E.S. Toma, P. Bréger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H.G. Muller, P. Agostini, Science **292**, 1689 (2001)
2. M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G.A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, Nature **414**, 509 (2001)
3. P.B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
4. C. Kulander, K.J. Schafer, J.L. Krause, *Super Intense Laser Physics* (NATO ASI Series B, 1993), Vol. 316, p. 95
5. Ph. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996)
6. P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G.G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D.B. Milosevic, A. Sanpera, M. Lewenstein, Science **292**, 902 (2001)
7. M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, Appl. Phys. Lett. **68**, 2793 (1996)
8. K.S. Budil, P. Salières, A. L'Huillier, T. Ditmire, M.D. Perry, Phys. Rev. A **48**, R3437 (1993)
9. Ph. Antoine, A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, B. Carré, Phys. Rev. A **53**, 1725 (1996)
10. P.B. Corkum, N.H. Burnett, M.Y. Ivanov, Opt. Lett. **19**, 1870 (1994)
11. C. Altucci, Ch. Delfin, L. Roos, M.B. Gaarde, A. L'Huillier, I. Mercer, T. Starczewski, C.-G. Wahlström, Phys. Rev. A **58**, 3934 (1998)
12. N.A. Papadogiannis, G. Nersisyan, E. Goulielmakis, M. Decros, M. Tatarakis, E. Hertz, L.A.A. Nikolopoulos, D. Charalambidis, *Proceedings GCL/HPL*, to be published in SPIE (2003)
13. E. Constant, Ph.D. thesis, University of Sherbrooke, Canada, 1997
14. V.T. Platonenko, V.V. Strelkov, JOSA B **16**, 435 (1999)
15. E. Constant, E. Mével, O. Tcherbakoff, submitted
16. M. Kakehata, H. Takada, H. Yumoto, K. Miyazaki, Phys. Rev. A **55**, R861 (1997)
17. P. Salières, A. L'Huillier, M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **74**, 3776 (1995)
18. P. Salières, Ph. Antoine, A. de Bohan, M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **81**, 5544 (1998)
19. C. Lynga, M.B. Gaarde, C. Delfin, M. Bellini, T.W. Hänsch, A. L'Huillier, C.G. Wahlström, Phys. Rev. A **60**, 4823 (1999)
20. C.-G. Wahlström, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salières, Ph. Balcou, A. L'Huillier, Phys. Rev. A **48**, 4709 (1993)
21. E. Mével, O. Tcherbakoff, F. Salin, E. Constant, J. Opt. Soc. Am. B **20**, 105 (2003)
22. J.-F. Hergott, M. Kovacev, H. Merdji, C. Hubert, Y. Mairesse, E. Jean, P. Breger, P. Agostini, B. Carré, P. Salières, Phys. Rev. A **66**, 021801 (2002)

Time-resolved ellipticity gating of high-order harmonic emission

R. López-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, and A. L'Huillier
Department of Physics, Lund Institute of Technology, P. O. Box 118, S-22100 Lund, Sweden

O. Tcherbakoff, A. Zaïr, E. Mével, and E. Constant
CELIA, Université Bordeaux 1, 351 Cours de la Libération, 33405 Talence, France
(Received 11 September 2003; published 17 May 2004)

We present time-resolved cross-correlation measurements of extreme ultraviolet (xuv) pulses generated as high-order harmonics of intense 35 fs pulses, using a short (12 fs) probe pulse. We modulate the ellipticity of the laser driving the generation process such that the polarization is linear for short times around the temporal peak of the pulse. Since harmonic generation is strongly suppressed for very small amounts of driving laser ellipticity, the emission of xuv radiation can therefore be confined to times much shorter than the laser pulse duration. In addition, our setup allows us to continuously confine the xuv emission as well as to determine its frequency sweep during the pulse.

