

Optiques pour les impulsions attosecondes

Charles Bourassin-Bouchet

▶ **To cite this version:**

Charles Bourassin-Bouchet. Optiques pour les impulsions attosecondes. Autre [cond-mat.other]. Université Paris Sud - Paris XI, 2011. Français. ⟨NNT : 2011PA112277⟩. ⟨tel-00657772⟩

HAL Id: tel-00657772

https://theses.hal.science/tel-00657772v1

Submitted on 9 Jan 2012

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

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



HAL Authorization

Laboratoire Charles Fabry
Institut d'Optique, CNRS - UMR 8501

École doctorale Ondes et Matière

Optiques pour les impulsions attosecondes

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 5 Décembre 2011

pour l'obtention du

Doctorat de l'Université Paris-Sud XI

(spécialité physique)

par

Charles BOURASSIN-BOUCHET

Composition du jury

Président :	Christian CHARDONNET
Directeur de thèse :	Franck DELMOTTE
Rapporteurs :	Éric MÉVEL Daniel KAPLAN
Examinateurs :	Béatrice CHATEL Pascal SALIÈRES
Invité :	Sébastien de ROSSI

Mis en page avec la classe thloria.

Remerciements

Aussi loin que je me souvienne, j'ai toujours voulu faire de la science. Je fus un grand fan de "Retour vers le futur" dès mon plus jeune âge, et "*Stargate*" a pris le relai à l'adolescence. J'en ai gardé l'idée que la science devait être spectaculaire pour s'adresser au plus grand nombre. Et j'ai toujours essayé de retrouver cela dans mon travail. Mais durant ces trois années de thèse, je n'ai pas simplement fait de la science. J'ai vécu de véritables aventures, avec des gentils, des méchants, des moments d'euphorie, et des moments de doute. Ce doute qui peut vous empêcher de dormir la nuit, et qui vous pousse à vérifier trois fois chaque résultat. Mais j'ai également eu l'impression unique d'avoir trouvé ma place, le sentiment d'être là où j'aurais toujours du être. J'aimerais remercier toutes les personnes qui ont rendu cela possible en me faisant confiance.

Tout d'abord, j'aimerais remercier mon directeur de thèse Franck Delmotte, ou "Chef" comme je m'étais amusé à le surnommer. "Chef" donc, tu m'as accueilli dans ton équipe, et m'as fourni tes conseils avisés sur la science de la multicouche. Mais surtout, tu m'as laissé explorer de nouveaux domaines scientifiques, sans aucune garantie d'obtenir des résultats en retour. Merci de m'avoir laissé cette liberté énorme. Je remercie également Sébastien de Rossi, mon co-encadrant, pour avoir su, quand c'était nécessaire, modérer mon optimisme parfois irréaliste. Merci aussi pour m'avoir converti à la Pomme, et pour m'avoir appris que préparer un bon foie gras, ça prenait une semaine.

Je souhaiterais remercier Pierre Chavel, pour m'avoir accueilli, dans son groupe de recherche, dans son laboratoire, et dans son conseil de laboratoire, et pour m'avoir prodigué ses conseils toujours pertinents. Je remercie Françoise d'avoir toujours su prendre avec humour mes imitations sauvages. Merci aussi Raymond pour m'avoir expliqué que, ces dernières années, les Britanniques avaient fait de gros efforts pour rendre leur cuisine mangeable par des étrangers. Je souhaiterais également remercier Bruno, Françoise, et Marc, ainsi qu'Ahmed, dit Alain, et Arnaud, dit "de Mateos ! ! !". Merci Evgueni, pour m'avoir enseigné que la vodka, ça se boit cul sec. Et merci à Fadi, toi seul pouvait comprendre ma relation complexe avec le persil. J'aimerais aussi remercier tous les thésards et postdocs présents et passés de l'équipe, Etienne, Christophe, Benoit, Hélène et Yves, ainsi que tous les stagiaires, Cédric, Emeline, Laetitia, et Violette. Je remercie également Lassad pour m'avoir quotidiennement donné des nouvelles de la Tunisie libérée.

I would like to thank Jiahuan, finally you enforced the Attosecond Moore's law by dividing the pulse duration by two every month of your intership. Michelle, you bore my "blabbermouthness" and invented the CARROTS acronym at the same time, I would like to thank you for that. I wish you all the best. I also thank Alex, Bakari and Ryan for this unforgettable cheese tasting, the good people of France hope to see you soon.

Je remercie également tous les Spimeurs et toutes les Spimettes, Guillaume, Céline, Noura, les deux Jean, Hervé et Marius, pour m'avoir ouvert la porte de leur bureau à Palaiseau quand le réfugié du 503 que j'étais n'avait nulle part où aller.

Je souhaiterais remercier toute l'équipe de Pascal Salières, Zsolt, Thierry, Elizabeth, Bertrand et Stefan, pour nous avoir prêté vos fabuleux photons attosecondes. Je remercie également Angelo, Nicola et Stefano pour nous avoir fourni vos photons synchrotrons, pas attosecondes mais beaucoup plus nombreux, mais aussi pour les lubjanskas et les granda rossa. J'aimerais remercier Daniel Kaplan et Eric Mével d'avoir accepté d'être rapporteurs de ce travail, ainsi que Béatrice Chatel, et Christian Chardonnet d'avoir accepté de faire parti de mon jury. Je remercie aussi Eric Constant, et Jérémie Caillat pour nos discussions animalières au détour de conférences, ainsi que Fabien Quéré et Henri Vincenti pour avoir partagé nos points de vue sur les couplages.

Je remercie Xavier, Magali et Damien pour m'avoir montré que dans la vie, il n'y a pas que les impulsions attosecondes. Je remercie également Pierre-Louis et Marlène pour m'avoir appris comment survivre chez les Grands Bretons. Un grand merci également à ma maman, ainsi qu'à Jean-Paul, Michèle, Hélène et Nicolas pour leur soutien constant.

Isabelle, je t'adresse le plus grand de ces remerciements. Tu auras connu la face cachée de cette thèse, les simulations numériques lancées avant de se coucher, et dépouillées au petit déjeuner, les vacances passées à rédiger ce manuscrit. Merci pour ton infinie patience et ton soutien sans faille.

Enfin, merci à vous qui lisez ce mémoire, pour l'intérêt que vous portez à ce travail.

.

Table des matières

Introduction **1**

1 Génération, manipulation et caractérisation d'impulsions attosecondes **5**
1.1 Rappel sur les impulsions ultrabrèves . . . 5
1.1.1 Description générale d'une impulsion . . . 7
1.1.2 Propriétés temporelles et spectrales d'une impulsion . . . 13
1.2 Génération et caractérisation d'une impulsion attoseconde . . . 17
1.2.1 Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz . . . 17
1.2.2 Caractérisation d'impulsions attosecondes . . . 25
1.3 Composants optiques des lignes de lumière attosecondes . . . 36
1.3.1 Cas des impulsions infrarouges femtosecondes . . . 37
1.3.2 Cas des impulsions XUV attosecondes . . . 40
1.3.3 Les sources attosecondes dans le monde en 2011 . . . 42

2 Post-compression et façonnage d'impulsions attosecondes par miroirs multicouches **45**
2.1 Des miroirs chirpés IR aux miroirs multicouches XUV . . . 45
2.2 Méthodes pour la conception de miroirs multicouches . . . 49
2.2.1 Optimisation des structures multicouches . . . 49
2.2.2 Fabrication des miroirs . . . 51
2.2.3 Caractérisation des miroirs sur synchrotron . . . 53
2.2.4 Caractérisation des miroirs sur source attoseconde . . . 56
2.3 Miroirs de première génération : optimisation spectrale et façonnage d'impulsions . . . 59
2.3.1 Performances théoriques des miroirs de première génération . . . 59
2.3.2 Caractérisation des miroirs . . . 62
2.3.3 Façonnage d'impulsions attosecondes . . . 68
2.4 Miroirs de seconde génération : optimisation temporelle et impulsions sub-50 as . . . 72
2.4.1 Cahier des charges pour l'optimisation . . . 72
2.4.2 Performances théoriques des miroirs et robustesse aux conditions expérimentales . . . 77
2.4.3 Résultats de la caractérisation . . . 80
2.4.4 Durée de la réflexion dans le miroir et impact sur la CEP des impulsions attosecondes . 85
2.5 Bilan . . . 87

3 Aberrations des optiques et impulsions attosecondes **89**
3.1 Stigmatisme et aberrations courantes . . . 90
3.2 Approche numérique du problème . . . 93
3.2.1 L'approche géométrique . . . 93
3.2.2 L'approche diffractive . . . 97
3.2.3 Le code de calcul ROSA . . . 101
3.3 Conséquence sur la structure spatio-temporelle des impulsions . . . 103
3.3.1 Miroirs sphérique et parabolique . . . 103
3.3.2 Miroirs torique et ellipsoidal en incidence rasante . . . 111

3.3.3 Influence de l'impulsion initiale . . . 121
3.3.4 Durée des impulsions aberrantes . . . 124
3.4 Bilan . . . 124

4 Description analytique d'impulsions spatio-temporelles arbitraires 127
4.1 Approche générale du problème . . . 127
4.1.1 Grandeurs locales et globales . . . 128
4.1.2 Réduction à des impulsions temporelles . . . 130
4.1.3 Décomposition de la durée globale . . . 131
4.1.4 Résumé des grandeurs définies . . . 134
4.2 Application aux impulsions IR femtosecondes . . . 135
4.2.1 Exemples de base . . . 135
4.2.2 Optimisation des couplages et minimisation de la durée globale . . . 139
4.3 Retour aux impulsions attosecondes aberrantes . . . 143
4.3.1 Influence des aberrations sur la décomposition de la durée globale . . . 143
4.3.2 Minimisation de la durée globale en présence d'aberration . . . 148
4.4 Bilan . . . 150

5 Couplages spatio-temporels et caractérisation d'impulsions attosecondes 153
5.1 Analyse préliminaire . . . 153
5.1.1 Position du problème . . . 153
5.1.2 Etude numérique du problème . . . 157
5.2 Conséquences des couplages sur la mesure RABITT . . . 168
5.2.1 Hypothèses sur les autres sources de perte de contraste . . . 170
5.2.2 L'équation CARROTS . . . 171
5.2.3 Impulsion reconstruite par RABITT . . . 178
5.3 Conséquences des couplages en régime de balayage . . . 180
5.4 Bilan . . . 182

Conclusion et perspectives 185

Annexes 197

A Démonstration de la décomposition de la durée globale 197
A.0.1 Calcul de $\langle t \rangle^2$ . . . 197
A.0.2 Calcul de $\langle t^2 \rangle$ . . . 198

B Démonstration de l'équation CARROTS en présence de couplages 201
B.1 Cas d'un couplage en amplitude . . . 201
B.1.1 Equation du pic satellite . . . 201
B.1.2 Equation CARROTS . . . 202
B.2 Cas d'un couplage en phase . . . 202
B.2.1 Equation du pic satellite . . . 202
B.2.2 Equation CARROTS . . . 204

Abréviations 205

Liste des publications 207

Bibliographie 209

Résumé 223

Abstract 223

Introduction

"Quelle durée minimale peut atteindre un flash de lumière ?"

Lorsque ce travail de thèse a débuté, la réponse à cette question venait de franchir la barrière symbolique des cent attosecondes [Goulielmakis E. et al., 2008]. Une attoseconde correspond à $10^{-18}\,s$, le suffixe atto provenant du mot danois *atten*, qui signifie "dix-huit". Il est difficile de réaliser concrètement ce que représente un événement aussi bref. Mais pour donner un exemple, nous dirons qu'une attoseconde représente le temps mis par la lumière pour traverser une molécule d'eau. Pour obtenir un flash de lumière aussi bref, la physique impose une condition nécessaire sur le nombre de fréquences optiques intervenant dans l'impulsion lumineuse : plus son spectre en fréquence est large, plus elle est brève. Le flash prendra alors la forme d'un champ électromagnétique oscillant dans une enveloppe. Si l'on élargit trop ce spectre, l'impulsion verra la largeur de son enveloppe limitée par la période du champ électromagnétique dans la plage spectrale où elle se trouve. Si l'on suit ce raisonnement, la durée minimale d'une impulsion lumineuse sera de l'ordre de quelques picosecondes ($10^{-12}\,s$) dans le domaine micro-onde, et de quelques femtosecondes ($10^{-15}\,s$) dans le domaine visible. Une impulsion lumineuse d'une durée attoseconde ne pourra donc être générée qu'au-delà du domaine visible, et plus précisément dans le domaine extrême ultraviolet (XUV). Ainsi, le passage des impulsions femtosecondes aux impulsions attosecondes implique un changement de domaine spectral. Et, dans ce domaine XUV, nous allons être confronter à un comportement totalement différent de la matière vis-à-vis de la lumière. En effet, l'interaction de la lumière avec la matière va être faible, ce qui se traduira par une faible réfraction. De plus, les matériaux présentent tous une absorption non nulle et leurs indices ont des évolutions spectrales plus complexes que dans le domaine visible.

C'est en 2001 que furent observées pour la première fois de telles impulsions attosecondes dans deux laboratoires différents. Un laboratoire autrichien parvint à créer une impulsion lumineuse d'une durée de $650\,as$ [Hentschel M. et al., 2001], et dans le même temps un laboratoire français du CEA Saclay réussissait à générer, sous forme de trains, des impulsions de $250\,as$ [Paul P. M. et al., 2001]. Très rapidement, d'autres équipes dans le monde réalisèrent des expériences similaires [Aseyev S. A. et al., 2003, Kienberger R. et al., 2004, Sansone G. et al., 2006, Sola I. J. et al., 2006]. Et en quelques années, la durée de ces impulsions fut divisée par un facteur proche de 10, pour arriver en 2011 à des durées record de $63\,as$ [Ko D. H. et al., 2010] pour des impulsions émises sous forme de trains, et de $80\,as$ pour une impulsion isolée [Goulielmakis E. et al., 2008].

Dans le même temps, de nouvelles techniques furent développées pour caractériser ces impulsions [Mairesse Y. and Quéré F., 2005]. Les premières applications sont apparues [Itatani J. et al., 2004, Boutu W. et al., 2008], et de nouvelles sources attosecondes beaucoup plus intenses commencent à voir le jour [Nomura Y. et al., 2009]. Nous sommes donc à une période charnière, dix ans après la première observation d'une impulsion attoseconde.

La généralisation de telles impulsions dans les dix prochaines années passera inévitablement par le développement de composants capables de les manipuler. Ce point est d'autant plus crucial que le domaine XUV, de part l'absorption qui y règne, limite le nombre d'interactions possibles entre la lumière et la matière. Une simple lentille devient un mur infranchissable, absorbant tout le rayonnement au bout de quelques microns. Les composants constitués de cristaux non-linéaires, acousto-optiques ou biréfringents, à la base de nombreuses expériences dans le domaine visible, n'existent pas dans le domaine XUV. Pour se convaincre de l'importance de ces "optiques attosecondes" dans les prochaines années, nous pouvons imaginer l'avenir de la science attoseconde, au regard de l'évolution suivie par les lasers femtosecondes avec quelques décennies d'avance. Ces sources sont aujourd'hui matures. De nombreuses applications ont émergé dans le domaine de l'usinage par laser, de la chirurgie de la cornée, et elles ont ouvert la voie au domaine de la femtochimie [Potter E. D. et al., 1992]. Mais l'utilisation de ces impulsions femtosecondes dans le domaine infrarouge et visible a pu se généraliser ainsi principalement pour trois raisons : l'amélioration des sources, telles que les lasers titane-saphir, le développement de méthodes de caractérisation puissantes, comme les techniques FROG [Trebino R. and Kane D. J., 1993] et SPIDER [Iaconis C. and Walmsley I. A., 1998], et enfin l'apparition de composants permettant la mise en forme et le contrôle de ces impulsions, tels que les miroirs chirpés [Szipöcs R. et al., 1994], les lignes à dispersion nulle [Froehly C. et al., 1983], ou les filtres dispersifs acousto-optiques programmables [Tournois P., 1997, Kaplan D. and Tournois P., 2002]. Il est donc impératif que, dans le domaine attoseconde, l'amélioration actuelle des sources et de leurs moyens de caractérisation s'accompagne d'un développement de composants optiques adaptés.

Par ailleurs, le développement de sources stables et maitrisées d'impulsions femtosecondes a fait émerger de nouveaux domaines de recherche. En particulier, de nombreux efforts sont fait actuellement pour mesurer et maitriser une propriété appelée "phase de l'enveloppe par rapport à la porteuse", souvent résumée sous le terme CEP pour *"carrier-envelope phase"* [Jones D. J. et al., 2000, Hauri C. P. et al., 2004]. Cette quantité peut s'interpréter comme la synchronisation du champ électromagnétique avec son enveloppe. Un second domaine de recherche est celui de la caractérisation et du façonnage spatio-temporels d'impulsions femtosecondes, c'est à dire de la mesure et de la mise en forme des propriétés à la fois temporelles et spatiales de ces impulsions [Wefers M. M. and Nelson K. A., 1995, Dorrer C. and Salin F., 1998, Dorrer C. et al., 2002, Gabolde P. and Trebino R., 2006, Sussman B. J. et al., 2008, Alonso B. et al., 2010]. Il ne fait aucun doute que des recherches similaires seront menées dans le domaine attoseconde, et il va nous falloir anticiper l'impact des différents composants optiques sur la CEP, ou sur les propriétés spatio-temporelles des impulsions attosecondes.

Au cours de ce travail de thèse, nous avons développé et caractérisé des composants optiques pour les impulsions attosecondes et nous nous sommes également intéressés à l'influence de tels composants sur les

propriétés spatio-temporelles des impulsions et sur leur caractérisation.

Dans le chapitre 1, nous commencerons par rappeler les notions de bases de l'optique ultrabrève et les diverses propriétés temporelles et spatiales qui caractérisent ces impulsions. Puis nous exposerons les techniques employées pour la génération et la mesure d'impulsions attosecondes. Nous détaillerons alors les divers composants optiques utilisés pour manipuler les impulsions ultra-brèves, en partant du domaine femtoseconde pour aller vers le domaine attoseconde. Enfin, nous dresserons un état des lieux des sources attosecondes actuelles dans le monde.

Nous étudierons, dans le chapitre 2, la possibilité de manipuler des impulsions attosecondes à l'aide de composants optiques multicouches et notamment grâce à la transposition du principe du miroir chirpé dans le domaine XUV. Cette étude comprend la conception, la réalisation et la caractérisation sur rayonnement synchrotron et sur source attoseconde de miroirs multicouches capables de transporter ou de compresser une impulsion attoseconde. Nous nous intéresserons, dans un premier temps, à des miroirs optimisés pour présenter une réflectivité élevée sur une bande spectrale et une phase spectrale déterminée, linéaire pour le transport ou parabolique pour la compression. Nous étudierons, dans un second temps, des miroirs multicouches optimisés dans le domaine temporel dans le but de compresser la durée d'une impulsion attoseconde sous la barre des $50\,as$, soit en dessous du record de durée actuel. Enfin, comme nous l'avons dit, la mesure et le contrôle de la CEP d'une impulsion attoseconde deviendra un enjeu important dans les prochaines années. Dans cette perspective, nous présenterons une mesure expérimentale de l'influence d'un miroir multicouche sur la CEP d'une impulsion attoseconde.

Dans les deux chapitres suivants, nous nous intéresserons aux propriétés spatio-temporelles d'une impulsion attoseconde après réflexion sur un composant optique utilisé en incidence proche de la normale, tel qu'un miroir multicouche, ou en incidence rasante dans le cas de miroirs en réflexion totale. Pour cela, nous combinerons deux approches : nous commencerons, dans le chapitre 3, par exposer une étude numérique de l'influence de composants optiques couramment utilisés, sur la structure spatio-temporelle des impulsions attosecondes. Nous présenterons tout d'abord le principe de calcul du logiciel de simulation ROSA ("*Reflective Optical Systems for Attopulses*") que nous avons développé, et qui combine une approche géométrique et une approche diffractive. Puis nous décrirons les résultats obtenus pour différentes configurations optiques impliquant des miroirs sphériques, paraboliques, toriques et ellipsoïdaux. Nous montrerons que les aberrations géométriques de ces optiques modifient profondément l'évolution des impulsions dans l'espace et dans le temps. Enfin nous tenterons de quantifier l'effet des aberrations en calculant la durée de ces impulsions dans différents cas.

Afin d'aller plus loin dans l'analyse et la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu, nous avons recherché des outils analytiques aptes à décrire complètement de telles impulsions. Bien que la problématique des impulsions spatio-temporelles soit un sujet intense d'étude dans le régime femtoseconde infrarouge, nous

n'avons pas trouvé dans la littérature de modèle analytique permettant de décrire des impulsions aux formes arbitraires dans l'espace et dans le temps. L'objet du chapitre 4 sera donc de proposer un modèle permettant de décrire de telles impulsions. Basé sur l'étude des différents phénomènes de couplages spatio-temporels, ce modèle nous permettra de décomposer la durée d'une impulsion quelconque en quatre grandeurs caractéristiques. Ne faisant aucune approximation sur la nature des impulsions, ce modèle sera applicable aux impulsions femtosecondes comme aux impulsions attosecondes. Nous l'illustrerons par plusieurs exemples dans le domaine des impulsions infrarouges femtosecondes puis des impulsions XUV attosecondes.

Enfin, dans le chapitre 5, nous partirons d'un constat simple : les optiques donnent aux impulsions une structure spatio-temporelle complexe, mais les techniques actuelles de caractérisation reconstruisent une impulsion attoseconde sous la forme d'un signal temporel uniquement. Nous chercherons donc à comprendre le résultat d'une telle mesure, et nous appliquerons à ce problème les outils numériques et analytiques développés dans les deux chapitres précédents. Cela nous conduira à établir une relation que nous avons nommée l'équation CARROTS ("*Contrast Alteration on a RABITT trace Resulting in an Observable Temporo-spatial Stretch*"). Grâce à cette équation, nous verrons que, de part son principe même, la caractérisation d'une impulsion attoseconde par les techniques actuelles est très peu sensible à la structure spatio-temporelle de l'impulsion.

Après avoir donné une courte conclusion générale sur l'ensemble de ce travail, nous présenterons quelques perspectives.

Chapitre 1

Génération, manipulation et caractérisation d'impulsions attosecondes

Durant les différentes étapes de ce travail, les phénomènes qui seront décrits nous pousseront parfois à nous demander ce qu'est une "impulsion lumineuse". Avant toute chose, il convient donc de définir le plus précisément possible cette notion. Dans un premier temps, nous poserons les bases mathématiques fondamentales pour la description d'une impulsion ultrabrève, avant de les appliquer au cas des impulsions attosecondes. Nous étudierons ensuite le processus de création d'une impulsion attoseconde, basé sur un phénomène appelé "génération d'harmoniques d'ordre élevé", ainsi que les techniques actuelles permettant de mesurer de telles impulsions. Enfin, nous verrons sous quelle forme se présente une source attoseconde expérimentalement. Et en particulier, nous étudierons les différents composants optiques actuellement utilisés sur ces lignes.

1.1 Rappel sur les impulsions ultrabrèves

Comme point de départ, nous pouvons dire qu'une impulsion ultrabrève est un rayonnement électromagnétique. Dans l'écrasante majorité des cas, les détecteurs, ou plus généralement les effets physiques utilisés pour la détection, sont sensibles au champ électrique et non au champ magnétique. Dans tout ce qui suivra, on décrira donc une impulsion uniquement par son champ électrique. L'évolution d'un tel champ n'est pas libre dans l'espace et le temps, mais est imposée par les équations de Maxwell. En particulier, l'équation de propagation d'un champ électrique $\mathbf{E}$ dans le vide est donnée par l'équation (1.1) :

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2}+\frac{\partial^2}{\partial y^2}+\frac{\partial^2}{\partial z^2}\right)\mathbf{E}\left(\mathbf{r},t\right)-\frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\mathbf{E}\left(\mathbf{r},t\right)}{\partial t^2}=\mathbf{0} \tag{1.1}$$

Où $\mathbf{r}$ est le vecteur position de coordonnées (x,y,z) et c correspond à la vitesse de la lumière dans le vide.

La solution la plus simple à cette équation est **une onde plane** de la forme :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \mathbf{E_0} \cdot \cos(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t + \varphi_0) \tag{1.2}$$

Où $\mathbf{k}$ est le vecteur d'onde de l'onde plane, ω sa pulsation et φ_0 sa phase à l'origine.

Par la suite, on préfèrera le champ électrique complexe équivalent. On pourra à tout moment revenir au champ réel en prenant la partie réelle du champ complexe suivant :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \underline{\mathbf{E_0}} \cdot e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega t)} \tag{1.3}$$

Où $\underline{\mathbf{E_0}}$ est égal à $\mathbf{E_0} \cdot e^{i\varphi_0}$

En injectant cette solution dans l'équation (1.1), il apparait que l'équation d'onde impose la relation suivante entre la norme du vecteur d'onde $\|\mathbf{k}\|$ et la pulsation ω, appelée **relation de dispersion** :

$$\|\mathbf{k}\| \cdot c = \omega \tag{1.4}$$

Une onde plane est donc complètement définie par sa pulsation ω et sa direction de propagation, c'est à dire par son vecteur d'onde. Pour être rigoureux, nous dirons que pour déterminer totalement le champ électrique associé à cette onde plane, il faudra connaître en plus sa polarisation, *i. e.* l'orientation du champ électrique dans le plan orthogonal à $\mathbf{k}$.

En étudiant de plus près l'équation (1.3), il apparaît qu'une onde plane a une extension temporelle et spatiale infinie, et est parfaitement monochromatique de fréquence ω. Ces remarques rapides montrent qu'une onde plane n'est pas une solution réaliste. En effet, pour maintenir l'amplitude d'un champ électrique constante en tout point de l'espace et à tous les instants, il faudrait une quantité d'énergie infinie. De plus, aucune source de rayonnement ne peut être parfaitement monochromatique. Pour palier à ces problèmes, on peut considérer une autre solution de l'équation de propagation, à savoir :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \underline{\mathbf{E_0}}(\mathbf{k}) \cdot e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-\omega(\mathbf{k})t)} d\mathbf{k} \tag{1.5}$$

En effet, par linéarité de l'équation de propagation, toute combinaison linéaire d'ondes planes monochromatiques est également solution de l'équation. Une solution générale peut donc s'écrire sous la forme d'une superposition d'ondes planes de vecteurs d'ondes $\mathbf{k}$ différents, c'est à dire de directions de propagation et de pulsations différentes, et possédant toutes des amplitudes, des polarisations et des phases $\mathbf{E_0}(\mathbf{k})\exp(\varphi_0(\mathbf{k}))$ différentes. On appelle cette solution générale **un paquet d'onde lumineux**, ou **une impulsion lumineuse**.

La définition la plus générale possible d'une impulsion lumineuse est qu'il s'agit d'une superposition d'ondes élémentaires monochromatiques se propageant dans le temps et dans l'espace.

1.1.1 Description générale d'une impulsion

Dorénavant, nous n'utiliserons plus que le champ électrique complexe $\underline{\mathbf{E}}$ que nous noterons $\mathbf{E}$ pour ne pas alourdir les équations.

D'un champ vectoriel à un champ scalaire

Supposons désormais que le vecteur d'onde moyen de ces ondes planes soit colinéaire à l'axe z, ce qui revient à dire que l'impulsion se propage selon z. Nous allons maintenant nous placer dans le cadre de l'approximation scalaire. Cette approximation consiste à considérer que les vecteurs champs électriques seront colinéaires à chaque instant et en tout point de l'espace, de sorte que l'on pourra les résumer à leurs normes. Une somme vectorielle comme celle de l'équation (1.5) devient alors une somme de grandeurs scalaires.

Cela implique que l'état de polarisation du champ électrique sera le même en tout point à un instant donné et que la composante E_z du champ sera négligeable devant les composantes E_x et E_y. Nous considérerons donc que l'ouverture des faisceaux ne sera pas trop importante, ce qui serait faux dans le cas par exemple de l'imagerie confocale [Yoshiki K. et al., 2007, Olivier N. and Beaurepaire E., 2008] dans laquelle l'ouverture numérique des optiques peut être très élevée, obligeant à traiter vectoriellement le problème.

Propagation d'une impulsion dans le temps et dans l'espace

En nous basant sur l'approximation scalaire, nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution de l'impulsion lumineuse en fonction de $\mathbf{r}$ et de t. Pour ce faire, nous allons successivement considérer deux paquets d'onde particuliers, à savoir le cas dans lequel tous les vecteurs d'onde sont rigoureusement colinéaires à l'axe z, et le cas dans lequel toutes les ondes planes ont la même fréquence.

Supposons donc, pour commencer, que **le paquet d'onde se compose uniquement d'ondes planes se propageant selon** z. Le paquet d'onde est infiniment étendu en x et en y, et les ondes planes qui le composent ne sont donc différenciées entre elles que par leurs fréquences, si bien que l'on peut réécrire l'équation (1.5) dans l'approximation scalaire sous la forme :

$$E(\mathbf{r},t) = \int_{-\infty}^{+\infty} E_{\mathbf{0}}(\omega)\, e^{ik(\omega)\cdot z} \cdot e^{-i\omega t} d\omega = TF\left[E_{\mathbf{0}}(\omega)\, e^{ik(\omega)\cdot z}\right]_{(t)} \tag{1.6}$$

On voit alors apparaître une transformée de Fourier à une dimension. Elle relie le domaine des pulsations ω du champ électrique au domaine temporel. En remarquant que $E_{\mathbf{0}}(\omega)$ est lui-même la transformée de Fourier inverse du champ $E(z=0,t)$, on voit alors que l'évolution temporelle du paquet d'onde peut être obtenue pour toute position z simplement en appliquant une fonction de transfert ou un filtre de phase $e^{ik(\omega)\cdot z}$ sur les composantes spectrales de l'impulsion. De plus, ce filtre spectral dépend clairement de la relation de dispersion $k(\omega)$ dans le milieu. Si l'impulsion se propage dans le vide, alors d'après l'équation (1.4), le déphasage

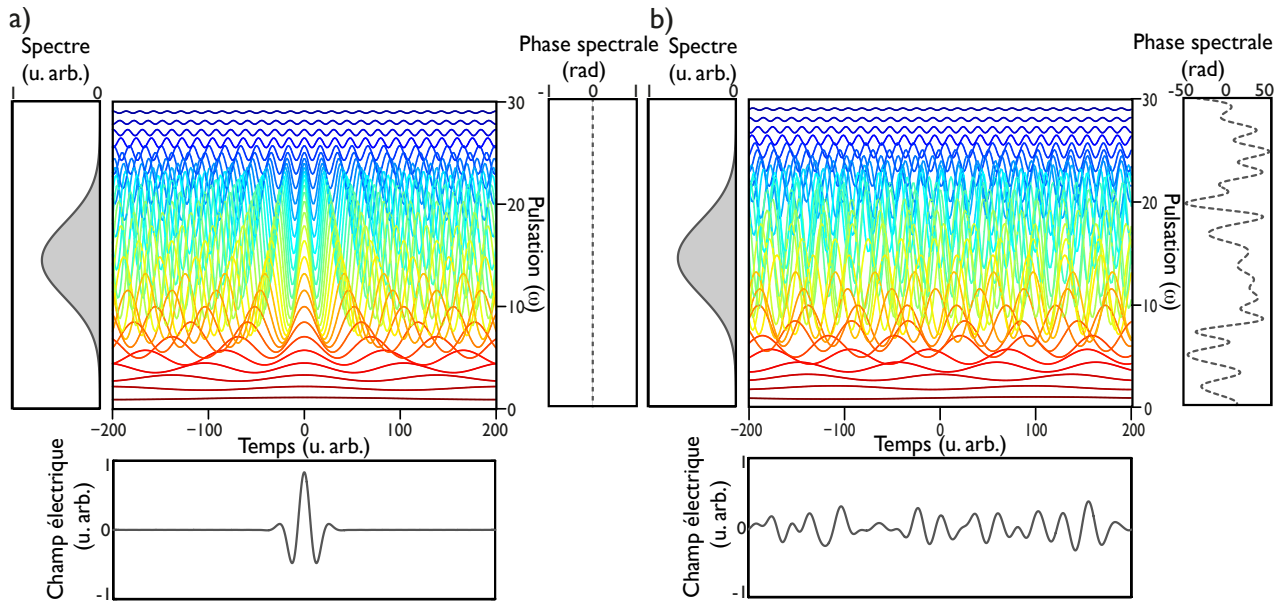


FIGURE 1.1 – **Superposition à une cote z donnée d'ondes planes de même direction de propagation mais de fréquences différentes**. Le champ électrique résultant de cette superposition va uniquement dépendre de deux fonctions : le spectre qui indique les composantes spectrales en présence, et la phase spectrale qui précise les déphasages de ces composantes les unes par rapport aux autres. Pour illustrer le rôle de cette dernière, les cas d'une phase spectrale nulle (a) et d'une phase spectrale aléatoire (b) sont comparés.

$k(\omega) \cdot z$ induit par la propagation devient linéaire en ω et s'écrit simplement $\omega \cdot z/c$. Or un déphasage linéaire dans l'espace de Fourier correspond à un décalage dans l'espace réel. Si bien que le champ électrique de l'équation (1.6) sera simplement égal à $E_0\left(t - \frac{z}{c}\right)$. L'effet de la propagation sera simplement de retarder le paquet d'onde d'une durée z/c, mais l'impulsion gardera la même forme dans le temps quelque soit la position z d'observation.

Intéressons nous donc à la forme temporelle de l'impulsion en $z = 0$. D'après l'équation (1.6), elle sera entièrement déterminée par $E_{\mathbf{0}}(\omega)$, qui est une quantité complexe. Elle comprend un module $|E_{\mathbf{0}}(\omega)|$ généralement nommé **l'amplitude spectrale**, qui représente l'amplitude relative des composantes spectrales en présence, et une phase $\varphi_{\mathbf{0}}(\omega)$ appelée **la phase spectrale**, qui correspond à la relation de phase entre ces ondes planes de fréquences différentes, voir la Fig. 1.1. Plutôt que l'amplitude spectrale, on travaille en général avec le module carré $|E_{\mathbf{0}}(\omega)|^2$ appelé **le spectre** ou **l'intensité spectrale** $S_0(\omega)$ de l'impulsion. Comme le montre l'équation (1.7), il a l'avantage de correspondre, à un coefficient $\epsilon_0 c/2$ près, à la norme du vecteur de Poynting $\left\|\bar{\mathbf{\Pi}}\right\|$ moyennée dans le temps sur une période de l'onde plane. Le spectre représente donc la puissance par unité de surface transportée par l'onde plane de pulsation ω.

$$\|\bar{\mathbf{\Pi}}\| = \frac{\epsilon_0 c}{2} |E_0(\omega)|^2 \tag{1.7}$$

Par analogie avec le domaine spectral, on peut définir des propriétés du paquet d'onde $E_0(t)$ dans le

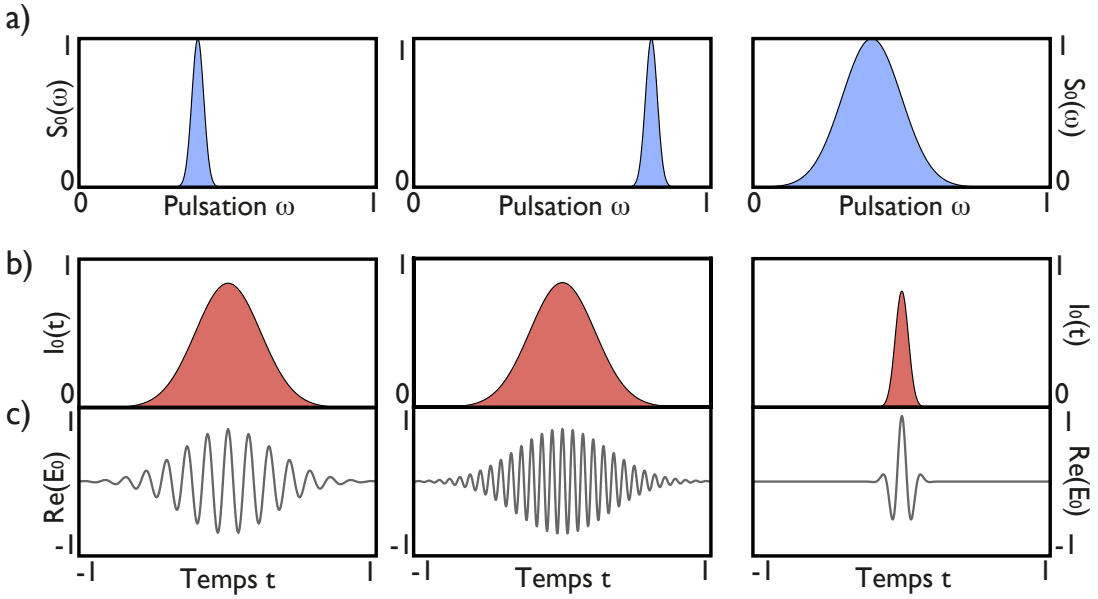


FIGURE 1.2 – **Influence du spectre sur le profil temporel d'une impulsion.** On représente l'influence de trois profils du spectre $S_0(\omega)$ (a), sur l'intensité temporelle $I_0(t)$ (b) et le champ électrique réel $Re(E_0)$ (c). Dans ces trois cas, les phases spectrales et temporelles sont nulles. Tous les axes sont en unités arbitraires.

domaine temporel. On appellera **l'intensité temporelle** $I_0(t)$ la quantité $|E_0(t)|^2$ donnant l'évolution de la puissance par unité de surface [1] transportée par l'impulsion en fonction du temps. On définira également la phase de $E_0(t)$ comme étant **la phase temporelle** $\phi_0(t)$ de l'impulsion. On peut alors réécrire l'équation (1.6) en $z = 0$ en fonction de toutes ces grandeurs :

$$\sqrt{I_0(t)} \cdot e^{i\phi_0(t)} = TF\left[\sqrt{S_0(\omega)} \cdot e^{i\varphi_0(\omega)}\right]_{(t)} \tag{1.8}$$

Nous verrons au paragraphe 1.1.2 que la phase spectrale joue un rôle fondamental dans la physique des impulsions ultrabrèves, mais considérons pour le moment qu'elle soit nulle et concentrons nous sur l'influence du spectre sur le profil temporel du paquet d'onde. Il existe une propriété fondamentale de la transformée de Fourier, selon laquelle plus une fonction est étendue dans un espace, moins la transformée de Fourier de cette fonction le sera dans l'espace réciproque. L'exemple extrême est celui de l'onde plane, totalement délocalisée temporellement puisqu'infinie dans le temps, mais parfaitement localisée en fréquence puisque monochromatique. Dans le cas d'une impulsion ultrabrève, cela revient à dire que **plus le spectre du paquet d'onde sera large, plus l'impulsion sera brève**. Cette propriété est illustrée par la Fig. 1.2 (a-b). Rappelons nous que nous manipulons un champ complexe par commodité, mais que seule sa partie réelle représente l'évolution physique du champ électrique. Il ne faut donc pas perdre de vue que le champ électrique réel oscille

1. Au sens radiométrique, un flux par unité de surface en W/m^2 représente un éclairement [Meyzonnette J.-L. and Lépine T., 2001], alors qu'une intensité est un flux par unité d'angle solide en W/sr. Un abus de langage remontant aux origines du laser veut que l'on nomme intensité l'éclairement d'un faisceau. Nous ne chercherons pas à lutter contre cet état de fait, et, sauf mention contraire, nous considérerons l'intensité spectrale ou temporelle en W/m^2.

dans son enveloppe, voir la Fig. 1.2 c).

Ce premier cas particulier nous a permis de mieux comprendre l'évolution dans le temps d'une impulsion lumineuse. Intéressons nous maintenant à son évolution spatiale.

Supposons, cette fois, que **le paquet d'onde soit uniquement composé d'ondes planes de même fréquence** ω'. Les ondes planes ne se distinguent plus que par leur direction de propagation, *i. e.* la direction de $\mathbf{k}$ de coordonnées (k_x, k_y, k_z). En réécrivant la version scalaire de l'équation (1.5) en introduisant la norme ω'/c de $\mathbf{k}$, on obtient :

$$E(\mathbf{r},t) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} E_{\mathbf{0}}(\mathbf{k})\, e^{i(k_x\cdot x + k_y\cdot y + k_z\cdot z)} e^{-i\omega' t}\cdot dk_x dk_y dk_z$$

$$= \iiint_{-\infty}^{+\infty} E_{\mathbf{0}}(k_x,k_y,k_z)\, e^{iz\cdot\sqrt{\omega'^2/c^2 - k_x^2 - k_y^2}} \cdot e^{i(k_x\cdot x + k_y\cdot y)} e^{-i\omega' t}\cdot dk_x dk_y dk_z \tag{1.9}$$

Une conséquence directe de l'approximation scalaire est que, pour toutes les ondes planes, k_z sera très grand devant $k_{x,y}$. On pourra donc négliger la dépendance en k_z dans l'équation (1.9), puisque sa valeur sera quasiment identique d'une onde plane à l'autre. On peut alors faire apparaître pour une cote z donnée, une transformée de Fourier à deux dimensions reliant l'espace réel (x, y) transverse à la direction de propagation de l'impulsion, à l'espace de Fourier (k_x, k_y). Ces dernières coordonnées correspondent aux différentes directions des vecteurs d'ondes, c'est à dire à tous les angles possibles des ondes planes entre elles. Il apparaît donc que l'équation précédente peut s'écrire :

$$E(x,y,z) = e^{-i\omega' t}\cdot TF\left[E_{\mathbf{0}}(k_x,k_y)\cdot H(k_x,k_y,z,\omega')\right]_{(x,y)} \tag{1.10}$$

Où $TF_{(x,y)}$ désigne la transformée de Fourier reliant l'espace de Fourier (k_x, k_y) à l'espace réel (x, y), et où H vaut $e^{iz\cdot\sqrt{\omega'^2/c^2 - k_x^2 - k_y^2}}$.

On nomme généralement $E_{\mathbf{0}}(k_x, k_y)$ la distribution angulaire d'ondes planes, appelée aussi spectre d'ondes planes, et H le propagateur de l'espace libre. Or $E_{\mathbf{0}}(k_x, k_y)$ est lui-même la transformée de Fourier inverse du champ électrique transverse $E_{\mathbf{0}}(x, y)$ en $z = 0$. On peut alors faire une analogie forte avec le paquet d'onde particulier précédent. En effet, l'évolution temporelle de ce dernier en $z = 0$ était uniquement déterminée par son contenu en fréquences $E_{\mathbf{0}}(\omega)$. Et propager le champ selon z revenait alors à appliquer un filtre de phase $e^{ik(\omega)\cdot z}$ sur les composantes spectrales $E_{\mathbf{0}}(\omega)$ de l'impulsion. De même, dans le cas actuel, l'évolution spatiale transverse d'un champ monochromatique en $z = 0$ sera uniquement dictée par sa distribution angulaire d'ondes planes. Et propager le champ transverse selon z reviendra, une fois de plus, à appliquer un filtre de phase H sur $E_{\mathbf{0}}(k_x, k_y)$.

Il existe, cependant une petite distinction entre les deux cas. En effet, dans le cas précédent, pour une propagation dans le vide, la phase $k(\omega)\cdot z$ du filtre devenait linéaire en ω laissant invariante la forme temporelle du paquet d'onde. Cette fois, même pour une propagation dans le vide, la phase de H ne dépend pas linéairement de k_x et k_y. Ce filtre ne va donc pas laisser invariant le profil du champ transverse, il va au

contraire disperser le paquet d'onde en (x, y) durant la propagation. En d'autre terme, **le paquet d'onde va s'étaler transversalement à l'axe de propagation** du fait de la diffraction.

Une autre approche équivalente, basée sur le principe d'Huygens-Fresnel, consiste à décomposer le champ électrique monochromatique non pas en une somme d'ondes planes mais en une superposition d'ondes sphériques. Connaissant le champ électrique aux points P dans un plan donné, on peut déduire le champ électrique à un point P' quelconque en appliquant l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld dépendant de la distance PP' :

$$E\left(P'\right) \propto -\frac{i\omega'}{2\pi c} e^{-i\omega' t} \int_{-\infty}^{+\infty} E\left(P\right) \frac{\exp(\frac{i\omega'}{c} PP')}{PP'} dP \tag{1.11}$$

Bien sûr, les deux cas particuliers que nous venons d'étudier ne sont pas réalistes, l'évolution spatiale d'une onde monochromatique étant infinie dans le temps. Cependant, à partir d'un paquet d'onde quelconque, il est toujours possible de ramener le problème à une propagation d'ondes monochromatiques. En effet, en appliquant une transformée de Fourier inverse en t, on décompose le paquet d'onde en différents faisceaux monochromatiques. Il suffit ensuite de propager chaque fréquence indépendamment les unes des autres, par une décomposition en spectres angulaires d'ondes planes, ou par calcul de l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld. Une dernière transformée de Fourier en t permet de revenir dans le domaine temporel, une fois le champ propagé.

$$\begin{array}{ccc} E\left(x,y,z,t\right) & & E\left(x,y,z',t\right) \\ & & \\ TF_{(t)}^{-1} \downarrow & & TF_{(t)} \uparrow \\ & & \\ E\left(x,y,z,\omega\right) & \overset{Propagation}{\longrightarrow} & E\left(x,y,z',\omega\right) \end{array} \tag{1.12}$$

Dans l'approximation scalaire, l'évolution spatio-temporelle d'une impulsion lumineuse quelconque peut donc être obtenue par le processus (1.12). De plus, nous n'aurons plus à utiliser la transformée de Fourier spatiale $TF_{(x,y)}$, et allons dorénavant utiliser uniquement la transformée de Fourier temporelle TF_t. Pour simplifier son écriture, nous la noterons simplement TF. Nous noterons également $\widetilde{E}\left(x,y,z,\omega\right)$ la fonction transformée de Fourier d'un champ spatio-temporel $E\left(x,y,z,t\right)$.

Exemple du faisceau gaussien impulsionnel

Pour illuster les équations précédentes, nous allons considérer la propagation d'une impulsion ayant un profil spatial gaussien. Après être passé dans le domaine des fréquences optiques par le biais d'une transformée de Fourier inverse, le champ électrique complexe d'un faisceau gaussien est à symétrie de révolution par rapport à l'axe z, et s'exprime sous la forme suivante :

$$\widetilde{E}\left(\mathbf{r},\omega\right) = \sqrt{S_0\left(\omega\right)} \cdot e^{i\varphi_0(\omega)} \cdot e^{-i\frac{\omega}{c}z} \cdot \frac{w_0}{w\left(z,\omega\right)} \exp\left[\frac{-r^2}{w\left(z,\omega\right)^2} - i\left(\frac{r^2}{2R\left(z\right)} + \zeta\left(z\right)\right)\right] \tag{1.13}$$

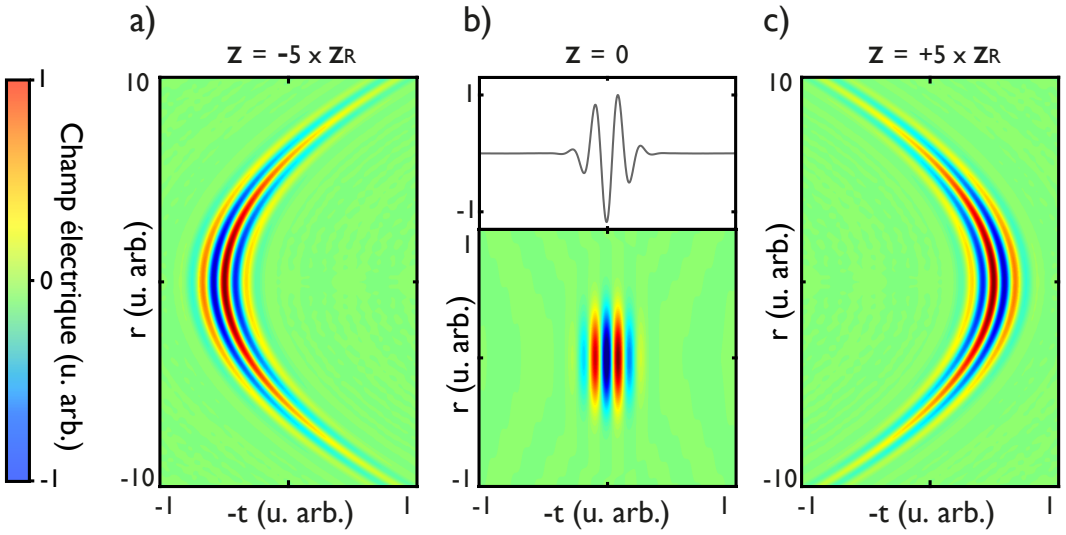


FIGURE 1.3 – **Propagation d'un faisceau gaussien impulsionnel.** L'évolution du champ électrique $E(r,z,t)$ d'une impulsion de profil spatial gaussien est donnée pour une position z égale à ± 5 fois la zone de Rayleigh du faisceau à la fréquence centrale de l'impulsion (a-c), et pour la position $z = 0$ (b). Pour cette dernière, le profil du champ électrique pour $r = 0$ est également tracé.

Dans cette équation, r désigne la coordonnée radiale égale à $\sqrt{x^2+y^2}$ et :

- la longueur de la zone de Rayleigh $z_R(\omega)$ vaut $\frac{\omega w_0^2}{2c}$
- l'évolution du *waist* est donnée par la relation : $w(z,\omega) = w_0\sqrt{1+\left(\frac{z}{z_R(\omega)}\right)^2}$
- le rayon de courbure du front d'onde est donné par $R(z,\omega) = z + \frac{z_R^2(\omega)}{z}$
- la phase de Gouy $\zeta(z)$ est égale à $\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right)$.

Si l'on considère que la taille w_0 du *waist* est indépendante de ω, la propagation du champ électrique donne un résultat de la forme de la Fig. 1.3. Pour des positions z différentes de 0, les propriétés du champ ne sont pas les mêmes pour tout r. Le paquet d'onde s'étale transversalement à l'axe de propagation, et le front de l'impulsion devient courbe. Par contre, en $z = 0$, le champ électrique prend la même forme en tout point. En effet, si l'on considère l'équation (1.13) en $z = 0$, cette dernière se simplifie de la manière suivante :

$$\widetilde{E}(z=0,r,\omega) = \sqrt{S_0(\omega)}\cdot e^{i\varphi_0(\omega)}\frac{w_0}{w_0}\cdot\exp\left[\frac{-r^2}{w_0^2} - i(0+\zeta(0))\right] = \sqrt{S_0(\omega)}\cdot e^{i\varphi_0(\omega)}\cdot e^{\frac{-r^2}{w_0^2}} \tag{1.14}$$

Et en effectuant une dernière transformée de Fourier pour revenir dans le domaine temporel, nous obtenons un champ de la forme suivante :

$$E(z=0,r,t) = TF\left[\sqrt{S_0(\omega)}\cdot e^{i\varphi_0(\omega)}\cdot e^{\frac{-r^2}{w_0^2}}\right] = \sqrt{I_0(t)}\cdot e^{i\phi_0(t)}\cdot e^{\frac{-r^2}{w_0^2}} \tag{1.15}$$

On voit alors qu'en $z = 0$, ce champ électrique est le produit d'une fonction de l'espace par une fonction du temps, il est à variables séparables. Travailler sur une impulsion de cette forme nous ramène au premier des deux cas particuliers précédents, dans lequel toutes les ondes planes se propageaient de manière colinéaire. L'unique différence vient du fait que cette fois une fonction de l'espace, $\exp\left(-r^2/w_0^2\right)$ dans le cas actuel, donne au paquet d'onde une extension transverse finie. De manière générale, lorsque le champ électrique spatio-temporel (resp. spatio-spectral) **ne pourra pas** s'écrire comme le produit d'une fonction de l'espace et d'une fonction du temps (resp. de la fréquence), on dira que l'impulsion comporte **des couplages spatio-temporels**.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons considérer que les impulsions ne possèdent pas de couplages. Et nous n'étudierons que les propriétés temporelles et spectrales de ces impulsions sans revenir sur leurs propriétés spatiales.

1.1.2 Propriétés temporelles et spectrales d'une impulsion

Les propriétés temporelles d'une impulsion sont entièrement déterminées par son spectre $S(\omega)$ et sa phase spectrale $\varphi(\omega)$. Cette phase spectrale joue un rôle essentiel dans la physique des impulsion ultrabrèves, c'est pourquoi nous en étudierons les propriétés. Mais il va tout d'abord nous falloir définir des grandeurs statistiques associées à une impulsion.

Grandeurs statistiques

Définissons par l'équation suivante la moyenne $\langle x \rangle$ d'une grandeur x pondérée par une fonction W :

$$\langle x \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} W(x) \cdot x dx}{\int_{-\infty}^{+\infty} W(x)\, dx} \tag{1.16}$$

On peut également définir l'écart-type Δx de la variable x pondérée par la fonction W :

$$\Delta x = \sqrt{\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2} = \sqrt{\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} W(x) \cdot x^2 dx}{\int_{-\infty}^{+\infty} W(x)\, dx} - \left(\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} W(x) \cdot x dx}{\int_{-\infty}^{+\infty} W(x)\, dx}\right)^2} \tag{1.17}$$

A partir de là, nous pouvons définir :

- $\langle \omega \rangle$ ou ω_0, **la fréquence centrale** d'une impulsion comme la moyenne des fréquences ω pondérée par le spectre $S(\omega)$
- $\Delta\omega$ la **largeur écart-type ou RMS du spectre**.
- $\langle t \rangle$ ou t_0, **l'instant moyen** d'une impulsion comme la moyenne des temps t pondérée par l'intensité de l'impulsion $I(t)$
- Δt, la **durée RMS** de l'impulsion [2].

2. Il existe différentes manières de définir la durée d'une impulsion. En particulier, on définit souvent la durée comme la largeur à mi-hauteur (en anglais, *Full Width at Half Maximum* FWHM) de l'impulsion étant donnée la simplicité de cette définition. Elle est très simple à mesurer expérimentalement à partir du profil temporel d'une impulsion. Mais la durée RMS est souvent privilégiée lorsqu'il s'agit de faire une étude théorique.

Phase spectrale et phase temporelle

Une quantité fréquemment utilisée est le **retard de groupe**. Il correspond simplement à la dérivée de la phase spectrale par rapport à la pulsation $\partial\varphi/\partial\omega$. On le notera par la suite $GD(\omega)$ pour *Group Delay*. Dans le cas de la phase temporelle $\phi(t)$ cette fois, on appelle la quantité $-\partial\phi/\partial t$ à **la fréquence instantanée** $\Omega(t)$ de l'impulsion.

Malgré ces définitions, la phase spectrale reste une notion difficile à appréhender. Pour comprendre son rôle exacte, voyons ce qu'il adviendrait si la phase spectrale d'impulsion devenait nulle. Pour ce faire, nous allons donc associer à toute impulsion $I(t)$ une impulsion $I_{TF}(t)$ que l'on appellera **l'impulsion limitée par Fourier** et dont le spectre reste celui de $I(t)$ mais dont la phase spectrale est nulle :

$$I_{TF}(t) = \left| TF\left(\sqrt{S(\omega)}\right)\right|^2 \tag{1.18}$$

Or il a été montré [Walmsley I. A. et al., 2001] que l'on pouvait relier la durée RMS Δt_{TF} de $I_{TF}(t)$ à celle de l'impulsion initiale $I(t)$, notée Δt :

$$\Delta t^2 = \Delta t_{TF}^2 + \Delta GD^2 \tag{1.19}$$

Où ΔGD représente l'écart-type du retard de groupe GD pondéré par le spectre $S(\omega)$.