DOI: 10.1103/PhysRevA.69.053811 PACS number(s): 42.65.Ky, 32.80.Rm, 42.65.Re

Coherent attosecond light bursts produced during high-harmonic emission of atoms irradiated by intense femtosecond lasers bear the promise of being able to probe inner-shell electronic motion in atoms with unprecedented resolution [1]. The discrete nature and broad envelope spectrum of high-harmonic emission implies that appropriate phase locking of different harmonics can result in a train of pulses of attosecond duration [2]. Such early predictions are now strongly supported by recent experimental evidence indicating that harmonic emission from a macroscopic medium of atoms effectively consists of a train of attosecond pulses separated by one-half of the fundamental laser period [3,4].

The isolation of a single attosecond pulse from this train remains, however, a major physical challenge. Nevertheless, different strategies can be devised from our theoretical understanding of high-order harmonic generation, illustrated by a simple semiclassical picture [5,6]. In this picture, the electron initially released into the continuum and accelerated away from the parent ion in the direction of the linearly polarized driving laser field can return to the vicinity of the core and recombine every time the field reverses during an optical cycle of the laser. This results in successive bursts of extreme ultraviolet (xuv) radiation which are produced up to a cutoff frequency dependent on the intensity of the field. So far, the only successful scheme for isolating a single attosecond light burst is one that relies on the use of phase-stabilized linearly polarized few-cycle laser pulses together with spectral selection of the highest cutoff harmonics, for which the generation is naturally confined to a fraction of the laser oscillation period at the peak of the pulse [7,8]. Alternative schemes for single attosecond pulse generation, exploiting the acute sensitivity of harmonic generation efficiency to the ellipticity of the driving laser field [9], have been proposed. These are based on the temporal tailoring of the driving laser ellipticity in order to confine harmonic emission in the plateau region of the spectrum to a single xuv burst on a time scale less than a period of the laser field. Theoretical calculations [10–13] predict the formation of a single attosecond pulse (of duration of the order of 200 as) if short (10–15 fs) driving pulses are used.

Experimental attempts to demonstrate this technique, all performed in the spectral domain, reveal modulations in the harmonic spectrum which are consistent with a temporal confinement of the xuv emission but cannot be considered as direct proof [14–16]. To the best of our knowledge, no direct time-resolved measurement of such a confinement has yet been reported.

In this article, we show that by modulating in time the polarization of a 815 nm 35 fs pulse from a titanium sapphire laser, we can temporally confine the emission of plateau harmonics (13 to 21) generated in argon. Moreover, we can continuously tune the duration of the xuv pulses just by varying the segment of the driving pulse for which the polarization is linear and harmonic generation occurs efficiently. The xuv pulses thus generated in argon are characterized by cross correlation with an ultrashort (12 fs) ir probe pulse [17]. The cross-correlation signal is taken as the first order sideband appearing in the photoelectron spectrum of argon, corresponding to absorption of an xuv photon together with absorption or emission of one probe photon. By delaying one pulse with respect to the other, we can retrieve the time-frequency distribution of the xuv pulse: the duration can be inferred from the delay-dependent intensity of the sidebands [18,19], while the evolution of the instantaneous sideband energy can provide a measure of the linear chirp rate of the harmonic [20,21].

As illustrated in Fig. 1, the technique used to temporally modulate the ellipticity of the laser consists in transmitting the $\tau_0 = 35$ fs driving pulses through two quarter-wave plates of quartz [22]. The first quarter-wave plate (multiple order) splits the incoming linearly polarized pulse into an ordinary and an extraordinary pulse with crossed polarization. The group velocity difference between the two pulses leads to a delay through the 1.05 mm thick plate approximately equal to the pulse duration τ_0. When the optical axis of the first plate is oriented at $\alpha = 45°$ from the direction of incident laser polarization, a pulse is produced which is circularly polarized at the temporal center, when the two perpendicular fields have the same amplitude, and linear at both the leading

 ©2004 The American Physical Society

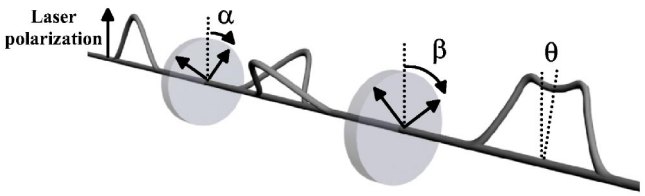


FIG. 1. Double quarter-wave plate arrangement used to temporally modulate the ellipticity of the driving laser pulse. θ is the angle between the major axis of the polarization ellipse of the resulting ellipticity modulated pulse and the incident direction of laser polarization.

and trailing edges. Transmission of this pulse through the second (zero-order) quarter-wave plate, with the optical axis oriented at $\beta=0°$ from the original direction of driving laser polarization, results in a pulse with a polarization that sweeps from circular through linear back to circular. Assuming an incident Gaussian shaped pulse of 35 fs duration [full width at half maximum (FWHM)], the temporal profile of the ellipticity modulated pulse is close to a flat top with 70 fs duration (FWHM), as shown by the dotted line in Fig. 2(a). The degree of ellipticity of the pulse strongly varies between $\varepsilon=1$ (circular polarization) at the wings to $\epsilon=0$ (linear polarization) at the center. The major axis of the ellipse described by the tip of the electric field vector is fixed during the pulse, oriented at $\theta=-45°$ from the initial laser polarization. More theoretical details on the role of the two plates can be found in [13]. The convolution of this ellipticity dependence with the sensitivity of harmonic generation to laser ellipticity, obtained from previous measurements [9], leads to the narrow temporal gate shown by the solid line, of 7 fs duration (FWHM). Changing the angle β allows us to continuously vary the width of the gate, as shown by the dashed

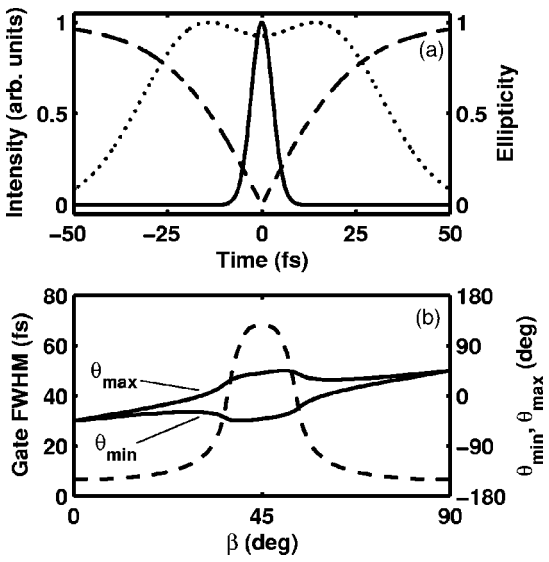


FIG. 2. (a) Dotted line: laser pulse envelope. Dashed line: time-dependent laser ellipticity. Solid line: temporal profile of the ellipticity gate obtained for $\beta=0°$. (b) Dashed line: temporal FWHM of the ellipticity gate. Solid lines: total angle of rotation swept by the laser polarization vector during this time calculated as a function of angle β.

line in Fig. 2(b). When $\beta=45°$, the polarization is always linear and the gate width is then the (70 fs) FWHM of the driving pulse. Except when $\beta=0$ or 90°, the major axis of the polarization ellipse rotates during the pulse, between $\theta_{\min}$ and $\theta_{\max}$ over the gate FWHM, as indicated by the solid lines in Fig. 2(b).

The experimental setup used to measure the time-frequency distribution of harmonic pulses has been described elsewhere [20,21]. Our 1 kHz laser system produces 35 fs pulses centered at 815 nm with a total output energy of 2 mJ. A 1 mJ fraction is sent into an argon-filled hollow fiber. After compression with chirped mirrors, 0.5 mJ, 12 fs probe pulses are obtained. The remainder of the laser beam is routed through a variable delay line and then propagated through the double quartz plate arrangement in order to obtain driving laser pulses with the desired ellipticity modulation. These are finally focused by a $f=+50$ cm spherical mirror into a 3 mm windowless cell (filled with 30 mbar of argon) where the harmonics are generated. Care is taken in order to compensate any material dispersion before the harmonic generation cell. The generated time-gated harmonics are passed through a 200 nm thick aluminum filter to eliminate any residual driving infrared light. The harmonic generation point source is imaged downstream by a $f=+20$ cm normal incidence gold spherical mirror into the sensitive region of a magnetic bottle electron spectrometer (MBES), filled with a 1×10^{-4} mbar background pressure of argon. The collimated probe beam and the weakly diverging xuv beam are focused inside the MBES in a noncollinear fashion with the probe beam polarization pointing toward the direction of electron detection. The 2° angle between the two beams in the interaction region limits our overall temporal resolution to about 15 fs. Because both xuv and probe beams are overlapped using the same focusing optic, the difference in divergence between the two ensures that the xuv beam experiences a constant probe intensity throughout the interaction region.