Cette équation souligne que toute impulsion possède une durée limite, celle de $I_{TF}(t)$, uniquement fixée par son spectre. Toute variation du retard de groupe, c'est à dire **toute variation non linéaire de la phase spectrale provoque un étirement de l'impulsion**. On comprend alors que le rôle de la phase spectrale d'une impulsion est fondamentale. Une autre relation importante est celle liant les largeurs RMS du spectre et de l'impulsion. Cette relation met sous la forme d'une inégalité le fait qu'une impulsion peut être d'autant plus brève que son spectre est large :

$$\Delta t \cdot \Delta\omega \geq \frac{1}{2} \tag{1.20}$$

L'égalité est atteinte dans le cas d'une impulsion gaussienne limitée par Fourier :

$$\Delta t_{TF} = \frac{1}{2\Delta\omega} \tag{1.21}$$

Si l'écart-type ΔGD représente l'étirement induit par le retard de groupe sur une impulsion, la moyenne $\langle GD\rangle$ pondérée par le spectre représente, quant à elle, le centre de l'impulsion. On peut d'ailleurs montrer que cette quantité est égale à l'instant moyen t_0 de l'impulsion :

$$\langle GD\rangle = \left\langle \frac{\partial\varphi}{\partial\omega}\right\rangle = \langle t\rangle = t_0 \tag{1.22}$$

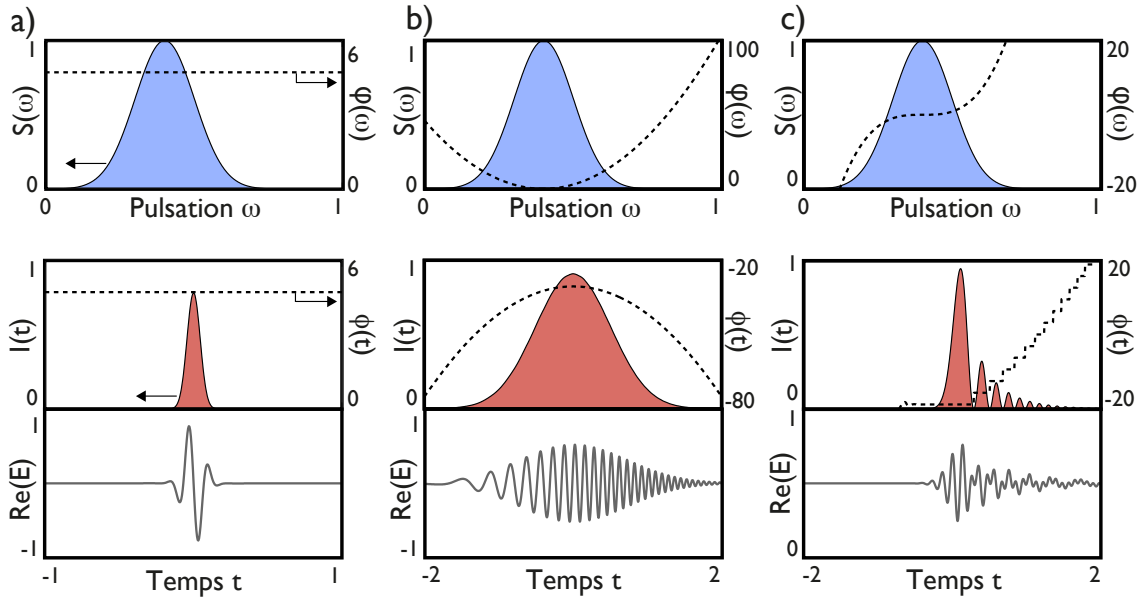


FIGURE 1.4 – **Influence de la phase spectrale sur l'impulsion.** Pour un spectre donné $S(\omega)$, on représente l'effet de la phase spectrale $\varphi(\omega)$ sur le profil temporel $I(t)$ et la phase temporelle $\phi(t)$ de l'impulsion, ainsi que sur le champ électrique réel. Cas d'un déphasage constant (a), d'une phase spectrale parabolique (b) et du troisième ordre (c). Les valeurs des phases sont en radians, les autres grandeurs sont en unités arbitraires.

Une relation équivalente existe avec la fréquence instantanée :

$$\langle \Omega \rangle = \left\langle -\frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right\rangle = \langle \omega \rangle = \omega_0 \tag{1.23}$$

Pour faciliter l'étude de la phase spectrale, nous pouvons en faire un développement de Taylor autour de la fréquence centrale ω_0 :

$$\varphi(\omega) = \varphi(\omega_0) + \frac{\partial \varphi}{\partial \omega}(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \omega^2}(\omega_0)\frac{(\omega - \omega_0)^2}{2} + \frac{\partial^3 \varphi}{\partial \omega^3}(\omega_0)\frac{(\omega - \omega_0)^3}{6} + ... \tag{1.24}$$

Outre le retard de groupe $\partial\varphi/\partial\omega$, on peut définir certaines grandeurs apparaissant dans ce développement :

- $\partial^2\varphi/\partial\omega^2$ correspondera à la dispersion des retards de groupe ou GDD pour *Group Delay Dispersion*.
- $\partial^3\varphi/\partial\omega^3$ sera la dispersion du troisième ordre ou TOD pour *Third Order Dispersion*.
- $\varphi(\omega_0)$ correspond à la valeur de la phase spectrale à la fréquence centrale.

En général, on compare cette dernière quantité au produit $\omega_0 t_0$ qui correspond à la phase qu'accumulerait la porteuse de fréquence ω_0 si elle était synchronisée avec l'enveloppe, centrée en t_0. L'écart entre $\varphi(\omega_0)$ et $\omega_0 t_0$ correspond au déphasage existant entre l'enveloppe et la porteuse de l'impulsion, on parle alors de "phase de l'enveloppe par rapport à la porteuse" ou CEP pour *Carrier Envelope Phase* et notée φ_{CE} :

$$\varphi_{CE} = \varphi(\omega_0) - \omega_0 t_0 \tag{1.25}$$

La Fig. 1.4 illustre l'influence de ces différentes grandeurs sur l'impulsion. Une variation de la CEP va provoquer une désynchronisation du champ électrique avec son enveloppe. Cet effet a un impact significatif lorsque le champ électrique oscille très peu de fois dans son enveloppe, voir la Fig. 1.4 a). On parle alors **d'impulsion monocycle**. Une valeur non nulle de GDD fait varier linéairement la fréquence instantanée du champ électrique. Enfin, l'ajout de TOD crée des battements sur le profil temporel. Dans ces deux derniers cas, l'évolution de la phase spectrale n'est plus linéaire, ce qui provoque un élargissement de l'impulsion, voir l'équation (1.19).

Par analogie, on peut également effectuer le développement de Taylor de la phase temporelle $\phi(t)$ autour de l'instant moyen t_0 :

$$\phi(t) = \phi(t_0) + \frac{\partial\phi}{\partial t}(t_0)(t-t_0) + \frac{\partial^2\phi}{\partial t^2}(t_0)\frac{(t-t_0)^2}{2} + ... \tag{1.26}$$

Dans cette équation, la quantité $-\partial^2\phi/\partial t^2$ notée $\xi(t)$ sera nommée "dérive de fréquence", ou *chirp* en anglais. La présence d'une dérive de fréquence se traduit par une évolution linéaire de la fréquence instantanée, on dit alors que **l'impulsion est chirpée**.

Toutes les grandeurs définies jusqu'à présent sont résumées dans le tableau ci-dessous :

Grandeur	**Symbole**	**Relation de définition**	**Unité SI**
Intensité temporelle	$I(t)$	$\lvert E(t)\rvert^2$	W/m^2
Phase temporelle	$\phi(t)$	$arg[E(t)]$	rad
Fréquence instantanée	$\Omega(t)$	$-\partial\phi/\partial t$	rad/s
Dérive de fréquence ou *chirp*	$\xi(t)$	$-\partial^2\phi/\partial t^2$	rad/s^2
Instant moyen	t_0	$\langle t\rangle$	s
Durée RMS	Δt	$\sqrt{\langle t^2\rangle - \langle t\rangle^2}$	s
Intensité temporelle en limite de Fourier	$I_{TF}(t)$	$\left\lvert TF\left[\sqrt{S(\omega)}\right]\right\rvert^2$	W/m^2
Durée RMS en limite de Fourier	Δt_{TF}		s
Spectre	$S(\omega)$	$\left\lvert\widetilde{E}(\omega)\right\rvert^2$	W/m^2
Phase spectrale	$\varphi(\omega)$	$arg\left[\widetilde{E}(\omega)\right]$	rad
Fréquence moyenne	ω_0	$\langle\omega\rangle$	rad/s
Largeur RMS du spectre	$\Delta\omega$	$\sqrt{\langle\omega^2\rangle - \langle\omega\rangle^2}$	rad/s
Retard de groupe	$GD(\omega)$	$\partial\varphi/\partial\omega$	s
Dispersion des retards de groupe	$GDD(\omega)$	$\partial^2\varphi/\partial\omega^2$	s^2/rad
Dispersion du troisième ordre	$TOD(\omega)$	$\partial^3\varphi/\partial\omega^3$	s^3/rad^2
Phase de l'enveloppe par rapport à la porteuse	φ_{CE}	$\varphi(\omega_0) - \omega_0 t_0$	rad

1.2 Génération et caractérisation d'une impulsion attoseconde

Contrairement aux autres régimes de durée, comme pour les impulsions picosecondes ou femtosecondes, il n'existe pas de "laser attoseconde" dans le sens ou une impulsion attoseconde ne peut pas être produite par un système milieu à gain/cavité. Plus précisément, il n'existe à l'heure actuelle que deux techniques avérées pour produire des impulsions attosecondes, toutes deux basées sur un processus nommé génération d'harmoniques d'ordre élevé ou *High Harmonic Generation* en anglais. La première technique fut démontrée expérimentalement en 2001 [Hentschel M. et al., 2001, Paul P. M. et al., 2001], et consiste à utiliser un gaz comme milieu non-linéaire pour générer les harmoniques. La seconde technique, quant à elle, utilise un milieu solide [Nomura Y. et al., 2009]. Cependant, seule une équipe dans le monde en 2009 a jusqu'à présent réussi à mesurer des impulsions attosecondes produites par cette seconde technique, si bien que le terme de source attoseconde ne désignera dans la suite de ce mémoire que les sources basées sur des cibles gazeuses.

Mais la génération de telles impulsions ne prend tout son sens que si l'on est capable de les mesurer. La problématique de la caractérisation des impulsions attosecondes est donc tout aussi fondamentale. Comme nous le verrons, cette caractérisation consiste à transférer les propriétés des impulsions à des électrons issus d'un processus de photoionisation, puis à analyser la distribution d'énergie cinétique de ces électrons.

1.2.1 Génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz

Comme son nom le laisse supposer, le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé consiste à générer des harmoniques d'un faisceau, c'est à dire à ajouter à un spectre majoritairement composé d'une seule fréquence optique fondamentale de nouvelles fréquences multiples de cette fréquence fondamentale. Dans la pratique, cette dernière correspond à une impulsion infrarouge femtoseconde. La génération d'harmoniques d'ordre élevé s'obtient alors en focalisant cette impulsion dans un milieu qui va réagir non-linéairement en produisant des harmoniques jusque dans le domaine des rayons X mous [Seres J. et al., 2005].

Si la génération d'harmoniques d'ordre faible, seconde ou troisième harmonique par exemple, est presque aussi vieille que l'invention du laser [Ward J. F. and New G. H. C., 1969], la génération d'harmoniques d'ordre élevé date, elle, de la fin des années 70 [Burnett N. H. et al., 1977, Carman R. L. et al., 1981a,b] et fut d'abord observée sur des cibles solides. Ce n'est qu'à la fin des années 80 que la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans des gaz rares, qui est aujourd'hui la plus couramment utilisée, fut observée [McPherson A. et al., 1987, Ferray M. et al., 1988]. Mais contrairement à la génération d'harmoniques d'ordre faible dans laquelle l'intensité des harmoniques décroit assez rapidement avec l'ordre harmonique, dans le cas de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, il fut observé que les harmoniques gardaient des intensités proches sur une large gamme spectrale formant un plateau, avant de s'atténuer brutalement. De plus, ce phénomène était observé pour des intensités lasers qui auraient normalement du directement ioniser les atomes de la cible, sans qu'une production de rayonnement n'ait lieu.

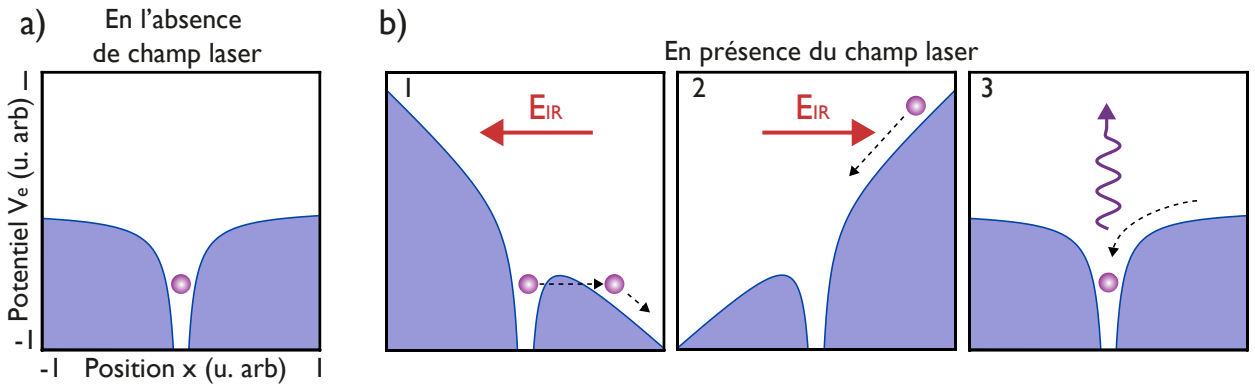


FIGURE 1.5 – **Modèle semi-classique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.** a) En l'absence de champ laser, l'électron est maintenu dans son niveau fondamental. b) Un champ laser intense abaisse la barrière de potentiel, que l'électron franchit par effet tunnel. Une fois dans le continuum, l'électron acquiert de l'énergie cinétique (1). Une demi-période infrarouge plus tard, la barrière de potentiel s'inverse (2). L'électron retourne alors dans son niveau fondamental et libère l'énergie acquise sous forme d'un photon XUV (3).

Le modèle semi-classique en trois étapes

Pour expliquer ces phénomènes, un modèle fut proposé au début des années 90 [Corkum P. B., 1993, Kulander K. C. et al., 1994]. Ce modèle semi-classique permet d'expliquer en trois étapes l'émission des harmoniques d'ordre élevé. Considérons tout d'abord le noyau atomique comme générant un potentiel coulombien V_e :

$$V_e = \frac{-e}{4\pi\epsilon_0 r} \tag{1.27}$$

Où e est la charge de l'électron, ϵ_0 la permittivité du vide et r la distance au noyau atomique.

En l'absence de perturbation extérieure, un électron restera dans son état fondamental, piégé dans le puits de potentiel créé par le noyau, comme illustré sur la Fig. 1.5 a). En présence d'un champ électrique laser de forme $E_{IR} \cdot cos\,(\omega_{IR} t)$, que nous polariserons ici arbitrairement selon l'axe x, le champ électrique vu par l'électron est la somme du champ du noyau et du champ électrique du laser. La somme du potentiel coulombien et du potentiel dont dérive ce champ électrique s'écrit donc :

$$V_e = \frac{-e}{4\pi\epsilon_0 r} + E_{IR} \cdot x \cdot cos\,(\omega_{IR} t) \tag{1.28}$$

Il apparaît alors que si le champ laser est suffisamment grand devant le champ électrique atomique, la barrière de potentiel qui empêchait à l'électron de quitter son état fondamental va s'abaisser, voir la Fig. 1.5 b). Il peut alors se produire une ionisation par effet tunnel [Corkum P. B., 1993, Kulander K. C. et al., 1994] à un instant t_i aléatoire. En traversant cette barrière, l'énergie potentielle de l'électron augmente d'un facteur I_p, appelé énergie potentielle d'ionisation. Il se retrouve ainsi dans le continuum d'ionisation, c'est à dire qu'il possède alors un niveau d'énergie qui n'est plus discret, comme c'était le cas lorsqu'il était lié au noyau. Libre,

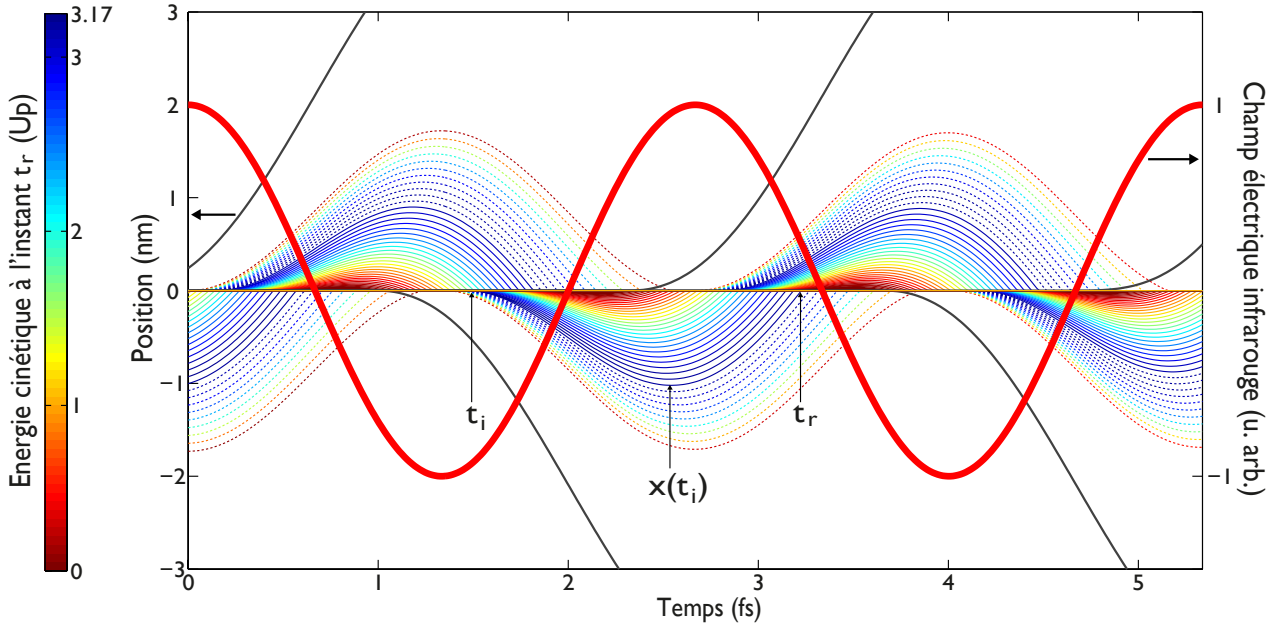


FIGURE 1.6 – **Trajectoires classiques $x(t_i)$ d'un électron dans le continuum soumis à un champ électrique infrarouge pour différents instants d'ionisation t_i.** La longueur d'onde du champ IR est de $800\,nm$ et son intensité de $10^{14}\,W/cm^2$. La couleur d'une trajectoire représente l'énergie cinétique des électrons qui la suivent lors leur recollision avec leur ion parent. Les lignes pointillées (resp. continues) correspondent aux trajectoires longues (resp. courtes). Les électrons suivants les trajectoires noires ne se recombinent jamais avec le noyau.

il est accéléré par le champ laser et acquiert une énergie cinétique $\mathcal{E}_c$.

Pour établir l'équation de la trajectoire suivie par l'électron, nous pouvons appliquer la seconde loi de Newton. En particulier, une des approximations du modèle semi-classique consiste à négliger l'influence du champ électrique du noyau sur l'électron lorsqu'il est dans le continuum. L'équation du mouvement s'écrit donc :

$$m_e\ddot{x} = -eE_{IR} \cdot cos\left(\omega_{IR}t\right) \tag{1.29}$$

Où m_e représente la masse de l'électron.

Remonter à la trajectoire $x(t)$ de l'électron dans le champ laser nécessite d'imposer certaines conditions sur sa position $x(t_i)$ et la vitesse $\dot{x}(t_i)$ initiales. Le modèle montre que l'on peut raisonnablement considérer qu'à l'issue de l'ionisation tunnel, l'électron est toujours proche du noyau et que sa vitesse est nulle. On obtient ainsi l'équation (1.30) donnant toutes les trajectoires classiques possibles en fonction de l'instant d'ionisation t_i :

$$x(t) = \frac{eE_{IR}}{m_e\omega_{IR}^2} \cdot \left[cos\left(\omega_{IR}t\right) - cos\left(\omega_{IR}t_i\right)\right] + \frac{eE_{IR}}{m_e\omega_{IR}} \cdot sin\left(\omega_{IR}t_i\right)(t - t_i) \tag{1.30}$$

La Fig. 1.6 montre certaines de ces trajectoires pour différents instants t_i. Il apparaît alors clairement que

les trajectoires colorées sur la Fig. 1.6, repassent par la position du noyau atomique. En d'autres termes, un électron suivant ces trajectoires est rabattu par le champ IR vers le noyau atomique. Il se retrouve à nouveau piégé dans son potentiel coulombien à un instant de recombinaison t_r dépendant de la trajectoire suivie. Il retourne alors sur son niveau fondamental en perdant toute l'énergie acquise durant le processus, c'est à dire à la fois l'énergie potentielle d'ionisation I_p et l'énergie cinétique $\mathcal{E}_c(t_i, t_r)$ acquise dans le champ laser jusqu'à la recombinaison. Cette énergie est convertie sous la forme d'un photon XUV d'énergie $\hbar\omega_{XUV}$:

$$\hbar\omega_{XUV} = I_p + \mathcal{E}_c(t_i, t_r) \tag{1.31}$$

L'émission de rayonnement XUV peut donc être expliquée en trois étapes distinctes : abaissement de la barrière de potentiel - ionisation tunnel - accélération dans le champ laser et recombinaison. Nous allons maintenant nous intéresser aux diverses propriétés de ce rayonnement, en commençant par son spectre.

Spectre du rayonnement XUV

D'après l'équation (1.31), pour un gaz cible donné, le spectre XUV généré sera déterminé par les différentes énergies cinétiques que pourra acquérir l'électron à l'instant t_r. Dans ce contexte, une quantité pertinente est l'énergie pondéromotrice U_p, elle représente l'énergie cinétique acquise par l'électron dans le champ laser moyennée sur un cycle optique :

$$U_p = \frac{e^2 E_{IR}^2}{4 m_e \omega_{IR}^2} \tag{1.32}$$

L'énergie cinétique finale des électrons $\mathcal{E}_c(t_i, t_r)$ peut alors s'exprimer en fonction de U_p :

$$\mathcal{E}_c(t_i, t_r) = \frac{1}{2} m_e \dot{x}^2 = 2U_p \cdot \left[sin(\omega_{IR} t_r) - sin(\omega_{IR} t_i)\right]^2 \tag{1.33}$$

En analysant cette équation, il apparait que, parmi tous les couples (t_i, t_r) possibles, c'est à dire pour les instants d'ionisation t_i pour lesquels une recollision avec l'ion parent soit possible à un instant t_r, l'énergie cinétique maximale accumulable sera de $3.17U_p$ [Krause J. L. et al., 1992, Corkum P. B., 1993]. Il en découle que le spectre XUV généré par le processus s'étendra au maximum jusqu'à une énergie de coupure $\hbar\omega_{XUV}^{coupure}$ donnée par l'équation (1.34) :

$$\hbar\omega_{XUV}^{coupure} = I_p + 3.17U_p \tag{1.34}$$

Nous pouvons faire une rapide estimation de la position de cette coupure pour des conditions de génération courantes. En prenant les mêmes conditions que celles de la Fig. 1.6, soit un champ laser à une longueur d'onde de $800\,nm$ et d'intensité $10^{14}\,W/cm^2$ focalisé dans un jet de néon, nous obtenons une énergie de coupure $40.5\,eV$, soit une longueur d'onde de $30.5\,nm$. Il est donc possible d'obtenir des spectres XUV extrêmement larges.

Gaz rare	I_p **(en eV)**
He	24.58
Ne	21.56
Ar	15.76
Kr	14.00
Xe	12.13

TABLE 1.1 – **Tableau des énergies potentielles d'ionisation des différents gaz rares.**

En s'appuyant sur l'équation (1.32), on peut prédire que ce spectre sera d'autant plus large que :
- le gaz rare de génération aura un potentiel d'ionisation I_p élevé, voir le tableau 1.1,
- l'intensité de l'impulsion infrarouge de génération, proportionnelle à U_p, sera élevée,
- la pulsation ω_{IR}, (resp. la longueur d'onde λ_{IR}) de l'impulsion infrarouge de génération sera faible (resp. élevée).

En particulier, augmenter λ_{IR} pourra s'avérer très avantageux, l'énergie pondéromotrice étant proportionnelle au carré de la longueur d'onde IR, alors qu'elle est simplement proportionnelle à l'intensité laser. Enfin, il existe une intensité de saturation, en général autour de $10^{16}\,W/cm^2$, à partir de laquelle le champ IR ionise directement les atomes de gaz sans qu'il n'y ait de recombinaison.

De plus, la Fig. 1.6 montre que la recollision d'électrons avec le noyau, et donc l'émission de rayonnement, aura lieu à deux reprises dans un cycle optique laser de période T_{IR}, deux processus en trois étapes décalés d'une demi-période du champ IR pouvant cohabiter. Ce phénomène traduit le fait que le milieu, *i. e.* un atome de gaz rare, est centrosymétrique. Ecartons pour le moment la question de la phase associée à l'émission XUV, et considérons qu'elle soit nulle. Dans ce cas, un profil d'intensité périodique dans le temps et de période $T_{IR}/2$, impose une périodicité du signal dans le domaine de Fourier de période $2/T_{IR}$. En d'autres termes, cela créera des interférences spectrales qui prendront la forme d'harmoniques de la fréquence infrarouge. Du fait de la centrosymétricité du milieu, ces interférences seront constructives uniquement au niveau des harmoniques impaires. Si bien que **le spectre XUV final sera composé d'harmoniques impaires du champ IR**.

De manière simpliste, le spectre harmonique peut être vu comme un peigne de Dirac $\delta_{2\omega_{IR}}(\omega)$, multiplié par une enveloppe $e(\omega)$. En calculant la transformée de Fourier de cette fonction, on peut estimer la forme du signal temporel associé. On voit alors que la forme de chaque impulsion du train sera déterminée par $TF[e(\omega)]$.

$$TF[\delta_{2\omega_{IR}} \cdot e(\omega)] = \delta_{T_{IR}/2}(t) \otimes TF[e(\omega)] \tag{1.35}$$

En conséquence, l'enveloppe du spectre XUV déterminera la forme de chaque impulsion du train. En particulier, si le spectre harmonique possède une enveloppe gaussienne d'écart-type $\Delta\omega$ égal à $20\,eV$ ($47\,eV$ FWHM), alors d'après l'équation (1.21), la durée RMS en limite de Fourier de chaque impulsion sera :

$$\Delta t_{TF} = \frac{1}{2\Delta\omega} = 16\,as\ (39\,as\,\text{FWHM}) \tag{1.36}$$

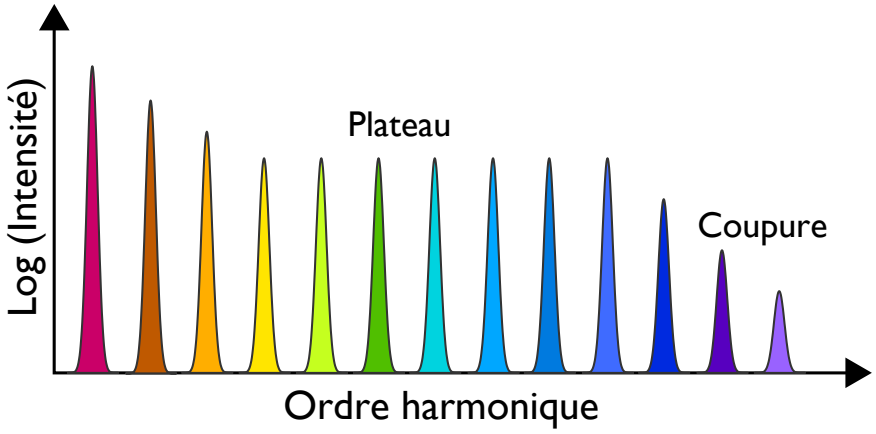


FIGURE 1.7 – **Allure caractéristique d'un spectre XUV produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé.**

Ce calcul simple montre que le spectre du rayonnement XUV produit donne, en limite de Fourier, des durées dans le régime attoseconde. **La génération d'harmoniques d'ordre élevé permet donc d'obtenir des largeurs spectrales suffisantes pour créer des trains d'impulsions attosecondes.**

Mais plutôt qu'un profil gaussien, l'enveloppe du spectre harmonique adopte en général l'allure donnée par la Fig. 1.7. Le spectre débute par une rapide décroissance sur les premières harmoniques, avant d'atteindre un plateau sur lequel l'intensité, en général en échelle logarithmique, ne dépend plus de l'ordre harmonique. Ce plateau s'étend jusqu'à la coupure dont la position est donnée par l'équation (1.34). Cependant, il apparaît que des harmoniques sont générées au-delà de l'énergie de coupure, et que leur intensité décroît très rapidement avec l'ordre harmonique. Cette observation expérimentale est en contradiction directe avec les prédictions du modèle semi-classique. Pour palier aux lacunes de ce dernier, un modèle totalement quantique fut développé par Lewenstein en 1994 [Lewenstein M. et al., 1994]. Il s'avérera particulièrement important lorsque nous aborderons la question de la phase spectrale des harmoniques.

Enfin, toute cette analyse n'est correcte que si la recollision des électrons est périodique dans le temps. Dans le cas contraire, si une seule recollision a lieu, **le spectre XUV sera continu et l'impulsion en limite de Fourier correspondante sera une impulsion attoseconde unique.** Ce type d'impulsion est cependant plus complexe à obtenir expérimentalement. En effet, alors que l'obtention d'un train d'impulsions se fait naturellement avec une impulsion IR comprenant plusieurs cycles optiques dans son enveloppe, obtenir une impulsion unique nécessite de stabiliser tir à tir la CEP des impulsions IR. En particulier, la première technique ayant permis de générer des impulsions attosecondes uniques consistait à utiliser des impulsions IR monocycles [Baltuška A. et al., 2003], c'est à dire que le champ électrique de ces impulsions n'oscillent qu'une seule fois dans l'enveloppe. En optimisant la CEP de ce type d'impulsion, on peut alors contrôler l'instant de recollision des électrons et garantir qu'il n'y en aura qu'une seule. Une autre technique appelée "Porte de

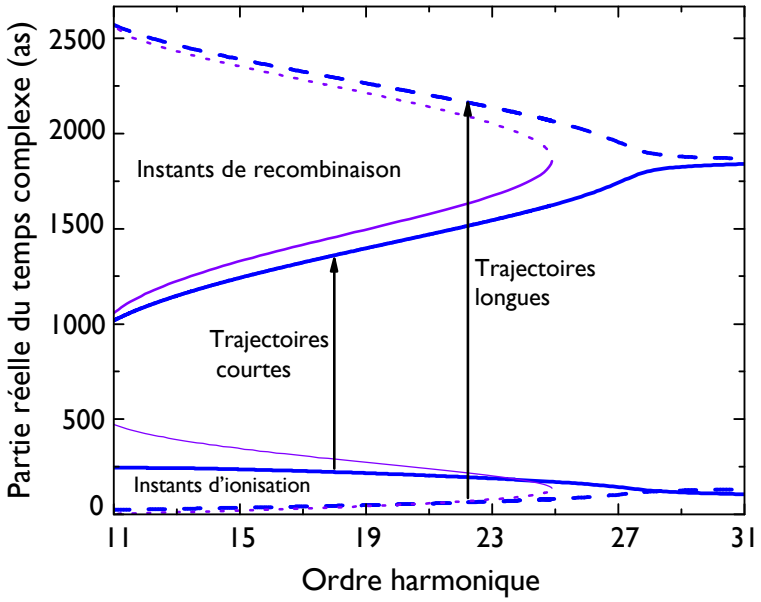


FIGURE 1.8 – **Evolution de l'instant de recombinaison en fonction de l'énergie du photon.** Les trajectoires courtes sont représentées par un trait continu, les trajectoires longues par un trait pointillé. Les traits fins représentent la prévision faite par le modèle semi-classique en trois étapes, alors que les traits plus épais sont les résultats donnés par le modèle quantique de Lewenstein. Figure provenant de la Ref. [Mairesse Y., 2005].

polarisation" [Sola I. J. et al., 2006] consiste à créer à partir d'une même impulsion initiale deux impulsions de polarisations circulaires opposées, et à les superposer temporellement de manière à ce qu'elles ne se recouvrent que durant un cycle optique. Lorsque la polarisation est circulaire, l'électron accéléré dans le champ laser va tourner autour du noyau sans pouvoir se recombiner. Mais au recouvrement des deux impulsions, la polarisation deviendra linéaire durant un bref instant, autorisant la recollision des électrons avec leur ion parent.

Synchronisation du rayonnement XUV : L'atto-chirp

Jusqu'à maintenant, nous n'avons considéré que le spectre XUV produit par génération d'harmoniques d'ordre élevé et nous avons constaté qu'il était suffisamment large pour autoriser la création d'impulsions de durée attoseconde. Mais comme nous l'avons vu, la largeur spectrale est une condition nécessaire mais pas suffisante à l'obtention d'impulsions ultrabrèves, l'autre paramètre déterminant étant la phase spectrale.

En observant la Fig. 1.6, on constate que des trajectoires correspondant à des énergies cinétiques finales différentes ont nécessairement des instants de recombinaison différents. Des photons de longueurs d'onde différentes sont donc émis à des instants différents, l'émission XUV comporte une dérive de fréquence. En particulier, on va pouvoir distinguer deux familles de trajectoires :

– Des trajectoires dites "courtes" représentées en trait continu coloré sur la Fig. 1.6. Avec ces trajectoires,

les photons rouges de basse énergie, émis à l'issue des trajectoires rouges, sont émis avant les photons bleus de plus haute énergie, la dérive de fréquence est positive.

– Des trajectoires dites "longues" représentées en trait pointillé. Pour ces trajectoires, la dynamique est inversée, ce qui provoque une dérive de fréquence négative du rayonnement.

Cette dérive de fréquence est inévitable puisqu'elle est intrinsèque au processus de génération. **Ce phénomène est généralement nommé l'atto-chirp.** Et ses conséquences sur le profil temporel de l'émission vont être importantes. Alors que l'étude du spectre XUV avait prédit l'émission d'une impulsion tous les demi cycles optiques infrarouges, l'existence de ces deux familles de trajectoires va aboutir à l'émission de deux impulsions attosecondes inversement chirpées par demi cycle optique [Antoine P. et al., 1996]. Cependant, il est possible de sélectionner uniquement la contribution d'une de ces familles en jouant sur les conditions de génération, et expérimentalement les trajectoires courtes sont toujours celles sélectionnées. A partir de maintenant, nous n'allons donc considérer que l'influence des trajectoires courtes. A l'aide du modèle semi-classique, il est possible d'exprimer la dispersion des retards de groupe des trajectoires courtes en fonction d'autres paramètres :

$$GDD \propto \frac{\omega_{IR}}{I_{IR}} \tag{1.37}$$

On constate alors que la GDD sera d'autant plus grande que :

– L'intensité laser I_{IR} sera faible,

– La longueur d'onde IR est courte.

En particulier, considérons comme précédemment un champ IR à $800\,nm$ d'intensité $10^{14}\,W/cm^2$ focalisé dans un jet de néon, la GDD correspondante sera alors de $20981\,as^2/rad$. Pour évaluer l'impact de cette dispersion des retards de groupe sur la durée de l'impulsion XUV finale, considérons à nouveau un spectre XUV gaussien d'écart-type $20\,eV$. En utilisant la relation (4.12), on trouve que la durée RMS de l'impulsion devient :

$$\Delta t = \sqrt{\frac{1}{4\Delta\omega^2} + \Delta\omega^2 \cdot GDD^2} = 638\,as \ (1499\,as\,\text{FWHM}) \tag{1.38}$$

L'atto-chirp peut donc provoquer un étirement considérable des impulsions attosecondes. De plus, nous avons vu que la région spectrale de la coupure ne pouvait être décrite de manière classique. Le modèle de Lewenstein prédisait que si effectivement les harmoniques du plateau étaient linéairement désynchronisées, celles de la coupure devaient être parfaitement synchronisées, voir la Fig. 1.8. Autrement dit, la GDD devait devenir brusquement nulle dans la coupure. Ce phénomène fut confirmé expérimentalement en 2004 [Mairesse Y. et al., 2004].

Les impulsions attosecondes émises par génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz possèdent des propriétés temporelles complexes. Il a donc fallu développer des techniques expérimentales puissantes pour les caractériser.

1.2.2 Caractérisation d'impulsions attosecondes

La caractérisation d'une impulsion consiste en la détermination expérimentale de ses différentes propriétés, en particulier de sa forme temporelle et de sa durée. Mais plus les impulsions manipulées sont brèves, moins il devient évident de les caractériser directement dans le domaine temporel. Ainsi, s'il est possible de mesurer l'évolution dans le temps d'un signal nanoseconde ou picoseconde à l'aide de photodiodes rapides, ou de caméras à balayages de fentes, les impulsions femtosecondes ne sont jamais observées dans le domaine temporel, à part pour les plus longues d'entre elles. On les caractérise dans le domaine spectral en mesurant leurs spectre et phase spectrale pour pouvoir les reconstruire dans le domaine temporel par transformée de Fourier. Mais si la mesure du spectre d'une impulsion pose peu de problèmes, celle de la phase spectrale est délicate. C'est pourquoi, la solution systématiquement adoptée consiste à trouver un moyen d'encoder la phase spectrale dans un spectre, que l'on peut, lui, facilement mesurer. A l'arrivée, les seules différences d'une technique de caractérisation à l'autre seront le moyen mis en oeuvre pour encoder la phase spectrale dans un spectre et le traitement appliqué sur la mesure pour en extraire la phase spectrale.

Le cas des impulsions attosecondes en est l'exemple parfait. Dés le début des années 90, il était prouvé théoriquement [Farkas G. and Tóth C, 1992, Harris S. E. et al., 1993, Antoine P. et al., 1996] que la génération d'harmoniques d'ordre élevé s'accompagnait de l'émission d'impulsions attosecondes. Mais il n'existait alors aucune technique permettant de mesurer la phase spectrale des harmoniques, et seul le spectre pouvait être mesuré à l'époque. Il aura fallu attendre 2001 [Hentschel M. et al., 2001, Paul P. M. et al., 2001] pour mesurer les premières impulsions attosecondes, et 2003 pour prouver l'existence de l'atto-chirp [Mairesse Y. et al., 2003]. La solution qui fut trouvée pour mesurer ces impulsions est basée sur le phénomène de photoionisation. Lors de la focalisation simultanée d'une impulsion XUV attoseconde et d'une impulsion IR femtoseconde dans un gaz rare, des photoélectrons sont émis. La mesure de leur distribution d'énergie cinétique fournit un spectre de photoélectrons. L'analyse de l'évolution de tels spectres en fonction d'un retard temporel imposé à l'impulsion IR par rapport l'impulsion XUV permet alors de retrouver les propriétés de l'impulsion attoseconde, et notamment sa phase spectrale.

Enfin, il existe une tradition selon laquelle toute technique de caractérisation d'impulsions ultrabrèves doit porter le nom d'un animal. FROG pour *Frequency-Resolved Optical Gating* [Trebino R. and Kane D. J., 1993], SPIDER pour *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction* [Iaconis C. and Walmsley I. A., 1998], ou encore SEA TADPOLE pour *Spatially Encoded Arrangment for Temporal Analysis by Dispersing a Pair Of Light E-beams* [Bowlan P. et al., 2008b] en sont quelques exemples. Les techniques de caractérisation d'impulsions attosecondes n'échappèrent pas à la règle, les deux techniques majoritairement utilisées s'appelant RABITT pour *Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photons Transitions* [Muller H. G., 2002], et CRAB pour *Complete Reconstruction of Attosecond Burst* [Mairesse Y. and Quéré F., 2005].

Notons que nous ne traitons pas ici le cas des mesures d'impulsions attosecondes par autocorrelation [Tzallas P. et al., 2003, Midorikawa K. et al., 2008]. Ces techniques ne donnent qu'une information partielle sur les

impulsions et ne permettent pas de mesurer leur phase spectrale. Enfin, notons que la littérature utilise aussi bien l'orthographe RABITT [Ko D. H. et al., 2010, Boutu W. et al., 2008] que RABBITT [Muller H. G., 2002]. De manière totalement arbitraire, nous choisissons d'utiliser désormais l'orthographe RABITT.

Ionisation d'un atome par un champ XUV en présence d'un champ IR

Comme nous l'avons dit, la photoionisation d'un gaz par une impulsion attoseconde est le phénomène central des techniques de caractérisation. Pour décrire ce phénomène, un moyen efficace consiste à effectuer un traitement quantique du problème [Dykhne A. M. and Yudin G. L., 1977]. Si l'on ionise un gaz à l'aide d'un champ électrique XUV $\mathbf{E}_{XUV}$, l'amplitude $a_0(W)$ de la transition d'un électron de son état fondamental vers l'état $|\mathbf{v}\rangle$ du continuum, c'est à dire l'amplitude de probabilité qu'un électron soit libéré avec une vitesse $\mathbf{v}$ à l'issue de l'ionisation, est donnée par l'équation (1.39) :

$$\begin{aligned} a_0(W) &= -i \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{d_v} \mathbf{E}_{XUV}(t)\, e^{iI_p t/\hbar} \cdot e^{iWt/\hbar} dt \\ &= -iTF\left[\mathbf{d_v} \mathbf{E}_{XUV}(t)\, e^{iI_p t/\hbar}\right] \\ &= -i\mathbf{d_v} \left|\widetilde{\mathbf{E}}_{XUV}(W+I_p)\right| \cdot e^{i\varphi_{XUV}(W+I_p)} \end{aligned} \tag{1.39}$$

Où $W = 1/2 m_e \mathbf{v}^2$ représente l'énergie cinétique de l'électron, I_p le potentiel d'ionisation du gaz utilisé, $\mathbf{d_v}$ l'élément de la matrice de transition dipolaire de l'état fondamental à l'état $|\mathbf{v}\rangle$, et $\varphi_{XUV}(W)$ la phase spectrale du champ XUV. Cette relation est établie sous l'approximation d'un seul électron actif et dans le cadre de la théorie des perturbations au premier ordre.

Cette équation montre que le champ XUV dans le domaine temporel et l'amplitude de probabilité $a_0(W)$ sont reliés par une transformée de Fourier. Si bien qu'à un décalage et un déphasage près, le paquet d'onde électronique $\mathbf{d_v}\widetilde{\mathbf{E}}_{XUV}$ issu de l'ionisation a **les mêmes propriétés en amplitude et en phase** que l'impulsion attoseconde initiale. En particulier, le spectre de photoélectrons $\mathcal{S}_0(W)$, qui est la grandeur expérimentalement accessible, est une réplique exacte [3] du spectre de photons XUV $S_0(\omega)$ de l'impulsion :

$$\mathcal{S}_0(W) = \left|\mathbf{d_v}\widetilde{\mathbf{E}}_{XUV}(W+I_p)\right|^2 \tag{1.40}$$

Ce résultat peut également s'interpréter de manière classique : considérons un électron dans son niveau fondamental absorbant un photon XUV d'énergie supérieure à son énergie d'ionisation I_p. L'électron est ainsi libéré avec une énergie cinétique égale à l'énergie du photon XUV incident, à laquelle il faut soustraire la quantité d'énergie fournie pour l'ionisation. Plus le photon XUV incident est énergétique, plus l'énergie cinétique de l'électron libéré sera importante. Si bien qu'au final, **mesurer le spectre d'une impulsion**

3. En toute rigueur, l'élément $\mathbf{d_v}$ peut également dépendre de W, il faut alors corriger les spectres mesurés par la section efficace d'ionisation du gaz, qui est connue.

attoseconde revient à **mesurer la distribution d'énergie cinétique des électrons** issue de l'ionisation d'un gaz par l'impulsion. Ce spectre d'électrons sera simplement décalé d'une énergie I_p du fait de l'ionisation.

Mais comme nous l'avons souligné, le point délicat est de mesurer la phase spectrale de l'impulsion attoseconde. Heureusement, celle-ci n'a pas été perdue lors de l'ionisation puisque d'après l'équation (1.39), elle a été transférée au paquet d'électrons. Pour en extraire la phase spectrale, on ajoute lors de la photoionisation du gaz un champ IR dit d'habillage que l'on considèrera linéairement polarisé et de la forme $E_{IR} \cdot cos\left(\omega_{IR} t\right)$. Plus précisément, on peut montrer, dans l'approximation du champ fort et dans l'approximation de l'enveloppe lentement variable [Itatani J. et al., 2002, Kitzler M. et al., 2002, Quéré F. et al., 2003], que le spectre de photoélectrons est donné dans ce cas par l'équation (1.41) :

$$\mathcal{S}\left(W,\tau\right) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_{XUV}\left(t\right) e^{i\psi(t-\tau)} e^{iI_p t/\hbar} \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 \tag{1.41}$$

Où τ représente le retard temporel appliqué au champ IR par rapport au champ XUV, et $\mathbf{p}\left(t\right)$ la quantité de mouvement instantanée de l'électron dans le continuum en présence du champ IR. Enfin $\psi\left(t\right)$, que nous appellerons la porte de phase, est donnée par les équations (1.42) à (1.45) :

$$\psi\left(t\right) = \psi_1 + \psi_2 + \psi_3 \tag{1.42}$$

$$\psi_1\left(t\right) = -\frac{1}{\hbar} \int_t^{+\infty} U_p\left(t\right) dt \tag{1.43}$$

$$\psi_2\left(W,t\right) = \frac{\sqrt{8WU_p\left(t\right)}}{\hbar\omega_{IR}} cos\theta \cdot cos\omega_{IR} t \tag{1.44}$$

$$\psi_3\left(t\right) = -\frac{U_p\left(t\right)}{2\hbar\omega_{IR}} \cdot sin2\omega_{IR} t \tag{1.45}$$

Dans ces équations, U_p représente l'énergie pondéromotrice définie par l'équation (1.32), et θ correspond à l'angle entre le vecteur vitesse $\mathbf{v}$ et la polarisation du champ IR. Plus précisément, lors de l'ionisation, sauf conditions expérimentales particulières, les photoélectrons peuvent être émis dans toutes les directions, si bien que θ peut prendre toutes les valeurs possibles. Cependant, il sera expérimentalement possible de ne choisir d'observer que des électrons correspondant à un angle θ donné. Dans toute la suite, nous considérerons que θ vaut 0°, c'est à dire que nous ne considérerons que les électrons émis parallèlement à la polarisation du champ IR.

En comparant les équations (1.40) et (1.41), il ressort que la conséquence principale de l'ajout d'un champ IR est d'induire un déphasage $\psi\left(t\right)$ sur le paquet d'onde électronique qui va dépendre du délai τ entre les deux impulsions. Les modifications du spectre de photoélectrons qui en résulteront, vont dépendre à la fois de la forme de la porte de phase et de la phase spectrale du paquet d'onde électronique. En d'autres termes, pour

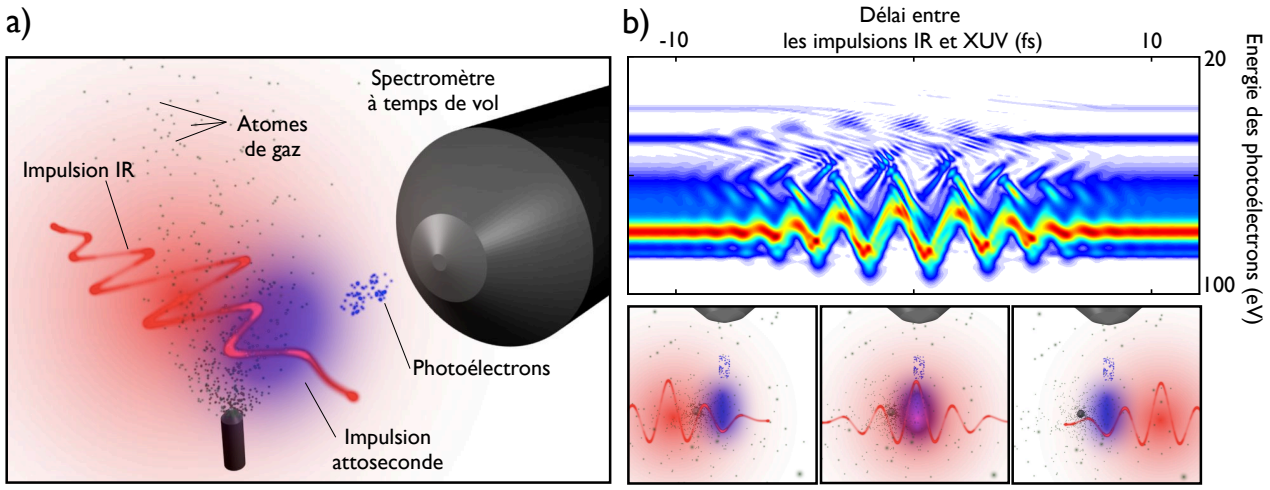


FIGURE 1.9 – **Principe général de la caractérisation d'une impulsion attoseconde.** a) On procède par la mesure de spectres de photoélectrons en fonction du retard τ avec le champ d'habillage IR. b) Pour des retard τ grands devant la durée de l'impulsion IR, les spectres de photoélectrons représentent directement le spectre de l'impulsion attoseconde. Pour les délais intermédiaires, les deux impulsions se recouvrent et les spectres varient significativement, ces variations étant représentatives de la phase spectrale de l'impulsion attoseconde.

des retards τ faibles devant la durée de l'impulsion IR, les deux impulsions vont se recouvrir, et le champ IR va inscrire la phase spectrale dans les spectres $\mathcal{S}(W,\tau)$, ce point est illustré sur la Fig. 1.9. Pour des retard τ très importants, les impulsions ne se recouvriront plus. L'influence du champ IR étant alors négligeable, on retrouvera alors le cas de l'équation (1.40), et les spectres de photoélectrons représenteront directement le spectre de l'impulsion attoseconde. Ce cas correspond au cas 1 de la Fig. 1.10. Toutes les techniques actuelles de caractérisation complètes d'impulsions attosecondes sont donc basées sur la mesure de ces spectres $\mathcal{S}(W,\tau)$. Il s'agit ensuite de déduire la phase spectrale de l'impulsion à partir de leur évolution en fonction de τ. Avant d'en venir aux deux techniques les plus courantes que sont RABITT et CRAB, nous allons d'abord considérer un premier exemple : la caméra à balayage de fente attoseconde [Itatani J. et al., 2002, Kienberger R. et al., 2004]. En effet, ce premier cas illustre particulièrement bien la manière dont la phase spectrale est encodée dans les spectres de photoélectrons.

La caméra à balayage de fente attoseconde

Considérons un champ IR d'habillage de longueur d'onde $800\,nm$ et d'intensité $10\,TW/cm^2$. L'énergie pondéromotrice U_p induite par le champ laser vaut alors $0.6\,eV$, ce qui est très faible comparé aux énergies cinétiques W des photoélectrons qui peuvent être proches de la centaine d'électrons-volts. Travailler dans un tel régime va avoir des conséquences sur la porte de phase. En effet, le terme ψ_1 varie avec l'enveloppe de l'impulsion d'habillage, si bien que seuls les termes ψ_2 et ψ_3, qui oscillent respectivement à ω_{IR} et $2\omega_{IR}$, auront une influence significative sur une période du champ IR. Cependant, le calcul précédent nous montre

que, dans les conditions choisies, la quantité $\sqrt{8WU_p}$ sera très grande devant $U_p/2$ et que ψ_3 aura une influence négligeable sur la phase finale. Enfin, si l'on considère que le spectre de photoélectrons sans champ IR $\mathcal{S}_0(W)$ est centré en W_0 et que sa largeur caractéristique ΔW est faible devant W_0, on va pouvoir considérer que la porte de phase est indépendante de W. Dans ces conditions, la porte de phase $\psi(t)$, donnée par l'équation (1.46), varie sinusoïdalement à la même fréquence que le champ IR :

$$\psi(t) = \frac{\sqrt{8W_0U_p}}{\hbar\omega_{IR}} \cdot cos\omega_{IR}t \tag{1.46}$$

Supposons maintenant que l'impulsion attoseconde soit très brève devant la période du champ d'habillage, de sorte que le paquet d'électrons de même durée que l'impulsion ne verra que l'évolution locale de la porte de phase. Dans une telle situation, deux cas vont s'avérer intéressants. Soit l'impulsion est synchronisée avec un zéro du champ électrique IR, ce qui se produit deux fois par période pour les délais $\tau_{-\pi/2}$ et $\tau_{\pi/2}$, soit l'impulsion est synchronisée avec un maximum (délai τ_0) ou un minimum (délai τ_π) du champ IR.

Dans le cas du délai $\tau_{-\pi/2}$, un développement limité au premier ordre du cosinus nous montre que la porte de phase vue par le paquet d'onde électronique diminue linéairement dans le temps (équation (1.47)). Or un déphasage linéaire dans le domaine temporel implique un décalage dans le domaine spectral. En effet, en appliquant l'équation (1.41), on obtient l'équation (1.48) :

$$\psi(t) \approx -\sqrt{8W_0U_p}/\hbar \cdot t \tag{1.47}$$

$$\mathcal{S}\left(W, \tau_{-\pi/2}\right) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_{XUV}\left(t - \tau_{-\pi/2}\right) e^{i\left(I_p - \sqrt{8W_0U_p}\right)t/\hbar} \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 = \mathcal{S}_0\left(W - \sqrt{8W_0U_p}\right) \tag{1.48}$$

Lorsque le retard vaut $\tau_{-\pi/2}$, le spectre de photoélectrons correspond simplement au spectre sans champ IR $\mathcal{S}_0(W)$ décalé vers les basses énergies cinétiques d'une quantité $\sqrt{8W_0U_p}$, comme le montre le cas 2 de la Fig. 1.10. On peut faire une analyse similaire pour le délai $\tau_{\pi/2}$, la porte de phase vue par le paquet d'électrons sera alors linéairement croissante et le spectre $\mathcal{S}\left(W, \tau_{\pi/2}\right)$ serait décalé vers les hautes énergies d'une quantité $\sqrt{8W_0U_p}$. D'un point de vue plus classique, on peut dire que les électrons libérés lors de l'ionisation subiront une force coulombienne induite par le champ électrique IR. En fonction du signe de ce dernier, cette force les fera accélérer ou décélérer, et augmentera ou diminuera leur énergie cinétique d'une même quantité pour tous les électrons dans le cas des délais $\tau_{\pm\pi/2}$.

Cependant, cette modification du spectre d'électrons ne dépend en rien de la phase spectrale de l'impulsion attoseconde. Ce n'est donc pas à ces délais que l'influence de cette dernière se fera sentir. Intéressons nous donc plutôt au spectre obtenu pour le retard τ_0. A ce délai précis, le cosinus, *i. e.* le champ IR, est maximal, et la porte de phase est localement parabolique convexe, comme le montre l'équation (1.49) :

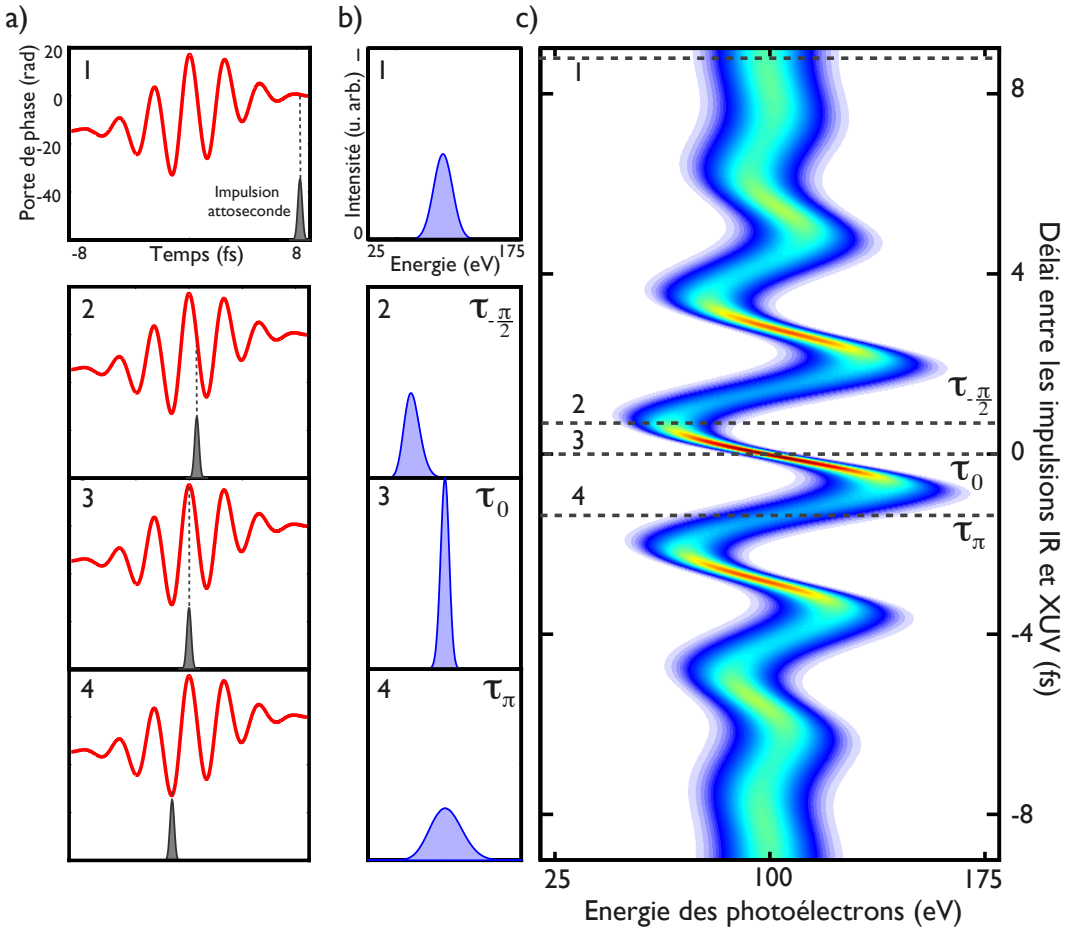


FIGURE 1.10 – **Principe de la caméra à balayage de fente attoseconde.** L'impulsion attoseconde possède un spectre XUV gaussien centré à $121\,eV$ de largeur à mi-hauteur $23\,eV$, et une GDD de $-5000\,as^2/rad$. L'impulsion IR gaussienne possède une intensité de $10\,TW/cm^2$ et une durée à mi-hauteur de $3.5\,fs$. On suppose que la mesure est effectuée dans le néon. a) Synchronisation de l'impulsion attoseconde avec la porte de phase. b) Déformation du spectre de photoélectrons induite par le champ IR. c) Allure de la trace de photoélectrons complète.

$$\psi(t) \approx \frac{\sqrt{8W_0U_p}}{\hbar\omega_{IR}} \cdot \left(1 - \frac{\omega_{IR}^2 t^2}{2}\right) \tag{1.49}$$

A l'inverse, pour le délai τ_π, la phase locale sera cette fois parabolique concave. C'est maintenant qu'il nous faut tenir compte de la phase de l'impulsion attoseconde. En effet, considérons que celle-ci soit limitée par Fourier. Le paquet d'onde électronique le sera également en l'absence du champ d'habillage, mais la porte de phase va lui ajouter une phase temporelle supplémentaire parabolique. Or une phase quadratique dans le domaine temporel provoque un élargissement du spectre dans le domaine de Fourier. Cette remarque étant vraie quelque soit le signe de la phase, **si l'impulsion attoseconde est limitée par Fourier, les spectres de photoélectrons seront élargis de la même quantité pour les délais τ_0 et τ_π.**

Considérons cette fois que l'impulsion soit chirpée et que sa phase temporelle soit parabolique concave. Quant au paquet d'électron, pour le retard τ_0, la modulation de phase $\psi(t)$ parabolique convexe va s'ajouter à la phase de l'impulsion, compenser la dérive de fréquence du paquet d'électrons, et comprimer le spectre de photoélectrons. A l'inverse, pour le délai τ_π, les dérives de fréquence de l'impulsion attoseconde et de la porte de phase seront de même signe, la dérive de fréquence sera accentuée, ce qui provoquera une dilatation du spectre de photoélectrons. En résumé, **si l'impulsion attoseconde est chirpée, les spectres de photoélectrons pour les délais τ_0 et τ_π auront des largeurs distinctes**, l'un étant dilaté l'autre comprimé dépendant du signe de la dérive de fréquence. Cet effet apparaît clairement dans les cas 3 et 4 de la Fig. 1.10.

Cet exemple illustre le fait que l'évolution des spectres de photoélectrons est bel et bien influencée par la phase spectrale de l'impulsion attoseconde, et que cette dernière peut en être extraite si l'influence de la porte de phase est connue. Pour utiliser cette technique, il faut travailler avec des intensités laser qui provoquent un décalage en énergie $\sqrt{8W_0U_p}$ des spectres significatif, dans un régime dit de balayage. C'est pourquoi cette technique fut appellée la "caméra à balayage de fente attoseconde". Elle fut proposée en 2002 [Itatani J. et al., 2002], et implémentée avec succès pour la première fois en 2004 [Kienberger R. et al., 2004] pour caractériser des impulsions limitées par Fourier. Elle n'est cependant plus vraiment utilisée en l'état, puisqu'on lui préfère en général la technique CRAB qui, comme nous le verrons, offre une approche plus générale et permet d'extraire la phase spectrale en nécessitant beaucoup moins d'approximations.

Dans l'exemple précédent, nous avons considéré que l'impulsion à caractériser était isolée, alors que la génération d'harmoniques d'ordre élevé se prête plus à la génération de trains d'impulsions attosecondes. Caractériser un train d'impulsions ou une impulsion isolée par des mesures de spectres de photoélectrons diffère peu dans le principe. Cependant, il existe un régime d'intensité laser dans lequel l'extraction de la phase spectrale d'un train d'impulsions devient particulièrement aisée.

La méthode RABITT

Le régime de balayage nécessitait une intensité laser importante supérieure au térawatt par centimètre carré. Mais si l'on se place dans le cas d'une intensité infrarouge de l'ordre de $10^{10}\,W/cm^2$, l'énergie pondéromotrice des photoélectrons induite par un champ IR à $800\,nm$ sera de $6\cdot10^{-4}eV$. De plus, si l'on calcule le décalage en énergie $\sqrt{8W_0U_p}$ induit précédemment pour les instants $\tau_{\pm\pi/2}$, on trouve que pour des photoélectrons d'une énergie W_0 de $100\,eV$, le décalage sera inférieur à $0.24\,eV$. Cette énergie est très faible comparée à l'énergie d'un photon IR, c'est à dire à l'énergie que gagnerait un photoélectron ayant absorbé un photon infrarouge, celle-ci valant $1.55\,eV$ pour un photon à $800\,nm$. La conséquence de ce petit calcul est simple : habiller une impulsion attoseconde par un champ IR aussi peu intense va favoriser un régime de transition à deux couleurs XUV et IR plutôt qu'un régime de balayage. En particulier, utiliser l'écriture précédente de la porte de phase pour expliquer les modifications induites par le champ d'habillage sur les spectres de photoélectrons va s'avérer assez peu adapté. Par contre, il sera plus pertinent de raisonner sur un diagramme de niveau d'énergie, voir la Fig. 1.11 a).

Comme nous l'avons vu, en l'absence d'un champ d'habillage, le spectre de photoélectrons est une copie du spectre de photons. Dans le cas d'un spectre XUV composé d'harmoniques impaires d'énergies $(2q-1)\,\hbar\omega_{IR}$, le spectre de photoélectrons sera également composé d'harmoniques impaires d'énergie $(2q-1)\,\hbar\omega_{IR} - I_p$. En terme de transition, les électrons effectueront depuis le niveau fondamental des transitions à un photon XUV et seront libérés dans le continuum avec des énergies cinétiques discrétisées du fait du spectre harmonique.

Si l'on ajoute un champ d'habillage, de nouvelles transitions vont apparaitre. En particulier, on peut montrer que, si le champ IR est suffisamment peu intense, les transitions les plus probables seront celles à deux photons XUV±IR, c'est à dire absorption d'un photon XUV puis absorption d'un photon IR, et absorption d'un photon XUV puis émission d'un photon IR. Dans ces conditions, si l'on considère que le champ d'habillage est de même longueur d'onde que l'impulsion IR ayant généré les harmoniques, un phénomène remarquable apparaît :

- supposons qu'un électron absorbe un photon de l'harmonique $(2q-1)$ puis un photon IR d'énergie $\hbar\omega_{IR}$, son énergie finale sera donc égale à $2q\hbar\omega_{IR} - I_p$, cette transition correspond au chemin quantique $(-)$ sur la Fig. 1.11 a).
- supposons maintenant qu'un électron absorbe un photon de l'harmonique $(2q+1)$ puis réémette un photon IR, son énergie finale sera donc égale à $(2q+1)\,\hbar\omega_{IR} - \hbar\omega_{IR} - I_p$. Dans ce cas, l'électron aura emprunté le chemin quantique $(+)$ sur la Fig. 1.11 a).

Il existe donc deux transitions à deux photons deux couleurs possibles pour rejoindre un même niveau d'énergie $2q\hbar\omega_{IR} - I_p$ situé à l'emplacement des harmoniques paires manquantes dans le spectre de photoélectrons. Ces niveaux d'énergie qui n'existaient pas en l'absence de champ IR sont appelés des pics satellites ou *sideband* en anglais. Plus précisément, si $I_{2q\pm1}$ et $\phi_{2q\pm1}$ représentent respectivement les intensités et les phases harmoniques, et I_{IR} et ϕ_{IR} les intensité et phase du champ IR, alors les photoélectrons ayant suivi le chemin quantique $(-)$ accumuleront une phase $\phi_{2q-1} + \phi_{IR}$ alors que ceux ayant suivi le chemin quantique $(+)$ posséderont une phase $\phi_{2q+1} - \phi_{IR}$. En particulier, les amplitudes de ces deux transitions sont données par les équations (1.50) et (1.51) :

$$a_{2q}^{(-)} \propto M_{2q}^{(-)} \cdot \sqrt{I_{2q-1}} e^{i\phi_{2q-1}} \cdot \sqrt{I_{IR}} e^{i\phi_{IR}} \tag{1.50}$$

$$a_{2q}^{(+)} \propto M_{2q}^{(+)} \cdot \sqrt{I_{2q+1}} e^{i\phi_{2q+1}} \cdot \sqrt{I_{IR}} e^{-i\phi_{IR}} \tag{1.51}$$

Dans ces équations, $M_{2q}^{(\pm)}$ correspondent à des facteurs qui dépendent uniquement de l'atome de gaz utilisé pour la mesure. Dans la suite, nous considérerons que les modules de ces deux amplitudes sont égaux pour tous les ordres harmoniques, si bien que seules les phases $\phi_{2q}^{(\pm)}$ des éléments $M_{2q}^{(\pm)}$, que nous appellerons phases atomiques, subsisteront. La probabilité $\mathcal{S}_{2q}$ de la transition d'un électron de son niveau fondamental au pic satellite d'énergie $2q\hbar\omega_{IR} - I_p$ correspond donc au module carré de la somme des amplitudes des deux chemins

quantiques, et est donnée par l'équation (1.52) :

$$\begin{aligned}\mathcal{S}_{2q} &= \left|a_{2q}^{(+)} + a_{2q}^{(-)}\right|^2 \\ &= \left|a_{2q}^{(+)}\right|^2 + \left|a_{2q}^{(-)}\right|^2 + 2\left|a_{2q}^{(+)}\right|\left|a_{2q}^{(-)}\right| \cdot \cos\left(\phi_{2q-1} - \phi_{2q+1} + 2\phi_{IR} + \phi_{at}^{(-)} - \phi_{at}^{(+)}\right)\end{aligned} \tag{1.52}$$

Comme nous l'avons vu précédemment, pour extraire la phase spectrale d'un spectre de photoélectrons, il faut mesurer l'évolution de celui-ci en fonction du retard τ entre le champ XUV et le champ IR. Développons l'expression des phases IR et XUV pour faire apparaître ce délai τ :

$$\phi_{2q\pm1}(t-\tau) = (2q \pm 1)\,\omega_{IR}(t-\tau) + \varphi_{2q\pm1} \tag{1.53}$$

$$\phi_{IR}(t) = \omega_{IR}t + \varphi_{IR} \tag{1.54}$$

Où $\varphi_{2q\pm1}$ et φ_{IR} représentent respectivement les phases absolues des harmoniques et de l'impulsion IR.

En utilisant ces équations, en appelant $\Delta\phi_{2q}^{at}$ la variation $\phi_{at}^{(-)} - \phi_{at}^{(+)}$ des phases atomiques et en définissant un facteur de contraste C_{2q} des oscillations, on obtient l'équation (1.55) :

$$\mathcal{S}_{2q}(\tau) \propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left(2\omega_{IR}\tau + \varphi_{2q-1} - \varphi_{2q+1} + 2\varphi_{IR} + \Delta\phi_{2q}^{at}\right) \tag{1.55}$$

Cette équation fait apparaître un phénomène d'interférences entre les deux chemins quantiques. Mais le point véritablement remarquable est que la phase de ces oscillations dépend de la quantité $\varphi_{2q+1} - \varphi_{2q-1}$, c'est à dire de la variation de la phase absolue entre les deux harmoniques. Or en divisant ce déphasage par l'écart en fréquence entre les deux harmoniques, on obtient en première approximation le retard de groupe à la fréquence $2q\omega_{IR}$:

$$GD_{2q} = \frac{d\varphi}{d\omega}(2q\omega_{IR}) \approx \frac{\varphi_{2q+1} - \varphi_{2q-1}}{2\omega_{IR}} \tag{1.56}$$

En conséquence, **mesurer la synchronisation relative des pics satellites oscillants** les uns par rapport aux autres revient à **mesurer le retard de groupe des impulsions attosecondes du train**. Cette méthode qui fut utilisée pour caractériser en 2001 le premier train d'impulsions attosecondes s'appelle la technique RABITT. En toute rigueur les phases atomiques $\Delta\phi_{2q}^{at}$ varient également d'un pic satellite à l'autre, ce qui peut fausser la mesure du retard de groupe. Cependant, ces déphasages sont en général faibles, et sont de toute façon calculables [Paul P. M. et al., 2001] ce qui permet d'effectuer une correction sur les retards de groupe mesurés.

Maintenant que nous avons étudié deux techniques de caractérisation, nous pouvons remarquer des similitudes dans les deux approches. Dans le cas de la caméra à balayage de fente, il fallait habiller par un champ IR très intense une impulsion isolée et courte devant la période du champ infrarouge. Dans le cas du RABITT, on considérait un train d'impulsions attosecondes dont le spectre était composé uniquement d'harmoniques

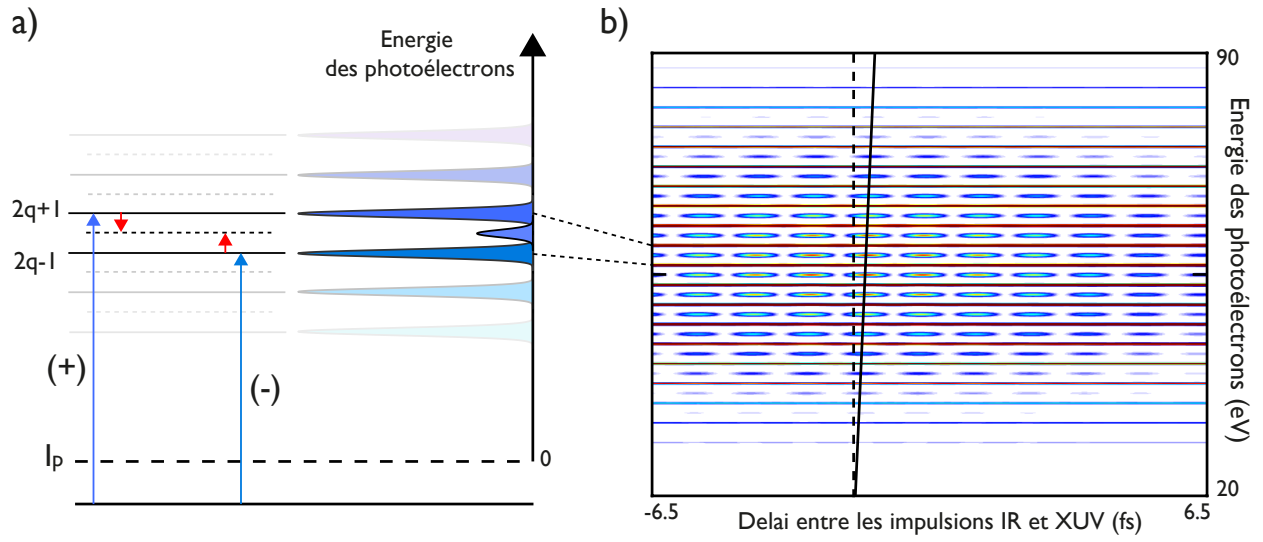


FIGURE 1.11 – **Principe de la caractérisation d'un train d'impulsions attosecondes par la technique RABITT.** a) Les transitions à deux-photons deux-couleurs permettent aux photoélectrons d'accéder à des niveaux d'énergies intermédiaires entre les harmoniques. b) L'étude de la synchronisation de ces pics satellites entre eux donnent directement le profil du retard de groupe des impulsions attosecondes.

impaires et qu'on habillait par un champ IR de très faible intensité. Nous allons maintenant voir une troisième technique permettant de reconstruire des impulsions attosecondes sans avoir besoin de se placer dans ces conditions particulières précédentes.

La méthode CRAB

La technique CRAB est à la fois très simple à mettre en oeuvre et particulièrement puissante puisqu'elle adopte une approche beaucoup plus générale. On peut réécrire l'équation (1.41) en nommant $P(t)$ le paquet d'onde électronique $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}\mathbf{E}_{XUV}(t)$ et $G(t)$ la fonction $e^{i\psi(t-\tau)}e^{iI_p t/\hbar}$, on obtient l'équation (1.57) :

$$\mathcal{S}(W,\tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} P(t-\tau) \cdot G(t) \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 \tag{1.57}$$

La force de la technique CRAB est de voir la fonction $\mathcal{S}(W,\tau)$ non pas comme une succession de spectres de photoélectrons, mais comme **un spectrogramme**, c'est à dire l'évolution du spectre d'une tranche temporelle du champ $P(t)$, découpé par une porte temporelle $G(t)$. La question est alors de savoir si la connaissance d'un spectrogramme est suffisante pour retrouver l'impulsion qui l'a généré, et si oui, comment. Il se trouve que ces questions se sont déjà posées dans les années 80 dans la communauté des impulsions visibles et infrarouges femtosecondes. Et il est apparu qu'un spectrogramme contenait effectivement toutes les informations nécessaires pour reconstruire l'impulsion $P(t)$ et la porte $G(t)$, et qu'il était possible d'extraire celles-ci en traitant le spectrogramme informatiquement à l'aide d'un algorithme itératif. Ceci donna naissance au début des années 90 à la technique FROG [Trebino R. and Kane D. J., 1993], première méthode de caractérisation

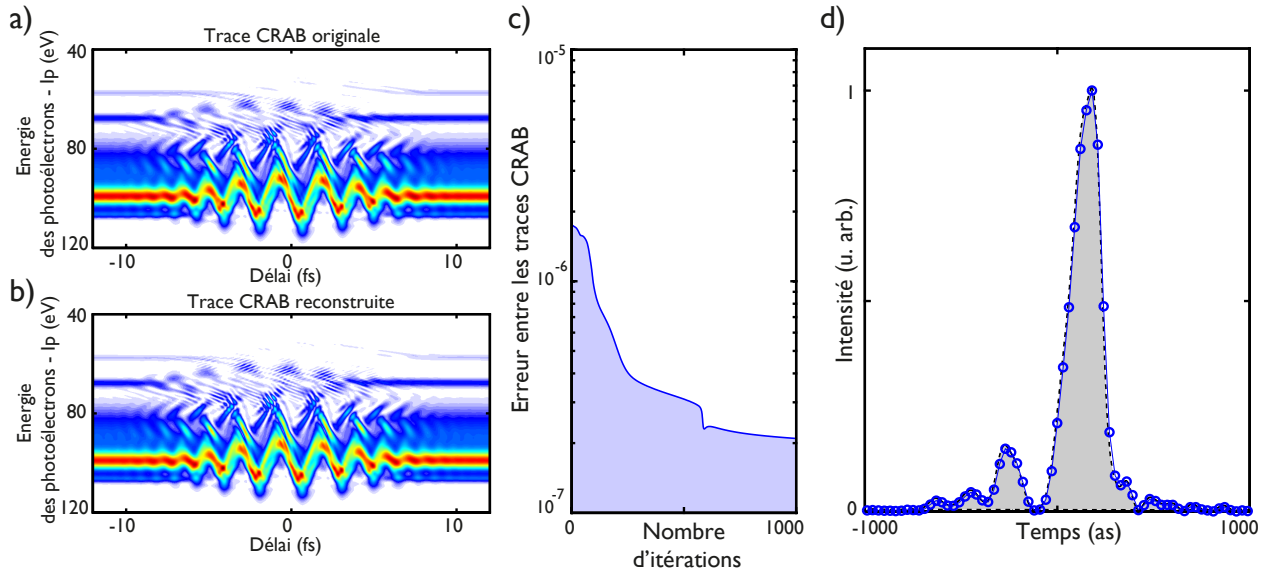


FIGURE 1.12 – **Caractérisation d'une impulsion attoseconde arbitraire par la technique CRAB.** a) La trace de photoélectrons complète est mesurée. b) L'algorithme minimise l'écart entre la trace CRAB originale et une trace reconstruire générée à partir d'une impulsion attoseconde connue. c) Chaque itération de l'algorithme diminue l'erreur entre les deux traces. d) Lorsque l'erreur est suffisamment faible, on obtient l'impulsion attoseconde associée aux traces CRAB originale (courbe grise) et reconstruite (points bleus).

d'impulsions femtosecondes arbitraires.

Pour reconstruire une impulsion par la technique FROG, il suffit de mesurer le spectrogramme de l'impulsion. Plus précisément, il faut trouver un processus physique capable de générer un signal correspondant au recouvrement de l'impulsion et de la porte. L'implémentation la plus simple est celle du SHG FROG [Paye J. et al., 1993] pour *Second Harmonic Generation Frequency Resolved Optical Gating*. On montre alors que le signal de seconde harmonique d'une impulsion de champ électrique $E(t)$ est proportionnel au produit $E(t) \cdot E(t-\tau)$. Le spectre $S_{SHG}(\omega,\tau)$ de ce signal est alors donné par l'équation (1.58). Dans ce cas, la porte temporelle correspond à l'impulsion elle-même.

$$S_{SHG}(\omega,\tau) = |TF[E(t-\tau)\cdot E(t)]|^2 = \left|\int_{-\infty}^{+\infty} E(t-\tau)\cdot E(t)\cdot e^{i\omega t}dt\right|^2 \tag{1.58}$$

Le cas de la technique CRAB est légèrement plus complexe. On ne peut pas utiliser de cristal non linéaire dans le domaine XUV, mais l'équation (1.57) montre que nous n'en avons pas besoin. En effet, il apparaît que nous pouvons très bien remplacer le phénomène non linéaire par la photoionisation d'un gaz, le signal de seconde harmonique par un paquet d'onde électronique et l'impulsion servant de porte temporelle par la porte de phase induite par l'impulsion infrarouge d'habillage. La conséquence est simple et puissante : **il suffit d'appliquer l'algorithme itératif du FROG sur les spectres de photoélectrons $\mathcal{S}(W,\tau)$ pour reconstruire l'impulsion attoseconde** qui les a générés, ainsi que la porte de phase infrarouge.

On voit donc ici apparaître la différence majeure entre la technique CRAB et les techniques précédentes. En effet, auparavant, il s'agissait de trouver des conditions particulières telles que l'influence de la porte de phase sur le paquet d'électrons devienne intuitive, régime de balayage pour la caméra à balayage de fente attoseconde et interférences quantiques pour RABITT. On pouvait alors en déduire la phase spectrale de l'impulsion attoseconde par une lecture directe de certains paramètres bien choisis sur la trace de photoélectrons. La technique CRAB n'a, elle, pas besoin d'une porte de phase intuitive puisque l'algorithme du FROG sera capable de séparer l'influence de l'impulsion et de la porte sur les spectres de photoélectrons. On pourra donc reconstruire une porte de phase arbitraire, en particulier on pourra travailler avec CRAB dans un régime d'intensité laser arbitraire, tant que le champ IR a un impact visible sur les spectres de photoélectrons. Et surtout, il sera possible de reconstruire des impulsions attosecondes de forme arbitraire. Par contre, l'évolution des spectres de photoélectrons en fonction de τ deviendra, elle aussi, arbitraire.

Une fois le spectrogramme $\mathcal{S}(W,\tau)$ mesuré, il faut appliquer l'algorithme itératif pour extraire les fonctions $P(t)$ et $G(t)$. D'un point de vue mathématique, cela se résume à un problème de récupération de la phase à partir d'une mesure d'intensité uniquement, mais avec une grande quantité d'informations redondantes. Le principe général de l'algorithme itératif est de minimiser l'erreur entre la trace CRAB mesurée et une trace reconstruite dont on connaît les fonctions $P_r(t)$ et $G_r(t)$ associées, voir la Fig. 1.12. A chaque itération, l'erreur entre les deux traces au sens des moindres carrés se réduit et les fonctions reconstruites $P_r(t)$ et $G_r(t)$ tendent respectivement vers $P(t)$ et $G(t)$. S'il a été montré que l'erreur tendait vers zéro lorsque le nombre d'itérations tend vers l'infini, la reconstruction doit, elle, durer un temps fini. On impose donc une contrainte dans l'algorithme sur le nombre d'itérations à effectuer, ou sur l'erreur à atteindre. L'un des algorithmes les plus couramment utilisés porte le nom de PCGPA pour *Principal Component Generalized Projections Algorithm* [Kane D. J. et al., 1997]. Dans cet algorithme, le nombre d'opérations nécessaires par itération a été particulièrement réduit, ce qui permet une convergence très rapide vers l'impulsion.

Expérimentalement, l'implémentation est relativement simple puisqu'il suffit d'appliquer l'algorithme sur des spectres de photoélectrons que l'on mesurait déjà auparavant, tels que ceux des Fig. 1.9, 1.10 et 1.11. On peut donc interpréter les techniques de la caméra à balayage de fente attoseconde et du RABITT comme des cas particuliers de CRAB. Par sa simplicité de mise en oeuvre et sa capacité à reconstruire toute forme d'impulsion, la technique CRAB est en train de s'imposer et de supplanter les autres techniques existantes.

1.3 Composants optiques des lignes de lumière attosecondes

Jusqu'à présent, nous avons abordé les processus de génération et de caractérisation d'une impulsion attoseconde avec une approche très fondamentale, et sans vraiment nous soucier de la manière dont ils étaient mis en oeuvre expérimentalement sur une "ligne de lumière attoseconde". Or, entre la génération de l'impulsion et sa mesure se trouvent systématiquement des éléments optiques, qui vont interagir avec le faisceau attoseconde et en changer les propriétés. En particulier, ils peuvent servir à modifier sa forme temporelle, c'est à dire à

façonner l'impulsion en fonction des applications visées. L'un des objectifs les plus fréquents est de corriger la dérive de fréquence des impulsions attosecondes inévitablement présente lors de la génération, c'est à dire l'atto-chirp. Cet effet qui étire les impulsions attosecondes, a longtemps limité leurs durées à plus d'une centaine d'attosecondes. Nous verrons les différentes solutions qui furent proposées pour le compenser. Mais nous pouvons également imaginer utiliser ces composants optiques pour donner une forme temporelle arbitrairement complexe à ces impulsions. Et comme pour la technique CRAB qui tire partie d'une solution déjà éprouvée sur les sources laser IR femtosecondes, à savoir la technique FROG, nous pourrons nous inspirer des solutions adoptées pour façonner les impulsions femtosecondes IR.

Cependant, comme nous le verrons, le domaine spectral XUV complique considérablement la situation. En effet, dans cette gamme spectrale, la majorité des matériaux aura une absorption non négligeable, l'air y compris. Un faisceau attoseconde ne devra donc se propager que sous vide sous peine d'être absorbé par quelques millimètres d'air. De plus, alors que, sur une source laser infrarouge femtoseconde, il est fréquent que des dizaines d'éléments optiques soient placés dans le faisceau, une source attoseconde n'en comporte en général que deux ou trois. A l'arrivée, il faudra donc réussir à mettre en forme le faisceau attoseconde avec le minimum de composants possibles.

1.3.1 Cas des impulsions infrarouges femtosecondes

Avant de s'intéresser aux composants optiques utilisés sur les lignes attosecondes, nous allons d'abord étudier ceux utilisés sur les lignes femtosecondes visibles et infrarouge. Ces impulsions sont aujourd'hui maitrisées, et les techniques développées pour les manipuler sont éprouvées.

Façonnage temporel d'impulsions infrarouges femtosecondes

Le façonnage d'une impulsion revient à contrôler les propriétés spectrales de cette dernière, et en particulier sa phase spectrale. Pour ce faire, il est nécessaire d'utiliser des composants dont la réponse va dépendre de la fréquence optique, c'est à dire des systèmes dispersifs. Une élégante décomposition des moyens de créer de la dispersion est donnée dans la référence [Walmsley I. A. et al., 2001], et il apparaît que seuls trois cas sont possibles :

- **La dispersion naturelle d'un matériau**. Considérons pour simplifier l'exemple du paquet d'onde lumineux composé d'ondes planes se propageant selon z. Lors de la propagation dans le milieu, l'impulsion accumule une phase spectrale supplémentaire $k(\omega)\cdot z$, dépendant de la relation de dispersion du matériau $k(\omega)$ ou $n(\omega)\,\omega/c$, avec $n(\omega)$ l'indice de réfraction du milieu. En choisissant le matériau approprié et l'épaisseur à traverser, on peut modifier la phase spectrale de l'impulsion, voir la Fig. 1.13 a). La propagation à travers une simple lame de verre peut ainsi induire une dérive de fréquence sur l'impulsion.
- **La dispersion angulaire à une interface**. Ce phénomène se produit naturellement lors de la traversée d'une interface par une onde hors de l'incidence normale vers un matériau dispersif. Si l'indice du milieu

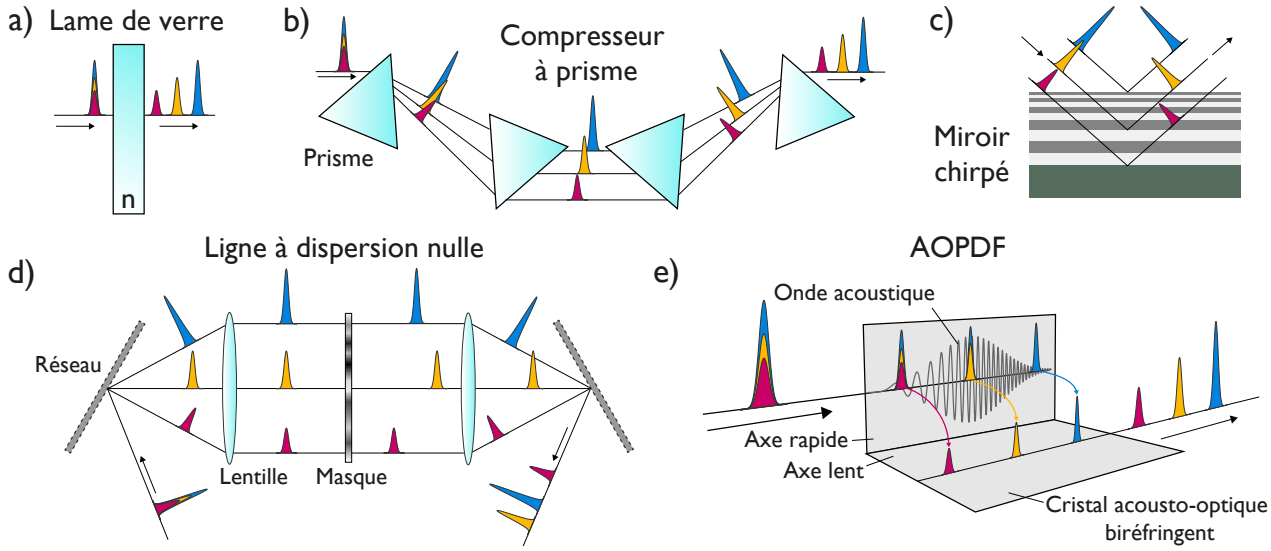


FIGURE 1.13 – **Post-compression et façonnage d'impulsions visibles et infrarouges femtosecondes.** a) Lame de verre d'indice n possédant une dispersion naturelle. b) Compresseur à prisme utilisant l'effet de dispersion angulaire. c) Miroir chirpé introduisant de la dispersion par des effets interférentiels. d) Ligne à dispersion nulle. e) Filtre dispersif acousto-optique programmable.

dépend de la fréquence optique, l'onde sera réfractée avec un angle qui dépendra de sa longueur d'onde, d'après la loi de Descartes. La dispersion angulaire d'un faisceau en tant que telle ne suffit pas à façonner la phase spectrale. Mais en combinant de manière appropriée plusieurs éléments possédant de la dispersion angulaire, on peut créer une dispersion des retards de groupe. C'est le principe des compresseurs à prismes ou à réseaux [Martinez O. E., 1986], voir la Fig. 1.13 b).

- **Les interférences dans un milieu structuré**. La loi de Bragg impose que lorsqu'un rayonnement de longueur d'onde donnée arrive sous un angle donné sur une structure périodique, il existe une période pour cette structure telle qu'une onde réfléchie soit créée par des effets d'interférences. En d'autres termes, pour une incidence donnée, la période de la structure fixe la longueur d'onde du rayonnement qui sera réfléchi efficacement. Mais imaginons que cette structure voit sa période varier graduellement en fonction de la profondeur. La loi de Bragg se vérifiant à une profondeur dépendant de la longueur d'onde, toutes les composantes spectrales de l'impulsion ne parcourront pas la même distance dans l'empilement, voir la Fig. 1.13 c). Une impulsion réfléchie par un miroir de ce type accumulera donc une dispersion des retards de groupe lors de la réflexion. On qualifie généralement ce type de composant de miroir chirpé [Szipöcs R. et al., 1994].

Ces trois composants sont à la base du façonnage des impulsions IR. Cependant, il n'est pas forcément possible de modifier simplement et dynamiquement leur réponse spectrale. La dispersion naturelle est fixée par le matériau utilisé, et la réponse d'un miroir chirpé est imposée par sa structure. C'est pourquoi des techniques permettant la mise en forme d'impulsions arbitrairement complexes ont été developpées. Elles se divisent en

deux techniques phares :

- **Les lignes à dispersion nulle, ou ligne 4f**. L'impulsion est envoyée sur un composant possédant une dispersion angulaire. On collimate ensuite le rayonnement à l'aide d'une lentille ou d'un miroir focalisant. Comme le montre la Fig. 1.13 d), le rayonnement possède alors une particularité : la fréquence centrale de l'impulsion varie en fonction de la position spatiale transverse. On parle alors de *chirp* spatial par analogie avec le *chirp* temporel, qui fait varier la fréquence d'une impulsion en fonction du temps. En conséquence, si l'on place un élément dans le faisceau, sa réponse en un point donné sera vue par une fréquence donnée de l'impulsion. En choisissant la transmission du composant et son déphasage en chaque point, on peut modifier le spectre et la phase spectrale de l'impulsion. Il suffit ensuite de refocaliser le faisceau et de compenser la dispersion angulaire pour obtenir l'impulsion de forme souhaitée [Froehly C. et al., 1983, Weiner A. M., 2000].
- **Les filtres dispersifs acousto-optiques programmables**. On envoie dans un cristal biréfringent une impulsion polarisée selon l'axe ordinaire de ce dernier. Dans ce cristal se propage également une onde acoustique colinéairement à l'impulsion, voir la Fig. 1.13 e). Sous l'effet de cette onde acoustique, la matière est périodiquement compressée et dilatée, ce qui modifie ses propriétés optiques. L'impulsion verra donc un réseau d'indice ayant un pas fixé par la fréquence de l'onde acoustique, et l'on retrouve alors la loi de Bragg. La composante spectrale qui vérifiera la condition de Bragg sera transférée sur l'axe extraordinaire du cristal par un effet de diffraction anisotrope, et se propagera plus lentement dans le milieu. Si l'onde acoustique prend successivement différentes fréquences, l'effet précédent se reproduira pour d'autres composantes spectrales de l'impulsion. Et ces dernières accumuleront des retards les unes par rapport aux autres qui dépendront du moment où elles ont été transférées sur l'axe lent, modifiant ainsi la phase spectrale de l'impulsion. L'onde acoustique pouvant prendre une forme arbitraire, ce composant permet de mettre en forme des impulsions de profils temporels arbitraires [Tournois P., 1997, Verluise F. et al., 2000, Kaplan D. and Tournois P., 2002].

Couplages spatio-temporels : problème de la focalisation d'impulsions

Toutes les techniques précédentes permettent de façonner un signal temporel. Mais une impulsion possède également une extension spatiale. Comme nous l'avons vu au paragraphe 1.1.1, une hypothèse généralement faite est celle de l'absence de couplage spatio-temporel : on considère que les propriétés de l'impulsion sont les mêmes en tout point de l'espace.

Or, il existe un certain nombre de situations expérimentales dans lesquelles cette hypothèse n'est pas vérifiée [Fiorini C. et al., 1994, Osvay K. et al., 2004, Akturk S. et al., 2010]. En particulier, prenons l'exemple de la focalisation d'une impulsion femtoseconde. Dans le cas parfait, on peut considérer que le problème est analogue à celui du faisceau gaussien impulsionnel précédemment traité, voir Fig. 1.3. L'impulsion au foyer ne possèdera pas de couplage spatio-temporel, et autour du foyer, elle prendra la forme d'un front sphérique convergent ou divergent. Mais si l'élément focalisant n'est pas parfait, s'il possède des aberrations, le raisonnement précédent

n'est plus vrai, et l'impulsion au foyer possédera une structure spatio-temporelle complexe. Historiquement, ce problème fut d'abord traité théoriquement [Bor Z., 1989, Kempe M. and Rudolph W., 1993, Fuchs U. et al., 2005, Horvath Z. L. et al., 2006] à partir de la fin des années 80, puis expérimentalement [Bowlan P. et al., 2008a, Akturk S. et al., 2010] au début des années 2000 avec l'émergence de techniques permettant la caractérisation des propriétés spatio-temporelles des impulsions.

1.3.2 Cas des impulsions XUV attosecondes

Retournons maintenant dans le domaine XUV, et voyons si les concepts que nous venons de voir peuvent s'appliquer aux impulsions attosecondes. En particulier, l'idéal serait de pouvoir directement transposer toutes les techniques de façonnage d'impulsions femtosecondes dans le domaine attoseconde. Cela ne sera qu'en partie possible. Car en passant dans le domaine spectral XUV, nous allons être confronté à une réponse de la matière très différente de celle dans le domaine visible.

On écrit généralement l'indice $n(\omega)$ d'un matériau dans le domaine X ou XUV de la manière suivante :

$$n(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega) \tag{1.59}$$

Où $\delta(\omega)$ est généralement positif et petit devant 1 et $\beta(\omega)$ représente l'absorption et est non négligeable.

D'après cette équation, dans l'XUV les matériaux auront en général un indice de réfraction légèrement inférieur à un et une absorption non nulle et dépendant de la longueur d'onde. En conséquence, toute transmission d'une impulsion à travers un matériau massif est à bannir. L'utilisation de prismes, de cristaux non-linéaires ou acousto-optiques est donc impossible, si bien que les composants optiques dans le domaine XUV sont bien moins variés que dans le domaine visible.

Les composants optiques XUV

On peut cependant distinguer quelques grandes familles d'optiques XUV :

- **Les filtres.** Si la transmission d'une impulsion XUV est impossible à travers un composant massif du fait de l'absorption, l'utilisation de filtres de quelques centaines de nanomètres d'épaisseur reste envisageable. L'impulsion verra alors sa phase spectrale changer en fonction de la dispersion naturelle du filtre. Mais le coefficient d'absorption $\beta(\omega)$ de l'équation (1.59) dépend de la longueur d'onde du rayonnement. La transmission à travers le filtre modifiera donc également le spectre de l'impulsion.
- **Les lentilles à zones de Fresnel.** Ces composants utilisent la diffraction par une structure en anneaux pour focaliser le rayonnement. Elles ont cependant un défaut majeur excluant leur utilisation sur des impulsions attosecondes. En effet, ces composants sont très chromatiques puisque leur focale varie avec l'inverse de la longueur d'onde. La focalisation d'une impulsion attoseconde par une lentille à zones de Fresnel ajoutera donc une forte dispersion des retards de groupe à l'impulsion.

- **Les miroirs en incidence rasante.** Puisque l'indice de réfraction des matériaux est fréquemment inférieur à 1 dans le domaine XUV, une interface vide-matériau prend la forme d'une transition d'un matériau d'indice fort, le vide, vers un matériau d'indice faible. Il peut alors se produire un phénomène de réflexion totale si le faisceau arrive avec un angle d'incidence supérieur à un angle critique, condition qui se vérifie en incidence rasante. Le rayonnement ne pénètre alors quasiment plus dans le matériau durant la réflexion. Les propriétés spectrales d'une impulsion attoseconde varieront donc peu. Son spectre restera inchangé, mais sa phase spectrale aussi, excluant tout façonnage d'impulsion à l'aide de ce type de miroir.
- **Les miroirs multicouches.** Comme leur nom l'indique, les miroirs multicouches se présentent sous la forme d'un empilement de couches minces, généralement périodique. Un rayonnement XUV arrivant sur un tel miroir sera donc réfléchi efficacement si la condition de Bragg est vérifiée. Dans le domaine XUV, les deux matériaux les plus couramment utilisés pour les couches du miroir sont le molybdène, et le silicium. Nous aurons l'occasion de revenir de manière plus détaillée sur ces composants au chapitre 2.
- **Les réseaux.** Ces composants se présentent sous la même forme que dans le domaine visible. Pour ajouter une GDD sur une impulsion, les éléments introduisant de la dispersion angulaire doivent être utilisés par paires. Mais dans le domaine XUV, il vaut mieux limiter le nombre de composants sous peine de diminuer l'efficacité du système.

Nous retrouvons certains des composants optiques existants dans le domaine visible. On peut donc imaginer utiliser ces composants pour façonner des impulsions attosecondes de la même manière que dans le domaine visible. La fonction la plus intéressante d'un façonneur d'impulsions attosecondes serait la compensation de l'atto-chirp, ce phénomène étant inévitable car intrinsèque au processus de génération des impulsions attosecondes.

Compensation de l'atto-chirp

Pour compenser l'atto-chirp, un certain nombre de solutions ont été proposées. Et naturellement, il est possible de les classer dans les trois familles de phénomènes permettant de créer de la dispersion :

- **La dispersion naturelle d'un matériau.** Ces solutions sont les plus simples à mettre en oeuvre. Elles furent donc les premières être implémentées avec succès sur des sources attosecondes. Parmi les sources de dispersion naturelle envisagées, on trouve les filtres métalliques [Kim K. T. et al., 2004, López-Martens R. et al., 2005, Gustafsson E. et al., 2007], les milieux gazeux, ou même les plasmas [Mairesse Y. et al., 2003]. En particulier, les deux records de durée d'impulsions actuels, à savoir $80\,as$ pour une impulsion isolée [Goulielmakis E. et al., 2008] et $63\,as$ pour un train d'impulsions [Ko D. H. et al., 2010], furent respectivement établis en compensant l'atto-chirp grâce à la dispersion naturelle d'un filtre de zirconium et d'une cellule d'argon.
- **La dispersion angulaire à une interface.** L'utilisation de prismes étant impossible, l'ajout de dis-

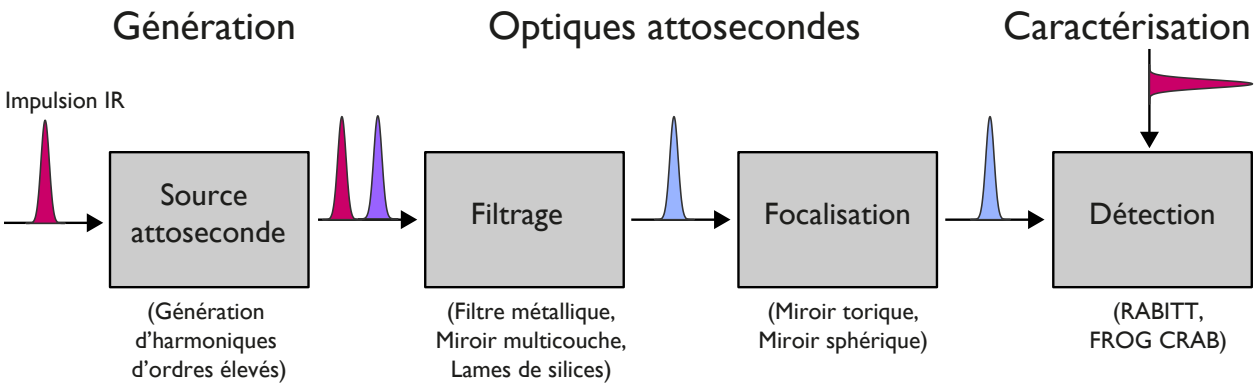


FIGURE 1.14 – **Schéma caractéristique d'une ligne attoseconde.**

persion angulaire ne peut se faire que par l'intermédiaire d'un réseau. Et une configuration possible pour un tel compresseur à réseau attoseconde a été proposée [Poletto L. et al., 2008].

- **Les interférences dans un milieu structuré.** La transposition du concept de miroir chirpé dans le domaine attoseconde a été envisagée dès 2004 [Wonisch A. et al., 2004, Morlens A.-S. et al., 2005, Suman M. et al., 2009]. Mais la première compression d'une impulsion attoseconde par ce type de miroir n'a été observée qu'en 2011 [Bourassin-Bouchet C. et al., 2011a, Hofstetter M. et al., 2011].

Enfin, il est possible de créer une dernière catégorie particulière. Il s'agit de la compensation de l'atto-chirp par **l'optimisation des conditions de génération** des impulsions. En effet, nous avons vu qu'une augmentation de l'intensité de l'impulsion IR de génération ou augmenter sa longueur d'onde permettait de réduire la valeur de la GDD intrinsèque [Mairesse Y. et al., 2003, Varjú K. et al., 2005, Tate J. et al., 2007].

1.3.3 Les sources attosecondes dans le monde en 2011

Maintenant que nous avons vu les différents composants utilisables pour manipuler des impulsions attosecondes, nous allons voir sous quelles formes se présentent les sources attosecondes existant actuellement dans le monde. En étudiant ces sources, on remarque très vite qu'un schéma typique d'une ligne attoseconde se dégage, voir la Fig. 1.14. En effet, dans la majorité des cas, on peut séparer la ligne en quatre étages :

- **La source des impulsions attosecondes.** Comme nous l'avons vu, les impulsions attosecondes sont générées par l'interaction fortement non linéaire d'une impulsion femtoseconde avec un gaz rare. Ce gaz rare peut être soit issu d'un jet supersonique ou effusif, soit contenu dans une cellule ou dans un capillaire.
- **Le dispositif de filtrage.** Cette étape est nécessaire pour supprimer le faisceau IR de génération. Cela peut se faire par l'emploi de lames de silices en incidence rasante ou de filtres métalliques. Dans certains schémas expérimentaux, le faisceau IR possède un profil spatial annulaire. Un simple iris permet alors de le bloquer tout en laissant passer l'impulsion attoseconde, le faisceau XUV ayant une divergence plus faible que le faisceau IR. Enfin, tous les composants optiques que nous venons de voir permettant la

Laboratoire	Durée	Type	Filtrage	Refocalisation	Mesure
CEA IRAMIS (France)	**130 as** [Mairesse Y. et al., 2003]	train	Iris	Miroir torique	RABITT
JILA NIST (USA)	**210 as** [Thomann I. et al., 2009]	isolée	Filtre d'Al et miroir multi-couche	Miroir convergent	CRAB
KAIST (Corée du Sud)	**63 as** [Ko D. H. et al., 2010]	train	Filtre de Be et cellule d'Ar	Miroir torique	RABITT
Kansas State U. (USA)	**148 as** [Feng X. et al., 2009]	isolée	Filtre d'Al et miroir multi-couche	Miroir convergent	CRAB
LLC (Suède)	**170 as** [López-Martens R. et al., 2005]	train	Filtre d'Al	Miroir torique	RABITT
MPQ (Allemagne)	**80 as** [Goulielmakis E. et al., 2008]	isolée	Filtre de Zr et miroir multi-couche	Miroir convergent	CRAB
Ohio State U. (USA)	**170 as** [Doumy G. et al., 2009]	train			RABITT
Polytecnico di Milano (Italie)	**130 as** [Sansone G. et al., 2006]	isolée	Filtre Al	Miroir torique	CRAB

TABLE 1.2 – **Performances de différentes sources d'impulsions attosecondes dans le monde en 2011**. Les durées indiquées sont des durées à mi-hauteur. Le type d'impulsions émises correspond soit à des impulsions attosecondes isolées, soit à un train d'impulsions. Les performances proviennent de la publication de référence indiquée. Les miroirs convergents mentionnés sont probablement sphériques et utilisés avec un léger angle de champ, mais aucun détail dans la publication indiquée ne permet de le savoir. Cette liste n'est pas exhaustive.

compensation de l'atto-chirp entrent également dans cette catégorie.

- **L'optique de refocalisation.** Une refocalisation des impulsions attosecondes dans le détecteur est ensuite effectuée. Ces optiques de refocalisation sont soit des miroirs en incidence rasante, soit des miroirs utilisés proche de l'incidence normale et comportant un dépôt multicouche. A notre connaissance, les miroirs en incidence rasante sont toujours des miroirs toriques. Les miroirs de la seconde catégorie peuvent être soit sphériques soit paraboliques.
- **Le dispositif de caractérisation.** Comme nous l'avons vu précédemment, les techniques actuelles de caractérisation d'une impulsion attoseconde sont toutes basées sur la mesure de spectres de photoélectrons. Pour mesurer l'énergie cinétique de ces photoélectrons, un spectromètre à temps de vol va, comme son nom l'indique, mesurer le temps que mettra l'électron pour parcourir une distance connue. Et ce temps de vol sera d'autant plus faible que l'énergie cinétique du photoélectron sera grande.

Ce schéma de ligne attoseconde n'a que peu évolué depuis la génération des premières impulsions attosecondes en 2001. Enfin, pour compléter cet état de l'art des sources attosecondes, nous avons répertorié dans le tableau 1.2 les performances de différentes sources attosecondes dans le monde.

Chapitre 2

Post-compression et façonnage d'impulsions attosecondes par miroirs multicouches

Le développement de composants compensant l'atto-chirp est un enjeu majeur pour les impulsions attosecondes, puisqu'il permettrait d'accéder à des régimes de durées encore plus brefs. Pour réaliser une telle post-compression, les éléments possédant une dispersion naturelle ne sont qu'une solution partielle. En effet, le matériau choisi impose sa bande passante, sa dispersion et sa transmission. L'idéal serait donc de pouvoir concevoir des composants aux propriétés ajustables. Et il ressort de l'état de l'art précédent que les meilleurs candidats pour remplir un tel rôle sont les miroirs multicouches chirpés.

2.1 Des miroirs chirpés IR aux miroirs multicouches XUV

Le point de départ logique dans le développement d'un miroir multicouche chirpé serait d'adopter la même approche que dans le domaine visible. Comme nous l'a montré la Fig. 1.13 c), un miroir chirpé dans le domaine IR-visible se caractérise par une évolution graduelle de sa période. Etant donnée la loi de Bragg, une telle structure réfléchira les hautes énergies en surface, et les basses énergies en profondeur. Dans le domaine XUV, le couple phare de matériaux pour la conception de miroirs multicouches est le couple "molybdène/silicium". Considérons donc une structure multicouche basée sur ces matériaux et possédant un gradient de période. Cette structure sera composée de trente couches, démarrant, pour les couches de silicium, avec une épaisseur de $14\,nm$ en surface, et finissant avec une épaisseur de $20\,nm$ pour la couche la plus profonde. L'épaisseur des couches de molybdène est constante et vaut $5\,nm$. On considère que le miroir travaille sous 45° d'incidence.

Pour renforcer l'analogie avec les miroirs chirpés IR, nous allons tout d'abord considérer que l'absorption est

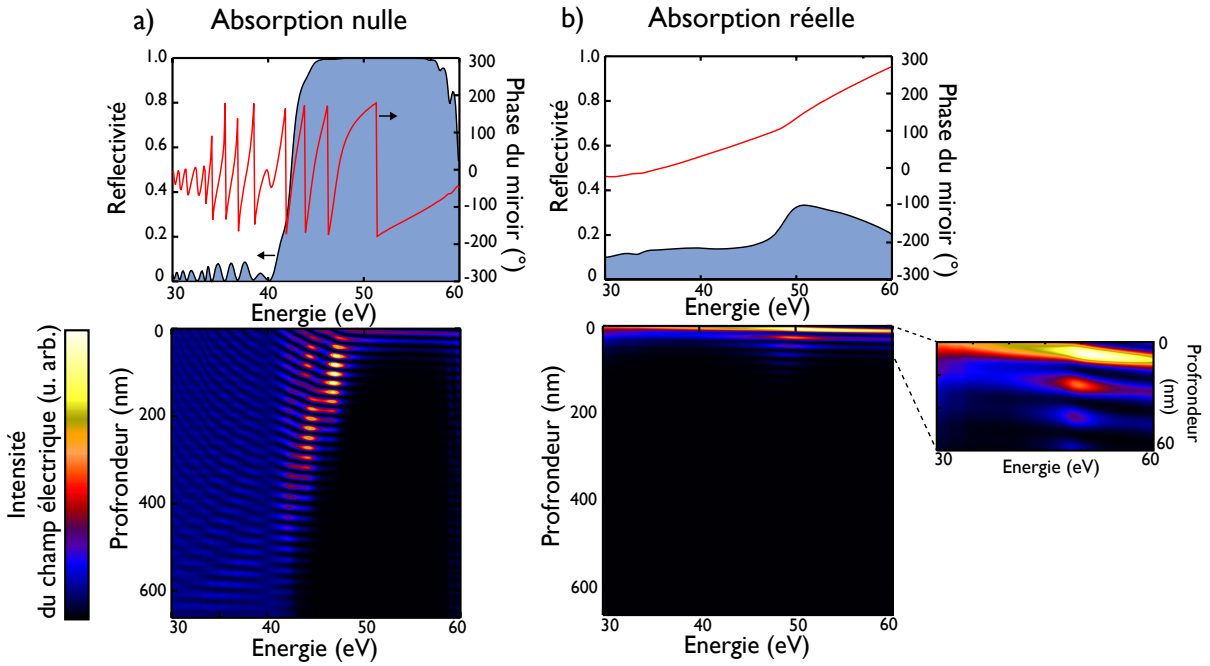


FIGURE 2.1 – **Performances avec et sans absorption d'un miroir multicouche possédant une structure à gradient.** L'absorption des matériaux est négligée (a), puis prise en compte (b). Dans les deux cas, on trace la réflectivité et la phase spectrale du miroir (panneaux supérieurs), ainsi que l'évolution de l'intensité du champ électrique dans la structure.

nulle. Les simulations sont faites en mettant à zéro la partie imaginaire des indices de réfraction du molybdène et du silicium. Les résultats sont reportées sur la Fig. 2.1 a). On voit que la réflectivité du miroir atteint très vite 100% et se stabilise pour former un plateau entre 40 et 60 eV. Sur cette bande passante, la phase spectrale du miroir est d'abord convexe avant de devenir linéaire. Or une phase convexe indique la présence d'une dispersion des retards de groupe négative sur le miroir. Il s'agit donc bien d'un miroir chirpé. Pour s'en convaincre, nous traçons également l'intensité du champ électrique stationnaire dans la structure multicouche. On voit alors que sur la bande passante du miroir, le champ électrique pénètre de moins en moins profondément à mesure que l'énergie augmente. Une telle évolution est caractéristique d'un miroir chirpé [Steinmeyer G. et al., 1999].