Typical photoelectron spectra generated in the presence of the harmonic pulses consist of a comb of regularly spaced peaks corresponding to photoionization of argon induced by the individual harmonics of the plateau ranging from 13 to 21. The observation of higher harmonics is limited by the reflectivity of the gold mirror used in the MBES. When pump and probe pulses overlap in time and space, sidebands appear at intermediate photoelectron energies due to additional absorption or emission of one driving laser photon. The probe beam is attenuated by means of an external aperture in order to minimize the absorption of more than one ir photon by the ionizing atom. Figure 3 shows experimental data obtained under these conditions for sideband 18, labeled by the equivalent number of ir photons absorbed by the atom, and therefore corresponding to either absorption of the 17th harmonic plus one ir photon or absorption of the 19th harmonic minus one ir photon. The electron signal is plotted as a function of energy and time delay for $\beta=45°$ (large gate), $\beta=22°$ (intermediate gate), and $\beta=0°$ (narrow gate). As β decreases, the xuv emission signal clearly becomes confined to shorter time delays.

The temporal sideband intensity profiles, obtained by energy-integrating the electron signal, are plotted in Fig. 4 for the large and narrow gate cases, as well as for the case

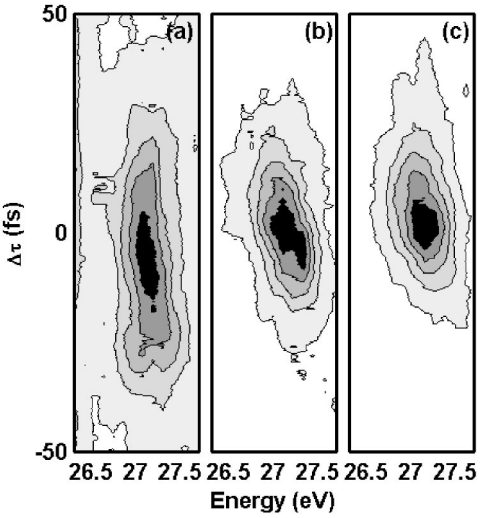


FIG. 3. Photoelectron signal obtained in Ar as a function of energy and time delay corresponding to sideband 18, generated from harmonics 17 and 19, for different angles on the second quarter-wave plate: (a) $\beta=45°$ (large gate), (b) $\beta=22°$ (intermediate gate), and (c) $\beta=0°$ (narrow gate).

when the ellipticity of the driving laser is not modulated ($\alpha=0°$, $\beta=0°$). In the absence of ellipticity modulation of the driving pulse, the sideband temporal profile is shifted toward positive time delays, indicating that the incident laser polarization is oriented along the slow axis of the first quarter-wave plate. The fact that this shift is very close to $\tau_0/2$ implies that the driving pulse experiences very little depletion during the harmonic generation process and that its peak intensity is below the ionization saturation intensity for argon. The temporal FWHM of the sideband profiles are 50 fs in the large gate configuration, 38 fs without any gate, and 22 fs in the narrow gate situation. The strong ellipticity modulation in the narrow gate case clearly leads to a significant shortening of duration of xuv emission.