Si l'on refait les mêmes calculs en prenant cette fois en compte la partie imaginaire des indices, représentant l'absorption, nous obtenons les résultats de la Fig. 2.1 b). Il apparait alors que les performances du miroir sont totalement différentes du cas précédent. La réflectivité s'est effondrée et varie maintenant entre 10% et 40%, et la phase du miroir est quasiment linéaire sur toute la plage spectrale. Ces observations s'expliquent très simplement en étudiant l'intensité du champ électrique dans la structure. Du fait de l'absorption, ce dernier ne pénètre pas au delà des premières dizaines de nanomètres. Toutes les énergies auront donc des profondeurs de pénétration quasiment identiques, rendant la phase spectrale du miroir relativement linéaire. Cet exemple illustre donc la difficulté du développement de miroirs multicouches chirpés dans le domaine XUV.

Nous allons maintenant partir de ce qui existe dans le domaine des miroirs multicouches XUV et voir

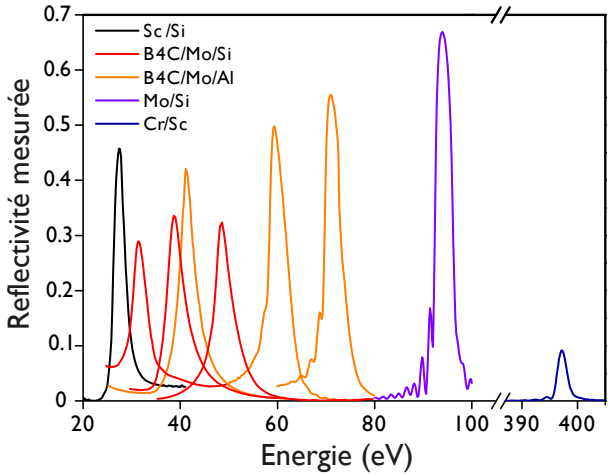


FIGURE 2.2 – **Réflectivités mesurées sur synchrotron pour des miroirs multicouches périodiques réalisés au Laboratoire Charles Fabry durant ces dix dernières années.** Les différentes couleurs indiquent les couples ou triplets de matériaux composant la structure du miroir.

dans quelle mesure nous pouvons l'appliquer au cas d'un miroir chirpé attoseconde. La Fig. 2.2 représente les réflectivités mesurées sur synchrotron pour des miroirs multicouches à structure périodique réalisés au Laboratoire Charles Fabry durant ces dix dernières années. Une tendance nette se détache : ces miroirs possèdent toujours une réflectivité piquée et une bande passante très étroite. En effet, dans la plupart des applications visées jusqu'à présent, soit la source était quasi-monochromatique, soit le miroir jouait le rôle de filtre spectral [Gautier J. et al., 2005, 2007, Hardouin A. et al., 2008, Meltchakov E. et al., 2010, Hu M.-H. et al., 2010]. Or une impulsion attoseconde possède au contraire un spectre très large. La première contrainte sera donc de créer une structure multicouche présentant une large bande passante. Le second point remarquable sur la Fig. 2.2 réside dans la propriété tracée sur le graphique, à savoir la réflectivité du miroir. Jusqu'à maintenant, seule cette dernière était optimisée et mesurée, puisque le but de ce type de miroir était de réfléchir le maximum de flux possible à la longueur d'onde souhaitée. Mais dans le cas d'une impulsion attoseconde, la phase spectrale du miroir joue un rôle fondamental puisqu'elle définit le caractère chirpé ou non du miroir. Enfin, nous pouvons constater que sur la gamme spectrale $20 - 80\,eV$, les structures des miroirs ne sont plus composées de deux matériaux mais de trois, ce qui améliore leur réflectivité [Gautier J. et al., 2005, Meltchakov E. et al., 2010]. Le spectre des impulsions attosecondes étant fréquemment centré sur cette plage spectrale, les miroirs multicouches les plus adaptés pour de telles impulsions possèderont donc des structures à trois matériaux.

Historiquement, le développement de miroirs chirpés attosecondes au laboratoire débuta avec la thèse d'Anne-Sophie Morlens au Laboratoire d'Optique Appliquée entre 2004 et 2007. Ce travail mena à l'optimisation d'un miroir chirpé dont les performances théoriques furent publiées dans la référence [Morlens A.-S. et al., 2005]. Cela donna également lieu à la mesure, sur une source attoseconde du *Lund Laser Center* en Suède, de la phase d'un miroir multicouche XUV non chirpé développé durant la thèse de Julien Gautier [Morlens A.-S. et al., 2006] au Laboratoire Charles Fabry.

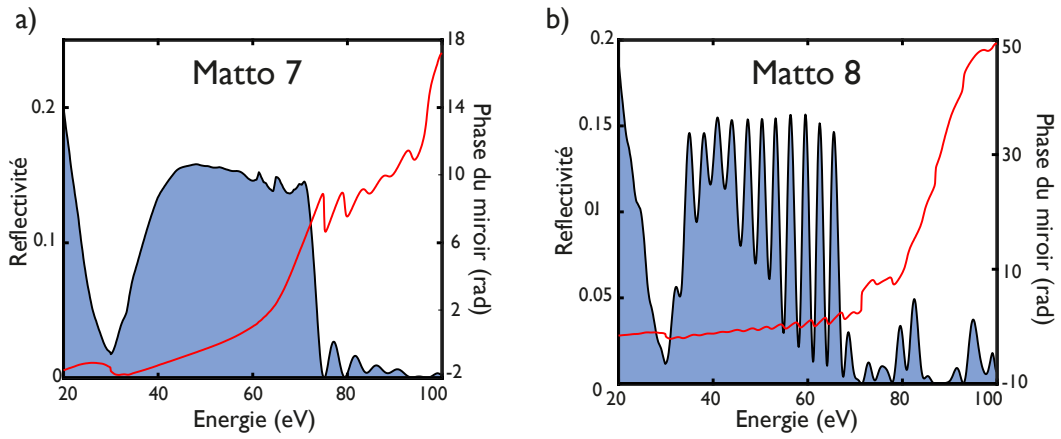


FIGURE 2.3 – **Exemples de miroirs attosecondes à la réflectivité optimisée et développés par Yves Ménesguen.** Dans les deux cas, la réflectivité et la phase du miroir sont représentées. Les miroirs sont optimisés pour une incidence normale. a) Miroir nommé *matto* 7 et optimisé pour obtenir une réflectivité maximale et constante entre 35 et 75 eV. b) Miroir *matto* 8 dont la réflectivité a été optimisée pour réfléchir un spectre composé d'harmoniques impaires d'un champ fondamental de longueur d'onde de 800 nm.

Ce travail de thèse débuta en Septembre 2008 avec l'arrivée d'Yves Ménesguen en tant que chercheur postdoctoral au sein de notre équipe. L'idée était alors d'optimiser uniquement la réflectivité des miroirs multicouches pour obtenir des bandes passantes très larges mais sans contrôle de la phase. Deux des structures obtenues à l'issue de ces optimisations sont représentées sur la Fig. 2.3 (a-b). Ces miroirs sont composés du triplet de matériaux molybdène-silicium-carbure de bore (B_4C) et ont été optimisés pour une incidence normale [Ménesguen Y. et al., 2010]. En comparant leurs réflectivités avec celles de la Fig. 2.2, il apparait que la bande passante de ces deux miroirs a été considérablement augmentée. Mais cela se fait cependant au prix d'une complexification de la structure multicouche, périodique dans la majorité des cas représentés sur la Fig. 2.2, et totalement apériodique dans le cas des miroirs de la Fig. 2.3 (a-b). Néanmoins, aucune optimisation de la phase spectrale des miroirs n'a été faite dans ces deux cas. Ceci fera l'objet du travail qui va suivre. De plus, à l'occasion du développement de ces premiers miroirs, l'habitude a été prise de les nommer *matto*, concaténation de "miroir attoseconde", suivi du numéro du miroir.

En conclusion, hormis le concept d'empilement multicouche, un miroir diélectrique chirpé dans le domaine IR ressemblera peu à un miroir chirpé XUV. Ce dernier possédera une structure multicouche totalement apériodique, contre une structure à gradient dans le cas de miroir chirpé IR, et qui sera composée de trois matériaux au lieu de deux. Enfin les réflectivités obtenues seront beaucoup plus faibles du fait de l'absorption des matériaux.

2.2 Méthodes pour la conception de miroirs multicouches

Avant d'en venir aux miroirs que nous avons développés, nous allons d'abord nous intéresser aux différentes techniques que nous avons employées. On peut répartir le développement d'un miroir multicouche attoseconde selon trois axes : obtention de la structure multicouche la plus adaptée, fabrication du miroir et caractérisation de ses propriétés.

2.2.1 Optimisation des structures multicouches

Pour optimiser un miroir multicouche, il faut trouver l'empilement dont les propriétés spectrales en amplitude et en phase soient les plus proches possibles de celles souhaitées. L'optimisation numérique utilise un algorithme qui se décompose en quatre étapes :

1 Définition d'une structure pour le miroir,

2 Calcul de la réponse du miroir,

3 Comparaison de ses propriétés avec celles souhaitées,

4 Si le résultat ne convient pas, choix d'un nouveau miroir puis retour à l'étape 1.

Calcul de la réflectivité complexe d'un miroir multicouche

Pour optimiser la réponse spectrale d'un miroir, il faut pouvoir la calculer. Une manière couramment utilisée consiste à procéder de manière itérative [Gautier J., 2005, Macleod H. A., 1986]. Nommons n_i et n_j les indices de réfraction complexes de deux matériaux à une interface, E_j le champ électrique incident, E'_j le champ réfléchi et E_i le champ transmis. Alors les coefficients de Fresnel en réflexion $r_{i,j}$ et en transmission $t_{i,j}$ à l'interface s'écriront de la manière suivante en incidence normale :

$$r_{i,j} = \frac{|E'_j|}{|E_j|} = \frac{n_j - n_i}{n_j + n_i} \tag{2.1}$$

$$t_{i,j} = \frac{|E_i|}{|E_j|} = \frac{2n_j}{n_j + n_i} \tag{2.2}$$

Dans le cas d'un empilement de couches minces, la réflectivité complexe r_j de l'empilement au niveau de la couche j peut être obtenue par récurrence à partir de la connaissance de la réflectivité complexe r_i au niveau de la couche précédente i :

$$r_j = \frac{r_{j,i} + r_i e^{2i\varphi_j}}{1 + r_{j,i} r_i e^{2i\varphi_j}} \tag{2.3}$$

Où φ_j vaut $\frac{2\pi}{\lambda} n_j e_j$, avec e_j l'épaisseur de la couche j.

La réflectivité r_1 du substrat étant directement donnée par le coefficient de Fresnel $\frac{1-n_s}{1+n_s}$, avec n_s l'indice du substrat, on peut simplement en déduire par récurrence la réflectivité totale de l'empilement au niveau de

la surface. Les relations précédentes ont été établies dans le cas de l'incidence normale pour ne pas alourdir les équations, mais cette étude est facilement extensible hors de l'incidence normale [Macleod H. A., 1986, Spiller E., 1994].

Choix des paramètres de la fonction de mérite

D'après le processus d'optimisation simplifié que nous avons établi, l'étape suivante consiste à comparer les propriétés du miroir à celles que l'on souhaite obtenir. Dans la pratique, une telle comparaison se fait par l'évaluation d'une fonction de mérite. Cette fonction permet d'estimer l'écart ϵ entre les propriétés $(P_1, P_2, ..., P_N)$ d'une solution de l'optimisation avec les propriétés ciblées $\left(P_1^{target}, P_2^{target}, ..., P_N^{target}\right)$. Si certaines propriétés sont plus importantes que d'autres dans le résultat final, on peut leur affecter des poids $(w_1, w_2, ..., w_N)$. Généralement cet écart est évalué au sens des moindres carrés et la fonction de mérite prend la forme suivante :

$$\epsilon = \sum_{i=1}^{N} w_i \cdot \left(P_i - P_i^{target}\right)^2 \tag{2.4}$$

Principe du recuit simulé

Si le miroir obtenu n'a pas les performances désirées, *i. e.* si la valeur de la fonction de mérite ϵ est supérieure à une tolérance fixée, il faut choisir un autre miroir. Bien sûr, la manière de faire la plus simple serait de choisir une nouvelle structure multicouche au hasard. Avec de la chance, on finirait par trouver un meilleur résultat que la solution initiale. En évaluant rapidement le problème, optimiser les propriétés d'un miroir multicouche revient à trouver le minimum global de la fonction de mérite parmi toutes les structures multicouches possibles. En considérant que les matériaux soient imposés, un empilement sera fixé par son nombre de couches, leurs épaisseurs, l'ordre des matériaux. L'espace à explorer est énorme. Toute la philosophie d'un algorithme d'optimisation est donc de faire mieux que la chance en tirant les leçons de chaque itération. La classe des métaheuristiques offre un grand nombre d'algorithmes tels que les algorithmes génétiques ou les algorithmes de colonies de fourmis. Nous avons choisi d'utiliser l'algorithme du recuit simulé, particulièrement simple à coder [Kirkpatrick S. et al., 1983]. Cet algorithme traite le problème comme s'il s'agissait d'un système thermodynamique, par analogie avec la technique du recuit en métallurgie, qui vise, durant la phase de refroidissement d'un métal, à lentement refroidir et recuire ce dernier pour éliminer progressivement les défauts dans sa structure. Lors des premières itérations, l'algorithme va explorer un large domaine parmi l'espace des solutions possibles pour accroitre les chances d'approcher le minimum global. Mais en augmentant le nombre d'itérations, le paramètre "température" va diminuer, réduisant progressivement la taille du domaine de solutions explorées.

Matériau	Cathode	Puissance/Courant	Vitesse de dépôt
Si amorphe	RF	$150\,W$	$0.038\,nm/s$
B_4C	RF	de $80\,W$ à $150\,W$	de 0.008 à $0.140\,nm/s$
Mo	DC	$0.06\,A$	$0.036\,nm/s$

FIGURE 2.4 – **Vitesses de dépôts dans le bâti MP800 des matériaux utilisés pour la conception des miroirs attosecondes.** Les vitesses de dépôt sont données pour une rotation orbitale à $1°/s$.

2.2.2 Fabrication des miroirs

Etant donnée l'épaisseur des couches à déposer, il est bien évident que les miroirs doivent être fabriqués dans un environnement le plus propre possible. La machine de dépôt se trouve donc dans la salle blanche de l'Institut d'Optique, de classe "1000" (1000 particules de poussières de moins de $5\,\mu$m par pied cube) et dont la température, la pression et l'humidité sont ajustées en permanence.

Principe de la pulvérisation cathodique magnétron

Pour fabriquer les miroirs qui seront présentés par la suite, nous avons utilisé un bâti de pulvérisation cathodique magnétron. Comme son nom l'indique, cette technique consiste à pulvériser une cible avec un plasma peu dense. Les atomes de la cible libérés par le phénomène se déposent alors sur un substrat placé à proximité. La nature de la cible et le temps d'exposition déterminent le matériau et l'épaisseur de la couche ainsi déposée. La pulvérisation est dite magnétron lorsqu'un champ magnétique est utilisé en complément pour confiner les électrons libres issus du processus près de la cible. Cela a pour effet d'augmenter la vitesse de dépôt et de limiter l'échauffement du substrat. Enfin, la pulvérisation cathodique peut se faire soit en courant continu (DC), soit sous l'effet d'une onde radiofréquence (RF), cette dernière technique ayant l'avantage de permettre la pulvérisation même si le matériau constituant la cible est un isolant électrique.

Du fait de la forme du champ magnétique utilisé lors de la pulvérisation, les cibles ne s'érodent pas de manière uniforme. De plus, les aimants permanents utilisés ont une durée de vie de quatre ans, si bien que la géométrie du champ magnétique peut dériver au fil du temps. Tous ces phénomènes font que la vitesse de dépôt des matériaux peut varier au cours du temps. Il est donc nécessaire d'étalonner la machine avant chaque dépôt. On obtient ainsi des vitesses de dépôt proches de celles présentées dans le tableau 2.4.

La machine de dépôt utilisée au laboratoire est un modéle MP800 conçu par la société Plassys [Gautier J. et al., 2005]. Le bâti de la machine de dépôt, représenté sur la Fig. 2.5, est un cylindre de $800\,mm$ de diamètre. Lors de la préparation d'un dépôt, on introduit dans le sas un substrat nu généralement en silice ou silicium. Pour être transférable dans l'enceinte principale, le substrat doit faire moins de $125\,mm$ de diamètre. Un bras mécanique permet alors de positionner le substrat dans un porte-échantillon. Pour permettre le dépôt de couches de différents matériaux, le substrat peut se déplacer à une distance de $10\,cm$ au-dessus des différentes cibles de $80 \times 200\,mm$ chacune. Plus précisément, le porte-échantillon peut assurer une rotation orbitale autour de l'axe central du bâti à une vitesse pouvant aller de $0.2°/s$ à $3°/s$. De plus, le porte-échantillon

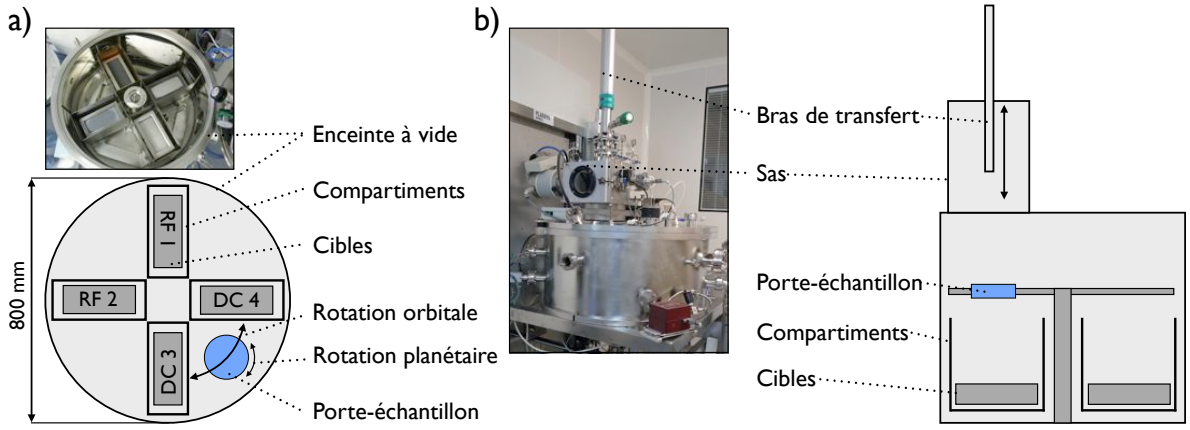


FIGURE 2.5 – **Schéma de la machine de dépôt MP800 utilisée pour la fabrication des miroirs multicouches.** a) Vue de dessus. b) Vue de côté.

peut également effectuer un mouvement de rotation sur lui-même appelé rotation planétaire à une vitesse de l'ordre de $50\,tpm$. Cela assure un dépôt d'épaisseur homogène sur toute la surface du substrat. Une pompe cryogénique maintient le vide résiduel dans l'enceinte autour de $5 \times 10^{-6}\,Pa$ ($5 \times 10^{-8}\,mbar$). Cependant, pour créer le plasma nécessaire à la pulvérisation cathodique, il faut remplir l'enceinte avec de l'argon sous une pression allant de 0.1 à $1\,Pa$. Parmi les quatre emplacements de cibles utilisables dans le bâti, deux fonctionnent en mode radiofréquence (RF1 et RF2) sous une puissance allant de $80\,W$ à $150\,W$, et permettent le dépôt en couches minces de matériaux tels que le B_4C ou le silicium amorphe. Deux autres cibles (DC3 et DC4) sont alimentées par un courant continu compris entre $50\,mA$ et $200\,mA$, et servent généralement à déposer du molybdène. De plus, les cibles sont réparties dans des boites de confinement. Les atomes de chaque cible pulvérisée restant confinés dans leur compartiment, on évite ainsi de polluer la couche en cours de dépôt avec les matériaux des autres cibles. Avant chaque dépôt, on rédige sur l'ordinateur pilotant le bâti un programme informatique déterminant l'ordre de passage du porte-échantillon au-dessus des cibles, le temps de passage, ou encore la puissance des cibles.

Contrôle du dépôt par réflectométrie en X-rasants

Pour contrôler la qualité de la structure multicouche déposée, nous disposons au laboratoire d'un réflectomètre en X-rasants. Une source fixe émettant des rayons X dans la raie d'émission $Cu-K\alpha$ ($\lambda = 0.154\,nm$ ou $E = 8050.6\,eV$) éclaire le miroir à caractériser. Celui-ci va réfléchir le rayonnement X de manière spéculaire et avec une efficacité qui dépendra de l'empilement multicouche. En mesurant le flux réfléchi à l'aide d'un compteur à scintillations, et en répétant l'opération pour une large plage d'angles d'incidence, il est possible de mesurer précisément l'épaisseur des couches déposées. On peut également en déduire des informations telles que la rugosité des interfaces en comparant la mesure avec la simulation associée [Bridou F. and Pardo B. A., 1990].

2.2.3 Caractérisation des miroirs sur synchrotron

Les réflectomètres en X-rasants ont pour eux l'énorme avantage d'une accessibilité totale, et d'une installation à demeure dans le laboratoire. Cependant, comme nous l'avons vu, les informations accessibles sont limitées, mais surtout, la caractérisation s'effectue à $0.154\,nm$, et non dans le domaine XUV. Il existe cependant des sources dédiées à la caractérisation d'optiques XUV à la longueur d'onde de travail. Il s'agit des lignes de métrologie des synchrotrons. Les synchrotrons utilisent le rayonnement du même nom produit par des électrons se déplaçant à des vitesses relativistes. En effet, tout changement de trajectoires de ces électrons se traduit par une émission de rayonnement allant de l'infrarouge lointain aux rayons X durs, en passant donc par la plage spectrale XUV.

Dans la pratique, un synchrotron est construit autour d'un anneau de stockage de plusieurs dizaines de mètres de diamètre dans lequel les électrons sont accélérés. Pour courber leur trajectoire, des aimants de courbure sont disposés régulièrement autour de l'anneau. Ces aimants provoquent le rayonnement synchrotron qui est émis tangentiellement à l'anneau. Le faisceau est ensuite mis en forme spatialement et spectralement, avant d'être envoyé vers la chambre expérimentale. Un synchrotron prend donc la forme d'un anneau principal duquel partent des lignes de lumière. Généralement, une de ces lignes est dédiée à la métrologie de composants optiques X ou XUV. En terme d'accessibilité, ces lignes sont presque l'exact opposé des réflectomètres. Ce sont des installations lourdes, accessibles sur appel à projet tous les six mois. Une campagne de mesure dure en général quelques jours durant lesquels le faisceau synchrotron est accessible $24\,h$ sur 24. Les miroirs attosecondes dont il est question ici ont tous été caractérisés sur le synchrotron italien Elettra près de la ville de Trieste, et plus précisément sur la ligne de métrologie BEAR (*Bending magnet for Emission, Absorption and Reflectivity*) dirigée par le professeur Stefanno Nannarone [Nannarone S. et al., 2004].

La ligne de métrologie BEAR du synchrotron Elettra

Dans l'anneau de stockage du synchrotron Elettra, les électrons possèdent une énergie cinétique de près de $2\,GeV$ et circulent sous la forme d'un courant de $300\,mA$ au maximum. Pour compenser l'atténuation naturelle du paquet d'électrons dans l'anneau, de nouveaux électrons y sont injectés en continu. L'aimant de courbure présent au début de la ligne BEAR provoque l'émission de rayonnement sur la plage $4\,eV - 1400\,eV$ ($309\,nm - 0.9\,nm$). Comme le montre la Fig. 2.6 a), le faisceau est d'abord collimaté par un premier miroir parabolique avant d'arriver sur un monochromateur composé d'une roue à filtre et de trois réseaux nommés G-NIM, G-1200 et G-1800. Plus précisément, pour obtenir un faisceau monochromatique, le réseau G-NIM peut être utilisé jusqu'à $42\,eV$, comme le montre la Fig. 2.6 b), puis on utilise le réseau G-1200 combiné à des filtres d'aluminium ou de silicium pour les énergies allant jusqu'à $100\,eV$. Au-delà de cette énergie, le réseau G-1200 peut être utilisé sans filtre. Le réseau G-1800 sert quant à lui pour des énergies supérieures à $800\,eV$, ce qui est largement hors de la plage spectrale d'utilisation prévue pour nos miroirs. L'étalonnage en énergie de la ligne assure une précision sur la mesure en énergie inférieure à $0.2\,eV$. Après le monochromateur, un

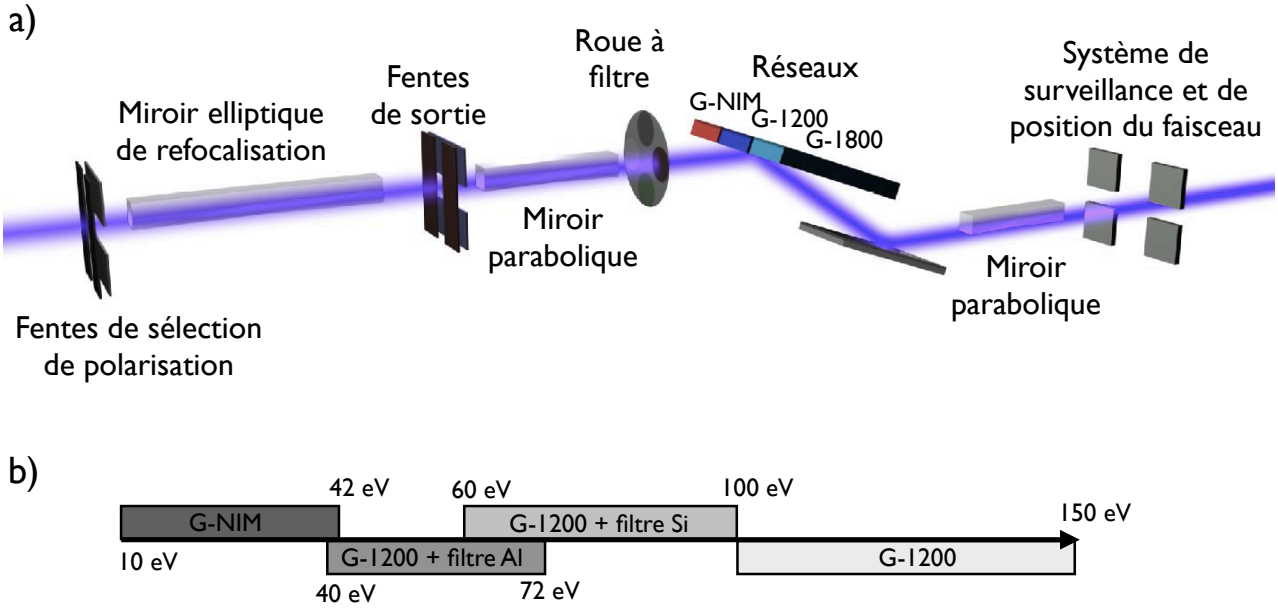


FIGURE 2.6 – **Schéma de la ligne de métrologie BEAR du synchrotron italien Elettra.** a) Détail des optiques constituant la ligne BEAR. b) Bandes spectrales accessibles grâce au monochromateur de la ligne composé de trois réseaux et d'une roue à filtre. Le réseau G-1800 fonctionne sur la plage $800\,eV - 1400\,eV$.

second miroir parabolique refocalise le faisceau sur la fente de sortie du monochromateur. Enfin un miroir elliptique focalise le faisceau au centre de la chambre expérimentale qui est maintenue sous ultra-vide à des pressions de l'ordre de $10^{-8}\,Pa$ ($10^{-10}\,mbar$). Un jeu de fentes supplémentaire assure également la sélection de la partie du faisceau majoritairement polarisée rectilignement, c'est à dire en polarisation S. Ceci permet d'atteindre un taux de polarisation proche de 80 % S et 20 % P. Une grille d'or est placée dans le faisceau XUV à l'entrée de la chambre expérimentale. Le faisceau qui la traverse crée un photocourant proportionnel au flux lumineux, ce qui permet de mesurer en permanence le flux du rayonnement XUV sur la ligne de métrologie. De plus, un sas et un bras de transfert permettent d'insérer dans la chambre des échantillons de taille maximale $26 \times 30\,mm^2$. Enfin, un jeu d'actionneurs permet de placer l'échantillon à la position et à l'inclinaison voulue dans la chambre.

Les mesures que nous avons effectuées sur la ligne BEAR furent de deux types : des mesures de réflectivité et de photocourant de surface.

Caractérisation de la réflectivité

La réflectivité R_{mir} d'un miroir est facilement accessible à la mesure. Cependant, l'obtention d'une réflectivité absolue sans biais de mesure requiert quelques précautions. Dans une première étape, le miroir n'est pas placé sur le chemin du faisceau. On mesure alors le courant correspondant au faisceau direct I_D de la ligne et obtenu avec une photodiode en silicium reliée à un picoampèremètre. Ce courant étant sensible à l'alignement du faisceau à l'entrée de la ligne BEAR, on mesure également le photocourant produit par la grille d'or $I_{D_{grille}}$.

On complète cette première étape par la mesure du photocourant en l'absence de faisceau synchrotron I_{D_b}. Dans un second temps, on place le miroir sur le chemin du faisceau, et l'on répète les trois mesures précédentes cette fois notées I_{Mir}, I_{Mir_b} et $I_{Mir_{grille}}$. La réflectivité absolue du miroir est alors donnée par l'équation suivante :

$$R_{mir}(\omega) = \frac{(I_{Mir} - I_{Mir_b}) / I_{Mir_{grille}}}{(I_D - I_{D_b}) / I_{D_{grille}}} \tag{2.5}$$

En procédant ainsi, on s'affranchie du bruit de la photodiode et de toute variation d'intensité du faisceau synchrotron entre les deux étapes de la mesure.

Caractérisation de la phase par mesure de photocourants

Le contrôle d'une impulsion attoseconde par un miroir multicouche repose également sur la phase spectrale de ce dernier. Il est donc primordial de trouver une technique permettant de caractériser la phase φ_{mir} d'un miroir.

Pour ce faire, il existe une technique appelée *Total Electron Yield* ou TEY, et basée sur la mesure du photocourant émis par la couche de surface de l'empilement multicouche. En effet, lors de la réflexion d'un rayonnement sur un miroir, les champs électriques incident et réfléchi vont se superposer sans se voir dans la structure multicouche, sauf si un phénomène physique sensible au carré du champ électrique a lieu au niveau du recouvrement. C'est précisément ce qui se produit du fait de l'effet photoélectrique, des photoélectrons étant générés dans toute la structure multicouche. Cependant, ces photoélectrons seront beaucoup plus nombreux à la surface de la multicouche qu'en profondeur, à cause de l'absorption des photons XUV. De plus, les photoélectrons ont en général un libre parcours moyen de quelques angströms [Pepper S. V., 1970] dans l'empilement multicouche. Ces deux raisons cumulées font que le photocourant qui sera mesuré à la surface du miroir sera composé uniquement des électrons de surface. On peut alors écrire que ce photocourant mesuré $i_{mir}(\omega)$ est proportionnel à l'onde stationnaire provenant de l'interférence à la surface du miroir entre les amplitudes des faisceaux incident $A_{in}(\omega)$ et réflechi $A_{out}(\omega)$ [Aquila A. et al., 2008, Suman M. et al., 2009, Loch R. A. et al., 2011], voir l'équation (2.6) :

$$\begin{aligned} i_{mir}(\omega) &= C(\omega) \cdot |A_{in}(\omega) + A_{out}(\omega)|^2 \\ &= C(\omega) \cdot |A_{in}|^2 \cdot \left[1 + R_{mir} + 2\sqrt{R_{mir}} \cdot \cos(\varphi_{mir})\right] \end{aligned} \tag{2.6}$$

Dans cette équation, $C(\omega)$ est un paramètre dépendant du matériau duquel les électrons sont émis, c'est à dire le matériau de la couche de surface. Pour supprimer cette inconnue, l'idée est de mesurer un photocourant $i_{ref}(\omega)$ de référence. Ce dernier doit provenir d'un échantillon de référence fait du même matériau que la couche de surface du miroir multicouche, de manière à ce que $C(\omega)$ soit le même que celui intervenant dans la mesure de $i_{mir}(\omega)$. Ainsi, en évaluant le rapport $\frac{i_{mir}(\omega)}{i_{ref}(\omega)}$ et noté $J(\omega)$, on peut supprimer l'influence de $C(\omega)$,

voir l'équation (2.7).

$$J(\omega) = \frac{i_{mir}(\omega)}{i_{ref}(\omega)} = \frac{1 + R_{mir} + 2\sqrt{R_{mir}} \cdot \cos(\varphi_{mir})}{1 + R_{ref} + 2\sqrt{R_{ref}} \cdot \cos(\varphi_{ref})} \tag{2.7}$$

Cependant, la phase de la référence $\varphi_{ref}(\omega)$ reste inconnue. L'hypothèse généralement faite à ce stade est que la réflectivité R_{ref} est négligeable [Aquila A. et al., 2008], puisque l'échantillon de référence est composé d'une simple couche mince. On peut alors considérer que le dénominateur de l'équation (2.7) vaut 1, la mesure de $i_{ref}(\omega)$ revient alors à une mesure directe de $C(\omega)$. La réflectivité R_{mir} étant déjà connue, l'extraction de la phase φ_{mir} devient triviale.

D'un point de vue expérimental, les mesures de photocourant sont relativement simples. Il suffit de débrancher le pico-ampèremètre qui était relié à la photodiode utilisée pour les mesures de réflectivité, et de le connecter au porte-échantillon. En quelques sortes, le miroir devient alors la photodiode.

La ligne de métrologie d'un synchrotron, telle que la ligne BEAR sur Elettra, permet donc d'accéder à la fois à la réflectivité et à la phase d'un miroir multicouche. Cependant, nos miroirs sont voués à façonner des impulsions attosecondes, il est donc également nécessaire de les tester dans les conditions réelles d'une source attoseconde. Pour ce faire, nous avons utilisé une source d'impulsions attosecondes du CEA-Saclay.

2.2.4 Caractérisation des miroirs sur source attoseconde

Même si la source de rayonnement change, l'idée reste de mesurer la réponse en amplitude et en phase d'un miroir multicouche. Et d'une certaine manière, la caractérisation d'un miroir multicouche sur une source attoseconde possède des similitudes avec les mesures de réfléctivité sur un synchrotron. En effet, on procède dans les deux cas de manière différentielle : on comparait le flux mesuré avec et sans miroir dans le cas d'une mesure de réflectivité sur synchrotron, on va maintenant comparer le spectre et la phase spectrale d'une impulsion attoseconde avec et sans le miroir à caractériser, les variations observées donnant la réflectivité et la phase spectrale du miroir. Mais la caractérisation sur source attoseconde possède également un point commun avec les mesures de photocourant précédentes, puisque comme nous allons le voir, il sera nécessaire d'avoir recours à une référence. La première génération des miroirs attosecondes présentée dans la partie suivante, a ainsi pu être caractérisée sur une source attoseconde du Service Photons, Atomes et Molécules (SPAM) du CEA-Saclay, en collaboration avec l'équipe du docteur Pascal Salières.

Source attoseconde basée sur le laser LUCA du CEA-Saclay

Pour effectuer cette caractérisation, nous avons utilisé la ligne attoseconde décrite sur la Fig. 2.7. Le laser Titane-Saphire LUCA (Laser Ultra-Court Accordable) génère des impulsions de 50 fs à 792 nm de longueur d'onde et à une cadence de $20\,Hz$. A l'aide d'un premier miroir à 45° possédant en son centre un trou de $8\,mm$ de diamètre, le faisceau est séparé en un faisceau annulaire et un faisceau central, ce dernier passant par une

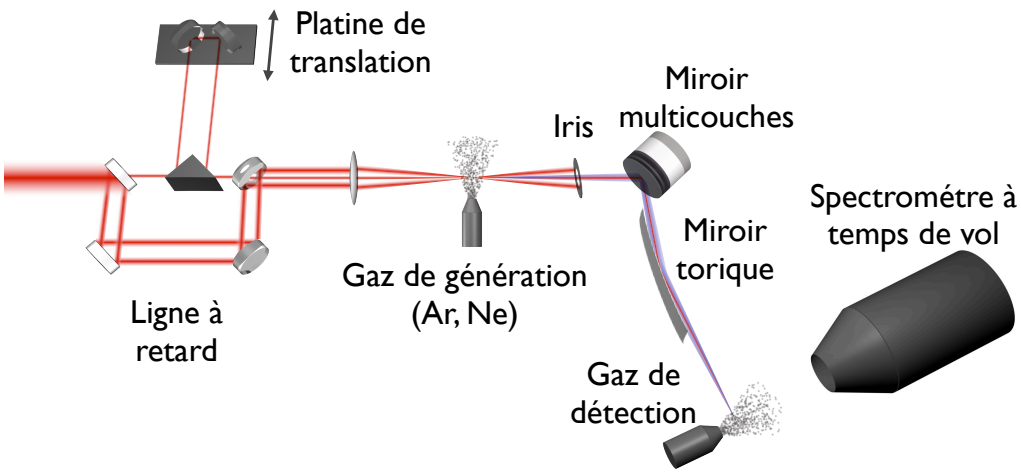


FIGURE 2.7 – **Schéma de la source d'impulsions attosecondes basé sur le laser LUCA du CEA-Saclay.** A partir de la lentille de focalisation du faisceau IR, la ligne est placée sous vide.

ligne à retard pour régler finement sa synchronisation avec la partie annulaire. Chacun de ces faisceaux a un rôle bien précis : le faisceau annulaire est le plus intense et transporte une énergie de $4.1\,mJ$, il servira à la génération des harmoniques d'ordre élevé. Le faisceau central beaucoup moins intense transporte une énergie de l'ordre de $35\,\mu J$, et jouera le rôle de faisceau infrarouge d'habillage pour permettre une mesure RABITT. Une lentille d'une focale de $1\,m$ focalise ensuite les deux faisceaux dans un jet de gaz, typiquement de l'argon ou du néon, dont le débit est contrôlé par un vanne piézoélectrique. Le faisceau annulaire intense génère les harmoniques puis se trouve stopper par un iris situé $80\,cm$ après le jet de gaz, qui laisse cependant passer le faisceau XUV moins divergent et le faisceau infrarouge central. Les deux faisceaux sont ensuite réfléchis par le miroir à tester, avant d'être refocalisés par un miroir torique en incidence rasante dans un spectromètre à temps de vol à bouteille magnétique. Cette architecture rend la source attoseconde relativement compacte et stable mais empêche de placer un filtre métallique dans le faisceau XUV. En effet, le faisceau IR d'habillage étant colinéaire au faisceau XUV durant toute la propagation, un filtre métallique stopperait le faisceau IR d'habillage, empêchant la mesure RABITT.

Principe de la caractérisation

Comme nous l'avons dit, l'idée générale de la caractérisation est d'évaluer la réflectivité complexe du miroir en mesurant des impulsions attosecondes avec et sans miroir multicouche. L'équation (2.8) permet ainsi de déduire la réflectivité R_{mir} et la phase φ_{mir} du miroir en fonction des amplitudes complexes des champs attosecondes incident $A_{in}(\omega)$ et réfléchi $A_{out}(\omega)$:

$$r_{mir}(\omega) = \sqrt{R_{mir}(\omega)}e^{i\varphi_{mir}(\omega)} = \frac{A_{out}(\omega)}{A_{in}(\omega)} = \frac{\sqrt{S_{out}(\omega)}e^{i\varphi_{out}(\omega)}}{\sqrt{S_{in}(\omega)}e^{i\varphi_{in}(\omega)}} \tag{2.8}$$

S_{in} et S_{out} représentent les spectres des impulsions attosecondes avant et après réflexion, et φ_{in} et φ_{out} les phases spectrales associées. Pour utiliser cette équation, il faut pouvoir mesurer le champ attoseconde incident $A_{in}(\omega)$, c'est à dire le champ émis par la source attoseconde. Et en toute rigueur cette mesure doit être suffisamment rapprochée dans le temps de celle du champ réfléchi pour ne pas être sensible aux fluctuations de la source attoseconde au jour le jour. Cependant, comme le montre la Fig. 2.7, une fois le montage expérimental mis en place, il n'est pas aisé de le modifier pour mesurer le flux directement émis par la source.

Pour contourner cette difficulté, nous avons mis en place une procédure d'étalonnage de la source attoseconde en deux temps. Tout d'abord, avant le début de la campagne d'expérience en elle-même, on mesure les impulsions émises par la source attoseconde dans une configuration expérimentale similaire à celle de la référence [Mairesse Y. et al., 2003], supprimant le miroir multicouche du montage. La seule optique restante est alors le miroir torique de la Fig. 2.7. Lors de cette réflexion en incidence rasante, le champ électrique attoseconde se réfléchit à la surface du miroir sans pénétrer dans la matière, ce qui donne au miroir une réfléctivité et une phase quasiment constante et linéaire respectivement. Les mesures que l'on obtient alors servent de mesures directes de la source attoseconde.

Puis, on met en place le montage final décrit sur la Fig. 2.7. Pour pouvoir réétalonner la source avant et après chaque caractérisation d'un miroir multicouche, on remplace ce dernier par un miroir de référence aux propriétés connues. On réalise ensuite une mesure du spectre $S_{out,ref}(\omega)$ et de la phase $\varphi_{out,ref}(\omega)$ réfléchis par ce miroir de référence. On peut alors obtenir la réponse spectrale du miroir à partir des mesures faites sur la référence grâce à l'équation suivante :

$$\sqrt{R_{mir}(\omega)}e^{i\varphi_{mir}(\omega)} = \sqrt{\frac{S_{out}(\omega)}{S_{out,ref}(\omega)} \cdot R_{ref}(\omega)} \cdot \exp\left[i\left(\varphi_{out}(\omega) - \varphi_{out,ref}(\omega) + \varphi_{ref}(\omega)\right)\right] \tag{2.9}$$

Avec $S_{out,ref}(\omega)$ et $\varphi_{out,ref}(\omega)$ le spectre et la phase spectrale de l'impulsion mesurée après réflexion sur le miroir de référence.

La mesure de la réflectivité et de la phase du miroir s'obtient alors facilement en prenant le module carré et la phase de l'équation (2.9). Mais pour être plus précis, nous avons vu que la technique RABITT ne reconstruisait pas la phase spectrale absolue d'une impulsion, mais son retard de groupe GD. Le résultat de la caractérisation sera donc donné par ces deux équations :

$$R_{mir}(\omega) = \frac{S_{out}(\omega)}{S_{out,ref}(\omega)} \cdot R_{ref}(\omega) \tag{2.10}$$

$$GD_{mir}(\omega) = GD_{out}(\omega) - GD_{out,ref}(\omega) + GD_{ref}(\omega) \tag{2.11}$$

2.3 Miroirs de première génération : optimisation spectrale et façonnage d'impulsions

Tous les outils que nous avons présentés jusqu'à présent nous ont permis de développer une première génération de miroirs attosecondes. A la différence de *mattos* 7 et 8, ces nouveaux miroirs furent développés pour façonner la phase spectrale des impulsions attosecondes en plus de leur spectre, et pour être testés sur une véritable source attoseconde.

2.3.1 Performances théoriques des miroirs de première génération

Cahier des charges

Pour développer des miroirs adaptés à la source attoseconde du CEA-Saclay, nous avons dès le départ conçu les miroirs en collaboration avec l'équipe du docteur Pascal Salières. En particulier, nous avons considéré une source à génération d'harmoniques d'ordre élevé générées dans l'argon. Nous considérons une intensité typique de $2 \times 10^{14}\, W.cm^{-2}$ pour un faisceau IR à $800\, nm$. Les harmoniques obtenues dans ces conditions de génération sont particulièrement intenses. De plus, d'après l'équation (1.34), une telle source possède son énergie de coupure autour de $55\, eV$. Nous avons donc choisi cette énergie comme la limite supérieure pour la plage spectrale d'optimisation des miroirs. Concernant les basses énergies, nous nous sommes limités à $35\, eV$ du fait du manque d'indices fiables pour nos matériaux en-dessous de cette énergie. La plage spectrale choisie pour l'optimisation des miroirs fut donc fixée à la gamme $35 - 55\, eV$.

Sur cette plage, nous avons cherché à réfléchir un maximum de flux pour s'assurer qu'une caractérisation sur source attoseconde soit possible, tout en optimisant un profil de phase spectrale donné. En particulier, deux comportements peuvent être imaginés :

- Le miroir possède une phase linéaire, c'est à dire une GDD nulle, il ne modifie pas le *chirp* du rayonnement et réfléchit l'impulsion sans la déformer, on peut voir un tel miroir comme **un miroir de transport d'impulsion**.
- Le miroir a une phase spectrale parabolique convexe, c'est à dire une GDD négative, il peut compenser tout ou partie de la dérive de fréquence de l'impulsion lors de sa réflexion, c'est **un miroir de compression d'impulsion**.

Etant donnés les paramètres à optimiser, nous avons choisi la forme suivante pour la fonction de mérite de l'algorithme de recuit simulé :

$$\epsilon = w_R \cdot \left[\sum_{\Delta\omega} \left(R_{mir}(\omega) - R_{mir}^{target} \right)^2 \right] + w_{GDD} \cdot \left(GDD_{\Delta\omega} - GDD^{target} \right)^2, \tag{2.12}$$

où R_{mir}^{target} et GDD^{target} correspondent aux valeurs ciblées, et w_R et w_{GDD} les poids associés dans la fonction de mérite.

Enfin, le dernier paramètre à déterminer fut l'angle d'incidence des miroirs. Les miroirs *mattos* 7 et 8 donnés en exemple au début du chapitre avaient été conçus pour être utilisés en incidence normale. Dans ces conditions, une impulsion attoseconde incidente peut pénétrer profondément dans le miroir. Il est alors possible d'optimiser des structures multicouches possédant un grand nombre de couches, tel que 48 pour *matto* 7. Cela a l'avantage de faciliter le contrôle de la phase spectrale, puisque le nombre de couches et donc de degrés de liberté est important. Cependant, la caractérisation sur une source attoseconde d'un miroir travaillant en incidence normale serait très difficile, voire impossible avec le montage expérimental décrit sur la Fig. 2.7. C'est pourquoi nous avons choisi d'optimiser les miroirs pour un angle de 45° de manière à obtenir une déviation du faisceau de 90° sur un montage expérimental. Dans ces conditions et pour des énergies comprises entre 35 et $55\,eV$, l'empilement ne peut excéder une dizaine de couches, le champ étant absorbé au-delà.

Résultats de l'optimisation

A l'issue des optimisations, nous avons obtenu quatre structures multicouches. Pour marquer la différence avec les premiers miroirs attosecondes, nous avons incrémenté d'une dizaine les numéros donnés à ces miroirs, et les avons appelés *mattos* 10, 11, 12 et 13. Les réflectivités et phases de ces quatre miroirs, ainsi que les structures multicouches de deux d'entre eux sont reportés sur la Fig. 2.8. Sur ces quatre miroirs, deux furent optimisés pour avoir des phases linéaires, à savoir *mattos* 10 et 11, et deux furent optimisés pour être inversement chirpés par rapport au rayonnement XUV incident, *mattos* 12 et 13. Comme attendu, le nombre de couches des structures est faible, 7 pour *matto* 12 en ne comptant pas la couche d'oxyde de surface. Cela n'empêche cependant pas ces miroirs d'avoir les performances souhaitées. En effet, on voit nettement que, sur la plage $35-55\,eV$ optimisée, correspondant à la bande claire sur les Fig. 2.8 (b-c) et (e-f), la réflectivité des miroirs atteint un maximum compris entre 10% et 30%. La phase quant à elle, suit l'évolution voulue, linéaire ou parabolique. De plus, il apparait que les miroirs à phase linéaire ont en moyenne une réflectivité plus importante que *mattos* 12 et 13 sur la plage $35-55\,eV$. En effet, pour ces derniers, les contraintes étant plus importantes sur la phase, la réflectivité est moins optimisée. En particulier, durant l'optimisation des miroirs chirpés *mattos* 12 et 13, nous avons essayé d'obtenir la GDD la plus importante possible en gardant une réflectivité supérieure à 10%. En suivant cette règle, nous avons pu obtenir une GDD de près de $-5000\,as^2/rad$ dans le cas de *matto* 12, et proche de $-8500\,as^2/rad$ pour *matto* 13, comme le montre le tableau 2.1. Hors de la plage $35-55\,eV$, les contraintes dues à l'optimisation s'étant relâchées, les performances des miroirs s'écartent sensiblement de celles visées : la réflectivité varie brusquement et s'effondre à haute énergie, et la phase connaît des sauts.

Enfin, pour l'étude expérimentale, nous avons décidé de ne conserver que trois structures. Le choix du miroir s'est fait entre *matto* 10 et *matto* 11 qui présentent tous les deux des phases linéaires. Nous avons alors privilégié la réfléctivité pic plus importante de *matto* 10, et avons décidé de ne pas fabriquer *matto* 11.

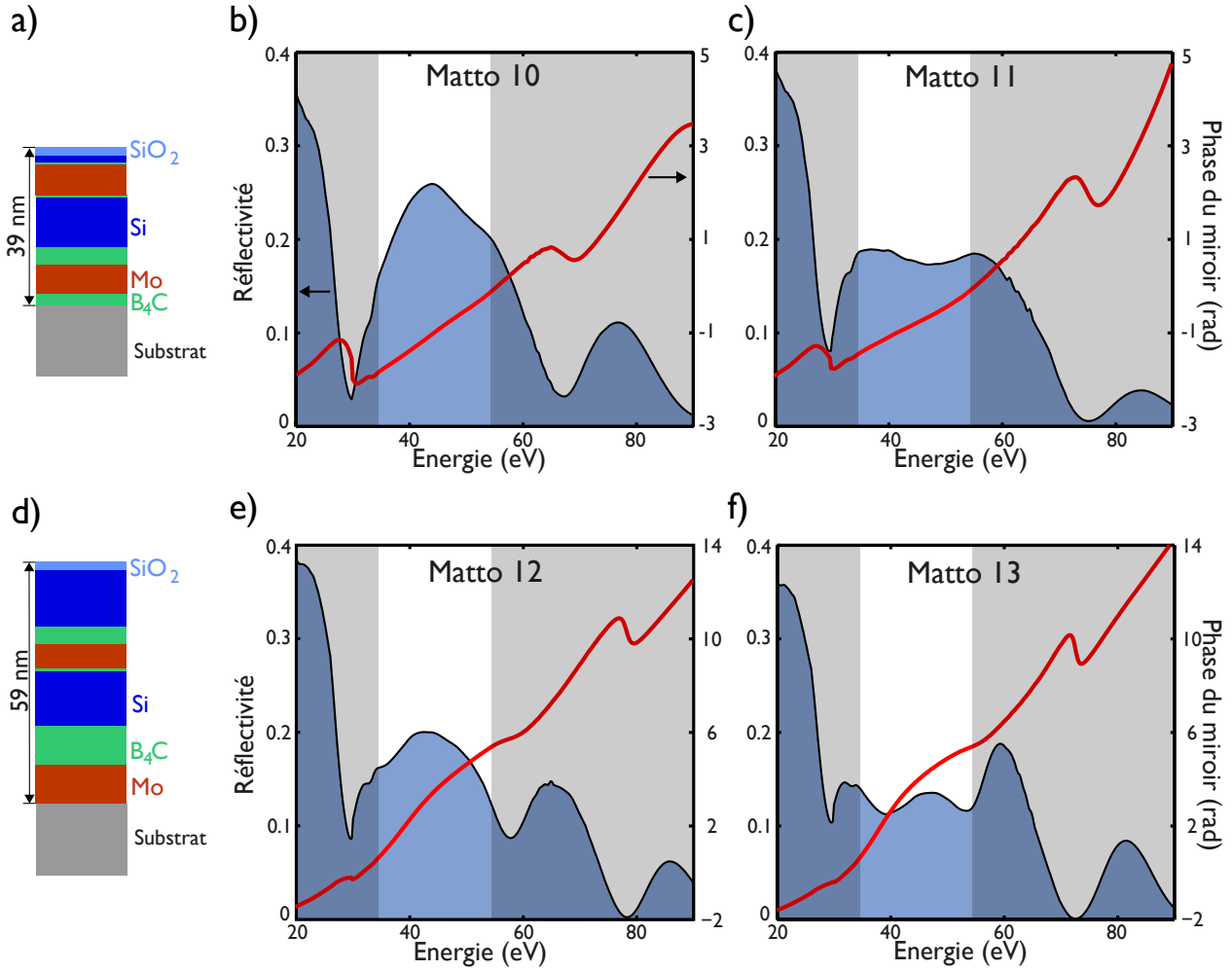


FIGURE 2.8 – **Miroirs obtenus à l'issue de l'optimisation.** (a-c) représentent les miroirs à phase linéaire, et (d-f) les miroirs chirpés. Pour (b-c) et (e-f), la réflectivité est représentée par la courbe colorée en bleu et la phase du miroir par la courbe rouge. La zone blanche au milieu des deux bandeaux gris correspond à la plage spectrale $35-55\,eV$ d'optimisation. En a) (resp. d), la structure multicouche de *matto* 10 (resp. *matto* 12) est représentée.

	Nombre de couches	GDD^{target}	GDD	Réflectivité
matto 10	8	$0\,as^2/rad$	$42\,as^2/rad$	$17-27\,\%$
matto 12	7	$-4500\,as^2/rad$	$-5150\,as^2/rad$	$10-20\,\%$
matto 13	9	$-8500\,as^2/rad$	$-8579\,as^2/rad$	$10-15\,\%$

TABLE 2.1 – **Performances des trois miroirs attosecondes sélectionnés à l'issue de l'optimisation.** Les GDD présentées sont moyennées sur la gamme $35-55\,eV$, et les réflectivités indiquées correspondent aux variations Pic-à-Vallée sur la même plage spectrale.

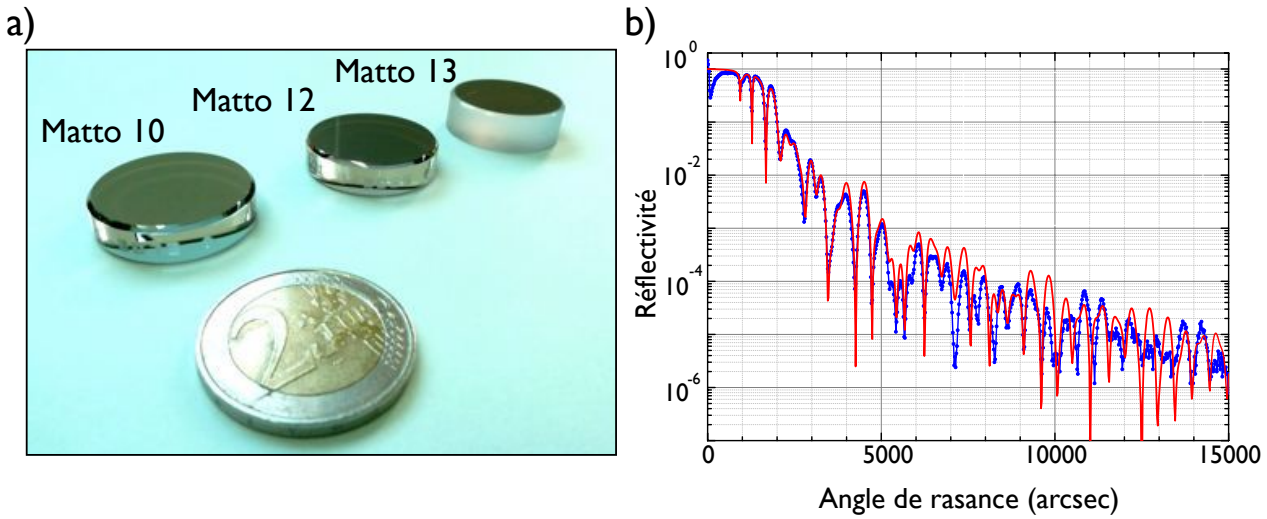


FIGURE 2.9 – **Résultat de la fabrication des miroirs.** a) Photo des trois miroirs. b) Mesure de la réflectivité (courbe bleue) de *matto* 12 à 0.154 nm obtenue par réflectomètrie en X-rasants. La courbe rouge est le résultat de la simulation.

Fabrication des miroirs

Pour la fabrication des miroirs, nous avons utilisé le bâti de dépôt MP800 précédemment décrit. Les empilements multicouches furent déposés sur des substrats de 1 *pouce* en silice superpolis et d'une rugosité de surface inférieure à 0.2 nm RMS. Comme on peut le voir sur la Fig. 2.9 a), le dépôt est visible à l'oeil nu sous la forme d'une coloration grise sur la face supérieure du substrat. Pour contrôler la qualité de la structure déposée, les miroirs furent caractérisés sur le réflectomètre en X-rasants précédemment décrit, comme le montre la Fig. 2.9 b). Les courbes ajustées à partir de ces mesures ont permis d'établir que la rugosité aux interfaces restait comprise entre 0.1 et 0.4 nm, ce qui est remarquable. Ces mesures ont également montré que les épaisseurs des différentes couches déposées correspondaient à celles visées à $\pm 0.2\,nm$ près.

2.3.2 Caractérisation des miroirs

L'étape finale dans le développement de ces miroirs fut celle de leur caractérisation. Pour cela, nous sommes d'abord allés sur la ligne de métrologie BEAR du synchrotron Elettra, où nous avons mesuré la réflectivité des miroirs sur la plage $30 - 74\,eV$. Les résultats sont présentés sur les Fig. 2.10 (f-h), et montrent un très bon accord avec les simulations. L'accord est légèrement moins bon sous $35\,eV$ du fait de la méconnaissance des indices exacts des matériaux dans cette gamme spectrale [Ménesguen Y. et al., 2010].

Quelques mois plus tard, nous avons démarré leur caractérisation sur la source attoseconde du CEA-Saclay précédemment décrite. Mais une source harmonique est loin d'être aussi rodée à la caractérisation d'optiques qu'une ligne de métrologie sur synchrotron. Chaque expérience y est unique avec un montage expérimental

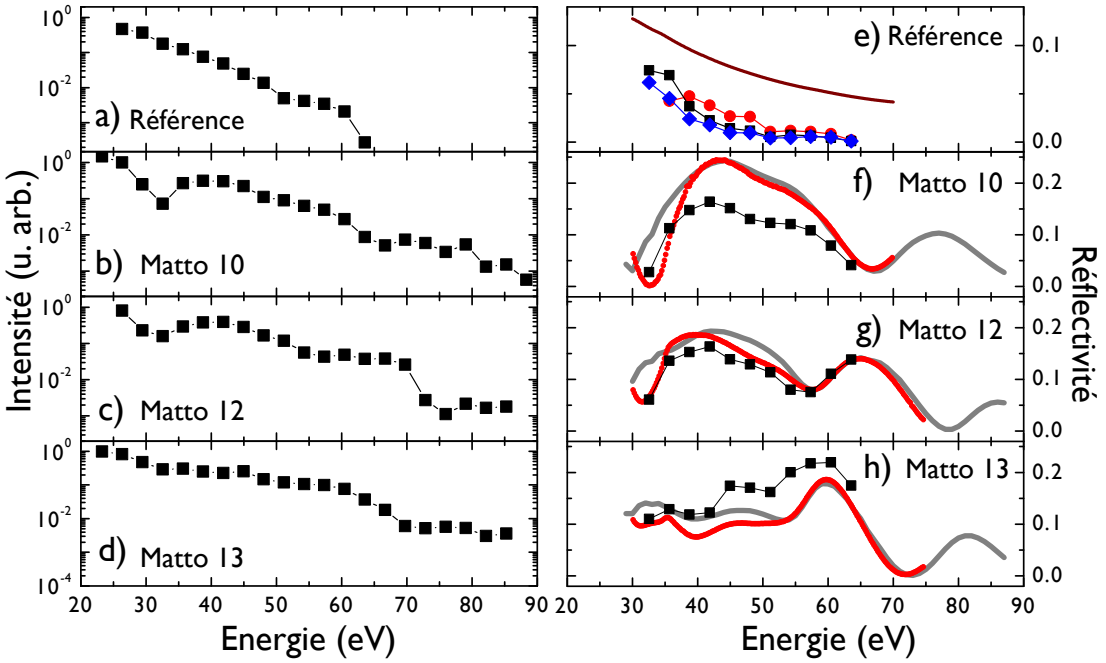


FIGURE 2.10 – **Résultat de la caractérisation de la réflectivité des miroirs sur synchrotron et sur source attoseconde.** (Colonne de gauche) Intensité des harmoniques mesurée à l'aide du spectromètre à temps de vol après réflexion sur le miroir d'argent (a), *matto* 10 (b), *matto* 12 (c) et *matto* 13 (d). Les spectres harmoniques sont normalisés par rapport à l'intensité de la première harmonique détectée. e) Réflectivité théorique du miroir d'argent d'après les indices tabulés du CXRO (courbe marron), et déduite expérimentalement à partir des réflectivités mesurées sur synchrotron pour *matto* 10 (ronds rouges), pour *matto* 12 (carrés noirs) et *matto* 13 (losanges bleus). (f-h) Réflectivités des miroirs multicouches théoriques (courbes grises), mesurées sur synchrotron (courbes rouges), et mesurées sur source harmonique (carrés noirs), pour *matto* 10 (f), *matto* 12 (g) et *matto* 13 (h).

spécifiquement conçu pour l'occasion. Et tout cela peut amener des difficultés expérimentales inattendues. Dans le cas de la caractérisation des miroirs multicouches, nous nous sommes heurtés à un premier problème en mettant en place le montage expérimental présenté à la Fig. 2.7. En effet, celui-ci rendait impossible le réglage d'un miroir à 45° d'incidence, la configuration la plus proche ne permettant de se placer qu'à 42°. Fort heureusement, les réponses des miroirs à ces deux angles restent très proches, ce qui en fait un problème mineur. Une difficulté supplémentaire est venue du miroir utilisé comme référence. Sa réponse spectrale a priori simple, s'est avérée totalement non triviale, ce qui a rendu plus complexe l'analyse des données expérimentales.

Etalonnage de la source attoseconde avec le miroir de référence

Comme nous l'avons vu précédemment, dans le principe, l'utilisation d'une référence était rendue nécessaire par le besoin de remesurer régulièrement le rayonnement émis par la source attoseconde, et par l'impossibilité de le faire sans une réflexion sur un miroir à 45°, voir le montage expérimental de la Fig. 2.7. Dès lors, connaissant

le retard de groupe et la réflectivité du miroir de référence, on en déduit ceux des miroirs mesurés par la suite en utilisant les relations (2.10) et (2.11). L'argent faisait a priori un bon candidat pour une référence. En effet, il possède une réflectivité décroissante avec l'énergie, mais comprise entre 5 % et 10 % sur la plage $35 - 55\,eV$ et toujours supérieure au pourcent à $100\,eV$. Dans le même temps, sa phase reste linéaire sur toute la plage spectrale d'étude, il n'introduit donc aucune GDD supplémentaire. Pour vérifier cela, nous devions cependant comparer les mesures faites après ce miroir avec les mesures directes faites en l'absence de miroir [Mairesse Y. et al., 2003].

On peut voir sur la Fig. 2.11 le résultat de la mesure directe (symboles noirs creux) du retard de groupe des impulsions en utilisant l'argon comme gaz pour la génération des harmoniques. Cette courbe est typique : le retard de groupe est linéairement croissant puisque les impulsions attosecondes possèdent une GDD intrinsèque constante et positive. De plus, la mesure est discretisée à cause du principe même du RABITT. En effet, une mesure de phase est obtenue pour chaque *sideband* de la trace RABITT, entre deux harmoniques consécutives.

Cependant, lorsque nous avons refait la mesure en plaçant le miroir d'argent de référence dans le faisceau, nous avons observé que les résultats obtenus (symboles rouges creux sur la Fig. 2.11) s'écartaient significativement des mesures directes. En effet, les retards de groupe possèdent une GDD supplémentaire induite par le miroir d'argent. Les droites d'ajustements effectués sur la plage $25 - 42\,eV$ et représentés sur la Fig. 2.11 nous ont permis d'évaluer la GDD du miroir d'argent $+5200\,as^2/rad$. Nous avons ensuite mesuré le retard de groupe du rayonnement après le miroir d'argent en utilisant cette fois le néon comme gaz de génération (symboles rouges pleins). Connaissant la GDD induite par le miroir d'argent, nous en avons déduit une mesure du retard de groupe émis par la source harmonique (ronds noirs pleins) dans le néon. Mais le retard de groupe restait inconnu au-delà de $62.5\,eV$. Cela vient du fait que l'intensité des harmoniques mesurées après le miroir d'argent s'effondre rapidement, et ne devient plus mesurable au-delà de $62.5\,eV$, comme le montre la Fig. 2.10 a). Pour pouvoir malgré tout disposer d'un retard de groupe au-delà de cette énergie, nous avons extrapolé les mesures précédentes. Etant donnés les principes de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz, et en accord avec les mesures de la référence [Mairesse Y. et al., 2003], nous avons considéré que le retard de groupe garderait la même évolution linéaire et croissante (pentagones noirs sur la Fig. 2.11) que pour les énergies inférieures à $62.5\,eV$. Tout cela nous a permis de disposer du retard de groupe au niveau de la source harmonique sur la plage $25 - 85\,eV$. Et c'est donc sur cette gamme spectrale que furent caractérisés par la suite les retards de groupe des miroirs.

Mesures de la réflectivité sur source attoseconde

Pour pourvoir caractériser la réflectivité des miroirs sur la source harmonique grâce à l'équation (2.10), il nous fallait également connaître la réflectivité du miroir d'argent. Comme nous l'avons vu, celui-ci était loin de posséder la réflectivité attendue, les harmoniques ne devenant plus mesurables au-delà de $62.5\,eV$, soit bien plus rapidement que ne le prévoyaient les valeurs tabulées. L'argent ne pouvant posséder une réflectivité aussi faible à ces énergies, la seule explication que nous ayons trouvée est qu'une couche de pollution a fini par se

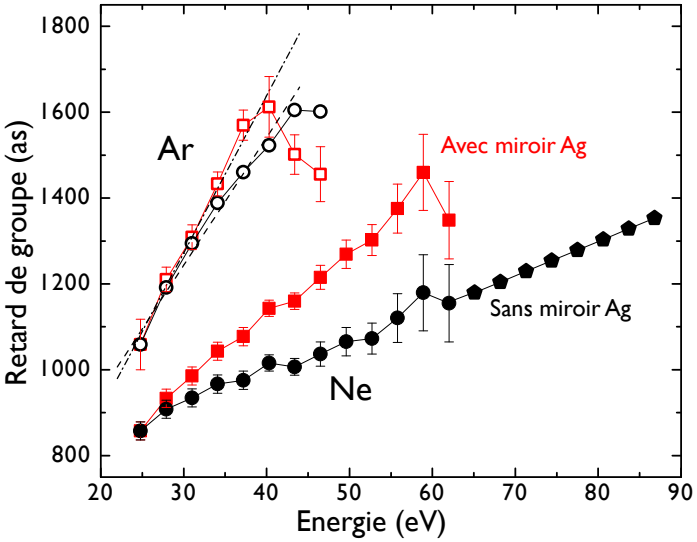


FIGURE 2.11 – **Comparaison entre les retards de groupe obtenus sans et avec le miroir en argent.** Les symboles vides correspondent aux retards de groupe mesurés en utilisant l'argon comme gaz de génération des harmoniques, les symboles pleins à ceux mesurés dans le néon. Les courbes noires (resp. rouges) représentent les mesures effectuées sans (resp. avec) le miroir en argent. Les lignes en pointillés et pointillés mixtes représentent les ajustements linéaires sur la plage $25 - 42\,eV$. Les pentagones noirs correspondent aux retards de groupe extrapolés dans le néon.

déposer sur l'argent, provoquant la GDD supplémentaire et la baisse de réflectivité.

Pour estimer malgré tout la réflectivité des miroirs multicouches, nous avons tout d'abord mesuré le spectre harmonique obtenu après réflexion sur tous les miroirs (Fig. 2.10 (a-d)). Puis, étant donné l'excellent accord entre les réflectivités des miroirs simulées et mesurées sur synchrotron, nous avons utilisé ces dernières comme référence dans l'équation (2.10). En prenant le rapport de chaque courbe (b-d) de la Fig. 2.10 et de la réflectivité mesurée sur synchrotron correspondante, nous avons pu déduire trois spectres possibles pour la source attoseconde. Puis nous avons divisé à nouveau chaque courbe (b-d) par le spectre à la source obtenu avec les deux autres miroirs, pour éviter tout auto-référencement. Comme le montre la Fig. 2.10 (f-h), les réflectivités obtenues sont proches dans leurs formes et dans leur niveau absolu des réflectivités théoriques et mesurées sur synchrotron, en particulier pour *mattos* 12 et 13.

Enfin, pour compléter cette étude des réfléctivités, nous avons utilisé les trois spectres à la source obtenus à l'aide des réflectivités mesurées sur synchrotron, pour reconstruire trois réflectivités possibles pour le miroir d'argent, en utilisant la courbe Fig. 2.10 a). Les résultats sont représentés sur la Fig. 2.10 e) avec la réflectivité théorique de l'argent massif. La plage spectrale sur laquelle la réflectivité du miroir d'argent a pu être reconstruite est limitée, par la plage des mesures sur synchrotron à basse énergie, et par le spectre mesuré après le miroir d'argent (Fig. 2.10 a)) à haute énergie. Les réflectivités obtenues sont sensiblement les mêmes, et sont dans les trois cas bien plus basses que celle simulée.

Mesure du retard de groupe sur source attoseconde

Mais la vraie valeur ajoutée d'une source harmonique est de permettre la caractérisation de la phase des miroirs par la technique RABITT. Nous avons donc mesuré le retard de groupe du rayonnement harmonique après réflexion sur chaque miroir attoseconde. La résolution en énergie d'un spectromètre à temps de vol est meilleure pour les photons XUV ayant une énergie proche du potentiel d'ionisation du gaz utilisé, mais se dégrade à mesure que leur énergie augmente. Pour assurer une bonne résolution spectrale sur toute la plage de mesure, il est possible d'appliquer un potentiel retard décalant la gamme d'énergies mesurables. Dans le cas de nos miroirs attosecondes, la plage à mesurer étant très large, nous avons appliqué quatre potentiels retards différents de $0\,V$, $9\,V$, $18\,V$ et $27\,V$. Nous avons ensuite fusionné les données obtenues sur les différentes plages spectrales, les retards de groupe mesurés étant représentés sur la Fig. 2.12 avant (a-c) et après (d-f) avoir été moyénnés. A ce stade, on peut déjà deviner le comportement des miroirs. En effet, les retards de groupe obtenus correspondent à la somme de ceux de la source harmonique et des miroirs. Or entre $35\,eV$ et $55\,eV$, le retard de groupe du rayonnement augmente linéairement après réflexion sur *matto* 10 (Fig. 2.12 d)), devient constant après réflexion sur *matto* 12 (Fig. 2.12 e)), et devient même linéairement décroissant après réflexion sur *matto* 13 (Fig. 2.12 f)). Cela confirme donc la GDD nulle de *matto* 10, et négative pour les *mattos* 12 et 13 sur la gamme $35-55\,eV$. Pour obtenir la réponse en phase des miroirs, il nous restait donc à soustraire le retard de groupe de la source aux mesures précédentes. Comme le montre la Fig. 2.12 (g-i), l'accord entre la réponse en phase expérimentale du miroir et celle simulée est remarquable pour les trois miroirs. Non seulement, on retrouve bien la GDD des miroirs sur la plage optimisée, mais on peut également voir que la position des sauts de phase des miroirs autour de $70\,eV$ est bien respectée. Enfin, sous $35\,eV$, la réponse des miroirs attosecondes s'écarte de celle simulée du fait des indices utilisés pour la simulation, ce que nous avions déjà constaté pour les réflectivités mesurées sur synchrotron.

Reconstruction temporelle des impulsions

La reconstruction des impulsions attosecondes réfléchies par les miroirs nécessitent la connaissance de leur spectre et de leur phase spectrale dans leur intégralité. Or ces informations ne peuvent être mesurées que pour des énergies supérieures au potentiel d'ionisation du gaz utilisé pour la caractérisation par RABITT, et restent inconnues pour des énergies inférieures. La solution la plus évidente consiste à employer un filtre métallique absorbant le rayonnement non mesurable. Or, comme nous l'avons vu, le montage expérimental utilisé ne permet pas de placer un filtre sur le chemin de l'impulsion. Mais rien ne nous empêche en revanche de filtrer numériquement les amplitudes et les retards de groupe mesurés en utilisant les valeurs tabulées de transmission des filtres, et de reconstruire les profils d'impulsions associés à l'aide de la transformée de Fourier.

Tout d'abord, pour pouvoir mettre en évidence les effets induits uniquement par les miroirs sur la structure des impulsions attosecondes, nous avons choisi un filtre porte, c'est à dire de transmission constante sur la plage $32.5-63.5eV$ et nulle en dehors. Cette bande passante représente en effet la plage spectrale sur laquelle

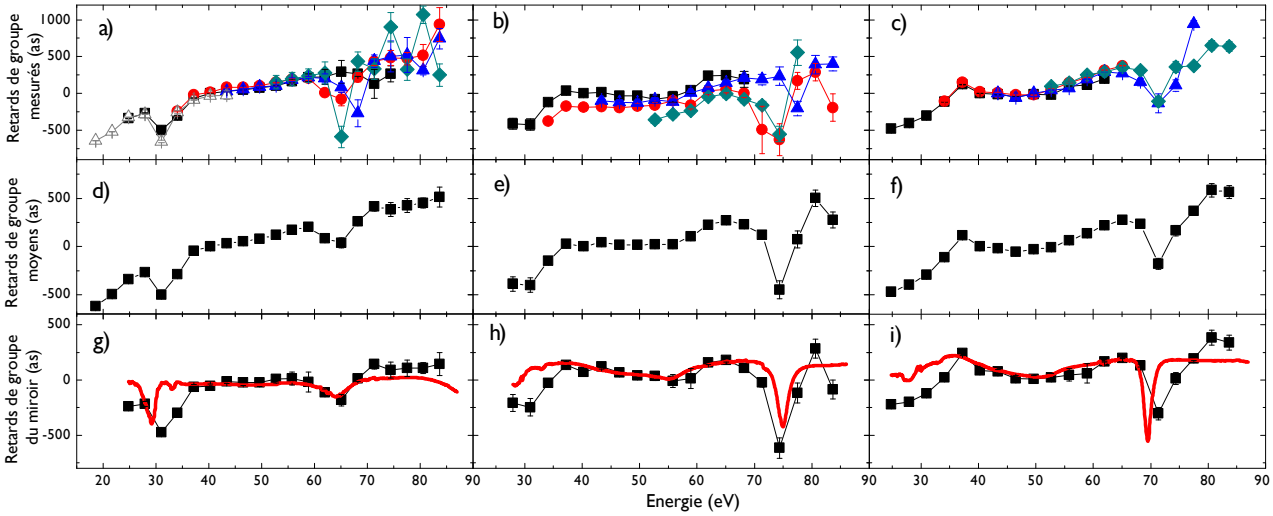


FIGURE 2.12 – **Résultat de la mesure du retard de groupes des miroirs sur une source attoseconde.** (Panneaux supérieurs) Retards de groupe mesurés pour *matto* 10 (a), *matto* 12 (b) et *matto* 13 (c) grâce à la technique RABITT, et en utilisant un potentiel retard de $0\,V$ (carrés noirs), $9\,V$ (ronds rouges), $18\,V$ (triangles bleus) et $27\,V$ (losanges verts). Les triangles blancs (a) indiquent une mesure faite en utilisant l'argon comme gaz de détection, les autres mesures sont faites dans le néon. (Panneaux du milieu) Retards de groupe moyennés dans le cas de *matto* 10 (d), *matto* 12 (e) et *matto* 13 (f). (Panneaux inférieurs) Retards de groupe induits par *matto* 10 (g), *matto* 12 (h) et *matto* 13 (i), déduits de l'équation (2.11) (carrés noirs) et simulés (courbe rouge) pour un angle d'incidence de 42°.

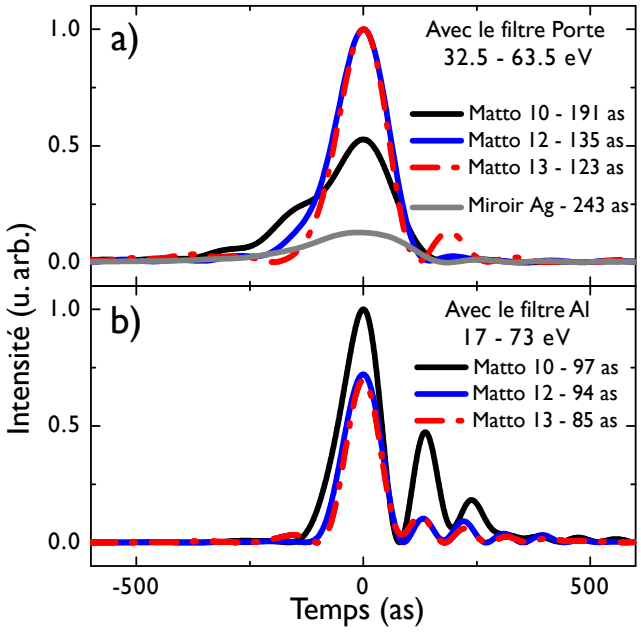


FIGURE 2.13 – **Reconstruction temporelle des impulsions attosecondes obtenues après réflexion sur les miroirs attosecondes et le miroir en argent.** On applique numériquement a) un filtre porte ne conservant que la plage $32.5-63.5\,eV$, et b) un filtre de $250\,nm$ d'aluminium. La durée à mi-hauteur (FWHM) est indiquée pour chaque impulsion.

le retard de groupe du miroir d'argent a été mesuré, et correspond donc à la seule gamme spectrale de mesure commune à tous les miroirs. Les impulsions obtenues après filtrage sont représentées sur la Fig. 2.13 a). Les impulsions de $135\,as$ et $123\,as$ obtenues après réflexion sur *mattos* 12 et 13 respectivement sont deux fois plus courtes et cinq fois plus intenses que celle réflechie par le miroir d'argent. Comme on s'y attendait, *matto* 10, qui ne compense pas le *chirp* intrinsèque des impulsions, donne un profil temporel et une durée assez différents. Cela montre l'effet de la compensation de l'atto-chirp réalisée par *matto* 12 et 13. Enfin, on peut remarquer que la plage spectrale $32.5 - 63.5eV$ choisie pour la reconstruction temporelle est un peu plus large que la plage optimisée de $35 - 55\,eV$ sur laquelle l'atto-chirp est compensé. Les durées d'impulsions obtenues sont cependant très proches de celles de leurs limites de Fourier, qui sont de $124\,as$ pour *matto* 12, et de $115\,as$ pour *matto* 13.

Dans un second temps, nous avons cherché à reconstruire des profils d'impulsions que l'on obtiendrait en utilisant un véritable filtre métallique. La Fig. 2.13 b) montre donc les profils temporels obtenus en ajoutant numériquement un filtre usuel de $250\,nm$ d'aluminium, et basé sur sa transmission complexe tabulée dans la base du CXRO. La bande passante de ce filtre s'étend de $17\,eV$ jusqu'à son seuil d'absorption à $73\,eV$. Etant donné le manque de données expérimentales sur les miroirs attosecondes autour de $17\,eV$, nous avons utilisé les retards de groupe et réflectivités théoriques en dessous de $20\,eV$. Au-dessus de $30\,eV$, seules les données mesurées furent utilisées. Et dans la plage spectrale intermédiaire, les résultats théoriques et expérimentaux furent moyennés pour assurer la continuité des données. Dans les trois cas, les durées d'impulsions passent sous le seuil des $100\,as$. Cette compression vient du fait que le filtre d'aluminium possède une GDD négative sous $35\,eV$, ce qui compense la GDD intrinsèque des impulsions attosecondes sur cette gamme spectrale. Plus précisément, en combinant ce filtre d'aluminium avec *matto* 12 ou *matto* 13, on peut compenser l'atto-chirp sur une très large plage spectrale. Cela réduit la durée des impulsions à $85\,as$, ce qui est proche de la limite de Fourier de $74\,as$. Quant à *matto* 10, le profil d'impulsion obtenu est composé d'un pic principal suivi de répliques d'intensités décroissantes.

Le fait que l'on puisse obtenir un tel profil d'impulsion avec les miroirs attosecondes montre que ces miroirs peuvent faire plus que de la post-compression d'impulsions attosecondes. Ils peuvent également être utilisés pour façonner des profils temporels complexes.

2.3.3 Façonnage d'impulsions attosecondes

De manière générale, on peut définir un façonneur d'impulsions comme un outil permettant d'obtenir des profils d'impulsions non standards, et de les modifier à loisir en fonction des applications. Dans le cas de nos miroirs multicouches, les profils non standards correspondent aux battements attosecondes. Et pour les rendre accordables, nous avons joué sur le seul paramètre fixé lors de l'optimisation et qui soit facilement modifiable, à savoir l'angle d'incidence. Nous nous sommes donc intéressé à l'évolution de la réponse des miroirs en fonction de ce dernier.

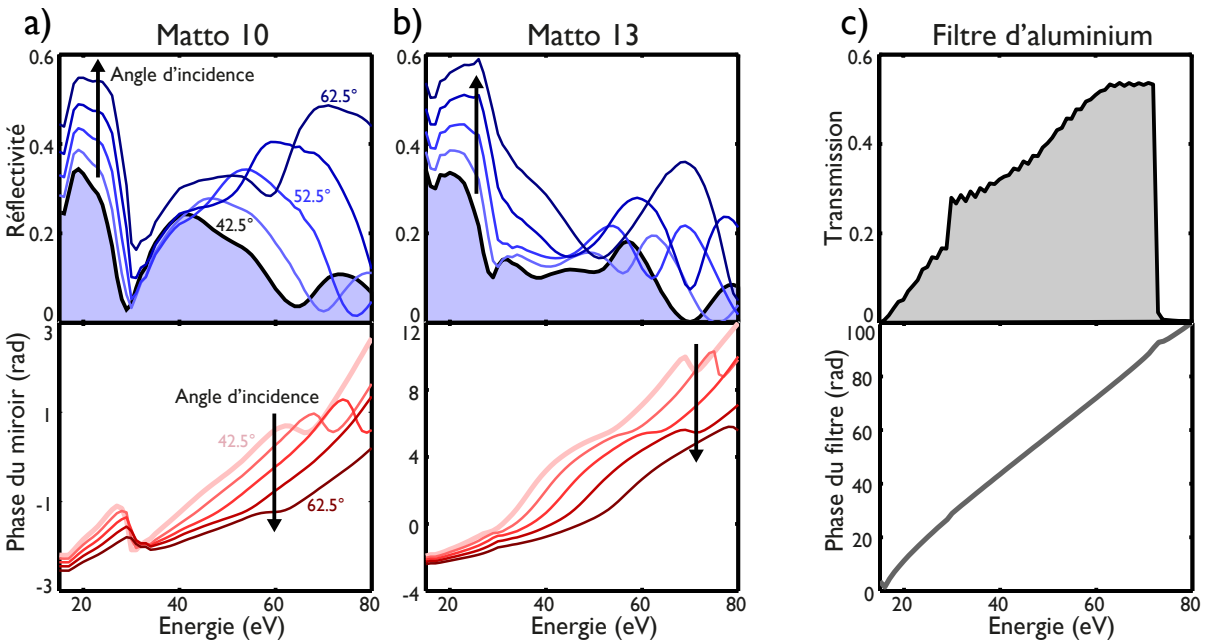


FIGURE 2.14 – **Simulation de l'évolution de la réflectivité et de la phase de *matto* 10 et *matto* 13 en fonction de l'angle d'incidence.** Réflectivité (courbes bleues) et phase (courbes rouges) de *matto* 10 (a) et *matto* 13 (b) entre 42.5° et 62.5° par pas de 5°. c) Transmission et phase du filtre de 250 nm d'aluminium calculées en utilisant les bases d'indices du CXRO pour les énergies supérieures à 30 eV. En dessous, Les indices du Palick sont utilisés, ce qui explique la discontinuité dans la transmission du filtre d'aluminium à 30 eV.

Accordabilité angulaire des miroirs

Puisque les résultats expérimentaux ont montré un très bon accord entre les retards de groupe mesurés et simulés à 42°, nous avons considéré que la réponse des miroirs pour d'autres angles pouvait être simulée de manière fiable. En modifiant l'angle d'incidence du faisceau sur le miroir, on modifie sa réflectivité et sa phase. Plus précisément, la réflectivité complexe de la structure multicouche varie avec le cosinus de l'angle d'incidence. En incidence normale, la réponse du miroir est très robuste à l'angle d'incidence, mais autour de 45°, elle varie sensiblement avec l'angle. En effet, comme le montre la Fig. 2.14 dans le cas de *matto* 10 et 13, plus l'angle d'incidence augmente, plus on se rapproche du phénomène de réflexion totale, et plus la réflectivité augmente. Concernant la phase, en dessous de 35 eV, il apparait qu'en augmentant l'angle, elle reste sensiblement la même. Au dessus de 35 eV, on s'écarte progressivement du profil optimisé, la phase tend alors à devenir concave. En d'autres termes, les GDD de *matto* 10 et 13 respectivement nulle et négative autour de 45° deviennent positives pour des angles plus importants. On peut donc imaginer changer la forme d'une impulsion en tournant simplement le miroir.

Cependant expérimentalement, ce principe serait difficilement applicable puisqu'il faudrait réaligner le détecteur pour chaque nouvelle rotation du miroir. Pour contourner ce problème, l'idée fut de combiner deux miroirs placés en vis-a-vis sur une platine de rotation, comme le montre l'insert de la Fig. 2.15 a). De cette

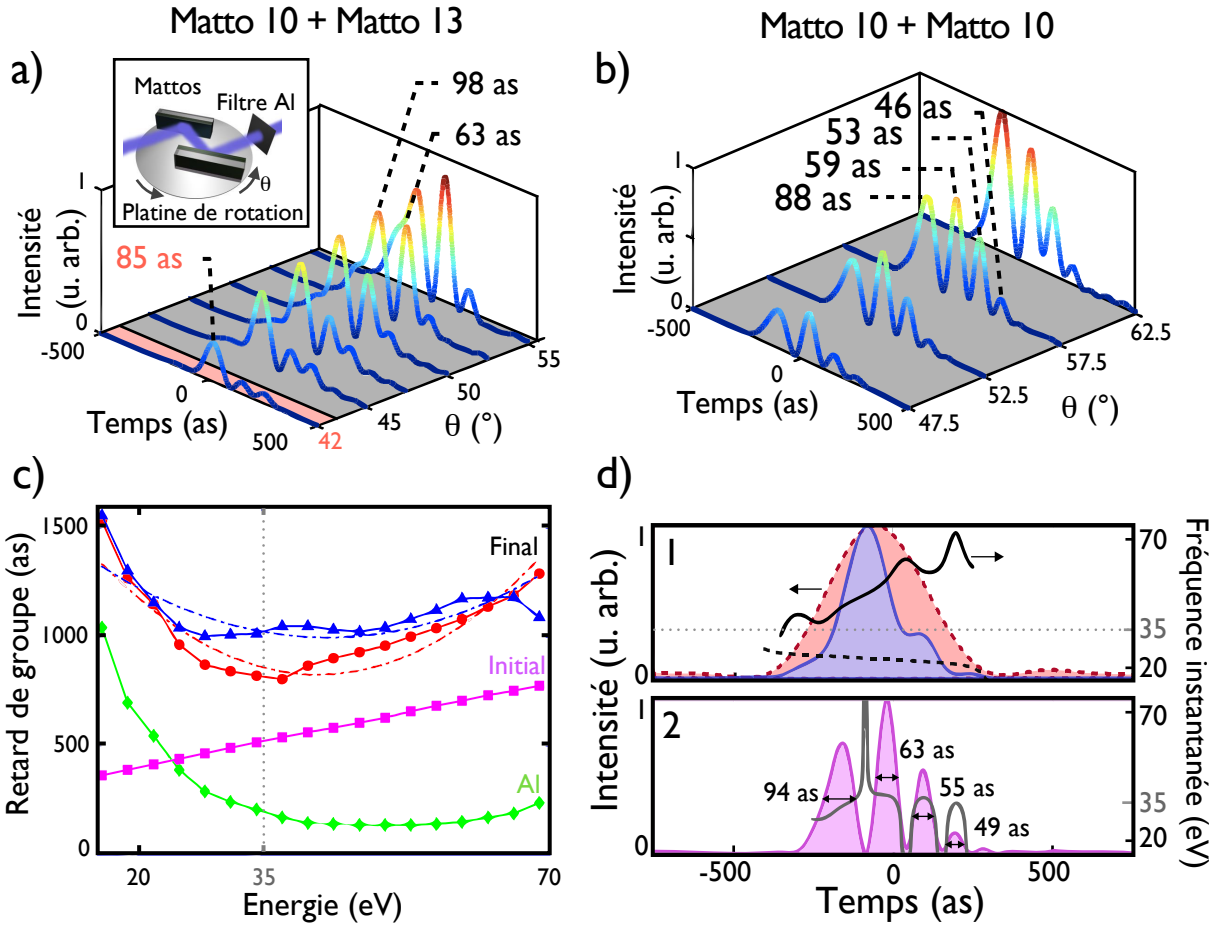


FIGURE 2.15 – **Contrôle des battements attosecondes dans les impulsions** a) insert : le façonneur est basé sur deux miroirs attosecondes montés sur une platine de rotation et combinés avec un filtre de 250 nm d'aluminium. Evolution des impulsions en fonction de l'angle d'incidence θ en utilisant *matto* 10 et *matto* 13 sur la platine. b) Evolution des impulsions en fonction de θ en utilisant deux *mattos* 10. c) Retards de groupe de la source attoseconde (carrés violets), du filtre d'aluminium (losanges verts), ainsi que ceux de l'impulsion sortant du façonneur dans la configuration décrite en a) à 42° (triangles bleus), et dans celle décrite en b) à 52.5° (ronds rouges) et les ajustements paraboliques associés (lignes pointillées mixtes). d) Etude du cas en b) à 52.5° : Profils temporels (courbes colorées) et fréquences instantanées (lignes simples) pour (1) la plage $15-35\,eV$ (courbes pointillées), et la plage $35-73\,eV$ (courbes continues), (2) l'impulsion correspondant à la superposition cohérente des deux impulsions précédentes.

manière, le faisceau se réfléchit sur chaque miroir avec le même angle d'incidence quelque soit l'orientation de la platine, les faisceaux entrant et sortant de la platine restant toujours parallèles. En ajoutant le filtre d'aluminium à la platine de rotation, on obtient un façonneur d'impulsions attosecondes que l'on peut accorder en choisissant les deux miroirs à combiner et l'angle d'incidence.

Contrôle des battements attosecondes

En utilisant le spectre et le retard de groupe de la source attoseconde déduits des mesures directes, et les valeurs tabulées pour la transmission du filtre d'aluminium, nous avons calculé les profils d'impulsions que peut produire le façonneur. Dans le premier cas, on combine *matto* 10 et *matto* 13, et l'on règle la platine sur une incidence θ de 42°, de manière à pouvoir utiliser la réponse mesurée des miroirs sur les Fig. 2.10 et 2.12. L'impulsion obtenue, tracée sur fond rouge sur la Fig. 2.15 a), est composée d'un pic principal de $85\,as$ suivi par deux faibles répliques. Pour les angles d'incidence supérieurs, on utilise les réflectivités et phases des miroirs simulées et représentées sur la Fig. 2.14. En augmentant θ, on fait apparaître une double impulsion sub-$100\,as$, l'intensité relative des deux battements étant réglable par simple rotation de la platine, comme le montre la Fig. 2.15 a). Si l'on remplace *matto* 13 par un second *matto* 10, on augmente encore le nombre de battements dans l'impulsion, voir la Fig. 2.15b). Cette fois, l'angle d'incidence ne permet plus de contrôler le nombre de battements, mais permet de changer la forme de l'enveloppe de ces battements. On passe en effet d'une enveloppe en cloche pour $\theta = 47.5°$, à une rampe linéairement décroissante pour $\theta = 62.5°$.

L'origine de ces battements attosecondes réside dans les profils de phase du rayonnement sortant du façonneur, ce que montre la Fig. 2.15 c). Sur la plage $17 - 35\,eV$ à partir de laquelle le filtre d'aluminium commence à transmettre, la GDD positive de la source attoseconde (courbe rose) est surcompensée par la dispersion naturelle du filtre d'aluminium (courbe verte), et assez peu affectée par les miroirs, ceux-ci ayant une phase relativement linéaire sur cette plage quelque soit θ, voir la Fig. 2.14 a) et b). Sur la plage $35 - 73\,eV$, la GDD initiale est faiblement affectée par le filtre et par *matto* 10, mais est diminuée par *matto* 13 d'une quantité dépendant de θ. Au final, le retard de groupe total peut être approximé par deux pentes de signes opposés, et que l'on peut ajuster par une parabole. Cette courbure du retard de groupe indique la présence de dispersion du troisième ordre (TOD), et le coefficient des paraboles en pointillés mixtes de la Fig. 2.15 c) donne le coefficient de la TOD dans les deux cas. Ainsi, la valeur de la TOD peut être ajustée de $3.1 \times 10^5\,as^3/rad^2$ (parabole bleue) à $5.7 \times 10^5\,as^3/rad^2$ (parabole rouge) en changeant l'angle d'incidence et la combinaison des miroirs. Et comme nous l'avons vu au chapitre 1, l'ajout de TOD sur une impulsion provoque l'apparition de répliques dans le profil temporel.

Il est possible d'aller encore plus loin dans notre compréhension de l'origine de ces battements attosecondes. La Fig. 2.15 d) représente les profils temporels et fréquences instantanées des deux impulsions, calculées en ne sélectionnant que la plage spectrale $17 - 35\,eV$ dans le cas de l'impulsion rouge pointillée, et que la plage $35 - 73\,eV$ pour l'impulsion bleue. L'impulsion en sortie du façonneur (courbe violette) contient toutes les composantes spectrales de la plage $17 - 73\,eV$, et correspond donc à la superposition cohérente des deux

impulsions précédentes. La configuration choisie pour le façonneur est celle de la Fig. 2.15 b) à 52.5°. Il apparait que les impulsions bleues et rouges possèdent des *chirps* de signes opposés, suivant ceux des GDD. De ce fait, la différence des fréquences instantanées augmente avec le temps, allant d'un écart $\delta\omega$ d'environ $15\,eV$ jusqu'à environ $42\,eV$. La présence, à un instant donné, de deux composantes spectrales différentes va créer des franges dans le domaine temporel. Et comme dans tout interféromètre, plus l'écart entre les sources qui interférent sera grand, plus les franges seront resserrées. Dans notre cas, l'interfrange correspondant à la période $T = 2\pi/\delta\omega$ décroit de $260\,as$ à $100\,as$. Et la durée des battements obtenues ($\simeq T/2$) va donc varier de $130\,as$ à $50\,as$, ce qui s'accorde avec les durées de la Fig. 2.15 c). La conclusion de cette analyse est que l'on peut contrôler précisément la durée des différents battements attosecondes en choisissant la GDD des différentes plages spectrales.

2.4 Miroirs de seconde génération : optimisation temporelle et impulsions sub-50 as

Avec ces premiers miroirs, nous avons vu qu'il était possible d'appliquer un profil de phase spectrale donné sur un miroir XUV. Pour la seconde génération de miroir, nous avons essayé d'obtenir les impulsions les plus courtes possibles. Pour cela, nous avons transposé au domaine attoseconde une solution développée pour les impulsions infrarouge femtosecondes : l'optimisation temporelle. Elle permet de concevoir des miroirs chirpés capables de contrôler la dispersion d'un rayonnement sur de très larges plages spectrales. Au lieu de chercher à optimiser des miroirs attosecondes possédant une GDD donnée dans le domaine spectral, nous avons directement optimisé le profil temporel de l'impulsion réfléchie par le miroir. Des miroirs optimisés par cette technique ont permis d'obtenir des impulsions monocycles sub-5 fs dans le domaine IR [Dombi P. et al., 2005, Pervak V. et al., 2009]. Dans notre cas, les miroirs optimisés temporellement se sont avérés capables de compresser des impulsions attosecondes jusqu'à les rendre monocycles avec des durées sub-$50\,as$.

2.4.1 Cahier des charges pour l'optimisation

La source

Le but étant de concevoir des miroirs adaptés à des conditions expérimentales réalistes, nous avons choisi des paramètres caractéristiques de la génération d'harmoniques d'ordre élevé pour la simulation de la source attoseconde. En particulier, nous avons considéré une impulsion IR de génération typique [Mairesse Y. et al., 2003, Goulielmakis E. et al., 2008, Ko D. H. et al., 2010] de longueur d'onde $800\,nm$ et d'intensité $5.8 \times 10^{14}\,W.cm^{-2}$. Le gaz rare de génération choisi est le néon, ce qui, si on utilise la loi de la coupure (1.34) du chapitre 1, prévoit que le plateau du spectre XUV s'étendra jusqu'à $132\,eV$. Dans cette région, la GDD choisie pour la phase spectrale $\varphi_{source}(\omega)$ de la source attoseconde sera égale à $3600\,as^2.rad^{-1}$, puis deviendra nulle dans la coupure. Concernant la forme générale du spectre, la littérature ainsi que la précédente génération de miroirs attosecondes nous ont montré que l'intensité harmonique décroissait généralement linéairement quand

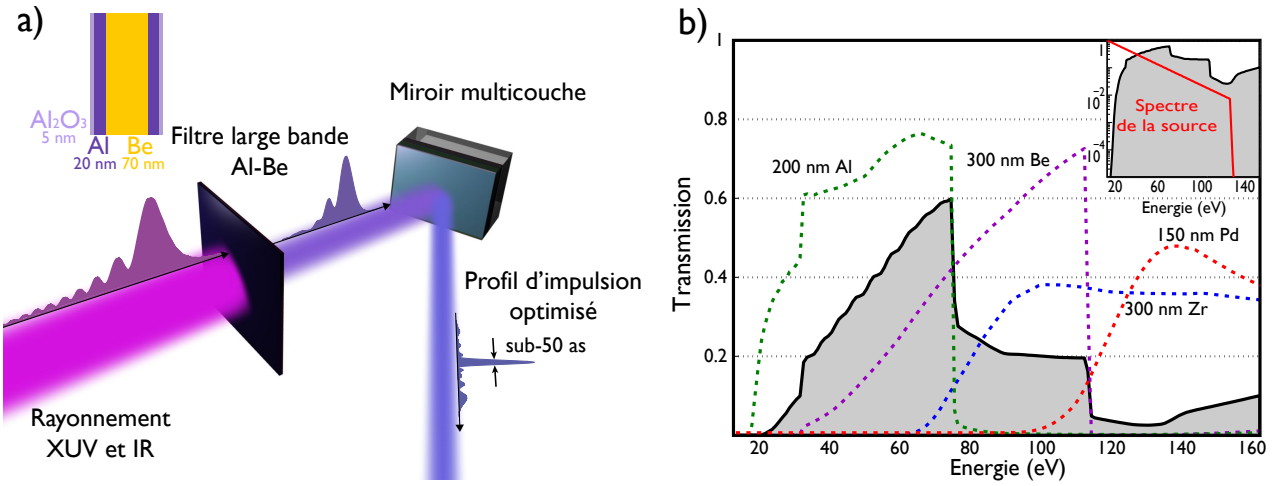


FIGURE 2.16 – **Optimisation temporelle de miroirs multicouches pour l'obtention d'impulsions sub-50 as.** a) Principe de l'optimisation temporelle. Insert : structure du filtre Al-Be. b) Transmission du filtre Al-Be (courbe colorée en gris) choisi pour la conception des miroirs, et transmission de filtres courants (lignes pointillées), à savoir un filtre de 200 nm d'aluminium [López-Martens R. et al., 2005], de 300 nm de beryllium [Ko D. H. et al., 2010], de 300 nm de zirconium [Goulielmakis E. et al., 2008], et de 150 nm de palladium [Hofstetter M. et al., 2011]. Comme dans le cas de la Fig. 2.14 c), la discontinuité dans la transmission du filtre d'aluminium vient du raccordement imparfait des tables d'indices à 30 eV. Insert : la transmission du filtre Al-Be et le spectre XUV normalisé (courbe rouge) sont tracés en échelle logarithmique. Le changement de pente dans le spectre a lieu au niveau de l'énergie de coupure.

on la représentait en échelle logarithmique [Mairesse Y. et al., 2003, Ko D. H. et al., 2010, Bourassin-Bouchet C. et al., 2011a] voir la Fig. 2.10, avant de s'effondrer rapidement dans la coupure. Nous avons donc choisi cette tendance générale comme forme pour le spectre $S_{source}(\omega)$ de la source attoseconde (insert de la Fig. 2.16 b)). De manière triviale, on déduit donc de l'équation (2.13) la forme $I_{source}(t)$ des impulsions attosecondes générées par la source. Ces dernières ont une durée de 132 as, et un profil typique [Mairesse Y. et al., 2003] composé d'un pic principal suivi par de nombreux rebonds, voir Fig. 2.17 a).

$$I_{source}(t) = \left| TF\left[S_{source}^{1/2} \cdot \exp\left(i\varphi_{source}\right)\right]\right|^2 \tag{2.13}$$

Le filtre

Le filtre est un élément fondamental d'une ligne attoseconde. Il permet d'isoler une bande spectrale bien précise du reste du spectre XUV. En particulier, en absorbant les basses énergies, il permet de supprimer le faisceau IR utilisé pour la génération des impulsions attosecondes, et de ne sélectionner que la plage spectrale qui sera mesurable expérimentalement, par une technique telle que RABITT.

En se basant sur ces considérations, nous avons d'abord étudié les filtres généralement utilisés sur une ligne attoseconde, voir la Fig. 2.16 b). Or, comme nous l'avons vu, plus le spectre d'une impulsion est large, plus l'impulsion en limite de Fourier associée sera brève. Mais aucun des filtres étudiés ne présente une bande pas-

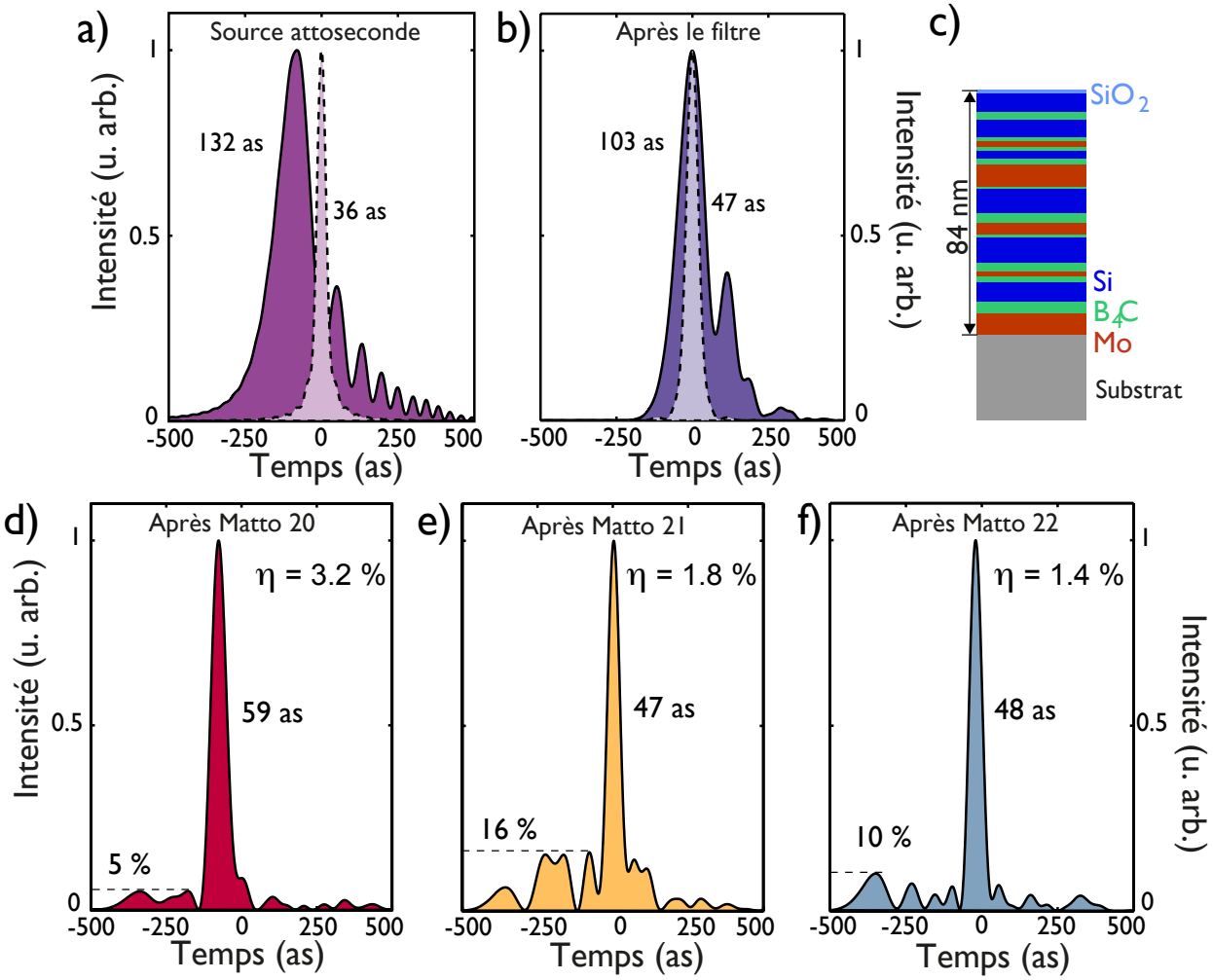


FIGURE 2.17 – **Profils théoriques des impulsions obtenues avant (a) et après (b) le filtre, ainsi que celles réfléchies par chacun des trois miroirs optimisés temporellement** a) (resp. b) Profils des impulsions (lignes continues) générées par la source attoseconde (resp. transmises par le filtre) et des impulsions limitées par Fourier associées (lignes pointillées). Dans le cas de a), seul le spectre au-dessus de $17\,eV$ a été pris en compte pour pouvoir comparer les impulsions avant et après le filtre sur la même bande spectrale. c) Structure multicouche de *matto* 20. (d-f) Profils d'impulsion obtenues après réflexion sur *matto* 20, 21 et 22 respectivement. Dans chaque cas, la durée à mi-hauteur, la fluence normalisée η et l'intensité relative du pic secondaire sont indiquées.

sante suffisamment large pour autoriser des impulsions sub-50 as. Cependant, en combinant la bande passante $17-73\,eV$ d'un filtre d'aluminium et la bande passante $40-112\,eV$ d'un filtre de béryllium, on peut sélectionner une plage spectrale extrêmement large. Cela ne peut pas se faire en plaçant simplement ces deux filtres l'un derrière l'autre, car seule la plage spectrale sur laquelle les deux bandes passantes se recouvrent serait transmise. Pour rendre non négligeable le flux transmis en dehors de cette zone de recouvrement, la solution a consisté à réduire suffisamment l'épaisseur des couches des deux matériaux et à les combiner pour en faire un seul filtre. Nous avons donc choisi de combiner une couche de $70\,nm$ de béryllium avec $40\,nm$ d'aluminium. Dans la mesure où ce filtre hybride n'est constitué que de quelques couches et est utilisé en transmission, les effets interférentiels dans la structure seront négligeables. En conséquence, la réponse spectrale du filtre t_{filtre} sera équivalente au produit de celles des filtres d'aluminium et de béryllium pris indépendamment. De plus, pour s'assurer que la transmission sera la même quelque soit le sens d'utilisation du filtre, nous avons séparé la couche de $40\,nm$ d'aluminium en deux couches de $20\,nm$ encapsulant la couche de béryllium. Enfin, pour obtenir une réponse spectrale du filtre réaliste, nous avons pris en compte une couche de $5\,nm$ d'oxyde d'aluminium Al_2O_3 sur chaque face du filtre. L'empilement final a une épaisseur totale supérieure à $100\,nm$ et peut être fabriqué facilement [Soufli R. and Gullikson E. M., 1998]. La Fig. 2.16 b) montre que la transmission du filtre simulée à partir des bases d'indices du CXRO et du Palick atteint des valeurs comparables à celle des autres filtres sur la plage $17-112\,eV$. De plus, sa transmission s'effondre sous $17\,eV$, voir l'insert de la Fig. 2.16 b), et vaut respectivement 1.9×10^{-5} et 2.5×10^{-7} à $800\,nm$ et $11\,eV$. Cela indique une bonne réjection du faisceau IR de génération ainsi que des basses énergies du spectre. Enfin, la Fig. 2.17 b) montre que l'impulsion $I_{in}(t)$ (voir l'équation (2.14)) transmise par le filtre a une durée de $103\,as$ contre $132\,as$ pour l'impulsion produite par la source. Cette compression de l'impulsion vient probablement de la dispersion naturelle de l'aluminium et du béryllium, qui peut légèrement compenser la GDD initiale des impulsions. De plus, la durée de l'impulsion en limite de Fourier vaut $47\,as$, ce qui montre bien que la bande passante du filtre est suffisamment large pour obtenir des impulsions sub-50 as. Cependant, des telles durées ne peuvent être obtenues que si les non-linéarités de la phase spectrale sont compensées par un miroir multicouche adapté.

$$I_{in}(t) = \left|TF\left[S_{source}^{1/2}\cdot\exp\left(i\varphi_{source}\right)\cdot t_{filter}\right]\right|^2 = \left|TF\left[S_{in}^{1/2}\cdot\exp\left(i\varphi_{in}\right)\right]\right|^2 \tag{2.14}$$

Les miroirs multicouches

La génération précédente de miroirs nous a montré qu'il était possible d'obtenir des profils de réflectivité et de phase complexes à l'aide de structures totalement apériodiques à trois matériaux. Or, puisque le rayonnement arrivant sur le miroir a des propriétés spectrales non triviales, la réponse du miroir optimisant le profil de l'impulsion sera elle aussi non triviale. Nous avons donc décidé d'optimiser une nouvelle fois des structures totalement apériodiques à base de molybdène, de silicium et de carbure de bore. Etant donnée l'absorption dans la gamme spectrale choisie, nous nous attendions à ce que la structure finale n'excède pas quelques dizaines de couches. Dans la mesure où les matériaux et l'ordre des couches sont déjà choisis, l'optimisation consiste

simplement à trouver l'épaisseur des couches. Cependant, dans le but d'obtenir des structures réalisables, l'épaisseur minimale des couches a été limitée à $0.8\,nm$. Enfin, nous avons ajouté à la surface de l'empilement une couche de $2\,nm$ de Si et une couche de $1\,nm$ de SiO_2 pour prendre en compte l'oxydation du silicium.