In the absence of any ellipticity modulation of the driving pulse, a simple Gaussian deconvolution of the probe pulse duration from the sideband intensity profile yields an xuv

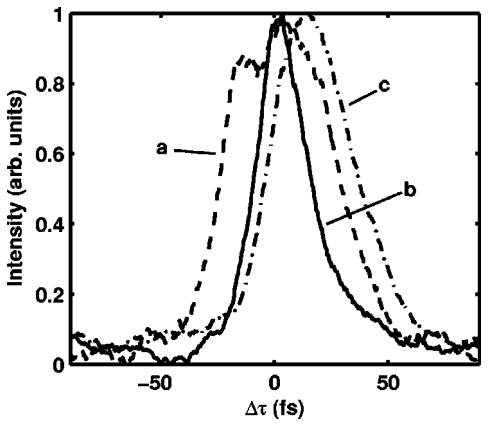


FIG. 4. Temporal intensity of sideband 18, generated from harmonics 17 and 19, measured for different ellipticity gate configurations: (a) large gate ($\alpha=45°$, $\beta=45°$), (b) narrow gate ($\alpha=45°$, $\beta=0°$), and (c) no gate ($\alpha=0°$, $\beta=0°$).

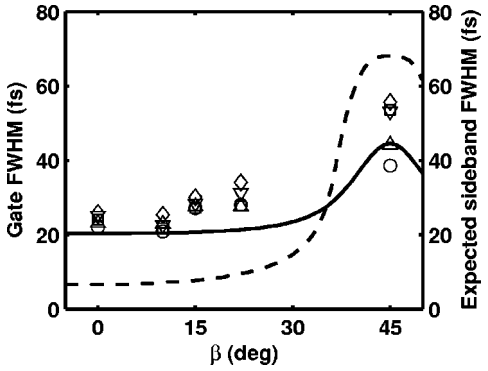


FIG. 5. Dashed line: calculated gate widths. Solid line: expected sideband widths after accounting for the generation and detection efficiency and for the temporal resolution of the setup. Experimental results are presented for different sideband orders: (○) 14, (△) 16, (□) 18, (▽) 20, (◇) 22.

pulse duration of 36 fs. In order to extract the confined xuv pulse durations, however, we have to account for the effect of the variation of the xuv polarization vector during the pulse on the two-photon ionization efficiency. From previous experimental studies [23], we know that the sideband intensity varies approximately as $P_{SB}(\theta)\approx 1-0.6\sin^2\theta$, θ being the relative angle between the xuv polarization vector and that of the probe field. In our experimental setup, the polarization vector of the probe field coincides with that of the fundamental laser field prior to the double quarter-wave plate arrangement as well as with the time-of-flight direction of the MBES. In addition, we observe that the collection efficiency of our MBES decreases by approximately 50% when the polarization vector of the electromagnetic field responsible for the ionization is at 45° from the direction of the time of flight. The harmonic pulse durations can be estimated by taking into account these effects and then by using a simple Gaussian deconvolution procedure accounting for the finite duration of the probe pulse. In the large gate configuration, this deconvolution procedure leads to pulse duration actually larger than the measured 50 fs width, almost equal to the 70 fs gate width. In the narrow gate case, the major axis of the polarization ellipse does not turn (see Fig. 2) and a straightforward deconvolution of the data leads to an xuv pulse duration of 18 fs, which is very close to the 15 fs maximum temporal resolution afforded by the noncollinear beam geometry used in this work.

Figure 5 compares the measured sideband temporal widths (symbols) with the expected ones (solid line), based on the theoretically calculated gate widths (dashed line), but accounting for the θ-dependent detection efficiency as well as for the temporal resolution of the experiment. The agreement between the experimental results and the expected sideband widths is quite satisfactory, and independent of the sideband number (from 14 to 20). This indicates that the duration of xuv emission is indeed limited by the ellipticity gate, rather than the harmonic generation process. These results also show that, just by rotating the second plate in the setup, the duration of xuv emission can be continuously con-

fined right down to the limit of temporal resolution afforded by the experiment, beyond which no further confinement can be resolved.