Enfin, le dernier paramètre à choisir était l'angle d'incidence du faisceau XUV sur le miroir. Comme nous l'avons vu précédemment, étant donné le phénomène de réflexion total se produisant pour des angles rasants, plus l'angle d'incidence est important, plus la réflectivité est importante, mais plus le contrôle de la phase du miroir est difficile. En conséquence, nous avons fait un compromis et choisi d'optimiser les structures multicouches pour un angle d'incidence de 22.5°.

Fonction de mérite

Le processus d'optimisation est basé sur l'algorithme de recuit simulé précédemment décrit. Durant le processus, l'algorithme calcule la réflectivité complexe du miroir multicouche $r_{mir}(\omega)$. A partir de là, connaissant le spectre S_{in} et la phase spectrale φ_{in} incidents, l'algorithme calcule l'impulsion réfléchie $I_{out}(t)$ grâce à l'équation (2.15) :

$$I_{out}(t) = \left|TF\left[S_{in}^{1/2}\cdot\exp(i\varphi_{in})\cdot r_{mir}\right]\right|^2 = \left|TF\left[S_{out}^{1/2}\cdot\exp(i\varphi_{out})\right]\right|^2 \tag{2.15}$$

Comme pour tout algorithme d'optimisation, le recuit simulé cherche la solution qui minimise une fonction de mérite. Dans le cas de l'optimisation temporelle, cette fonction devait tenir compte des paramètres les plus pertinents de l'impulsion réfléchie. Nous avons donc choisi d'optimiser la durée à mi-hauteur (FWHM) de l'impulsion, qui est la durée systématiquement donnée lorsqu'on mesure une impulsion attoseconde [Hentschel M. et al., 2001, Paul P. M. et al., 2001, Sansone G. et al., 2006, Goulielmakis E. et al., 2008, Ko D. H. et al., 2010]. Cependant, la durée à mi-hauteur ne décrit que la largeur du pic principal dans le profil temporel, et ne tient pas compte du reste de l'impulsion. C'est pourquoi, nous avons également choisi de minimiser la hauteur relative I_{2nd} du second pic le plus intense dans le profil de l'impulsion. Enfin, pour s'assurer que l'impulsion optimisée transporterait une quantité raisonnable d'énergie, nous avons choisi d'optimiser également la fluence normalisée η (voir l'équation (2.16)) de l'impulsion. La fonction de mérite finale prend donc la forme de l'équation (2.17) :

$$\eta = \int_{-\infty}^{+\infty} S_{out}(\omega)\,d\omega \Big/ \int_{-\infty}^{+\infty} S_{in}(\omega)\,d\omega \tag{2.16}$$

$$\epsilon = w_\tau\cdot(FWHM - FWHM^{target})^2 + w_{I_{2nd}}\cdot(I_{2nd} - I_{2nd}^{target})^2 + w_\eta\cdot(\eta - \eta^{target})^2 \tag{2.17}$$

Où w_X représente le poids associé au paramètre X.

2.4.2 Performances théoriques des miroirs et robustesse aux conditions expérimentales

A l'issue du processus d'optimisation, nous avons sélectionné les trois meilleures structures qui furent logiquement nommées *matto* 20, *matto* 21 et *matto* 22.

Résultats de l'optimisation

Chaque empilement est composé d'une vingtaine de couches, la structure de *matto* 20 est reportée en Fig. 2.17 c). Les profils d'impulsions obtenus après réflexion sur chacun des miroirs sont représentés en Fig. 2.17 (d-f). On peut remarquer que ces impulsions ont toute une même forme caractéristique, à savoir un pic principal transportant la majeure partie de l'énergie située au milieu d'un piédestal faiblement intense de 1 fs de long. Cette forme typique est une conséquence directe des paramètres choisis pour la fonction de mérite. En effet, ni FWHM, ni η, ni I_{2nd} ne peut limiter l'extension d'un piédestal, seule la largeur du pic principal est optimisée. Enfin, on remarquera que dans chaque cas, la fluence normalisée est toujours supérieure au pourcent, ce qui reste acceptable.

Concernant la durée de ces impulsions et l'intensité du pic secondaire, nous avons opté pour deux approches. Dans le cas de *matto* 20, le but n'était pas de réduire particulièrement la durée d'impulsion, celle-ci devant "seulement" être sous la barre des 60 as. En revanche, l'effort a été fait sur I_{2nd} qui devait être le plus faible possible de manière à obtenir une impulsion propre. Pour *mattos* 21 et 22, l'approche inverse a été adoptée. Nous avons relâché la contrainte sur l'intensité du second pic qui devait être sous les 20%, mais la durée visée était celle de l'impulsion en limite de Fourier après le filtre (ligne pointillée sur la Fig. 2.17 b)), à savoir 47 as. On peut voir sur la Fig. 2.17 (e-f) que cette dernière a été atteinte dans les deux cas, et que I_{2nd} vaut 16% et 10% pour *matto* 21 et 22 respectivement. Si l'on compare donc la durée de l'impulsion produite par la source attoseconde avec celles des trois impulsions optimisées temporellement, on voit que la largeur à mi-hauteur a été divisée par un facteur proche de 3.

Cependant, ces profils d'impulsions restent théoriques. On peut notamment se demander ce qu'il adviendra si, en conditions réelles, les paramètres expérimentaux, telles l'intensité laser ou l'angle d'incidence du miroir, s'écartent des valeurs utilisées pendant l'optimisation. Pour le vérifier, nous avons simulé l'évolution du profil temporel des impulsions en fonction de trois paramètres. La robustesse des miroirs étant globalement la même pour chacun d'eux, nous n'avons représenté sur la Fig. 2.18 que le cas de *matto* 22.

Robustesse aux variations de la structure multicouche

Nous avons tout d'abord cherché à prendre en compte l'effet de la qualité de fabrication des miroirs. Pour ce faire, nous avons considéré un écart des épaisseurs des couches déposées par rapport à celles visées. Plus précisément, nous avons aléatoirement changé l'épaisseur de chaque couche dans la structure multicouche théorique de *matto* 22, l'amplitude δ de la perturbation aléatoire étant donnée par la variation d'épaisseur Pic-

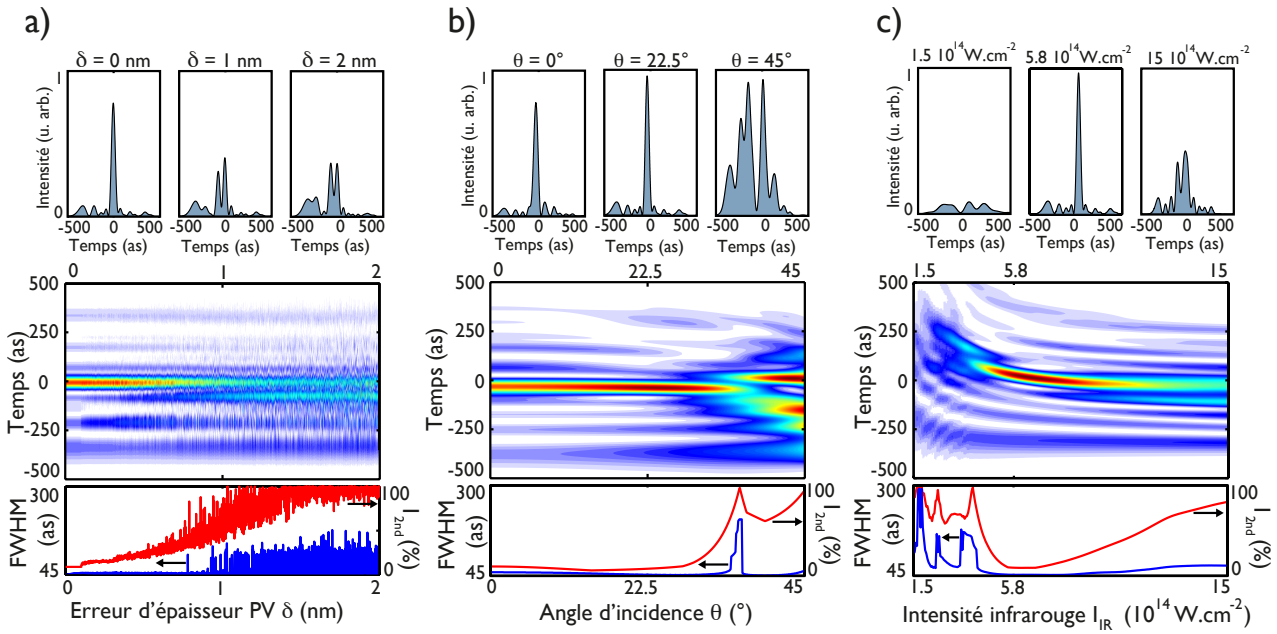


FIGURE 2.18 – **Evolution de l'impulsion après réflexion sur *matto* 22 en fonction des conditions environnementales** a) L'erreur Pic-à-Vallée sur l'épaisseur des couches déposées, b) l'angle d'incidence du faisceau XUV sur le miroir, et c) l'intensité de l'impulsion IR générant les impulsions attosecondes furent choisis comme les trois paramètres variables. Dans chaque cas, on trace l'évolution continue de l'impulsion en fonction du paramètre étudié (partie centrale), le profil d'impulsion étant détaillé pour trois valeurs du paramètre (panneaux supérieurs). L'évolution de la durée à mi-hauteur (FWHM) et de l'intensité du pic secondaire I_{2nd} (panneau inférieur) est également tracée.

à-Vallée (PV). Dans le but d'obtenir une tendance fiable, nous avons tiré aléatoirement 100 jeux d'épaisseurs pour chaque valeur de δ. Parmi les 100 impulsions obtenues, nous avons tracé celle avec les plus grandes valeurs de FWHM et de I_{2nd} dans le panneau central et les panneaux supérieurs de la Fig. 2.18 a), et avons ensuite calculé la moyenne de FWHM et de I_{2nd} (panneau inférieur). Les résultats indiquent que δ ne doit pas excéder quelques Angströms pour assurer une compression efficace de l'impulsion. Heureusement, comme nous l'avons déjà vu, la précision que l'on atteint avec notre machine de dépôt est de l'ordre $0.3\,nm$ PV sur les épaisseurs individuelles des couches, ce qui reste dans la plage de tolérance.

Robustesse à l'angle d'incidence

Avec la génération précédente de miroirs, nous n'avions pas pu caractériser les miroirs sur source attoseconde à l'angle d'incidence prévu. Pour cette seconde génération, nous avons donc logiquement étudié la robustesse des profils d'impulsions à l'angle d'incidence. Les structures multicouches ayant été optimisées pour un angle de 22.5°, nous avons étudié l'évolution de l'impulsion sur la plage $[0°; 45°]$, voir la Fig. 2.18 b). Les simulations soulignent que la plage de tolérance du miroir est remarquablement large. En effet, une compression de l'impulsion sous les $55\,as$ est possible en incidence normale autant que pour un angle de 30°, tout en conservant un pic secondaire sous les 20%. De plus, la compression devient optimale pour un angle compris entre 17.5° et 25°, la durée à mi-hauteur étant alors sous les $50\,as$ avec I_{2nd} sous les 15%. Enfin, au dessus de 30°, le champ pénètre moins dans la structure multicouche, la mise en forme de l'impulsion se dégrade. Cependant, une telle plage de tolérance permet d'assurer une compression des impulsions dans des schémas expérimentaux variés.

Robustesse à l'intensité IR de génération

Le dernier paramètre choisi pour étudier la robustesse des miroirs fut l'intensité de l'impulsion IR servant à générer les impulsions attosecondes. Comme nous l'avons vu, cette quantité détermine l'énergie de coupure du spectre XUV, c'est à dire l'extension du spectre, et la valeur de la GDD causant l'atto-chirp [Mairesse Y. et al., 2003]. Pour explorer une large plage autour de la valeur d'intensité choisie pour les optimisations, à savoir $5.8\times10^{14}\,W.cm^{-2}$, nous avons fait varier I_{IR} sur une plage allant de $1.5\times10^{14}\,W.cm^{-2}$ à $15\times10^{14}\,W.cm^{-2}$. Dans ces conditions, l'énergie de coupure passe de $50\,eV$ à $306\,eV$, et la GDD de $14000\,as^2.rad^{-1}$ à $1400\,as^2.rad^{-1}$. D'après les simulations, la plage de compression optimale s'étend de $5\times10^{14}\,W.cm^{-2}$ à $8.5\times10^{14}\,W.cm^{-2}$, la durée à mi-hauteur reste alors sous les $50\,as$ et I_{2nd} n'excède pas 20%. Dans un cas expérimental réel, la précision typique de réglage de l'intensité IR est bien meilleure que $1\times10^{14}\,W.cm^{-2}$ [Mairesse Y. et al., 2003], on peut donc raisonnablement penser qu'il sera facile de se placer dans la plage de compression optimale.

Ces simulations ont montré que la compression des impulsions était possible dans des conditions expérimentales réalistes. Les miroirs obtenus par optimisation temporelle méritaient donc d'être fabriqués. Nous sommes ensuite allé les caractériser sur la ligne de métrologie BEAR du synchrotron Elettra, où nous avons

mesuré à la fois leur réflectivité et leur phase spectrale.

2.4.3 Résultats de la caractérisation

Dans la mesure où le spectre incident choisi pour l'optimisation est extrêmement large, la réponse spectrale des miroirs doit être caractérisée sur une plage spectrale très grande, c'est à dire à partir de la montée en transmission du filtre Al-Be à $17\,eV$ jusqu'à l'énergie de coupure de spectre XUV à $132\,eV$. Concrètement, cela signifie qu'il faudra effectuer quatre changements de plages d'énergie sur le monochromateur de la ligne BEAR, débutant avec le réseau G-NIM, puis G-1200 avec les filtres d'aluminium puis de silicium, et enfin G-1200 sans filtre. A titre de comparaison, nous n'avions du utiliser que les réseaux G-NIM et G-1200 avec filtre Al pour les miroirs précédents.

Extraction de la phase à partir des photocourants

De plus, si la mesure de la réflectivité R_{mir} d'un miroir sur synchrotron est relativement courante, la détermination de la phase φ_{mir} l'est beaucoup moins. Et l'utilisation des mesures de photocourants précédemment décrites pour obtenir φ_{mir} peut parfois donner les résultats délicats à interpréter. Ceci vient des différentes approximations faites pour rendre l'extraction de la phase possible, et notamment de celle considérant que la phase de la référence φ_{ref} ne joue aucun rôle dans l'équation suivante puisque sa réflectivité est faible.

$$J(\omega) = \frac{i_{mir}(\omega)}{i_{ref}(\omega)} = \frac{1 + R_{mir} + 2\sqrt{R_{mir}} \cdot \cos(\varphi_{mir})}{1 + R_{ref} + 2\sqrt{R_{ref}} \cdot \cos(\varphi_{ref})} \tag{2.18}$$

Nous avons donc cherché une solution visant à rendre les mesures de photocourant exploitables malgré tout. Si l'on réarrange l'équation (2.18) pour obtenir l'équation (2.19), on peut remarquer que plus le ratio $\sqrt{\frac{R_{ref}}{R_{mir}}}$, que l'on notera par la suite ρ, est faible, plus l'influence de φ_{ref} sur la phase reconstruite φ_{mir} sera négligeable.

$$\cos[\varphi_{mir}(\omega)] = J\left[\frac{1 + R_{ref}}{2\sqrt{R_{mir}}} + \rho \cdot \cos(\varphi_{ref})\right] - \frac{1 + R_{mir}}{2\sqrt{R_{mir}}} \tag{2.19}$$

De plus, $\cos(\varphi_{ref})$ étant toujours compris dans l'intervalle $[-1;1]$, on peut encadrer $\cos(\varphi_{mir})$ par deux fonctions $L_{\pm}$ en utilisant l'inégalité (2.20). En conséquence, en mesurant $J(\omega)$, $R_{mir}(\omega)$ et $R_{ref}(\omega)$, on peut reconstruire la phase du miroir multicouche avec une erreur dépendant de la quantité ρ.

$$L_-(\omega) \leq \cos(\varphi_{mir}(\omega)) \leq L_+(\omega) \tag{2.20}$$

Où $L_{\pm}$ sont égales à $\left[J\left(1 + R_{ref} \pm 2\sqrt{R_{ref}}\right) - 1 + R_{mir}\right]\left(2\sqrt{R_{mir}}\right)^{-1}$.

D'après l'analyse précédente, les photoélectrons doivent uniquement provenir de la surface du matériau mesuré. Logiquement, $i_{ref}(\omega)$ ne devrait donc pas dépendre de l'épaisseur de l'échantillon de référence. Pour

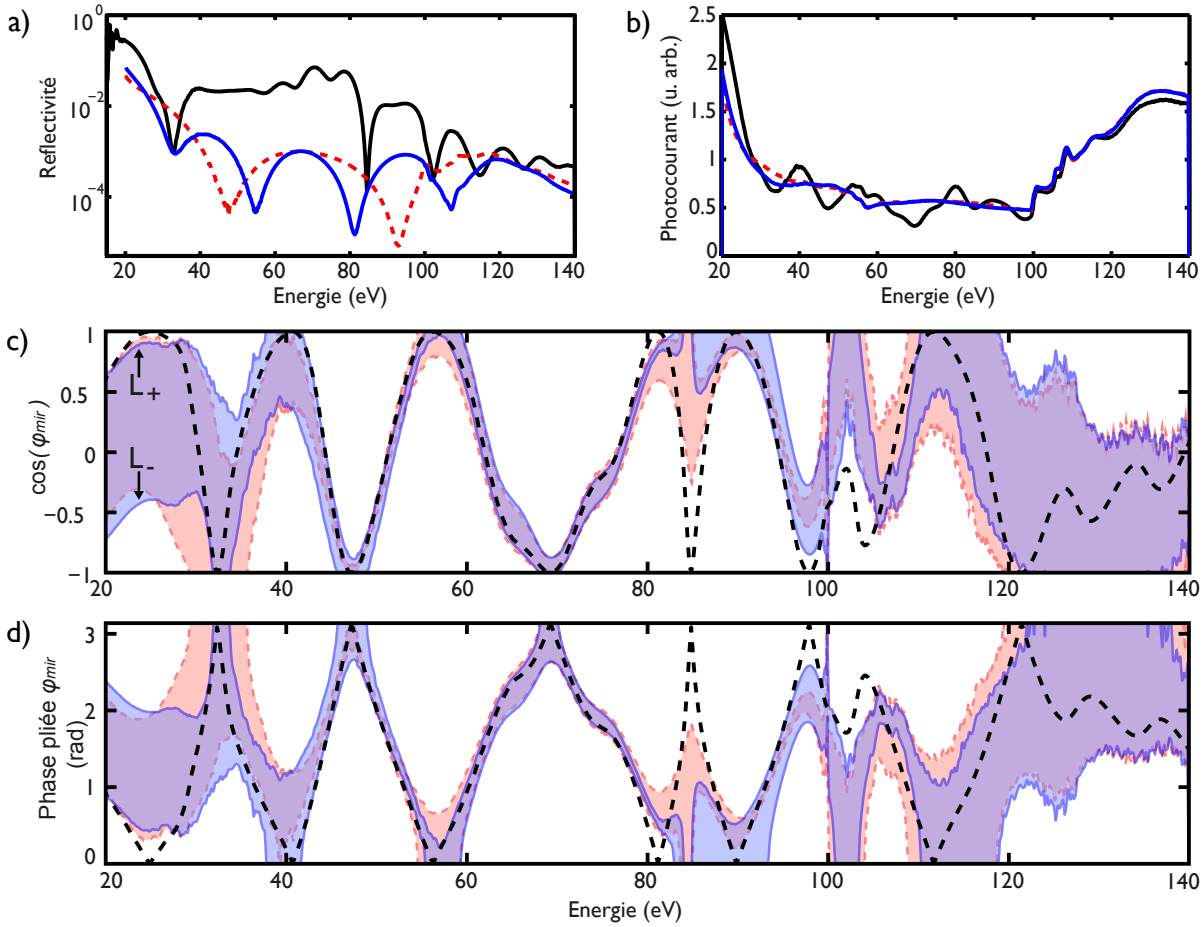


FIGURE 2.19 – **Principe de la mesure de la phase d'un miroir attoseconde à partir des mesures de réflectivité et de photocourant.** a) Reflectivité et b) photocourant de *matto* 20 (courbes noires), et des échantillons de référence de 10 nm (courbes pointillées rouges) et de 20 nm d'épaisseur (courbes bleues continues). c) Evolution des fonctions $L_{\pm}(\omega)$ délimitant la plage (aires colorées) des $\cos(\varphi_{mir})$ possibles pour *matto* 20 obtenues avec la référence de 10 nm (courbes pointillées rouges) et de 20 nm (courbes bleues continues). d) Plage des phases φ_{mir} possibles pour le miroir (courbes colorées en bleu et rouge) reconstruite à partir des données tracées en c). Pour (c-d), les lignes pointillées noires représentent le cosinus de la phase simulée et la phase simulée pliée respectivement.

vérifier cette hypothèse, nous avons déposé deux références en silicium d'épaisseurs différentes, l'une de $10\,nm$ d'épaisseur et l'autre de $20\,nm$. Nous avons ensuite mesurés leur réflectivité et leur photocourant sur la ligne BEAR, voir les Fig. 2.19 a) et b). Comme on pouvait s'y attendre, les photocourants des deux références sont extrêmement similaires. Il en est quasiment de même pour leurs réflectivités qui sont dans les deux cas très faibles. Elles sont cependant modulées par une oscillation provenant de l'interférence entre l'onde réflechie par la surface de la couche et celle réfléchie par le fond. Ces échantillons de référence étant bien caractérisés, nous avons pu nous en servir pour extraire la phase des trois miroirs.

Analyse des résultats obtenus

Nous avons donc mesuré la réflectivité et le photocourant de chaque miroir, et appliqué l'analyse précédente pour l'extraction de la phase. La phase φ_{ref} de l'échantillon de référence étant inconnue, nous avons tracé dans le cas de *matto* 20 la plage des $\cos(\varphi_{mir})$ possibles en utilisant l'inégalité (2.20), voir la Fig. 2.19 c). Lorsque ρ est faible, grossièrement sur la plage spectrale $40-100\,eV$, la zone colorée délimitée par les fonctions L_- et L_+ se resserre fortement, ce qui permet d'estimer la phase du miroir avec une bonne précision. De plus, du fait des modulations sur les réflectivités des références, R_{ref} et donc ρ deviennent périodiquement très faibles. A l'inverse, pour les énergies les plus basses et les plus élevées, R_{ref} devient du même ordre de grandeur que R_{mir}, voir la Fig. 2.19 a). ρ devient alors non négligeable et l'erreur sur la phase reconstruite importante. En appliquant la fonction arccos sur les données tracées sur la Fig. 2.19 c), on obtient la phase du miroir φ_{mir}. Il faut ensuite déplier la phase en changeant son signe et en ajoutant π chaque fois que la phase pliée atteint 0 ou π. Enfin, on moyenne les deux phases expérimentales reconstruites à partir des deux références, la phase finale de chaque miroir étant représentée sur les Fig. 2.20 (d-f) avec les réflectivités associées en Fig. 2.20 (a-c).

Concernant *matto* 20 et *matto* 21, on observe un très bon accord entre les phases expérimentale et simulée, cette dernière étant pratiquement toujours incluse dans la zone colorée. De plus, sur la plage $40-100\,eV$, on peut remarquer que la phase expérimentale reproduit aussi bien la tendance globale de la phase simulée que ses plus fines variations. On observe le même accord pour les réflectivités, sauf autour de $40\,eV$ comme on peut le voir sur les Fig. 2.20 a) et b). Ceci est très probablement du à la différence entre l'indice réel du matériau et celui tabulé qui a été utilisé durant l'optimisation. Concernant *matto* 22, l'accord est nettement moins bon. Si la forme globale de la réflectivité est plus ou moins respectée, les deux pics principaux autour de $80\,eV$ sont clairement décalés de quelques électron-volts par rapport à la simulation. De plus, on peut voir que le même décalage touche aussi le cosinus de la phase extrait des mesures de photocourant, voir l'insert de la Fig. 2.20 f), ainsi que la phase dépliée. Après une étude menée à l'aide du réflectomètre en X-rasants, il semble que ce léger décalage dans la réponse spectrale du miroir soit du à la formation d'un autre composé chimique à l'interface entre les couches de B_4C et de Mo, lorsque l'épaisseur de celles-ci s'approche de quelques Angströms.

Enfin, on peut remarquer que les réponses spectrales des miroirs simulées et mesurées ne sont pas du tout intuitives. Nous avons vu que, dans le cas des miroirs de première génération capables de post-compression

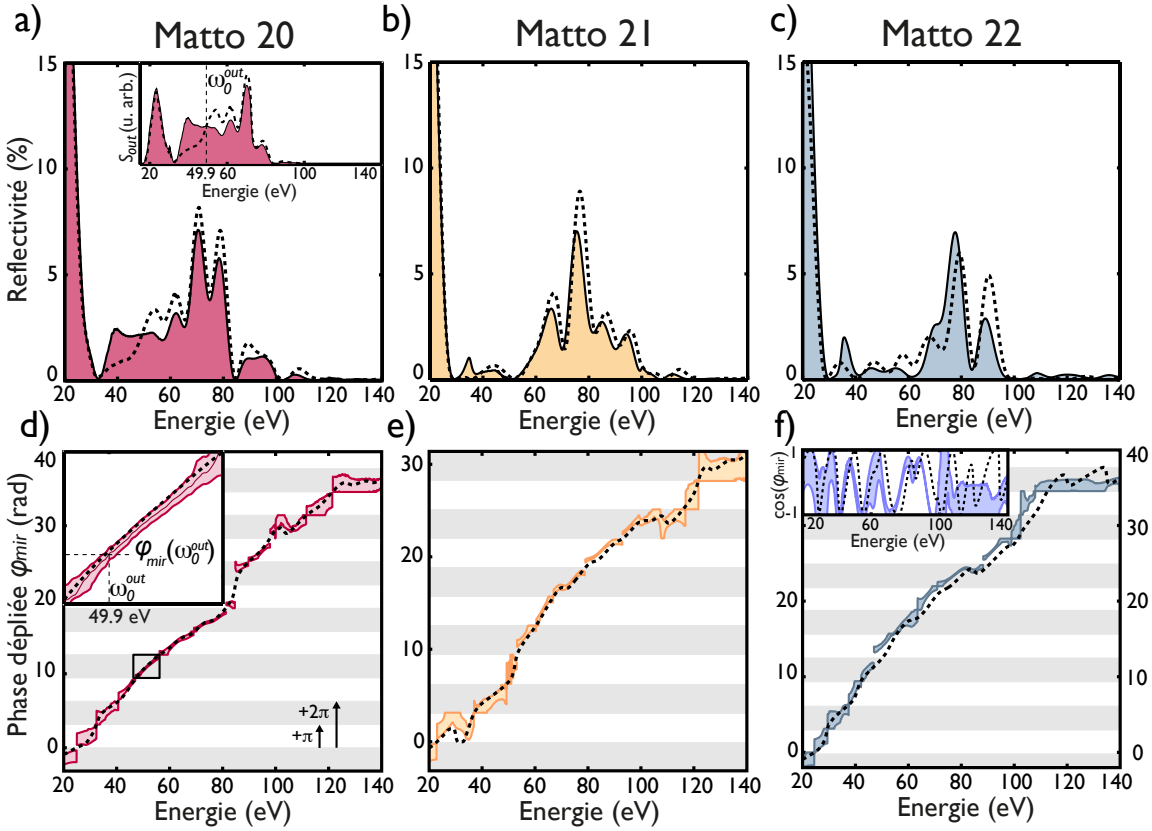


FIGURE 2.20 – **Mesure de la réflectivité (a-c) et de la phase (d-f) des trois miroirs.** Les réflectivités et les phases simulées (lines pointillées) sont superposées aux mesures (courbes colorées). En a), l'insert représente le spectre $S_{out}(\omega)$ réfléchi par *matto* 20 et déduit de S_{in} et des réflectivités mesurée (courbe colorée) et simulée (courbe pointillée). On peut ainsi déduire expérimentalement la fréquence porteuse moyenne $\omega_0^{out,xp}$ de l'impulsion réfléchie. L'insert en d) correspond à un agrandissement de la phase sur la plage spectrale $47-56\,eV$ sur laquelle la phase $\varphi_{mir}\left(\omega_0^{out,xp}\right)$ peut être précisément mesurée. La ligne continue au centre de la zone colorée correspond à la phase reconstruite en considérant que $\cos(\varphi_{ref})$ vaut 0. En f), l'insert représente le $\cos(\varphi_{mir})$ simulé (ligne pointillée) et celui reconstruit à partir de l'échantillon de référence de $20\,nm$ (courbe colorée en bleu). Les réflectivités simulées tiennent compte de la polarisation $(80;20)$ de la ligne synchrotron.

(*mattos* 12 et 13), nous avions cherché à obtenir pour la phase une GDD constante et négative, c'est à dire une phase parabolique convexe. Avec l'optimisation temporelle, la phase obtenue n'est plus parabolique. Plus précisément, si les phases des nouveaux miroirs tendent clairement à être convexes, elles fluctuent énormément autour de cette courbure globale. Cependant, ces fluctuations n'empêchent pas d'obtenir une compression efficace, la durée de l'impulsion finale étant garantie par l'optimisation temporelle. Ce constat a d'ailleurs déjà été fait dans le cas des miroirs chirpés IR [Dombi P. et al., 2005], et se trouve donc être également pertinent dans le cas des miroirs XUV pour la compression d'impulsions attosecondes.

Pour pouvoir complètement caractériser les miroirs, l'étape ultime serait de reconstruire les impulsions attosecondes réfléchies en utilisant les réponses expérimentales des miroirs. Mais l'erreur importante sur la phase à basse énergie rend cela impossible. Cependant, rien ne nous empêche de déduire expérimentalement quelques propriétés moyennes des impulsions finales. Plus précisément, après réflexion sur l'un des miroirs, les impulsions attosecondes deviennent monocyles, comme le montre la Fig. 2.21. Lorsque de telles impulsions interagissent avec un milieu, la réponse de ce dernier n'est plus moyennée sur un grand nombre de cycles optiques, elle dépend au contraire directement de la forme du champ électrique attoseconde. En particulier, elle sera fonction de la phase de l'enveloppe de l'impulsion par rapport à sa porteuse (CEP), c'est à dire au déphasage du centre de l'impulsion par rapport au maximum du champ électrique. De plus, une étude théorique [Sansone G. et al., 2006] a permis de montrer que la CEP des impulsions attosecondes était relativement robuste à des variations raisonnables des conditions de génération. Ainsi, des impulsions attosecondes peuvent être générées sans qu'il n'y ait de variation tir à tir de leur CEP.

Cependant, si une post-compression des impulsions est réalisée à l'aide de miroirs multicouches, une modification systématique de leur CEP peut être induite du simple fait de leur réflexion sur le miroir. Il devient alors important de pouvoir évaluer expérimentalement l'impact du miroir sur la CEP des impulsions. En outre, aucune des méthodes actuelles de caractérisation d'impulsions attosecondes, telles que les techniques RABITT [Paul P. M. et al., 2001, Mairesse Y. et al., 2003, Bourassin-Bouchet C. et al., 2011a] ou CRAB [Mairesse Y. and Quéré F., 2005, Hofstetter M. et al., 2011], ne peuvent mesurer la phase de l'enveloppe par rapport à la porteuse d'une impulsion attoseconde. En effet, lors de la caractérisation des miroirs précédents par la technique RABITT, nous avons mesuré le retard de groupe des impulsions, permettant de reconstruire leur phase spectrale à une constante près. Mais l'information déterminant la CEP d'une impulsion est justement incluse dans cette constante. Cependant, la modification de la CEP induite par un miroir reste accessible par le biais des mesures des photocourants, cette dernière reconstruisant la phase du miroir de manière absolue. Nous avons donc effectué une étude visant à déterminer expérimentalement la variation de la CEP de l'impulsion attoseconde induite par *matto* 20.

2.4.4 Durée de la réflexion dans le miroir et impact sur la CEP des impulsions attosecondes

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, la CEP φ_{CE} d'une impulsion se définit comme le déphasage existant entre le champ électrique oscillant à la fréquence porteuse moyenne ω_0, et le centre de l'impulsion t_0 :

$$\varphi_{CE} = \varphi(\omega_0) - \omega_0 \cdot t_0 \tag{2.21}$$

Pour rappel, dans l'équation (2.21), $\varphi(\omega_0)$ représente la phase spectrale de l'impulsion prise à ω_0. La variation de la CEP induite par le miroir provient donc des variations combinées de ω_0, t_0 et $\varphi(\omega_0)$ entre l'impulsion incidente $I_{in}(t)$ et l'impulsion réfléchie $I_{out}(t)$.

Fréquence moyenne de l'impulsion

On peut définir la pulsation centrale ω_0 d'une impulsion comme la moyenne de la variable ω pondérée par le spectre, voir l'équation (2.22) :

$$\omega_0^{out} = \int_{-\infty}^{+\infty} S_{in}(\omega) R_{mir}(\omega) \omega d\omega / \int_{-\infty}^{+\infty} S_{in}(\omega) R_{mir}(\omega) d\omega \tag{2.22}$$

Dans le cas de l'impulsion réfléchie par le miroir, le spectre $S_{out}(\omega)$ peut être déduit du spectre de l'impulsion incidente $S_{in}(\omega)$ et de la réflectivité du miroir $R_{mir}(\omega)$, voir l'insert de la Fig. 2.20 a). En s'appuyant sur les réflectivités simulée et mesurée pour *matto* 20, on obtient une fréquence porteuse moyenne $\omega_0^{out,th}$ de $53.2\,eV$, et une fréquence expérimentale $\omega_0^{out,xp}$ égale à $49.9\,eV \pm 0.2\,eV$. Le décalage existant entre ces deux valeurs provient essentiellement des différences entre les deux réflectivités autour de $40\,eV$.

Durée de la réflexion dans la structure multicouche

Pour pouvoir déduire t_0, il est nécessaire de tenir compte de la phase du miroir. Considérons un détecteur fictif placé à une position donnée le long de l'axe de propagation de l'impulsion. Alors par analogie avec la fréquence moyenne, on peut définir un instant d'arrivée t_0 de l'impulsion sur le détecteur comme la moyenne de t pondérée par le profil temporel de l'impulsion. Si l'on place un miroir multicouche sur le chemin de l'impulsion, la variation de l'instant d'arrivée Δt_0 correspondra au temps que l'impulsion aura passé dans la structure multicouche du miroir, voir la Fig. 2.21. De plus, comme nous l'avons vu, t_0 est égal au retard de groupe moyen $\langle GD \rangle$ pondéré par le spectre. Donc, d'après l'équation (2.23), le fait de connaître la réflectivité R_{mir} et le retard de groupe GD_{mir} ainsi que l'instant d'arrivée t_0^{in} de l'impulsion incidente permet d'estimer expérimentalement Δt_0 :

$$\Delta t_0 = t_0^{out} - t_0^{in} = \int_{-\infty}^{+\infty} S_{in} R_{mir} (GD_{in} + GD_{mir}) d\omega / \int_{-\infty}^{+\infty} S_{in} R_{mir} d\omega - t_0^{in} \tag{2.23}$$

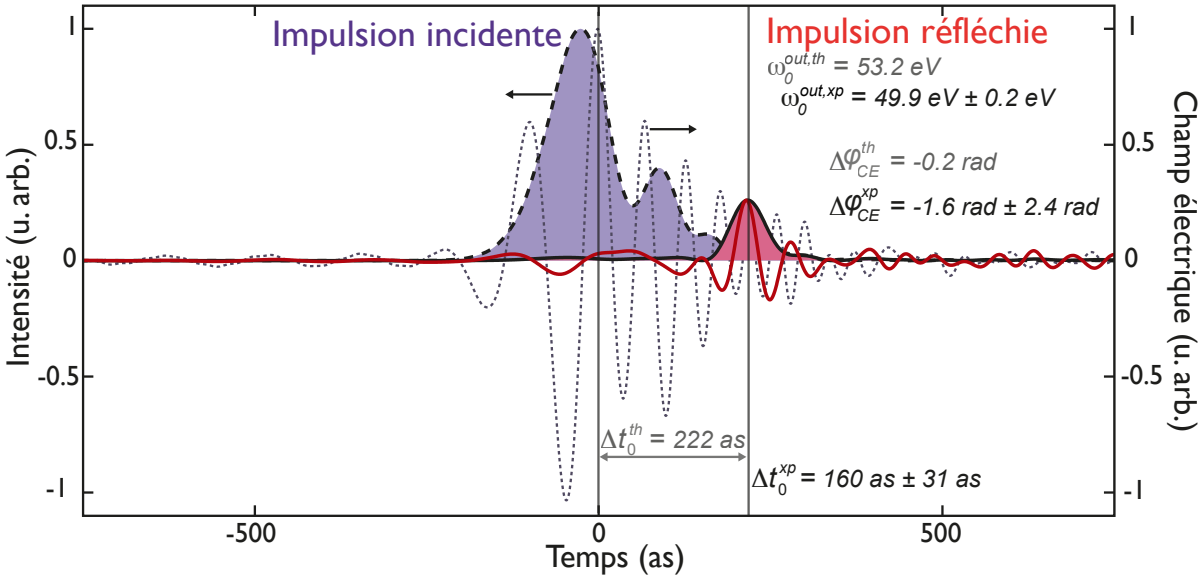


FIGURE 2.21 – **Influence théorique de *matto* 20 sur le champ électrique attoseconde réfléchi.** Les courbes pointillées bleues (resp. les lignes rouges continues) correspondent à l'impulsion incidente (resp. théoriquement réfléchie par *matto* 20). Les profils d'intensité (courbes colorées) et les champs électriques associés sont tracés dans les deux cas. Enfin, il faut noter que les intensités relatives entre les deux impulsions ont été conservées.

Pour estimer $GD_{mir}^{xp}(\omega)$, nous allons devoir considérer une évolution possible de la phase spectrale du miroir parmi toutes les phases possibles représentées par la surface colorée sur la Fig. 2.20 d). Nous avons donc choisi la phase φ_{mir}^{xp} correspondant au cas ou $\cos(\varphi_{ref})$ est égal à zéro en considérant qu'il s'agit d'une évolution moyenne de la phase. En calculant la moyenne de sa dérivée pondérée par le spectre S_{out}^{xp}, on déduit que Δt_0^{xp} vaut $160\,as \pm 31\,as$, Δt_0^{th} étant égal à $222\,as$. L'écart entre ces valeurs provient de la différence existant entre les propriétés du miroir mesurées et simulées, telles que sa réflectivité autour de $40\,eV$. De plus, l'incertitude sur Δt_0^{xp} reste assez importante. Ceci vient du bruit sur la phase mesurée, qui est visible sur la phase reconstruite sur l'insert de la Fig. 2.20 d). La dérivation de cette courbe pour obtenir le retard de groupe amplifie encore le bruit de la mesure.

Conséquence sur la CEP

Enfin, le déphasage $\Delta\varphi_{CE}$ induit par *matto* 20 sur la CEP de l'impulsion attoseconde peut être évalué en utilisant l'équation (2.24) :

$$\Delta\varphi_{CE} = \varphi_{CE}^{out} - \varphi_{CE}^{in} = \left[\varphi_{in}\left(\omega_0^{out}\right) + \varphi_{mir}\left(\omega_0^{out}\right)\right] - \omega_0^{out}\cdot t_0^{out} - \varphi_{CE}^{in} \tag{2.24}$$

Dans cette équation, tous les paramètres sont déjà connus à l'exception $\varphi_{mir}(\omega_0^{out})$. Ce dernier peut cependant être directement évalué sur la Fig. 2.20 d). Ceci permet d'obtenir une phase théorique $\varphi_{mir}^{th}\left(\omega_0^{out,th}\right)$

égale à $11.7\,rad$ et une phase expérimentale $\varphi_{mir}^{xp}\left(\omega_0^{out,xp}\right)$ de $10.5\,rad \pm 0.1\,rad$. Si l'on rassemble alors toutes les mesures précédentes, on obtient une variation théorique de la CEP $\Delta\varphi_{CE}^{th}$ égale à $-0.2\,rad$, et une variation expérimentale $\Delta\varphi_{CE}^{xp}$ de $-1.6\,rad \pm 2.4\,rad$. On peut remarquer que l'erreur de mesure sur $\Delta\varphi_{CE}^{xp}$ est une nouvelle fois très grande, l'importante erreur de mesure sur Δt_0^{xp} se propageant jusqu'à $\Delta\varphi_{CE}^{xp}$.

Cependant, cette mesure de la modification de la CEP lors de la réflexion sur un miroir doit être vue comme une preuve de principe, la technique méritant d'être améliorée. De plus, même si l'influence du miroir sur la CEP peut être mesurée, elle n'a pas été prise en compte durant le processus d'optimisation. On pourrait donc imaginer modifier la fonction de mérite, de manière à optimiser un miroir compressant des impulsions attosecondes, et leur donnant une CEP finale donnée.

2.5 Bilan

La première génération de miroirs attosecondes nous a montré qu'il était possible de réaliser des miroirs possédant un profil de phase spectrale donné dans le domaine XUV. Plus précisément, nous avons optimisé et fabriqué trois miroirs possédant une GDD de 0, -5000 et $-8500\,as^2/rad$ sur la plage $35-55\,eV$, et des réflectivités comprises entre 10 et 25% sur cette même plage. Nous avons caractérisé ces miroirs sur synchrotron et sur une source d'impulsions attosecondes, et les résultats obtenus sont en très bon accord avec les simulations, aussi bien au niveau des réflectivités que des retards de groupes des miroirs. Ceci a permis de démontrer expérimentalement une compression d'un facteur 2 des impulsions attosecondes. De plus, de tels miroirs permettent l'ajout de TOD sur les impulsions lorsqu'ils sont combinés avec un filtre d'aluminium. Le façonneur d'impulsion ainsi obtenu permet le contrôle de battements attosecondes sub-$100\,as$ à travers l'angle d'incidence du faisceau sur les miroirs.

Avec les miroirs de seconde génération, nous avons adopté une approche différente en cherchant à obtenir les impulsions attosecondes les plus brèves possibles. Pour cela, nous avons d'abord conçu un filtre hybride ayant une bande passante proche de $100\,eV$. Nous avons ensuite optimisé les miroirs multicouches dans le domaine temporel pour obtenir des impulsions réfléchies ayant une largeur à mi-hauteur comprises entre 59 et $47\,as$. Nous avons fabriqué ces miroirs et caractérisé leur réflectivité et leur phase spectrale sur synchrotron sur une plage spectrale large de plus de $100\,eV$. Ces mesures nous ont permis de déduire des informations telles que le temps mis par une impulsion pour se réfléchir dans l'empilement multicouche, ou encore l'impact du miroir sur la CEP des impulsions attosecondes.

Chapitre 3

Aberrations des optiques et impulsions attosecondes

Au début du chapitre 1, nous avons vu qu'une impulsion lumineuse se comportait comme un paquet d'onde se propageant dans le temps et dans l'espace. Pourtant, dans le chapitre précédent, nous avons considéré que les impulsions façonnées par les miroirs multicouches prenaient la forme d'un signal uniquement temporel. Nous avons donc supposé que les propriétés temporelles de l'impulsion étaient les mêmes en chaque point du profil spatial du faisceau, c'est à dire que l'impulsion ne possédait pas de couplage spatio-temporel.

Nous avons également vu au paragraphe 1.3.1 que cette hypothèse pouvait ne plus être vérifiée dans le cas de la focalisation d'impulsions femtosecondes. En effet, lorsqu'on focalise des impulsions lumineuses "longues", soit dans le régime nanoseconde ou picoseconde, les aberrations des optiques ne font que dégrader la forme spatiale de la tache focale. Et l'impulsion au foyer garde le même profil temporel en chaque point. Mais comme le montre le tableau 3.1, pour des régimes de durées plus brefs, l'épaisseur de l'impulsion, de l'ordre de quelques micromètres pour des impulsions femtosecondes, deviendra du même ordre de grandeur que les variations de longueur des chemins optiques induites par les aberrations. Dans ces conditions, l'impulsion subira un retard élémentaire différent en chaque point de l'espace, ce qui lui donnera une structure spatio-temporelle complexe.

Dans le régime attoseconde, l'épaisseur de l'impulsion deviendra nanométrique, et l'impact des aberrations sera potentiellement plus important encore. De plus, nous avons vu qu'une impulsion attoseconde devait systématiquement être focalisée dans un spectromètre à temps de vol pour effectuer une caractérisation par

Durée τ	$100\,ns$	$100\,ps$	$100\,fs$	$100\,as$	$100\,zs$
Epaisseur c/τ	$30\,m$	$30\,mm$	$30\,\mu m$	$30\,nm$	$0.03\,nm$

TABLE 3.1 – **Evolution de l'épaisseur de l'impulsion en fonction de sa durée**. La vitesse de la lumière dans le vide a été arrondie à $300000\,km/s$.

les techniques RABITT ou CRAB. Il devient donc essentiel d'étudier en détail l'impact des aberrations des optiques de focalisation sur la structure des impulsions attosecondes.

3.1 Stigmatisme et aberrations courantes

Avant de considérer le cas des impulsions attosecondes, nous allons faire un bref rappel sur la notion d'aberration. En optique géométrique, lorsqu'un système est capable de donner d'un point source une image également ponctuelle, on dit qu'il est **stigmatique**. Tous les rayons lumineux verront alors des chemins optiques de même longueur. Dans le cas contraire, le système est entaché d'aberrations.

Stigmatisme rigoureux et grandeurs de base

Il existe très peu de conjugaisons optiques parfaitement stigmatiques, voir la Fig. 3.1. Dans le cas des miroirs focalisants, elles se résument aux situations suivantes :

- Le miroir sphérique en conjugaison centre-centre,
- Le miroir parabolique en conjugaison infini-foyer, cette conjugaison stigmatique est très utilisée notamment dans le cas des antennes paraboliques,
- Le miroir elliptique en conjugaison foyer-foyer.

Lorsqu'on se place dans les conditions de Gauss, on ne considère que les rayons lumineux dits **paraxiaux**, c'est à dire ceux faiblement inclinés et restant proches de l'axe optique. Et dans ces conditions, l'image d'un point est toujours un point, et se forme au **foyer paraxial**, dont la position est donnée par les relations de Descartes. Lorsque l'objet et donc l'image ne sont plus sur l'axe optique, on dit que le système est utilisé dans le champ.

On peut définir **l'ouverture numérique** du coté image par la quantité $n \cdot sin(\alpha)$, avec n l'indice du milieu de propagation, et α l'angle d'ouverture sur la Fig. 3.1 b). Cet angle correspond à l'angle maximum que peuvent former avec l'axe optique des rayons émis par un point sur l'axe et transmis par le système optique. Dans les situations qui vont nous concerner dans le domaine XUV, le milieu de propagation sera toujours le vide, et les angles d'ouverture resteront faibles. L'ouverture numérique du coté image sera par la suite toujours confondue avec l'angle d'ouverture. Lorsque le système est utilisé dans le champ, on peut également définir un **angle de champ**, voir la Fig. 3.1 c).

On sort des conditions paraxiales quand l'inclinaison des rayons devient importante, du fait d'une ouverture numérique ou d'un angle de champ trop élevé. Dans ces conditions, si l'on ne se trouve pas dans l'une des conjugaisons rigoureusement stigmatiques, des variations de chemins optiques apparaissent, et l'image d'un point n'est plus un point mais est déformée par des aberrations. On parle d'**aberrations chromatiques** lorsque les variations de chemins optiques induites dépendent de la longueur d'onde du rayonnement, du fait de sa propagation dans un matériau dispersif par exemple. Ces aberrations peuvent être présentes dans le cas

de lentilles, mais plus dans le cas des miroirs. Lorsque les variations de chemins optiques proviennent de la forme même des dioptres, on parle d'**aberrations géométriques**. Seules ces dernières vont nous intéresser par la suite.

Aberration sphérique

Lorsque les systèmes sortent des conditions paraxiales, on fait intervenir une autre famille de rayons lumineux dits **rayons marginaux**, qui passent par la périphérique du composant optique. Considérons un point source sur l'axe optique, un système optique à symétrie de révolution sera entaché d'aberration sphérique si sa réponse, *i. e.* sa focale, n'est pas la même pour les rayons paraxiaux et les rayons marginaux. Comme le montre la Fig. 3.1 b), il n'existe alors plus de foyer unique et clairement défini, puisque les rayons ne se croisent plus en un même point. Au lieu de ça, ils se concentrent dans une zone focale dans laquelle on peut tout de même distinguer trois positions remarquables :

- Le plan dans lequel sont focalisés les rayons marginaux, appelé **foyer marginal**. Dans ce plan, la tache focale prend la forme d'un anneau intense créé par les rayons paraxiaux. Au centre de cet anneau se trouve le point focal des rayons marginaux.
- Le plan dans lequel sont focalisés les rayons paraxiaux, et dont la position est déterminée par les relations de Descartes, correspond au **foyer paraxial**. Ce foyer se compose d'une zone intense sur l'axe optique due à la focalisation des rayons paraxiaux. Dans ce plan, les rayons marginaux divergent fortement puisqu'ils ont déjà été focalisés au foyer marginal. Ils participent à la création d'un halo diffus autour du point focal central.
- Entre les deux positions précédentes, on peut définir **un meilleur foyer** au niveau duquel le halo diffus est moindre et la tache focale est la plus concentrée.

L'aberration sphérique peut être présente que le système soit utilisé dans le champ ou non, elle ne dépend pas de l'angle de champ, mais est d'autant plus forte que l'ouverture numérique est grande. Lorsque le point source se trouve dans le champ, des aberrations supplémentaires peuvent apparaitre, telles que de l'astigmatisme ou de la coma.

Astigmatisme

Une idée fréquente consiste à penser que l'astigmatisme représente le contraire du stigmatisme, et que tout système non stigmatique est entaché d'astigmatisme. Il n'en est rien. L'astigmatisme correspond simplement à une forme d'aberrations géométriques. Sur un système optique utilisé dans le champ, le plan contenant l'axe optique et le point source est appelé plan tangentiel. A l'inverse, le plan orthogonal au plan tangentiel et contenant le point source est appelé plan sagittal. Comme le montre la Fig. 3.1 c), lorsque le système possède de l'astigmatisme, les rayons inclus dans ces deux plans ne sont pas focalisés en un même point, mais en deux foyers distincts, nommés **foyer tangentiel** et **foyer sagittal**. Les images formées à chacun de ces

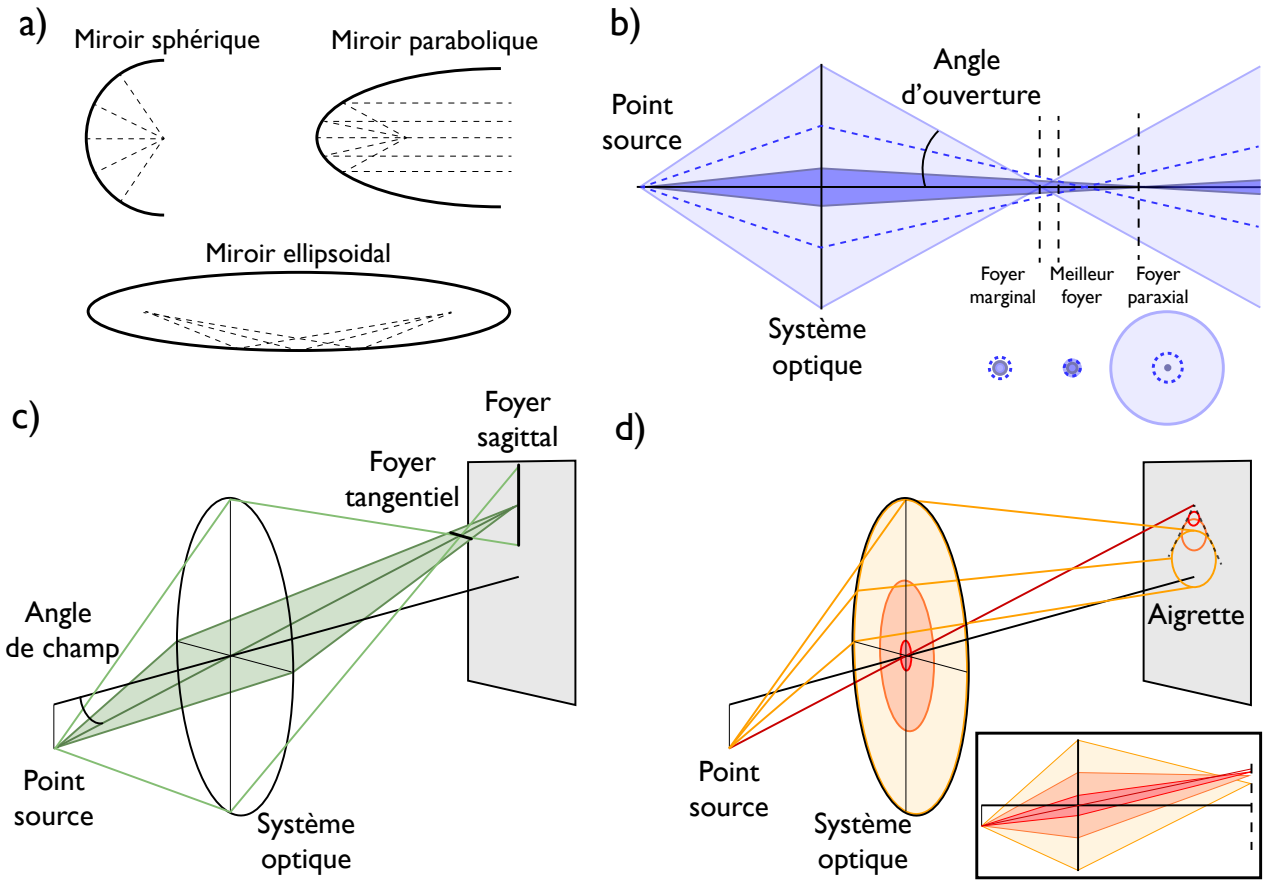


FIGURE 3.1 – **Conjugaisons rigoureusement stigmatiques et aberrations courantes**. a) Trois conjugaisons optiques parfaitement stigmatiques : le miroir sphérique en congugaison centre-centre, le miroir parabolique en conjugaison infini-foyer, et le miroir elliptique en conjugaison foyer-foyer. b) Principe de l'aberration sphérique. Les rayons marginaux en bleu clair sont focalisés avant les rayons paraxiaux en bleu foncé. b) Principe de l'astigmatisme. Pour une optique utilisée dans le champ, les rayons contenus dans deux plans orthogonaux, les plans tangentiel et sagittal, ne voient pas la même focale. Le plan sagittal est coloré en vert foncé. d) Principe de l'aberration de coma. Pour une optique utilisée dans le champ, les images obtenues pour les rayons paraxiaux en rouge foncé et marginaux en jaune n'ont pas la même position et le même diamètre. La tache focale prend la forme d'une aigrette.

foyers prendront la forme d'une ellipse mais seront orthogonales l'une par rapport à l'autre. La force de cette aberration augmente aussi bien avec l'ouverture numérique qu'avec l'angle de champ.

Coma

En présence de coma, les rayons marginaux ne sont pas focalisés à la même distance de l'axe optique que les rayons paraxiaux dans le plan paraxial, voir l'insert de la Fig. 3.1 d). De plus, les rayons émis dans le plan sagittal sont focalisés en un point différent de ceux émis dans le plan tangentiel. La tache focale en résultant possède une forme caractéristique en **aigrette** rappelant la queue d'une comète, d'où le nom de coma pour cette aberration. La coma n'est présente que lorsque l'image se forme dans le champ, elle augmente avec l'angle de champ et l'ouverture numérique.

3.2 Approche numérique du problème

Comme nous venons de le voir, on aborde souvent la question des aberrations en s'intéressant à leur impact sur la forme de la tache focale, l'intérêt étant de pouvoir prédire la dégradation de la résolution des systèmes d'imagerie. Or dans le cadre des impulsions ultrabrèves, il est plus intéressant de voir les aberrations comme une source de variations de chemins optiques, que comme une déformation de la tache focale.

3.2.1 L'approche géométrique

Nous avons donc cherché un moyen d'établir une carte des variations de chemins optiques dans la tache focale. Pour ce faire, nous avons développé un tracé de rayons et l'avons appliqué à des optiques courantes dans le domaine attoseconde, tel qu'un miroir torique en incidence rasante.

Le tracé de rayon

Comme le montre la Fig. 3.2, les rayons sont émis par un point source, de manière à arriver en étant régulièrement espacé sur le miroir. Pour évaluer la qualité de la focalisation, nous utilisons un outil très courant lors de la conception de systèmes optiques, appelé un *spot diagram*, littéralement un diagramme de taches. Un *spot diagram* représente simplement l'ensemble des points d'impact des rayons avec un plan virtuel placé à une position donnée sur l'axe optique, voir la Fig. 3.3 a). On obtient alors un résultat tel que celui représenté sur la Fig. 3.3 b) au foyer paraxial. Cependant, une telle figure renseigne uniquement sur la forme de la tache focale, et l'information sur les variations de chemins optiques n'apparait pas.

Connaissant les coordonnées dans l'espace de la source des rayons, celles du point d'impact de chaque rayon sur le miroir, et celles du point d'impact de chaque rayon au niveau du plan, on peut en déduire la longueur totale de leur chemin optique. On peut alors ramener les variations relatives de longueur à des retards temporels qui seront subis par chaque point de l'impulsion. Pour faire apparaitre cette cartographie des

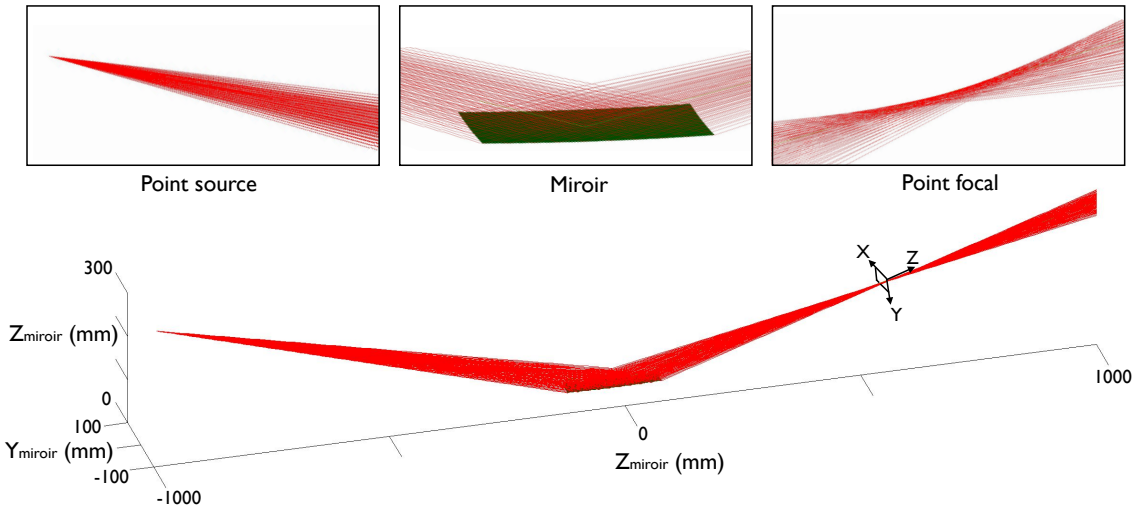


FIGURE 3.2 – **Tracé de rayons développé pour simuler la réflexion d'une impulsion attoseconde sur un miroir focalisant.** Dans cet exemple, une matrice de 10×10 rayons (lignes rouges) est envoyée sur un miroir torique (surface verte) de $200 \times 40\,mm$ et de focale $375\,mm$ pour un angle de rasance de 15°, et travaillant en grandissement 0.6 (distance source-miroir de $1\,m$ et distance miroir-foyer paraxial de $600\,mm$). Etant donné le schéma de la Fig. 3.1 d), on peut identifier la présence de coma au niveau du point focal.

retards sur le *spot diagram* précédent, il est nécessaire d'y ajouter une dimension supplémentaire. On obtient alors un "*spot diagram* 3D", voir la Fig. 3.3 c), sur lequel la profondeur représente le retard subi par chaque rayon composant le "*spot diagram* 2D". Cette figure représente en quelque sorte la forme spatio-temporelle de l'impulsion focalisée prédite par l'optique géométrique, et pour une impulsion initiale infiniment brève et émise par une source ponctuelle.

D'après la Fig. 3.3 c), ce miroir torique possède de la coma dans la conjugaison étudiée, comme en témoigne la forme caractéristique en aigrette de la tache focale. De plus, il apparait que cette aigrette est composée d'une famille de chemins optiques courts et d'une autre de chemins optiques plus longs, créant deux vagues d'arrivée des rayons lumineux. Mais l'information la plus importante donnée par le *spot diagram* 3D réside dans l'ordre de grandeur des retards entre rayons. La coma provoque en effet des retards relatifs sur les rayons pouvant aller jusqu'à $600\,fs$. On voit donc que la question de l'impact des aberrations lors de la focalisation d'une impulsion ultrabrève est fondamentale.

Pour comprendre plus finement l'origine de ces retards, on colore sur la Fig. 3.4 a) chaque point d'impact d'un rayon sur la surface du miroir en fonction du retard qu'il a accumulé. Il apparait alors que les chemins optiques courts sont associés à des rayons réfléchis par la partie supérieure du miroir torique, soit le demi-espace $Y_{miroir} > 0\,mm$, les chemins optiques longs étant générés par l'autre moitié du miroir. Le retard de $600\,fs$ n'existera donc qu'entre les deux rayons réfléchis par les deux coins opposés du miroir torique. Or dans la réalité, l'essentiel du flux lumineux arrivera autour du sommet du miroir, soit le point situé à l'origine du

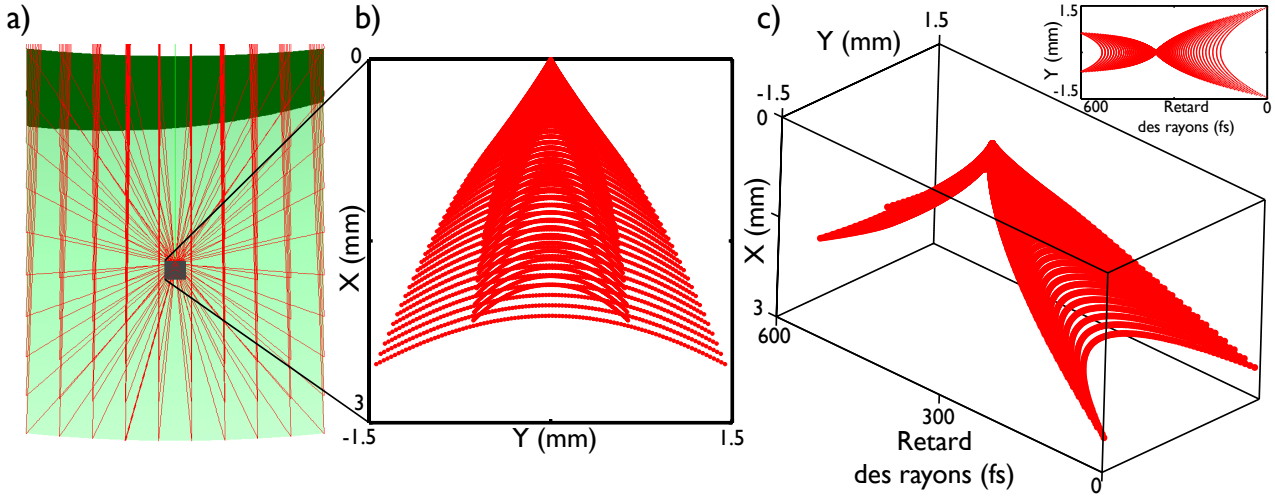


FIGURE 3.3 – **Principe des *spot diagrams* 2D et 3D**. a) Vue de dessus de la tache focale obtenue sur la Fig 3.2 avec la réflexion des rayons sur le miroir en arrière plan. Un plan noir a été placé au niveau du foyer paraxial. b) Le *spot diagram* 2D est obtenu en traçant l'intersection d'une matrice de 100×100 rayons réfléchis par le miroir avec le plan noir précédent. Le point de coordonnées $(0; 0)$ correspond au point d'impact sur le plan du *spot diagram* 2D du rayon réfléchi par le sommet du miroir. La forme en aigrette de la tache focale obtenue est caractéristique de la présence de coma. c) Le *spot diagram* 3D est obtenu en rajoutant l'information sur le retard du chemin optique dans la profondeur du *spot diagram* 2D. L'origine de l'axe des retards est prise au niveau du rayon arrivant le premier sur le plan noir paraxial. Insert : Vue de dessus du *spot diagram* 3D.

repère de la Fig. 3.4. Les rayons réfléchis aux extrémités du miroir n'auront donc qu'un très faible rôle dans le résultat final.

Cela souligne le fait que les *spots diagrams* de la Fig. 3.3 ne donnent qu'une vision partielle des choses. Pour améliorer cela, nous allons affecter une série d'informations à chaque rayon qu'ils transporteront jusqu'au foyer, nous permettant d'obtenir des *spots diagrams* plus complets.

Informations portées par les rayons

Une première information pertinente est celle de l'angle d'incidence de chaque rayon sur la surface du miroir. En effet, comme nous l'avons vu dans le cas des miroirs multicouches attosecondes, la réponse d'un miroir peut varier avec l'angle d'incidence du rayonnement. Il peut donc être intéressant de remonter à ces variations d'incidence des rayons sur le miroir. De plus, cette donnée est particulièrement simple à obtenir, puisqu'elle est déjà calculée durant le tracé des rayons. En effet, pour obtenir le rayon réfléchi par le miroir associé à un rayon incident donné, il est nécessaire d'évaluer deux paramètres : l'axe normal à la surface du miroir au point d'impact du rayon incident, et l'angle d'incidence de ce dernier par rapport à l'axe normal. Le rayon réfléchi est alors le rayon se trouvant dans le plan formé par le rayon incident et l'axe normal, et étant émis par rapport à l'axe normal avec un angle opposé à l'angle d'incidence. En gardant en mémoire l'angle d'incidence de chaque rayon durant le tracé de rayon, on obtient une carte des variations d'incidence à la surface du miroir, telle que celle de la Fig. 3.4 b).

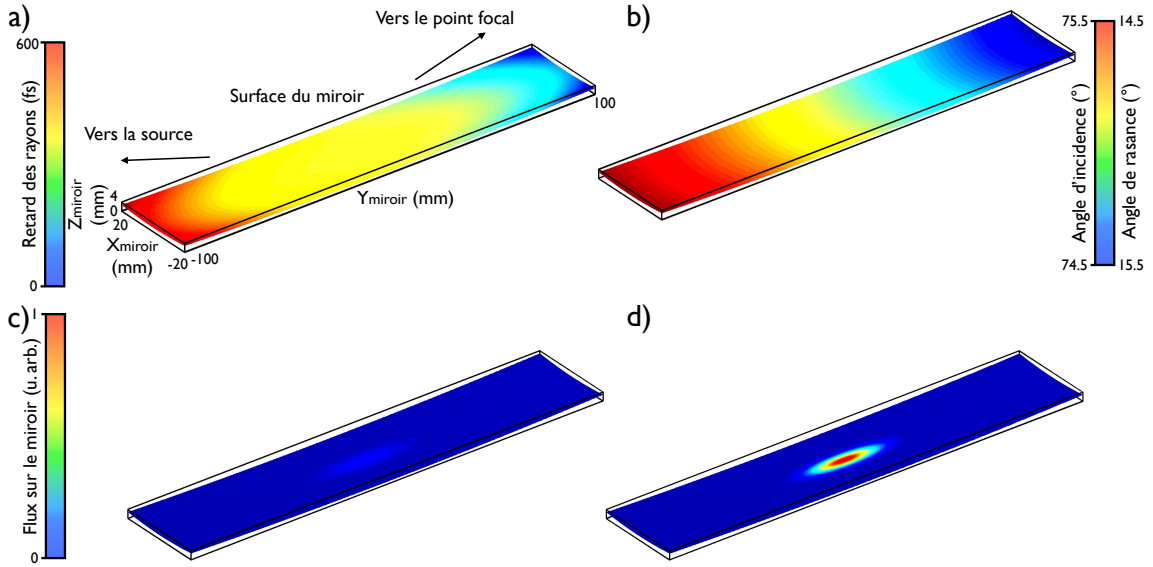


FIGURE 3.4 – **Evolution des grandeurs portées par les rayons en fonction de leur point d'impact sur la surface du miroir.** a) Evolution du retard temporel accumulé par chaque rayon entre la source et le foyer paraxial en fonction de son point d'impact sur le miroir. b) Evolution de l'angle d'incidence des rayons sur le miroir, le miroir est réglé de telle sorte que le rayon se réfléchissant en son sommet arrive avec une incidence de 75° (angle de rasance de 15°). (c-d) Flux monochromatique à la surface du miroir et à deux énergies différentes calculé en utilisant les équations (3.1) et (3.2).

Pour déterminer le flux porté par chaque rayon, il est nécessaire de faire des hypothèses sur le profil spatial du rayonnement émis par la source attoseconde. Plus précisément, nous considérons que le champ XUV émis par la source est un faisceau gaussien [Salières P. et al., 1995]. De plus, puisque les optiques sont toujours placées à une distance de la source attoseconde bien plus grande que la longueur de Rayleigh, on peut simplifier l'équation (1.13) vue au chapitre 1, qui s'écrit alors :

$$I(\theta, z, \omega) \approx I_0(\omega) \cdot \frac{w_0^2}{z^2 \theta_0(\omega)^2} \cdot \exp(\frac{-\theta^2}{2\theta_0(\omega)^2}) \tag{3.1}$$

où z est la position le long de l'axe de propagation, θ l'angle par rapport à cet axe, et ω la pulsation. $\theta_0(\omega)$ correspond à la divergence du faisceau XUV et vaut $\frac{2c}{\omega w_0}$ avec $I_0(\omega)$ le spectre de la source, et w_0 le *waist* du faisceau que l'on considère indépendant de ω.

Cela revient à considérer que le miroir voit la source attoseconde comme une source ponctuelle S émettant une distribution d'intensité angulairement gaussienne, et de divergence dépendant de la longueur d'onde. Notons que cette fois, on désigne l'intensité lumineuse au sens radiométrique, représentant un flux par unité d'angle solide. Pour relier cette intensité en W/sr au flux en W porté par chaque rayon, il faut tout d'abord déterminer la manière dont le rayonnement va se répartir à la surface du miroir.

De plus, on s'arrange pour que les rayons impactant sur le miroir soient répartis sur une grille. On peut

assigner à chacun d'eux une surface élémentaire sur le miroir correspondant à la surface qui sépare le point d'impact M d'un rayon avec ceux de ses voisins directs. Connaissant l'axe normal à cette surface élémentaire, calculé durant le tracé de rayons, et la position de la source dans l'espace, on peut en déduire l'angle solide $\Delta\Omega(S, M)$ sous lequel cette surface élémentaire est vue depuis la source. Ceci nous permet de calculer le flux monochromatique $F(M, \omega)$ reçu par chaque élément de surface du miroir.

$$F(M, \omega) = I(S, M, \omega) \cdot \Delta\Omega(S, M) \tag{3.2}$$

Si l'on reprend l'exemple du miroir torique précédent, la Fig. 3.4 (c-d) montre la répartition du flux sur la surface. La lumière arrivant en incidence rasante sur le miroir torique, le rayonnement va s'étaler sur la longueur du miroir. Enfin, comme chaque surface élémentaire sur le miroir ne correspond qu'à un unique rayon, on peut affecter le flux calculé sur cet élément de surface au rayon qui s'y est réfléchi.

Maintenant que nous avons attribué aux rayons différentes grandeurs tels qu'un flux ou un angle d'incidence, nous allons pouvoir étudier la manière dont ces grandeurs se répartissent au niveau du point focal. Et en particulier, nous allons modifier les *spots diagrams* précédents en partant du principe que seuls les rayons transportant un flux non négligeable sont pertinents. Plus précisément, en intégrant spectralement le flux porté par un rayon, nous obtenons son flux polychromatique. Et nous ne conservons que les points générés par des rayons portant un flux polychromatique supérieur à 1 % du flux maximum.

Le résultat apparait sur la Fig. 3.5. Logiquement, le nombre de points sur les *spots diagrams* est considérablement réduit, tout comme la plage de variation des retards entre les rayons, qui est désormais proche de $15\,fs$ au lieu de $600\,fs$ précédemment. De plus, on voit que l'essentiel du flux va se concentrer dans la zone de jonction des deux fronts de l'impulsion, soit au sommet de l'aigrette de coma. Nous pouvons également exploiter l'information sur l'incidence des rayons. Il apparait que les rayons du front avant de l'impulsion voient le miroir sous une incidence comprise entre 74.9° et 75°, et ceux du front arrière ayant été réfléchis à une incidence comprise entre 75° et 75.1°. Cependant, la variation de la réflectivité complexe d'un miroir en incidence rasante sur une plage angulaire de 0.2° est négligeable, et dans la pratique tous ces rayons verront la même réponse du miroir.

3.2.2 L'approche diffractive

Cette approche géométrique est un bon point de départ. Elle nous montre que la question de la conséquence des aberrations géométriques sur les impulsions attosecondes est bien pertinente, étant donnés les retards femtosecondes observés entre les rayons. Elle nous renseigne également sur la forme des distorsions spatio-temporelles induites sur les impulsions, tel que le double front généré par la coma. Mais cette approche reste limitée, elle ne tient pas compte des effets de la diffraction sur la propagation, ni des effets interférentiels pourtant très importants dans la zone focale. Tout cela nous empêche de reconstruire le champ électrique de l'impulsion autour du foyer. Pour palier ces lacunes, nous avons cherché à compléter le tracé de rayons

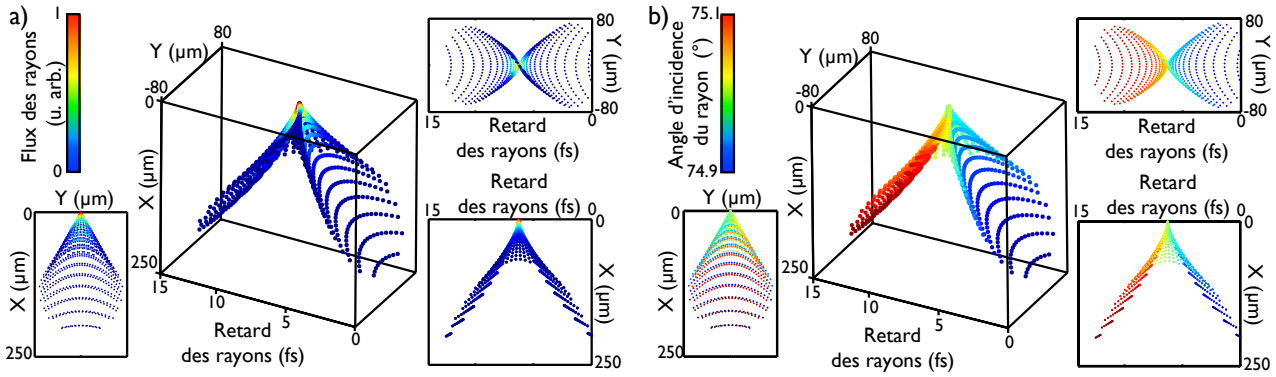


FIGURE 3.5 – ***Spot diagrams 3D* et informations transportées par les rayons.** Seuls les rayons transportant un flux supérieur à 1 % du maximum du flux polychromatique sont pris en compte dans les *spot diagrams*. La couleur de chaque point correspond a) au flux polychromatique du rayon, et b) à l'angle d'incidence qu'avait le rayon en question lors de sa réflexion sur le miroir.

précédent par un code de calcul diffractif.

L'idée générale est qu'à grande distance de la zone focale, les effets de la diffraction sont négligeables, et que l'impulsion est alors correctement décrite par l'optique géométrique, *i. e.* par le tracé de rayon. Si l'on affecte dès la source à chaque rayon émis un champ électrique élémentaire et qu'on laisse les rayons transporter ce champ jusqu'à un plan très défocalisé après le miroir, on obtiendra une répartition du champ électrique géométrique dans ce plan. Il nous suffira alors de propager le champ électrique depuis ce plan jusqu'au foyer grâce aux équations de la diffraction.

L'impulsion initiale

La première étape consiste donc à attribuer une impulsion élémentaire à chaque rayon. Ceux-ci transportant déjà le spectre S_0 émis par la source sous la forme d'un flux lumineux, il suffit simplement d'y ajouter une phase spectrale $\varphi_0(\omega)$, qui sera identique pour tous les rayons. Puisque l'on considère que la source émet des faisceaux gaussiens, et que la taille w_0 du *waist* est la même pour toutes les longueurs d'ondes, on retrouve l'équation (1.14) ci-dessous vue au chapitre 1 donnant l'expression du champ électrique au niveau de la source attoseconde :

$$\widetilde{E}(z=0,r,\omega) = \sqrt{S_0(\omega)} \cdot e^{i\varphi_0(\omega)} \cdot e^{\frac{-r^2}{w_0^2}} \tag{3.3}$$

Dans le modèle choisi, l'impulsion au niveau de la source attoseconde ne possède donc aucun couplage spatio-temporel.

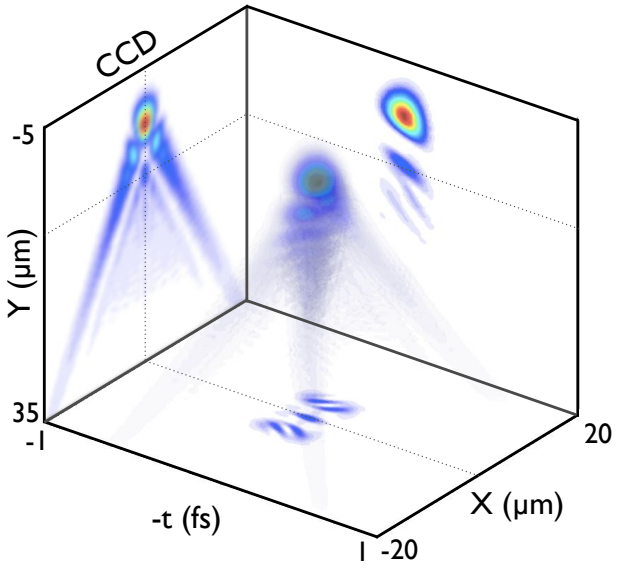


FIGURE 3.6 – **Impulsion au foyer paraxial après focalisation par le miroir torique obtenue par le calcul diffractif.** L'intensité en trois dimension de l'impulsion au niveau du foyer paraxial est représentée. Les projections dans les plans (x,t) et (y,t) représentent des coupes de l'impulsion 3D localisées au niveau des traits pointillés. La projection dans le plan (x,y) représente la tache focale obtenue en intégrant temporellement l'impulsion 3D.

Le plan d'intégration

Comme nous l'avons dit, dans l'approche diffractive, nous rajoutons une étape dans le calcul de l'impulsion au foyer. En effet, nous passons par l'intermédiaire d'un plan fortement défocalisé, nommé plan d'intégration. La seule contrainte sur la position de ce plan est qu'il doit se trouver à une grande distance du foyer, typiquement de l'ordre de la distance focale. On peut alors le placer entre le miroir et le point focal, ou même n'importe où au delà du point focal. En calculant les points d'impact P des rayons avec ce plan, on obtient le champ électrique scalaire géométrique $\widetilde{E}(P,\omega)$ au niveau du plan d'intégration :

$$\widetilde{E}(P,\omega) = \sqrt{F(P,\omega)} \cdot exp\left[i\varphi_0(\omega) + \frac{\omega}{c}\left[(SM) + (MP)\right]\right] \tag{3.4}$$

où $F(P,\omega)$ correspond au flux affecté à chaque rayon, et $(SM)+(MP)$ correspond au chemin optique géométrique suivi par le rayon émis par la source S, réfléchi au point M sur le miroir et arrivant au point P dans le plan d'intégration.

La propagation au point focal

La dernière étape du calcul consiste à propager le champ jusqu'au foyer par le calcul diffractif. Pour cela, plusieurs méthodes s'offrent à nous, telles que la décomposition en spectre angulaire d'ondes planes, ou le calcul de l'intégrale d'Huygens-Fresnel. Il est apparu que cette deuxième solution était plus adaptée à un calcul

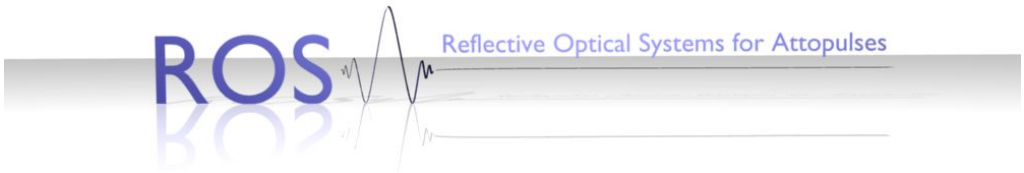


FIGURE 3.7 – **Logo du code de calcul ROSA**

numérique dans notre cas. Et plus précisément, nous avons choisi d'utiliser l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld qui est une version plus rigoureuse de l'intégrale d'Huygens-Fresnel. Dans la pratique, connaissant le champ électrique scalaire $E(P,\omega)$ dans le plan d'intégration, l'équation (3.5) nous donne le champ électrique $E(P',\omega)$ pour des points P' autour de la zone focale :

$$\widetilde{E}\left(P',\omega\right) \propto -\frac{i\omega}{2\pi c}\iint_{-\infty}^{+\infty}\widetilde{E}\left(P,\omega\right)\frac{\exp\left(\frac{\omega}{c}PP'\right)}{PP'}dxdy \tag{3.5}$$

Dans cette équation, PP' est une distance algébrique qui devient négative lorsque P est placé au-delà de P' dans le sens de la propagation. C'est le cas lorsque le plan d'intégration est placé au delà du foyer.

Une fois le champ propagé jusqu'au foyer pour toutes les fréquences angulaires ω voulues, il suffit d'appliquer une transformée de Fourier pour obtenir le champ électrique spatio-temporel de l'impulsion :

$$E\left(P',t\right) = TF[\widetilde{E}\left(P',\omega\right)] \tag{3.6}$$

Si l'on reprend l'exemple du miroir torique précédent, on obtient alors le résultat de la Fig. 3.6. Le champ électrique y a été calculé point par point pour former l'impulsion en trois dimension au foyer paraxial. Cette figure représente donc l'équivalent diffractif du *spot diagram* 3D de la Fig. 3.5 a) obtenu par la méthode géométrique. On retrouve d'ailleurs la même tendance générale, à savoir une forme en "V" de l'impulsion dans le domaine temporel caractéristique de la coma, et une tache focale en aigrette. Cependant le calcul diffractif nous renseigne sur les détails de l'impulsion, telles que les effets d'interférence, et elle nous offre une nouvelle vision du problème. En effet, l'approche géométrique nous avait fait voir les aberrations géométriques comme une source de retards élémentaires pour l'impulsion. L'approche diffractive nous permet, quant à elle, d'interpréter les aberrations comme une source de couplages spatio-temporels pour les impulsions attosecondes. Elle nous montre que le champ électrique n'a pas les mêmes propriétés temporelles en tout point de l'espace.

Enfin, si le calcul diffractif semble avoir tous les avantages, il a cependant le gros défaut d'être très long. Alors que le calcul d'un *spot diagram* 3D est quasiment instantané, le calcul de l'impulsion 3D de la Fig. 3.6 a pris $2h\,47min$ sur un ordinateur standard.

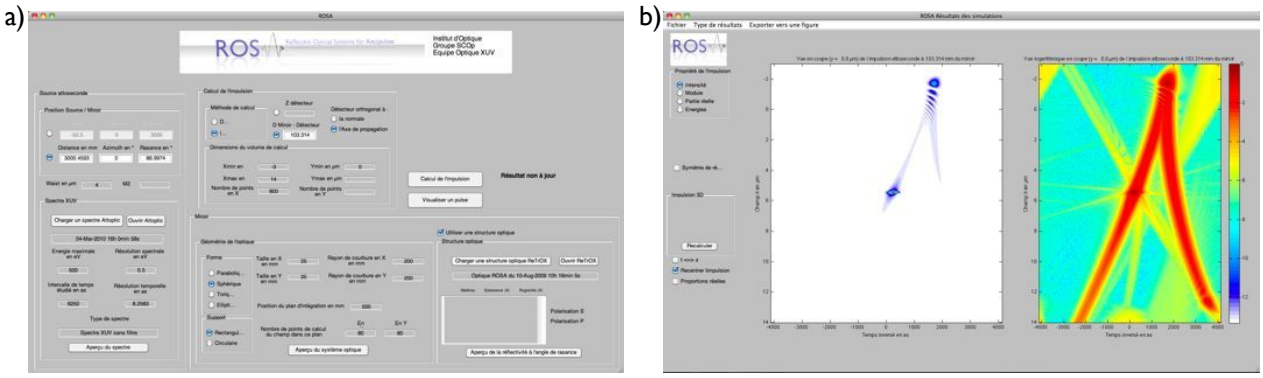


FIGURE 3.8 – **Interface utilisateur du code ROSA** L'interface se compose a) d'une fenêtre permettant de définir les paramètres du calcul, et b) d'une fenêtre permettant de dépouiller les résultats des simulations.

3.2.3 Le code de calcul ROSA

Dans la pratique, nous avons réalisé ce travail sous la forme d'un code de calcul Matlab que nous avons nommé ROSA, pour *Reflective Optical Systems for Attopulses*, et dont le logo est représenté sur la Fig. 3.7. ROSA prend la forme de deux interfaces graphiques, l'une dédiée aux choix des conditions du calcul, et l'autre servant au dépouillement des résultats.

L'interface des conditions initiales

Etant donné le nombre important de paramètres à choisir avant de démarrer une simulation, nous avons divisé l'interface en différents panneaux :

- **La source attoseconde** : on y fixe sa position dans l'espace, la taille du *waist* du faisceau gaussien au niveau de la source, ainsi que le spectre et la phase spectrale de l'impulsion initiale.
- **Le miroir** : on choisit la forme, les dimensions et rayons de courbure. Il est également possible de prendre en compte un revêtement multicouche.
- **Les paramètres du calcul** : on fixe le nombre de rayons lumineux, la position du plan d'intégration, le volume autour du point focal dans lequel on souhaite reconstruire l'impulsion.

Une fois les conditions initiales choisies, on lance une simulation. Lorsque le calcul est terminé, l'interface de dépouillement des résultats s'ouvre.

L'interface de dépouillement des résultats

Cette seconde interface permet de sauvegarder ou de charger le résultat d'un calcul précédent, mais elle permet surtout de naviguer entre différents types de vues du résultat final. En effet, une impulsion en 3D est un objet lourd à traiter, et il est nécessaire de pouvoir la représenter de différentes manières pour extraire le maximum d'informations du volume de calcul. C'est pourquoi, nous avons développé différents types de

vues. Ces vues sont répertoriées ci-dessous, et sont réparties en différentes catégories. Les trois premières vues traitent le résultat brut dans le domaine temporel :

- **Impulsion 3D** : cette vue permet de tracer une impulsion en trois dimensions, telle que celle de la Fig. 3.6.
- **Impulsion 2D** : on étudie une coupe de l'impulsion 3D selon un plan donné. Le résultat apparait sous forme au choix de la carte d'intensité en échelle linéaire ou logarithmique, du module du champ électrique complexe, de sa fréquence instantanée, ou du champ électrique réel.
- **Impulsion 1D** : on étudie l'évolution temporelle de l'impulsion 3D en un point donné de l'espace.

Les trois vues suivantes analysent la forme de l'impulsion dans le domaine spatio-spectrale (x, y, ω) :

- **Amplitude/Phase spatio-spectrale** : on accède au spectre et à la phase spectrale de l'impulsion en chaque point.
- **Couplages spatio-spectraux** : Cette vue permet d'estimer la forme et la répartition des couplages spatio-temporels sur l'impulsion. Elle sera très utile dans le chapitre 4 à venir.

Les vues suivantes permettent d'analyser la manière dont l'impulsion calculée serait perçue par un détecteur :

- **CCD** : Dans cette vue, on intègre temporellement l'intensité de l'impulsion. Cela correspond au signal que l'on obtiendrait avec un détecteur ayant une résolution spatiale mais pas temporelle, telle qu'une caméra CCD. Cette vue a été utilisée pour calculer la projection dans le plan (x, y) sur la Fig. 3.6.
- **Impulsion intégrée** : Cette vue est très similaire à la précédente, si ce n'est que cette fois l'impulsion est intégrée spatialement. Le signal temporel obtenu correspond à celui que mesurerait une photodiode fictive ayant une résolution temporelle attoseconde.
- **Spectre intégré** : C'est cette fois le spectre que l'on intègre spatialement, le résultat correspondant au signal mesuré par un spectromètre sans résolution spatiale.
- **RABITT/CRAB** : Ces deux vues permettent de simuler les spectres de photoélectrons générés par chaque point de l'impulsion, et composant les traces RABITT et CRAB. Ces calculs seront exploités dans le chapitre 5.

Enfin, il reste toutes les vues pour l'analyse géométrique de l'impulsion :

- **Système optique** : cela permet une vue globale sur le système optique défini et sur la manière dont les rayons se répartissent dans l'espace. Cette vue donne des résultats tels que ceux de la Fig. 3.2.
- ***Spot diagram*** : Cette vue permet de tracer un *spot diagram* 2D.
- **Flux/Incidence/Chemins optiques** : ces trois vues prennent une forme similaire, et montrent la répartition de ces trois grandeurs sur le miroir, comme nous l'avons vu sur la Fig. 3.4.
- **Impulsion géométrique** : cette dernière vue désigne le calcul des *spots diagrams* 3D, comme ceux de la Fig. 3.5.

Energie du photon	$35\,eV$	$55\,eV$	$75\,eV$	$95\,eV$	$105\,eV$
Divergence	$2.8\,mrad$	$1.8\,mrad$	$1.3\,mrad$	$1.0\,mrad$	$0.9\,mrad$

TABLE 3.2 – **Divergences de l'impulsion générée par la source attoseconde pour les simulations.**

En simulant l'évolution spatio-temporelle des impulsions attosecondes, le code ROSA nous ouvre des possibilités très importantes. Et tout le travail présenté dans la suite de ce manuscrit est basé sur des résultats obtenus grâce à ROSA. En particulier, notre premier objectif est d'étudier les conséquences des aberrations sur la forme des impulsions lorsqu'elles sont focalisées par des optiques courantes.

3.3 Conséquence sur la structure spatio-temporelle des impulsions

Le tableau 1.2 au chapitre 1 nous a montré que les optiques de focalisation sur les lignes attosecondes se divisaient en deux grandes familles : les miroirs toriques en incidence rasante, et une seconde catégorie de miroirs utilisés en incidence quasi-normale et possédant un dépôt multicouche. Mais il est relativement difficile de remonter à tous les paramètres de ces optiques. En particulier, la forme de ces miroirs en incidence quasi-normale reste inconnue, celle-ci pouvant être parabolique, ou beaucoup plus probablement sphérique. Il en est de même pour les conjugaisons optiques, les angles de champ ou encore les ouvertures numériques. Dans les simulations à venir, nous choisissons donc des paramètres pour les optiques qui nous semblent raisonnables.

Pour comparer les performances des optiques les unes par rapport aux autres, toutes les simulations faites à partir du code ROSA dans ce chapitre utilisent les mêmes conditions initiales. Le spectre utilisé est gaussien de largeur à mi-hauteur $30\,eV$ et centré à $75\,eV$. On ajoute sur la phase spectrale initiale une GDD de $6000\,as^2/rad$ pour représenter l'atto-chirp. Concernant les propriétés spatiales de l'impulsion initiale, on observe expérimentalement que les divergences des faisceaux XUV sont généralement de l'ordre quelques milliradians entre 20 et $100\,eV$. Pour reproduire ces divergences, nous fixons la taille du *waist* au niveau de la source attoseconde à $4\,\mu m$. Les divergences théoriques du faisceau dans ces conditions sont reportées sur le tableau pour différentes énergies autour de $75\,eV$.

3.3.1 Miroirs sphérique et parabolique

Nous allons tout d'abord considérer le cas de miroirs sphérique et parabolique. Leur distance focale est fixée à $100\,mm$, et leur dimension à $25 \times 25\,mm$, voir la Fig. 3.9 a). La distance entre la zone de génération des impulsions et le sommet du miroir est de $3\,m$. De plus, nous allons successivement étudier le cas d'une source attoseconde placée sur l'axe optique, puis avec un angle de champ de 1°. Mais l'utilisation d'un miroir en incidence quasi-normale dans le domaine XUV suppose l'ajout d'une structure multicouche. Puisque nous ne voulons étudier que les effets de la forme des miroirs sur les impulsions attosecondes, nous allons considérer que le miroir possède un dépôt multicouche ayant une réflectivité constante et une phase spectrale linéaire sur

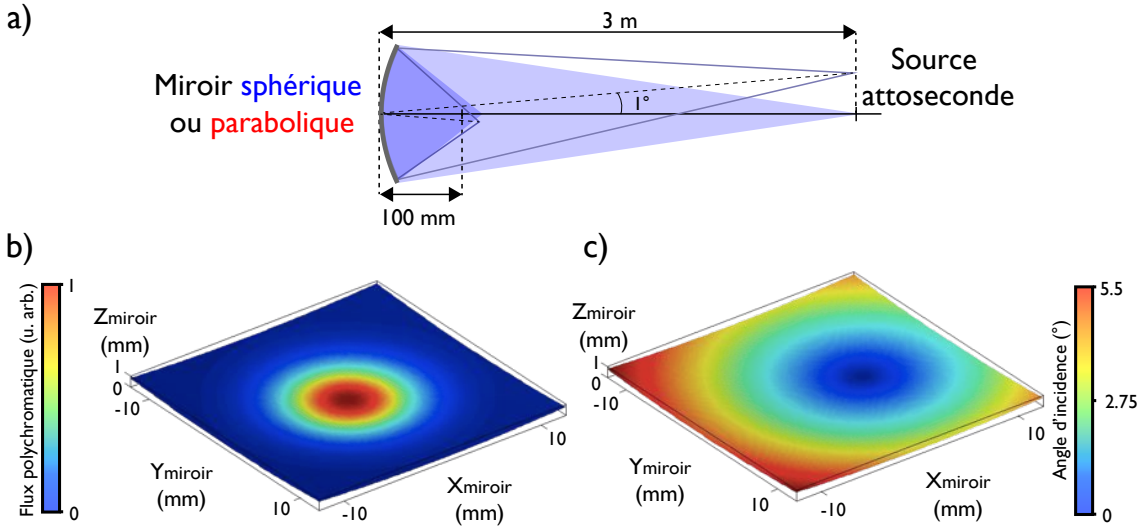


FIGURE 3.9 – **Conditions des simulations pour les miroirs sphériques et paraboliques.** a) Schéma des conjugaisons optiques étudiées, à savoir un miroir parabolique puis sphérique utilisé avec une source sur l'axe puis dans le champ. (b-c) Evolution du flux polychromatique (b) et de l'angle d'incidence des rayons (c) sur la surface du miroir lorsque la source est placée dans le champ sous un angle de 1°.

tout le spectre d'étude. De plus, l'évolution des angles d'incidence à la surface du miroir montre que ceux-ci varieront entre 0 et 5°. Or, nous avons vu au chapitre précédent que la réflectivité complexe d'un miroir multicouche variait très peu autour de l'incidence normale. Nous allons donc pouvoir négliger toute variation spatiale de la réponse spectrale de la structure multicouche.

Enfin, dans les conditions choisies, la tache formée par le flux polychromatique à la surface du miroir possède une allure gaussienne avec une largeur à mi-hauteur de l'ordre de 8 mm, comme le montre la Fig. 3.9 b). Comme le foyer paraxial se trouve à une distance de 103.45 mm du sommet du miroir, nous pouvons évaluer l'ouverture numérique du système du coté image à environ 0.04.

Conjugaison sur l'axe

Commençons par considérer que la source se trouve sur l'axe optique. Puisque le problème est à symétrie de révolution, il suffit de calculer le champ électrique attoseconde dans un plan radial pour décrire totalement l'impulsion. Dans cette conjugaison, le miroir est très faiblement aberrant, et les impulsions sont presque limitées par la diffraction. On peut en effet voir sur la Fig. 3.10 a) que les fronts d'impulsion sont parfaitement sphériques, et que toute l'énergie se concentre dans une tache focale propre. De plus, la variation linéaire de la fréquence instantanée dans l'enveloppe traduit l'influence de l'atto-chirp sur la Fig. 3.10 b).

Cependant, comme nous l'avons vu, un miroir parabolique n'est parfaitement stigmatique que lorsqu'il est utilisé sur l'axe pour un point source à l'infini, ce qui n'est pas rigoureusement le cas ici. Nous nous attendons donc à ce que cette conjugaison soit faiblement aberrante, et comme il s'agit d'une conjugaison sur

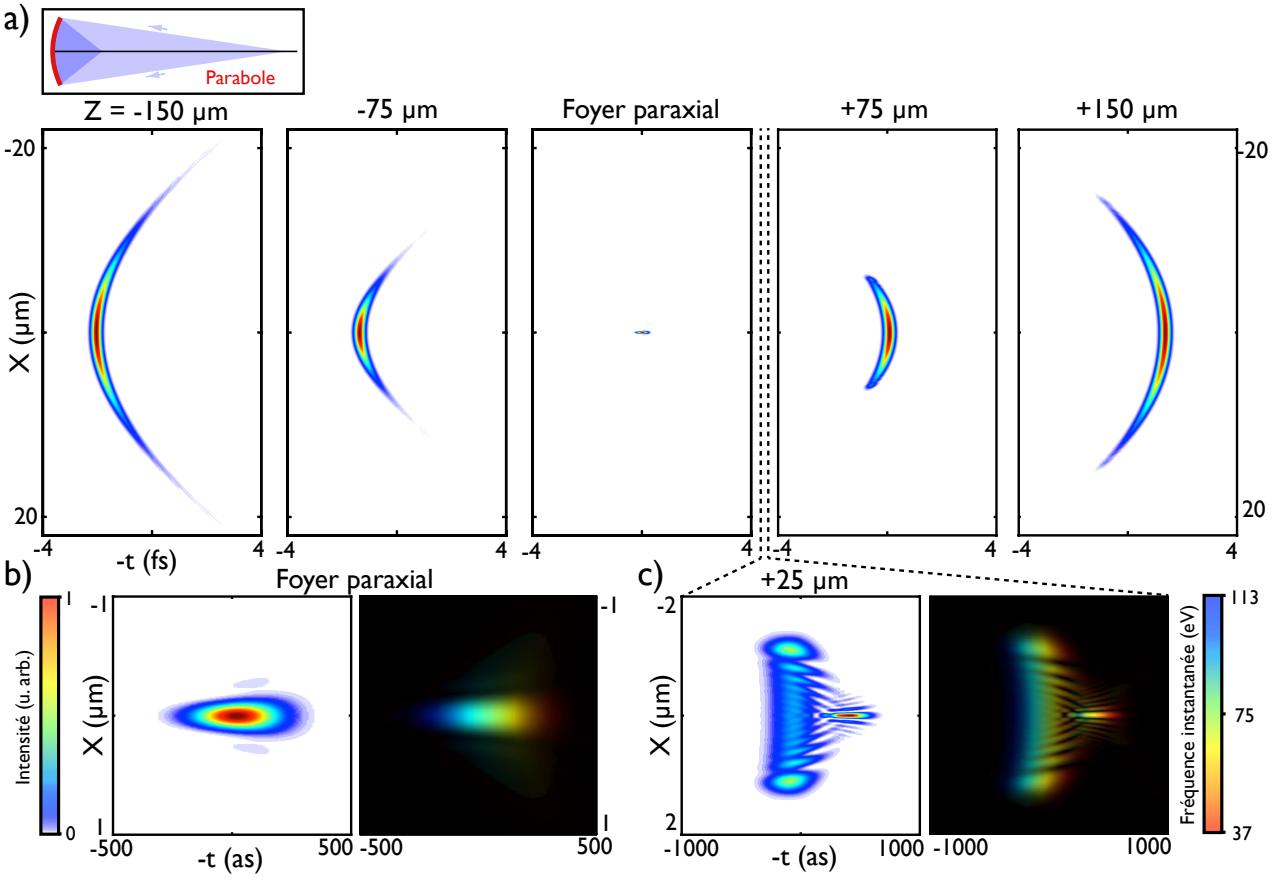


FIGURE 3.10 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde par un miroir parabolique pour une source sur l'axe.** Le repère (x, y, z) choisi est le même que celui utilisé pour les Fig. 3.3 et Fig. 3.2. a) Evolution de l'intensité de l'impulsion autour du foyer paraxial. L'axe optique se trouve à la position $x = 0\,\mu m$. b) Détail de l'évolution de l'intensité et de la fréquence instantanée de l'impulsion b) au foyer paraxial, et c) $25\,\mu m$ après le foyer paraxial.

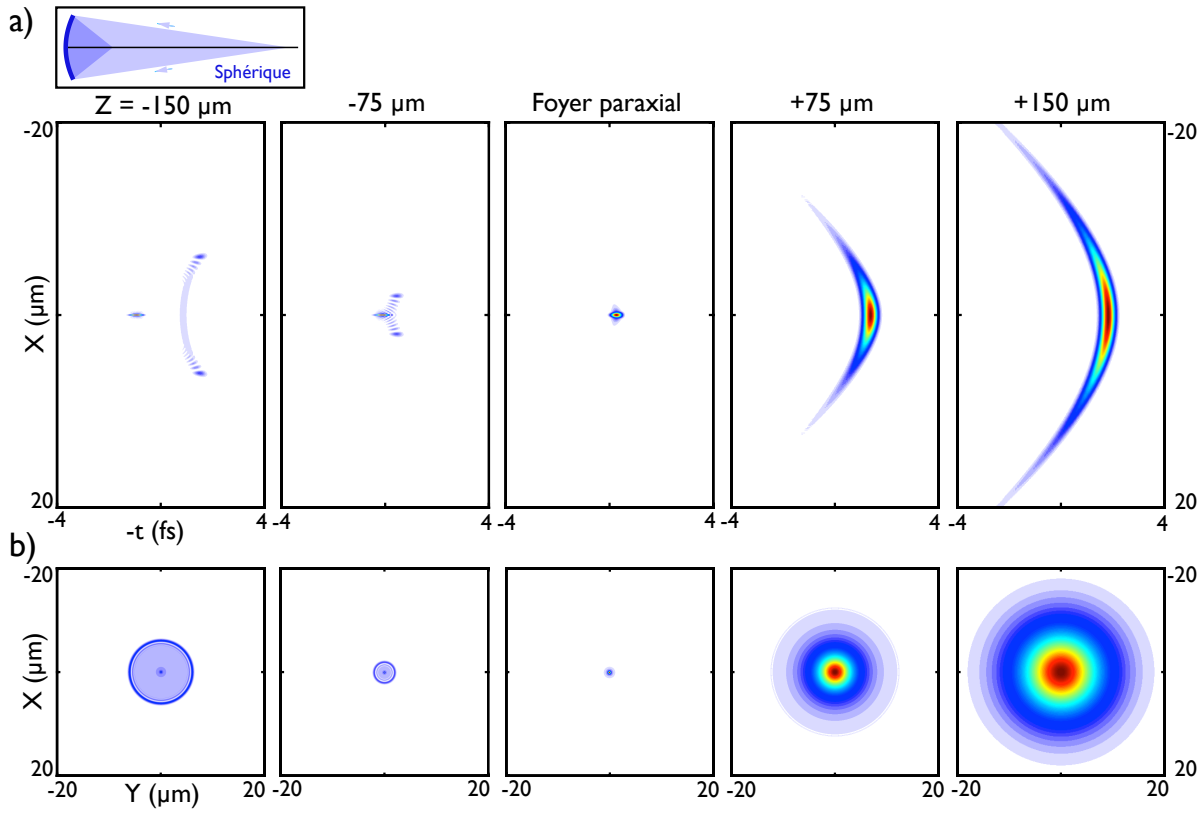


FIGURE 3.11 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde par un miroir sphérique utilisé sur l'axe.** a) Evolution spatio-temporelle de l'intensité de l'impulsion autour du foyer paraxial, et b) les taches focales associées.

l'axe, seule l'aberration sphérique pourra intervenir. En effet, on peut observer que l'évolution de l'impulsion n'est pas exactement symétrique de part et d'autre du foyer paraxial. En particulier, les bords de l'impulsion semblent plus francs passé ce dernier. De plus, si nous calculons l'évolution du champ électrique 25 μm après le foyer paraxial, nous obtenons le résultat de la Fig. 3.10 c). Dans ce plan, la structure de l'impulsion devient très complexe, et semble être modulée par des effets massifs d'interférences. Plus précisément, l'impulsion se compose de deux parties distinctes : un front principal sphérique et divergent, devant lequel se trouve une zone particulièrement intense. Comme nous allons le voir dans le cas du miroir sphérique, une telle évolution est caractéristique de l'aberration sphérique.

Intéressons nous maintenant au cas du miroir sphérique utilisé sur l'axe dans les mêmes conditions que le miroir parabolique précédent. L'évolution de l'impulsion est décrite sur la Fig. 3.11 a). Dans cette conjugaison, le miroir sphérique est entaché d'une forte aberration sphérique. En effet, on retrouve sur la Fig. 3.11 b) l'évolution des taches focales de la Fig. 3.1 b), à savoir avant le foyer paraxial une tache focale aux bords bien délimités avec un point intense en son centre, puis un faisceau divergeant rapidement après le foyer paraxial. On pourra également noter que cette l'évolution est inversée par rapport au cas du miroir parabolique. Concernant

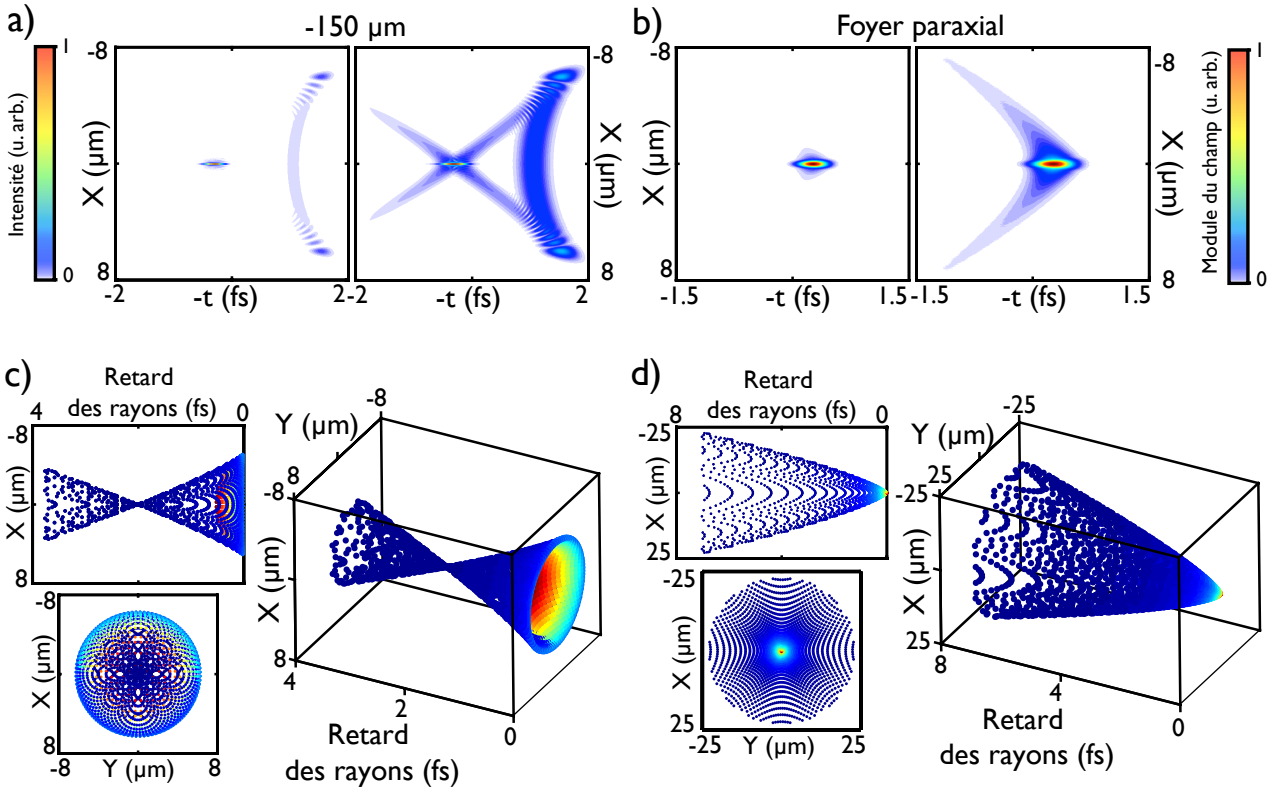


FIGURE 3.12 – **Impact de l'aberration sphérique sur la forme spatio-temporelle de l'impulsion.** Les impulsions obtenues par la méthode diffractive (a-b), et par la méthode géométrique (c-d) sont représentées $150\,\mu m$ avant le foyer paraxial (a-c), et au foyer paraxial (b-d). Pour a) et b), on trace l'évolution des module et module carré (intensité) du champ électrique complexe, ainsi que de la fréquence instantanée et du champ électrique réel. Pour c) et d), la couleur de chaque point représente le flux polychromatique du rayon. Seuls les points correspondant à un flux supérieur à 1 % du flux maximum sont représentés.

la structure spatio-temporelle, on retrouve une impulsion composée d'un front principal convergent suivi d'une zone intense, comme dans le cas du miroir parabolique sur la Fig. 3.10 c). Mais dans le cas du miroir sphérique, l'effet est si fort que ces deux parties de l'impulsion semblent totalement disjointes dans le plan à $Z = -150\,\mu m$, donnant l'impression que deux impulsions indépendantes se propagent.

Il s'agit cependant d'une seule et même impulsion. Et pour s'en convaincre, il suffit de tracer l'évolution du module du champ électrique complexe au lieu de son module carré, comme nous l'avons fait jusqu'à présent. En effet, l'intensité du champ a tendance à apodiser le signal, mais en travaillant sur le module, on révèle les structures sous-jacentes de l'impulsion. Et en procédant ainsi sur l'impulsion obtenue $150\,\mu m$ avant le foyer paraxial, la Fig. 3.12 a) fait apparaitre deux fronts partant des extrémités du front avant, et se croisant au niveau de la zone intense.