The other significant feature of the raw data presented in Fig. 3 is the concomitant change in the rate of frequency chirp of the xuv emission, as inferred by the change in the tilt in energy of the sidebands, observed as the xuv emission is confined in time. Even for linearly polarized fundamental driving pulses, the harmonic pulses are in general chirped, due to ionization of the nonlinear medium, the dipole phase variation, or some residual fundamental frequency variation [20]. The ellipticity modulation of the fundamental pulse might also lead to additional chirp on the harmonics. For example, any increase of the spectral bandwidth due to the confinement will lead to a change in the chirp rates. The frequency chirp rate of the xuv emission which can be deduced from the experimentally observed sideband energy tilt as well as the measured pulse duration is negative and is found to increase in value as β decreases, with a maximum around 10°, and to decrease again, in qualitative agreement with recent theoretical predictions [13]. The maximum negative chirp observed, e.g., for the 19th harmonic is 18 meV/fs. This indicates the possibility of recompressing the xuv pulse duration to values even shorter than those imposed by the ellipticity gate.

In conclusion, we have shown that by temporally modulating the driving laser, the xuv emission can be confined to a time interval which is at least shorter than half the one measured when the driving ellipticity is not modulated. This confinement factor does not represent a limitation of the technique but rather of the cross-correlation measurement, which could be improved by using a collinear geometry and shorter probe pulses. The xuv pulse shortening reported in this work represents the first unequivocal proof of confinement of plateau harmonics by temporally gating the driving laser ellipticity, thereby offering encouraging prospects for its application to shorter pulses.

We acknowledge the support of the European Community (under Contracts No. HPRI-CT-1999-00041 and No. HPRN-CT-2000-00133, ATTO) the Swedish Science Council, the Knut and Alice Wallenberg Foundation, and the European Science Foundation.

[1] M. Drescher *et al.*, Nature (London) **419**, 803 (2002).
[2] G. Farkas and C. Tóth, Phys. Lett. A **168**, 447 (1992); S. E. Harris, J. J. Macklin, and T. W. Hänsch, Opt. Commun. **100**, 487 (1993).
[3] P. M. Paul *et al.*, Science **292**, 902 (2001).
[4] Y. Mairesse *et al.*, Science **302**, 1540 (2003).
[5] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
[6] K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander, Phys. Rev. Lett. **70**, 1599 (1993).
[7] M. Hentschel *et al.*, Nature (London) **414**, 509 (2001).
[8] R. Kienberger *et al.*, Science **297**, 1194 (2002).
[9] P. Dietrich, N. H. Burnett, M. Ivanov, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A **50**, R3585 (1995); K. S. Budil *et al.*, *ibid.* **48**, R3437 (1993); Y. Liang *et al.*, J. Phys. B **27**, 1296 (1994).
[10] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, Opt. Lett. **19**, 1870 (1994).
[11] V. T. Platonenko and V. V. Strelkov, J. Opt. Soc. Am. B **16**, 435 (1999).
[12] P. Antoine *et al.*, Phys. Rev. A **56**, 4960 (1997).
[13] V. Strelkov *et al.*, Appl. Phys. B: Lasers Opt. (to be published).
[14] C. Altucci *et al.*, Phys. Rev. A **58**, 3934 (1998).
[15] O. Tcherbakoff *et al.*, Phys. Rev. A **68**, 043804 (2003).
[16] M. Kovacev *et al.*, Eur. Phys. J. D **26**, 79 (2003).
[17] M. Nisoli *et al.*, Opt. Lett. **22**, 522 (1997).
[18] T. E. Glover, R. W. Schoenlein, A. H. Chin, and C. V. Shank, Phys. Rev. Lett. **76**, 2468 (1996).
[19] A. Bouhal *et al.*, Phys. Rev. A **58**, 389 (1998).
[20] J. Norin *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 193901 (2002).
[21] R. López-Martens *et al.*, Eur. Phys. J. D **26**, 105 (2003).
[22] D. Y. Smith, E. Shiles, and M. Inokuti, in *Handbook of Optical Constants of Solids*, edited by E. D. Palik (Academic, Orlando, FL, 1985).
[23] P. O'Keefe *et al.*, Phys. Rev. A (to be published).