Cette forme complexe peut être expliquée par l'approche géométrique. En effet, les rayons paraxiaux réfléchis au centre du miroir sont ceux qui transportent le flux maximum, c'est à dire ceux créant les points en rouge

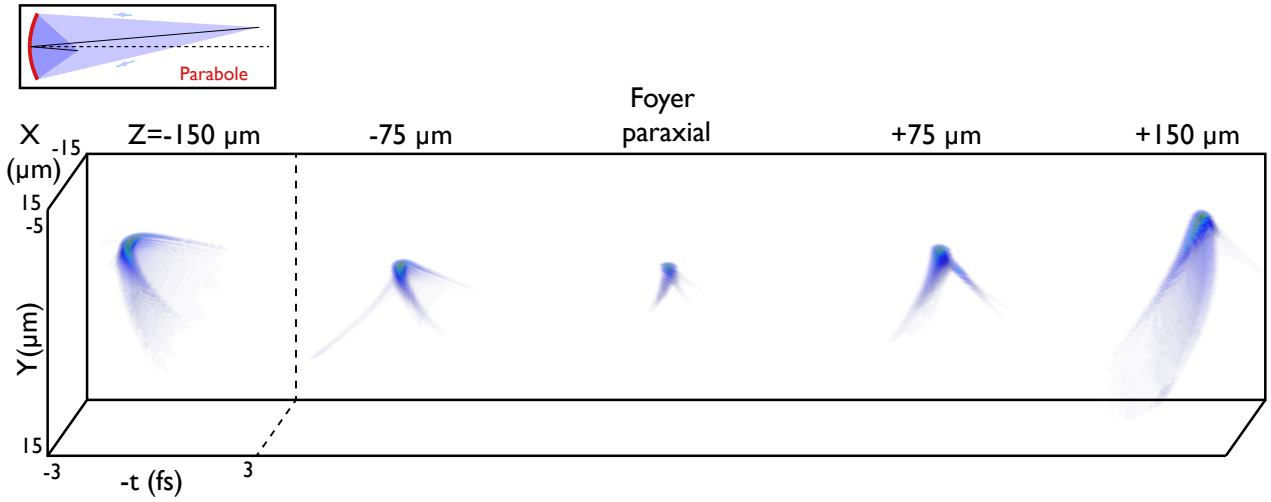


FIGURE 3.13 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde par un miroir parabolique utilisé dans le champ.** Pour chaque position le long de l'axe de propagation, on représente l'intensité de l'impulsion en fonction des variables (x, y, t). L'aberration de coma est responsable de l'apparition d'un double front d'impulsion, donnant une forme caractéristique en "V" inversé à l'impulsion attoseconde.

sur le *spot diagram* 3D de la Fig. 3.12 c). Or ces rayons qui ne sont pas encore focalisés sont responsables de la création du front principal convergent de l'impulsion. La seconde partie de l'impulsion qui se propage derrière la première est générée par les rayons marginaux, ceux réfléchis par les bords du miroir et qui transportent un faible flux (points en bleu marine sur la Fig. 3.12 c)). Le fait que cette partie marginale soit en retard par rapport au front paraxial traduit simplement le fait que les rayons marginaux voient des chemins optiques plus long que les rayons paraxiaux. Mais on voit également les limites de cette interprétation géométrique. En effet, la zone la plus intense de l'impulsion n'est pas le front sphérique paraxial, comme le suggère le *spot diagram* 3D, mais bien le foyer des rayons marginaux. Et l'optique géométrique ne permet pas non plus de décrire les effets d'interférences se produisant à la jonction des fronts en "X" avec le front paraxial convergent.

De telles impulsions avec une forme caractéristique en "X" sont généralement appelées des impulsions de type Bessel (*Bessel-like pulse*) [Fuchs U. et al., 2005, Horvath Z. L. et al., 2006, Bowlan P. et al., 2008a], et ont déjà pu être observées expérimentalement en focalisant des impulsions infrarouges femtosecondes avec des optiques entachées d'aberration sphérique.

Effectuons la même étude au niveau du foyer paraxial. Si l'intensité de l'impulsion sur la Fig 3.12 b) suggère une focalisation relativement propre, le tracé du module du champ fait apparaitre un front d'impulsion divergent au milieu duquel se trouve une zone intense et très localisée. En effet, les rayons paraxiaux sont, par définition, focalisés au foyer paraxial, ce qui crée la zone intense au centre de l'impulsion. Mais les rayons marginaux, en bleu marine sur la Fig. 3.12 d), ont déjà été focalisés au foyer marginal, et se dispersent donc rapidement au niveau du foyer paraxial, participant à la création du front d'impulsion sphérique.

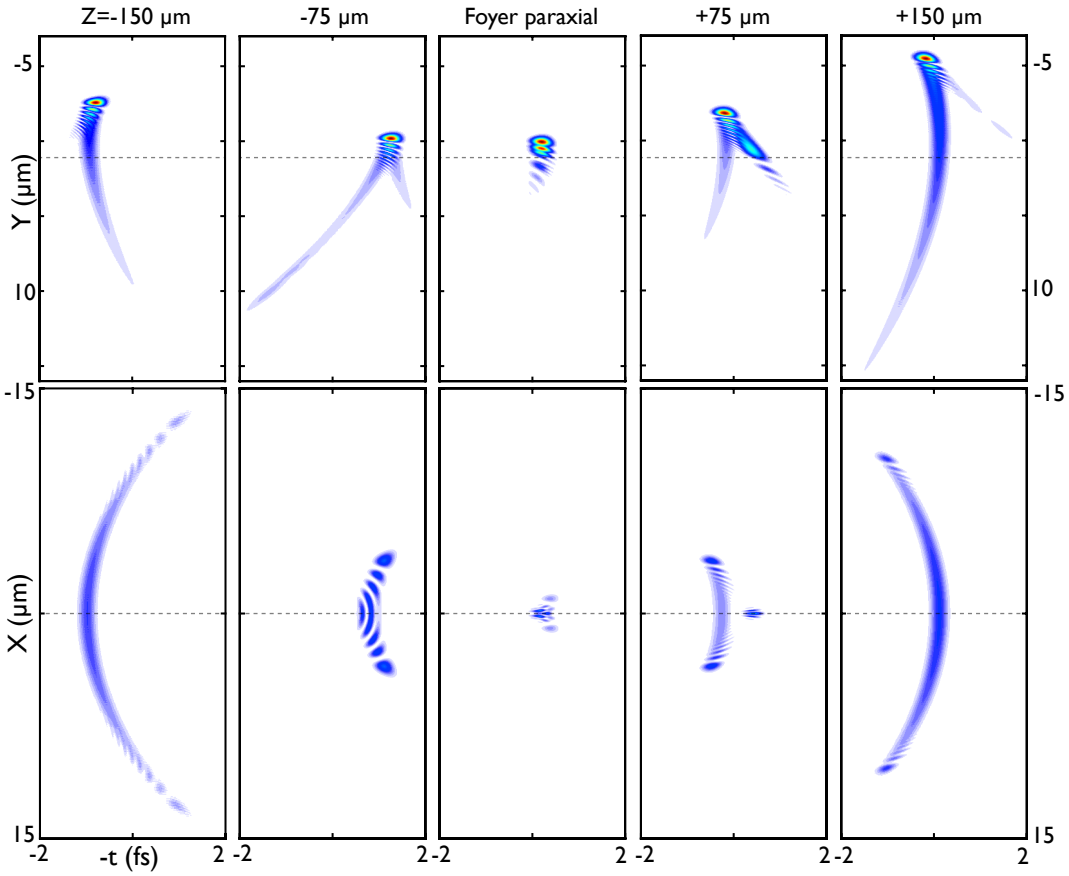


FIGURE 3.14 – **Coupe détaillant la focalisation d'une impulsion attoseconde par un miroir parabolique utilisé dans le champ.** Les lignes pointillées indiquent la position du plan orthogonal associé. Si la forme de l'impulsion est majoritairement dictée par la coma, un faible astigmatisme est responsable de l'évolution non symétrique de l'impulsion de part et d'autre du foyer paraxial.

Conjugaison dans le champ

Considérons maintenant que la source attoseconde soit vue par le miroir sous un angle de champ de 1°, et commençons par le cas du miroir parabolique. Dans une telle configuration, nous nous attendons à ce que l'aberration de coma apparaisse en plus de la faible aberration sphérique déjà observée. Mais cette fois, le problème ne possède plus de symétrie de révolution, et le calcul des impulsions dans les trois dimensions s'impose. On obtient alors le résultat de la Fig. 3.13, sur lequel on retrouve le double front d'impulsion observé au paragraphe 3.2 et caractéristique de la coma.

Pour avoir une vision plus détaillée des choses, nous calculons l'impulsion dans deux plans orthogonaux pour les différentes positions autour du foyer paraxial, voir la Fig. 3.14. On voit alors que comme dans le cas de l'aberration sphérique autour du foyer marginal, des effets d'interférence importants ont lieu à la jonction entre les deux fronts de l'impulsion. De plus, durant la focalisation, l'énergie est transférée d'un front à l'autre de l'impulsion. Le front arrière, quasiment inexistant avant le foyer paraxial, devient le front principal au delà de cette position. Enfin, on peut deviner un faible astigmatisme, l'impulsion semblant plus étendue selon l'axe X que l'axe Y à la cote $-150\,\mu m$, alors que la tendance inverse se dégage à la cote $+150\,\mu m$.

Remplaçons le miroir parabolique par un miroir sphérique utilisé avec un angle de champ de 1°. Dans cette conjugaison, la coma observée dans le cas précédent va s'ajouter à la forte aberration sphérique du miroir. En simulant l'évolution spatio-temporelle de l'impulsion dans les trois dimensions, on obtient le résultat de la Fig. 3.15. On distingue toujours l'influence de la coma qui crée à nouveau deux fronts d'impulsion avant le foyer paraxial. Mais on voit cette fois apparaitre sur le front arrière de l'impulsion un noyau intense qui remonte le long de ce front à mesure que l'impulsion se focalise. Cet effet est clairement du à l'aberration sphérique qui est de plus responsable de l'évolution dissymétrique de l'impulsion de part et d'autre du foyer paraxial.

En calculant l'évolution détaillée de l'impulsion dans différents plans de coupe, voir la Fig. 3.16 a), on retrouve des profils d'intensité relativement similaires à ceux obtenus dans le cas du miroir sphérique sur l'axe, en particulier dans le plan (x, t), du fait de l'aberration sphérique. De plus, pour voir l'influence de la coma, nous pouvons étudier l'évolution du module du champ électrique à la position $-150\,\mu m$ en comparant les Fig. 3.12 a) et Fig. 3.16 b) obtenues lorsque la source se trouvait sur l'axe optique et dans le champ respectivement. On observe alors la disparition de l'un des bras formant le "X" de l'impulsion obtenue dans le cas sur l'axe. En effet, alors que ces deux bras étaient initialement d'intensités égales, la coma a déplacé toute l'énergie dans l'un des bras du "X", donnant au final à l'impulsion la forme "V" inversé. La Fig. 3.16 b) nous montre également qu'une traine moins intense à l'arrière de l'impulsion se poursuit au-delà du plan de coupe calculé. En traçant sur la Fig. 3.16 c) le *spot diagram* 3D associé à cette impulsion, il apparait alors que cette traine créée par les rayons marginaux va s'étaler sur encore plusieurs femtosecondes. Rappelons également que ce type de *spot diagram* 3D ne tient compte que des rayons transportant un flux polychromatique supérieur au pourcent. En d'autres termes, cette traîne peu intense sera en réalité plus longue que celle de la Fig. 3.16 c).

La coma observée dans ces deux conjugaisons dans le champ augmente avec l'angle de champ. Mais pour

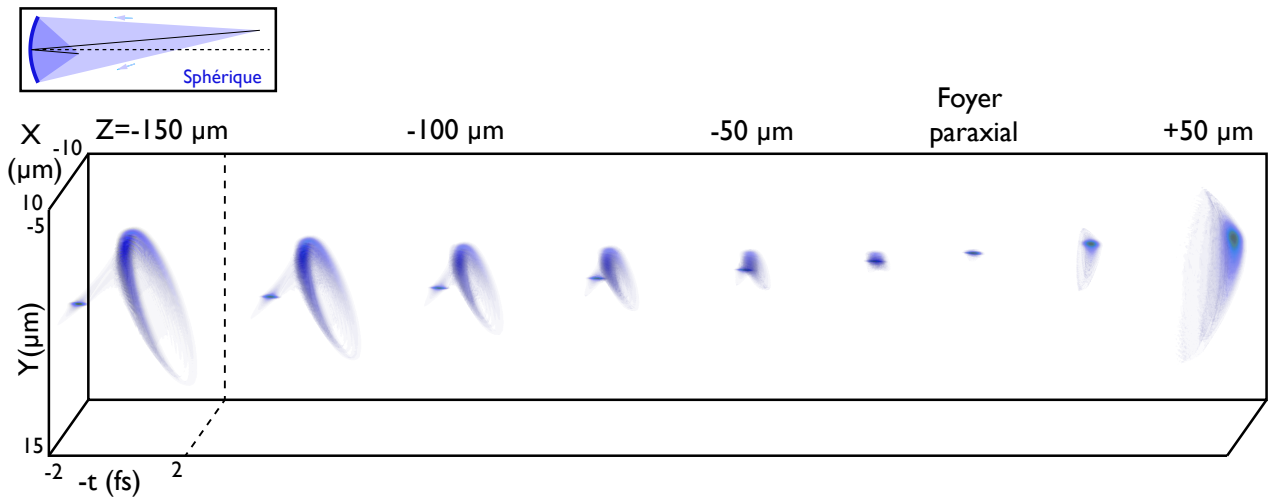


FIGURE 3.15 – **Evolution de l'intensité spatio-temporelle d'une impulsion attoseconde focalisée par un miroir sphérique utilisé avec un angle de champ de** $1°$**.**

des champs très importants, l'astigmatisme deviend prépondérant.

3.3.2 Miroirs torique et ellipsoidal en incidence rasante

L'autre grande catégorie d'optiques utilisées pour la focalisation d'impulsions attosecondes est celle des miroirs en incidence rasante. Nous pouvons même dire de manière exhaustive que ces miroirs sont toujours de forme torique. Cependant, de tels miroirs ne possèdent aucune conjugaison rigoureusement stigmatique. C'est pourquoi on peut leur préférer des miroirs de forme ellipsoïdale, parfaitement stigmatiques en conjugaison foyer-foyer. Pour comparer ces deux optiques, nous allons donc considérer un miroir torique et un miroir ellipsoïdal ayant exactement la même focale et le même angle de rasance optimal, à savoir $750\,mm$ pour un angle de $11.5°$ de rasance, voir la Fig. 3.17 a). Pour ce faire, les rayons de courbure du miroir torique devront être de $299\,mm$ et $7225\,mm$, alors que ceux de l'ellipsoïde devront être de $1500\,mm$ et $299\,mm$. Les miroirs auront tous deux une dimension de $200 \times 40\,mm$.

Etant données les divergences choisies pour la source attoseconde, la tache polychromatique à la surface du miroir possède un diamètre à mi-hauteur d'environ $4\,mm$, soit une ouverture numérique image de l'ordre de 0.001 pour une distance au foyer paraxial de $1500\,mm$. Enfin, comme le montre la Fig. 3.17 (b-c), pour un angle de rasance de $11.5°$, la réflectivité d'un miroir en platine peut être considérée comme constante et sa phase spectrale comme linéaire. On négligera donc la réponse spectrale du miroir pour ne s'intéresser qu'à l'impact de sa forme géométrique sur l'impulsion.

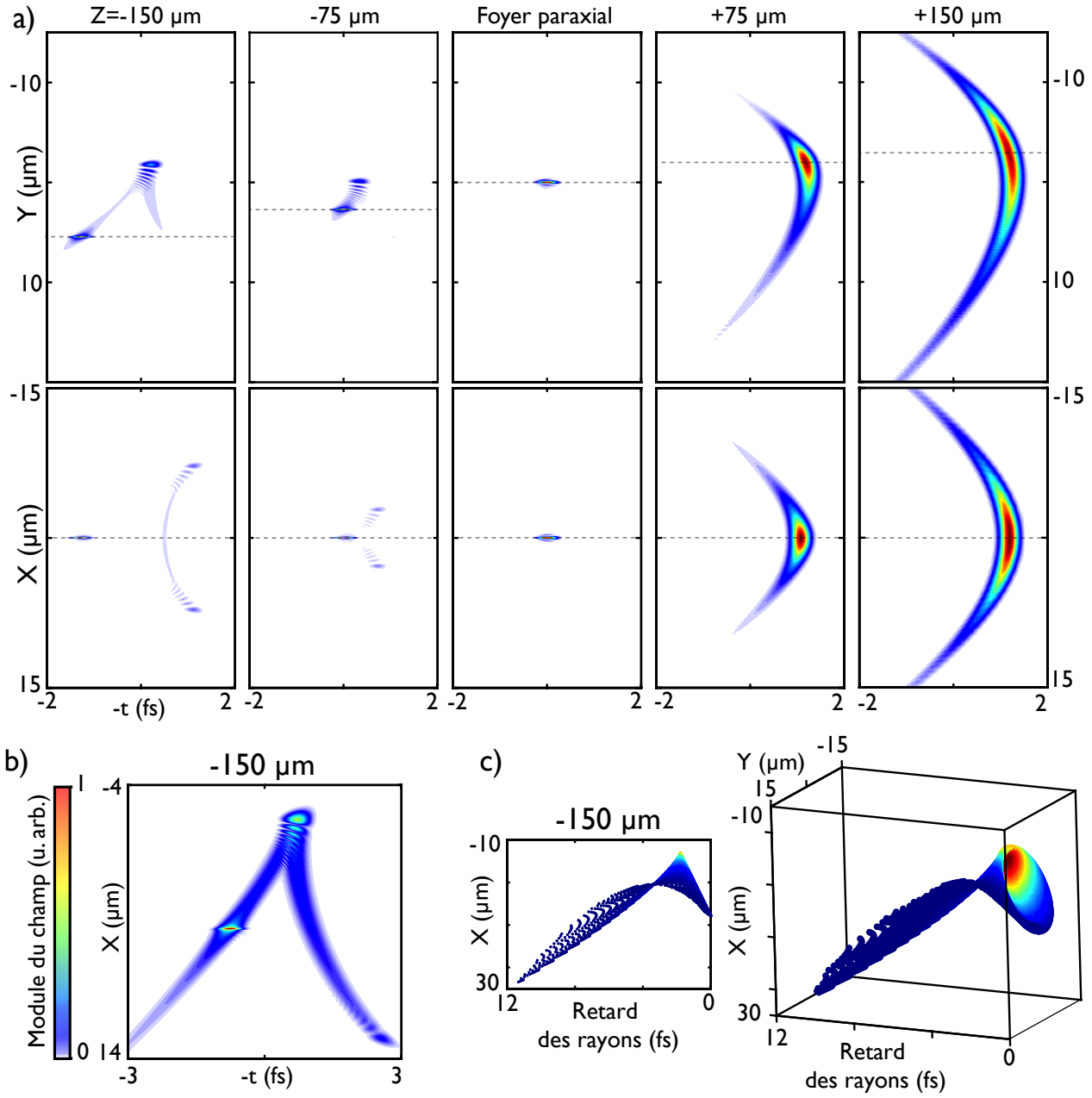


FIGURE 3.16 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde par un miroir sphérique utilisé dans le champ.** a) Coupes représentant l'évolution de l'intensité de l'impulsion autour du foyer paraxial. Les lignes pointillées indiquent la position du plan orthogonal associé. b) Evolution du module du champ électrique dans le plan (y, t) $150\mu m$ avant le foyer paraxial. c) *Spot diagram* 3D de l'impulsion $150\mu m$ avant le foyer paraxial. L'échelle de couleur représente le flux polychromatique porté par chaque rayon. Seuls les rayons transportant un flux supérieur à 1 % du flux maximum sont pris en compte.

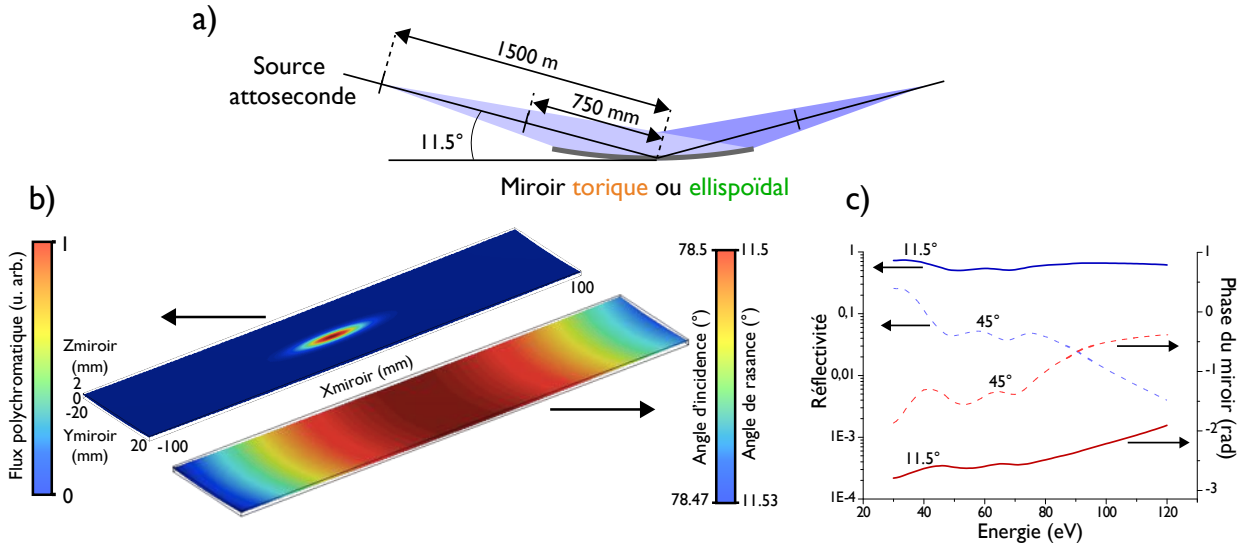


FIGURE 3.17 – **Conditions des simulations pour les miroirs torique et ellipoïdal.** a) Conjugaison $2f-2f$ étudiée. b) Evolution du flux polychromatique et de l'incidence des rayons à la surface du miroir torique en conjugaison $2f-2f$. c) Evolution de la réflectivité et de la phase spectrale d'un miroir en platine pour des angles de rasance de 11.5° et de 45°

Conjugaison 2f-2f

Commençons par le cas du miroir ellipsoïdal. Dans cette conjugaison, un tel miroir est connu pour être rigoureusement stigmatique. On s'attend donc à ce qu'aucune aberration ne soit présente. Et effectivement, les simulations de la Fig. 3.18 a) font apparaitre une impulsion à symétrie de révolution proprement focalisée et limitée par la diffraction au foyer paraxial. Pour vérifier que le miroir ne possède rigoureusement aucune aberration, nous réalisons une étude géométrique de l'impulsion à faible distance autour du foyer paraxial. En procédant ainsi, on peut révéler d'éventuelles aberrations faibles dont l'influence resterait noyée dans la tache de diffraction. Comme on pouvait s'y attendre, la focalisation est géométriquement parfaite, voir la Fig. 3.18 b). A une distance de 250 μm avant et après le foyer paraxial, le front géométrique de l'impulsion reste sphérique et s'étend spatialement sur 2 μm et temporellement sur une dizaine d'attosecondes. Au foyer paraxial, la tache focale prend la forme d'un point unique, confirmant le stigmatisme rigoureux.

Passons maintenant au cas du miroir torique réglé dans les mêmes conditions. Les rayons de courbure du miroir ayant été choisis pour corriger l'astigmatisme, cette aberration ne devrait pas être présente dans ce cas. Mais le calcul diffractif révèle une évolution de l'impulsion similaire à celle du miroir ellipsoïdal précédent, l'impulsion étant focalisée en limite de diffraction au foyer paraxial, voir la Fig. 3.19 a). Aucune aberration ne semble donc présente dans ce cas.

Comme un miroir torique n'est pas censé posséder de conjugaison parfaitement stigmatique, nous menons à nouveau une étude géométrique à faible distance autour du foyer paraxial. Le comportement géométrique

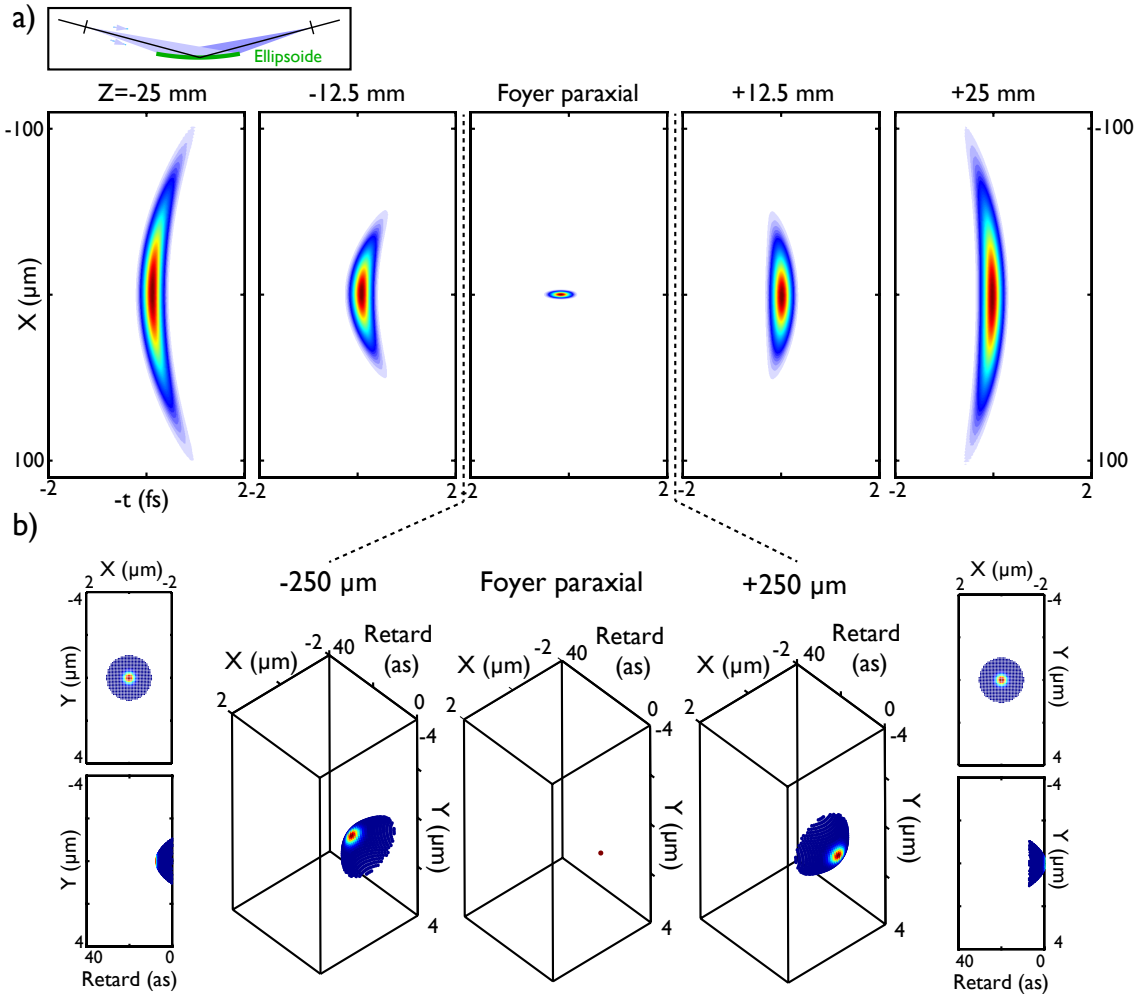


FIGURE 3.18 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde à l'aide d'un miroir ellipsoïdal en conjugaison** $2f - 2f$. a) Evolution radiale de l'intensité de l'impulsion. b) Evolution géométrique de l'impulsion à faible distance du foyer paraxial. Les dimensions du volume choisies pour les *spots diagrams* 3D sont les mêmes que celle de la Fig. 3.19 b). Seuls les rayons transportant un flux supérieur à 1 % du flux maximum sont pris en compte.

de l'impulsion est alors très différent de celui observé dans le cas du miroir ellipsoïdal, comme le montre la Fig. 3.19 b). L'impulsion géométrique n'est plus à symétrie de révolution, et son évolution n'est plus symétrique par rapport au foyer paraxial. Les aberrations intervenant ici prennent des formes plus complexes qu'un simple astigmatisme ou qu'une aberration de coma, on parle alors d'aberrations d'ordres supérieurs. Plus précisément, $250\,\mu m$ avant le foyer paraxial, le *spot diagram* montre une impulsion convergente de profil spatial très allongé selon l'axe X. Au foyer paraxial, l'impulsion géométrique est loin d'être ponctuelle, mais semble se composer d'un noyau duquel partent deux fronts. Et l'évolution de l'impulsion devient encore plus complexe $250\,\mu m$ après le foyer paraxial. Enfin, pour ces trois positions, les retards accumulés entre les différents rayons varient entre $20\,as$ et $40\,as$.

Ces variations géométriques complexes n'apparaissent pas dans le résultat diffractif car leurs dimensions spatiales et les retards associés restent inférieurs respectivement à la taille de la tache de diffraction et à la durée de l'impulsion choisie. Autrement dit, si l'on diminuait la durée de l'impulsion initiale à quelques dizaines d'attosecondes, les retards géométriques observés redeviendraient significatifs. D'autre part, il faut garder à l'esprit que ces *spots diagrams* 3D ne sont constitués que des rayons portant un flux supérieur à 1 %. On néglige donc ici les rayons les plus marginaux provenant de la périphérie du miroir torique. Et si la divergence de la source attoseconde, et donc l'ouverture numérique, venait à augmenter, le rôle de ces rayons ne serait plus négligeable. Pour illustrer les conséquences d'une telle situation sur une impulsion attoseconde, nous traçons sur la Fig. 3.20 le *spot diagram* 3D au foyer paraxial, similaire à celui de la Fig. 3.3, prenant en compte de manière égale les rayons réfléchis par toute la surface du miroir. On retrouve alors la structure observée sur le *spot diagram* 3D au foyer paraxial de la Fig. 3.19 b), mais ses dimensions sont cette fois beaucoup plus importantes. La taille de profil spatial est désormais de l'ordre de plusieurs centaines de microns, mais surtout les retards entre rayons sont désormais de plusieurs femtosecondes.

L'utilisation propre du miroir torique en conjugaison $2f-2f$ est donc soumise à certaines conditions sur la durée des impulsions à focaliser, ainsi que sur la divergence de la source. Pour les conjugaisons à venir, les miroirs torique et ellipsoïdal vont avoir le même comportement, on ne va donc s'intéresser qu'au cas du miroir torique.

Autres conjugaisons sur l'axe

Expérimentalement, il n'est pas toujours pratique d'utiliser un miroir torique en conjugaison $2f-2f$. En effet, dans cette configuration, le point focal se formera à une distance du miroir égale à celle entre la source et le miroir, ce qui ne convient pas forcément à tous les montages expérimentaux. Nous allons donc nous intéresser au cas d'une conjugaison sur l'axe pour un grandissement de 0.5. Dans ces conditions, le point focal se formera à une distance du miroir deux fois plus faible que celle entre le miroir et la source.

Les simulations nous montrent alors qu'une forte aberration de coma apparait, voir la Fig. 3.21 a). En effet, la conjugaison choisie est proche de celle étudiée dans la partie précédente 3.2, et dans laquelle nous avions constaté la présence de coma. On retrouve donc les mêmes impulsions en forme de "V" que celles observées sur

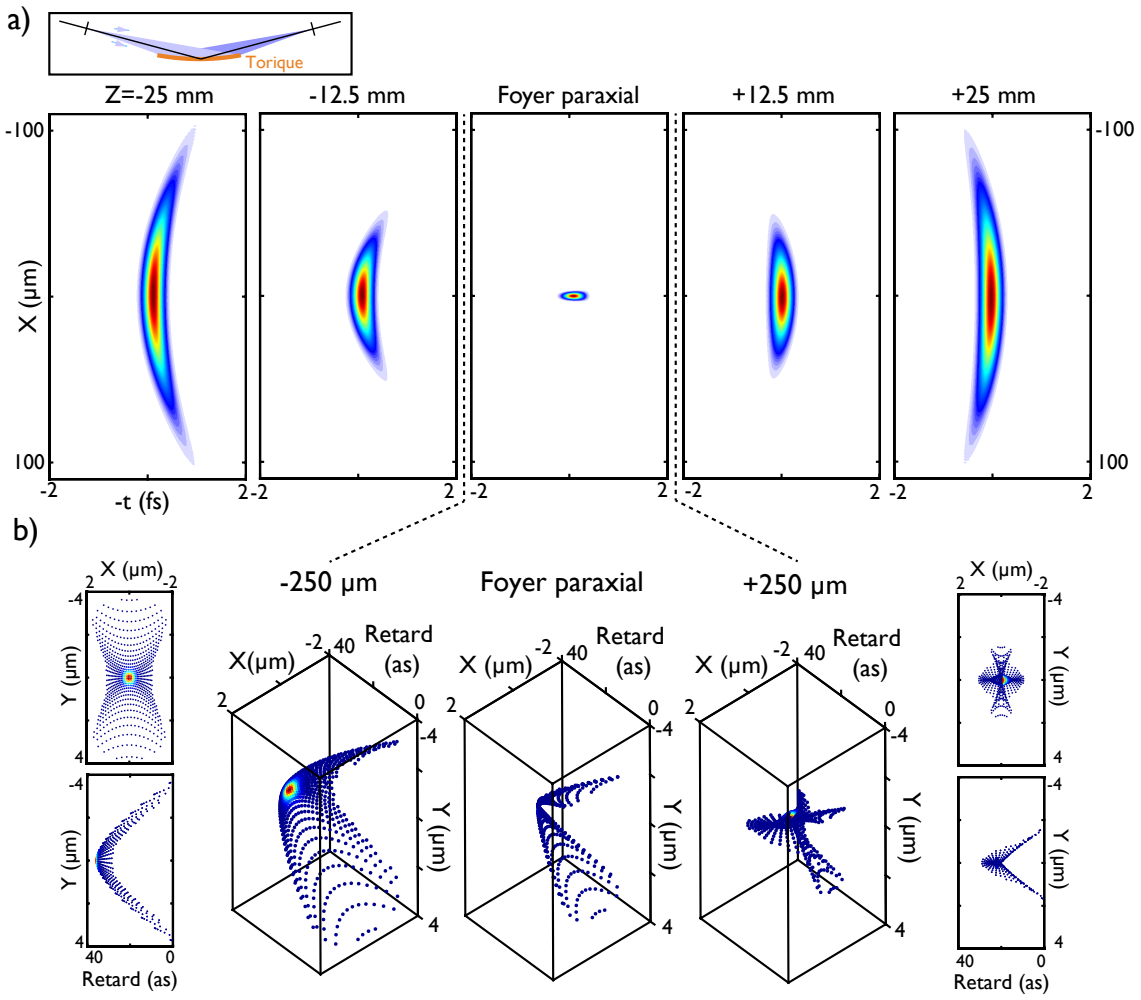


FIGURE 3.19 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde à l'aide d'un miroir torique en conjugaison** $2f - 2f$. a) Evolution radiale de l'intensité de l'impulsion. b) Evolution géométrique de l'impulsion à faible distance du foyer paraxial. Les dimensions du volume choisies pour les *spots diagrams* 3D sont les mêmes que celle de la Fig. 3.18 b). Seuls les rayons transportant un flux supérieur à 1 % du flux maximum sont pris en compte.

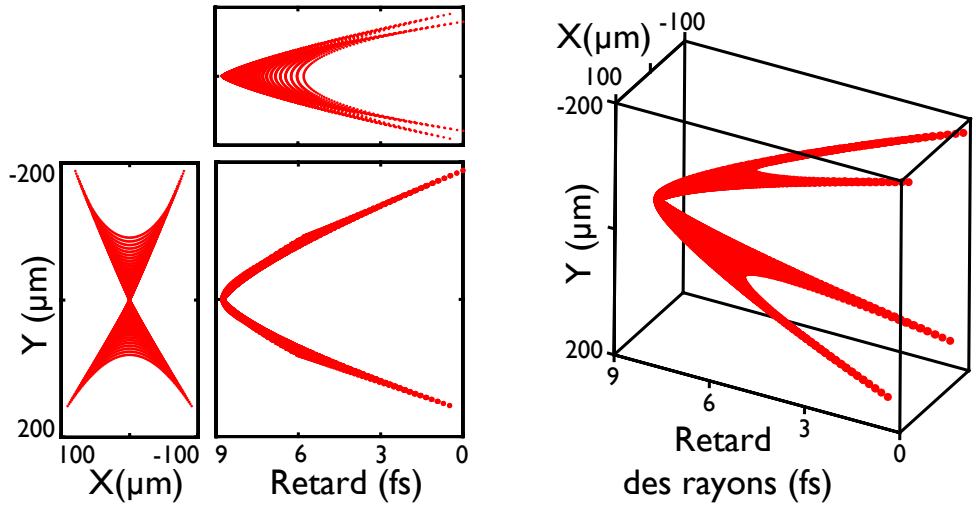


FIGURE 3.20 – ***Spot diagram* 3D au foyer paraxial du miroir torique** obtenu en prenant en compte les rayons réfléchis par toute la surface. Le *Spot diagram* 3D central de la Fig. 3.19 b) correspond à une portion de ce *spot diagram* située au niveau du noeud de l'impulsion, dont les retards sont proches de $9\,fs$. En montrant les retards subis par les rayons par l'intégralité du miroir, on illustre l'impact très important de l'ouverture numérique sur la structure spatio-temporelle de l'impulsion au foyer du miroir torique.

la Fig. 3.14 dans le cas du miroir parabolique dans le champ. Cependant, l'évolution de l'impulsion est cette fois parfaitement symétrique de part et d'autre du foyer paraxial. En effet, dans le cas du miroir parabolique utilisé dans le champ, cette perte de symétrie était due à la présence d'une aberration sphérique résiduelle ainsi qu'à un faible astigmatisme en plus de la coma. Dans le cas actuel du miroir torique, une évolution symétrique de l'impulsion indique la présence exclusive de coma.

De plus, nous avions constaté lors de l'étude géométrique du miroir torique de la partie précédente 3.2 que la coma pouvait produire deux fronts d'impulsion espacés d'une dizaine de femtosecondes, voir la Fig. 3.5. Pour voir si cet ordre de grandeur est maintenu dans le cas actuel, nous traçons sur la Fig. 3.21 (b-c) le module du champ électrique de l'impulsion $12.5\,mm$ avant le foyer paraxial et au foyer paraxial pour faire apparaitre la structure peu intense de l'impulsion. On voit que le double front s'étend au-delà de ce que ne suggérait la distribution d'intensité de l'impulsion, et qu'il existe bien des zones de l'impulsion au niveau desquelles les deux fronts sont séparés de plusieurs femtosecondes. Enfin, le tracé de la fréquence instantanée de l'impulsion sur la Fig. 3.21 b) illustre le fait qu'en présence de coma l'atto-chirp va se répartir de manière égale sur les fronts de l'impulsion.

La coma observée dans cette conjugaison sera d'autant plus forte que l'on s'écartera de la conjugaison $2f - 2f$ précédente, c'est à dire que le grandissement sera différent de 1. De plus, pour un grandissement supérieur à un, la forme des impulsions sera inversée par rapport à l'axe Y, l'aigrette et de double front de l'impulsion pointeront alors vers les valeurs négatives de Y.

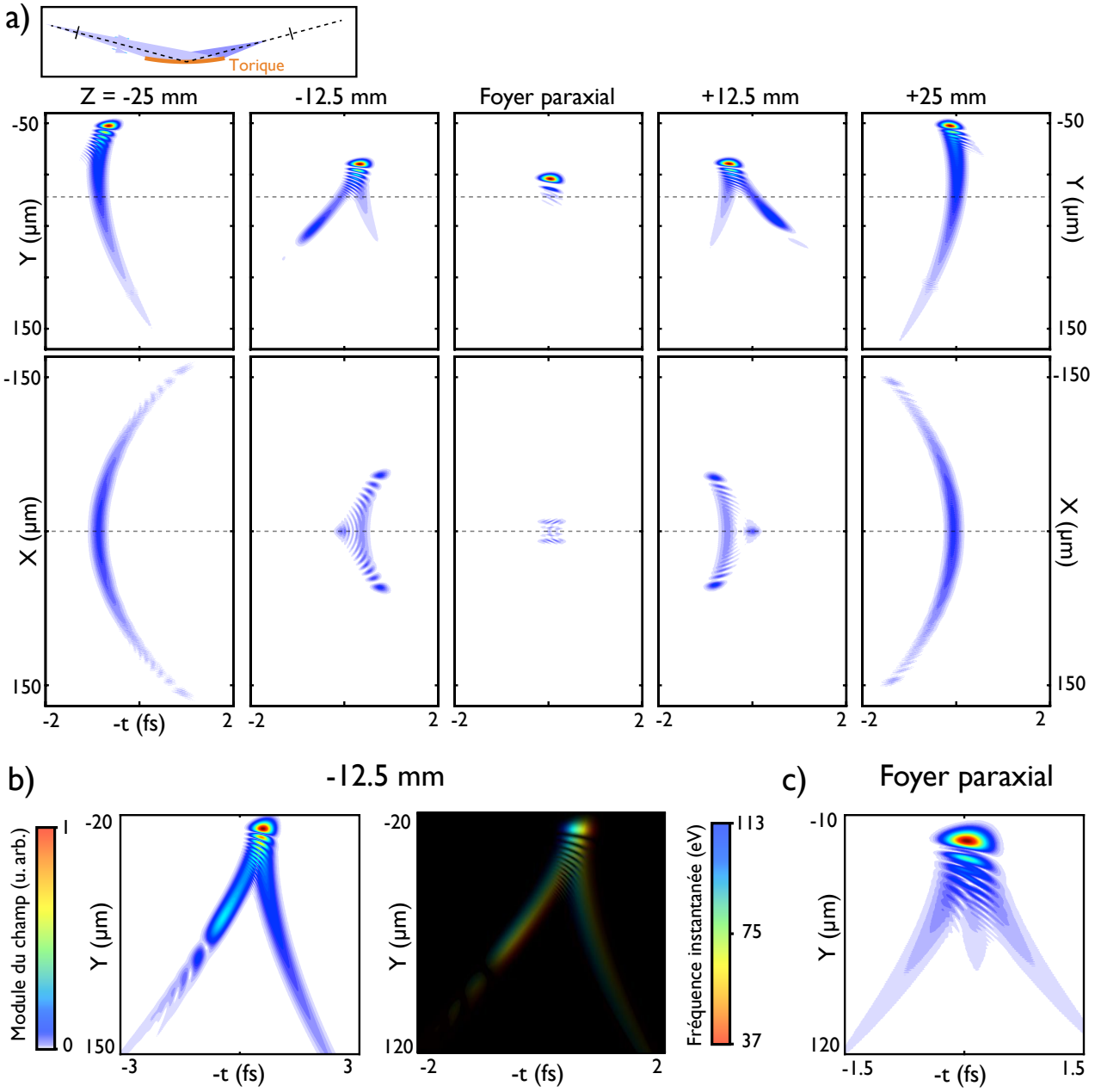


FIGURE 3.21 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde par miroir torique travaillant en grandissement** 0.5**.** a) Evolution de l'intensité de l'impulsion dans deux séries de plans orthogonaux autour du foyer paraxial. Les lignes pointillées indiquent la position du plan orthogonal associé. b) Evolution du module du champ électrique et de la fréquence instantanée de l'impulsion 12.5 mm avant le foyer paraxial. c) Evolution du module du champ électrique de l'impulsion au foyer paraxial.

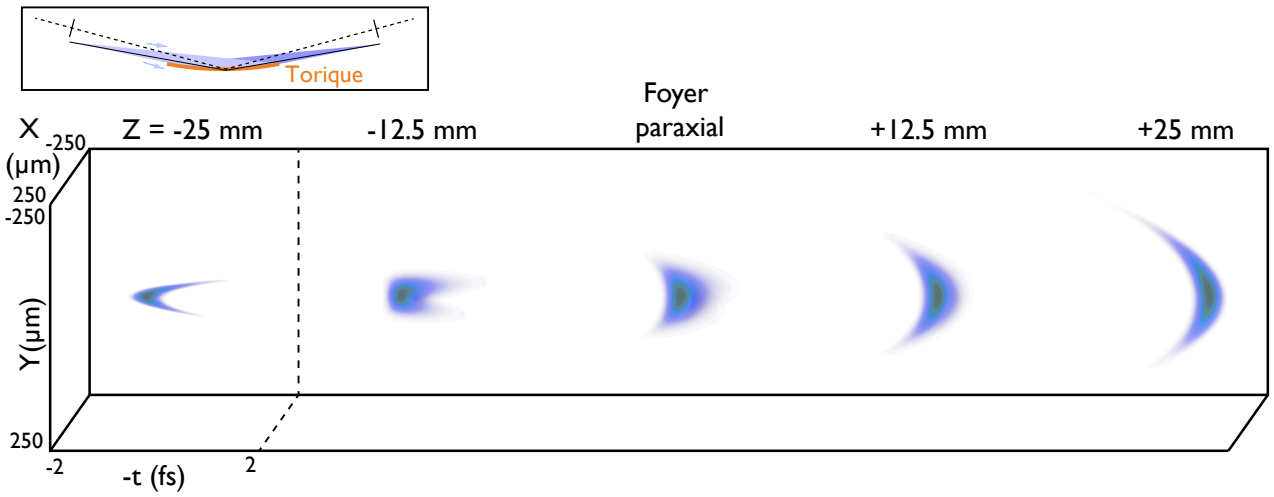


FIGURE 3.22 – **Focalisation d'une impulsion attoseconde par un miroir torique utilisé sous un angle de rasance non optimal.** Dans cette conjugaison, de l'astigmatisme apparait sur l'impulsion, créant un foyer tangentiel à la position $-25\,mm$ et un foyer sagittal à $+25\,mm$.

Conjugaison dans le champ

Nous allons maintenant étudier l'impact d'un écart à l'angle de rasance auquel le miroir est censé travailler. Pour supprimer l'influence de la coma que nous venons d'observer, nous replaçons le miroir en conjugaison $2f-2f$, mais nous faisons passer son angle de rasance de sa valeur optimale de 11.5° à 11.4°. En simulant l'évolution spatio-temporelle de l'impulsion autour du foyer paraxial, on obtient le résultat de la Fig. 3.22. De manière évidente, un fort astigmatisme est présent dans cette conjugaison. En effet, le rayonnement se focalise selon deux axes orthogonaux $25\,mm$ avant et après le foyer paraxial. Cette évolution est détaillée sous forme de coupes sur la Fig. 3.23 a). A une distance de $25\,mm$ avant le foyer paraxial se forme le foyer sagittal, le foyer tangentiel apparaissant $25\,mm$ après le foyer paraxial. Entre ces deux positions, une transition s'opère durant laquelle les courbures des fronts d'impulsion sont inversées dans des plans orthogonaux. De plus, en étudiant cette conjugaison avec l'approche géométrique, voir la Fig. 3.23 b), on retrouve exactement l'évolution de l'impulsion observée avec le calcul diffractif.

Les aberrations précédemment étudiées nous avaient habitué à des formes d'impulsion très complexes, constituées de double fronts d'impulsion et marquées par des effets d'interférences. Mais dans le cas de l'astigmatisme, on voit que son influence sur le profil des impulsions reste relativement simple, et s'apparente à une défocalisation de l'impulsion différente dans deux plans orthogonaux.

Dans le cas présent, nous avions choisi un écart à l'angle de rasance optimal de 0.1°. Mais plus cet écart sera important, plus l'astigmatisme sera fort. Enfin, si l'angle de rasance réel n'est plus inférieur à l'angle optimal comme actuellement, mais supérieur, alors la position des foyers sagittal et tangentiel sera inversée.

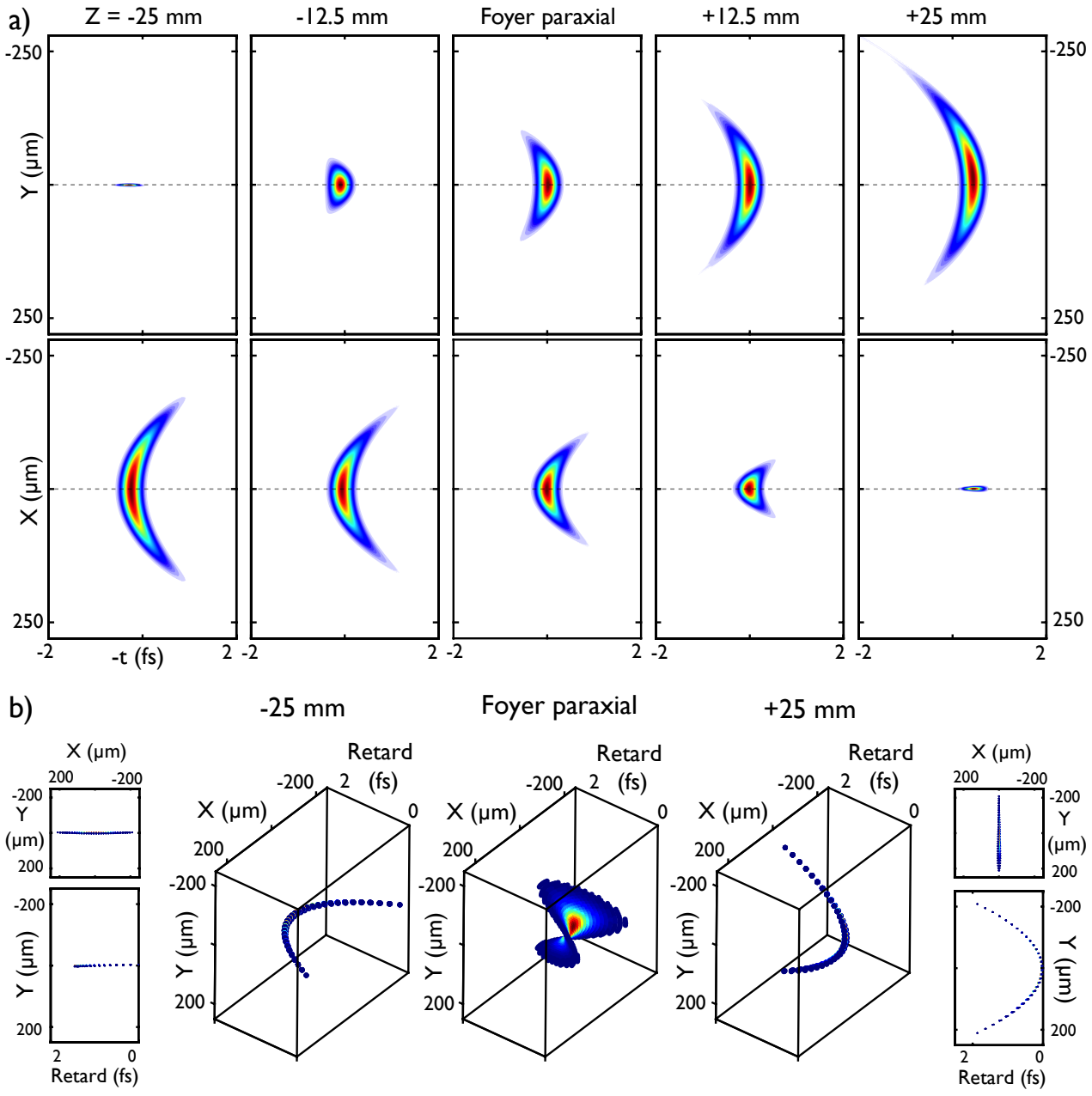


FIGURE 3.23 – **Evolution détaillée de la focalisation de l'impulsion attoseconde par le miroir torique avec un faible angle de champ.** a) Coupes illustrant l'évolution de l'intensité de l'impulsion. b) Evolution géométrique de l'impulsion. Seuls les rayons transportant un flux supérieur à 1 % du flux maximum sont pris en compte.

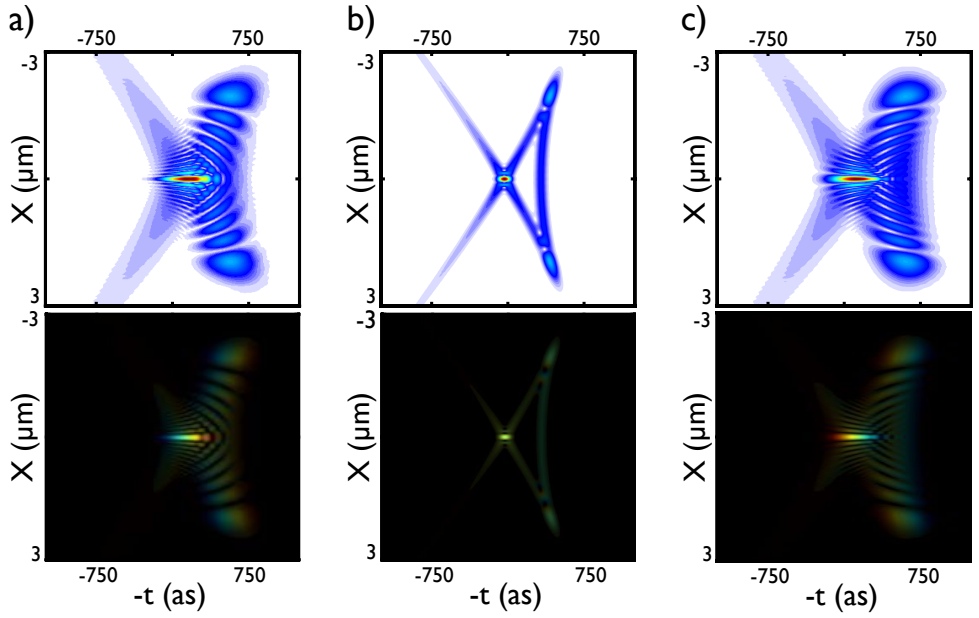


FIGURE 3.24 – **Influence de l'atto-chirp sur la forme spatio-temporelle des impulsions** On représente une impulsion attoseconde $75\,\mu m$ avant le foyer paraxial lorsqu'elle est focalisée par le miroir sphérique sur l'axe de la Fig. 3.11. L'impulsion initiale utilisée pour les calculs possède une GDD de $+6000\,as^2/rad$ (a), $0\,as^2/rad$ (b), et $-6000\,as^2/rad$ (c). Le module du champ électrique (panneaux supérieurs) et la fréquence instantanée de l'impulsion (panneaux inférieurs) sont représentés dans les trois cas. L'échelle des fréquences instantanées reste inchangée par rapport aux figures précédentes.

3.3.3 Influence de l'impulsion initiale

Toutes les simulations que nous venons de présenter ont été effectuées à partir de la même impulsion initiale. Ce choix avait été fait pour permettre une comparaison directe entre les impulsions dans les différentes conjugaisons. Cependant, la forme de l'impulsion initiale n'est pas sans conséquence sur la structure spatio-temporelle de l'impulsion finale. En particulier, deux paramètres vont jouer un rôle important : la valeur de l'atto-chirp et la forme, harmonique ou continue, du spectre XUV.

Phase spectrale de l'impulsion initiale

Dans les simulations précédentes, nous avions ajouté une GDD de $+6000\,as^2/rad$ sur l'impulsion initiale pour prendre en compte l'atto-chirp. Cette GDD aura eu pour effet d'élargir uniformément le ou les fronts de l'impulsion, comme le montre les Fig. 3.10 (b-c) et 3.21 b). De plus, de manière apparemment indépendante, nous avons pu observer des franges d'interférences, légèrement penchées vers l'avant de l'impulsion, à chaque fois que deux fronts d'impulsion se rejoignaient. Or, comme le montre les Fig. 3.14 et 3.21, ces franges conservaient cette même inclinaison vers l'avant de l'impulsion pour chaque position autour du foyer paraxial, semblant donc être indépendantes de la focalisation. Il est même arrivé que ces interférences se produisent sur tout la surface de l'impulsion que lorsque les deux fronts interférant deviennaient suffisamment proches. Ce fut le cas

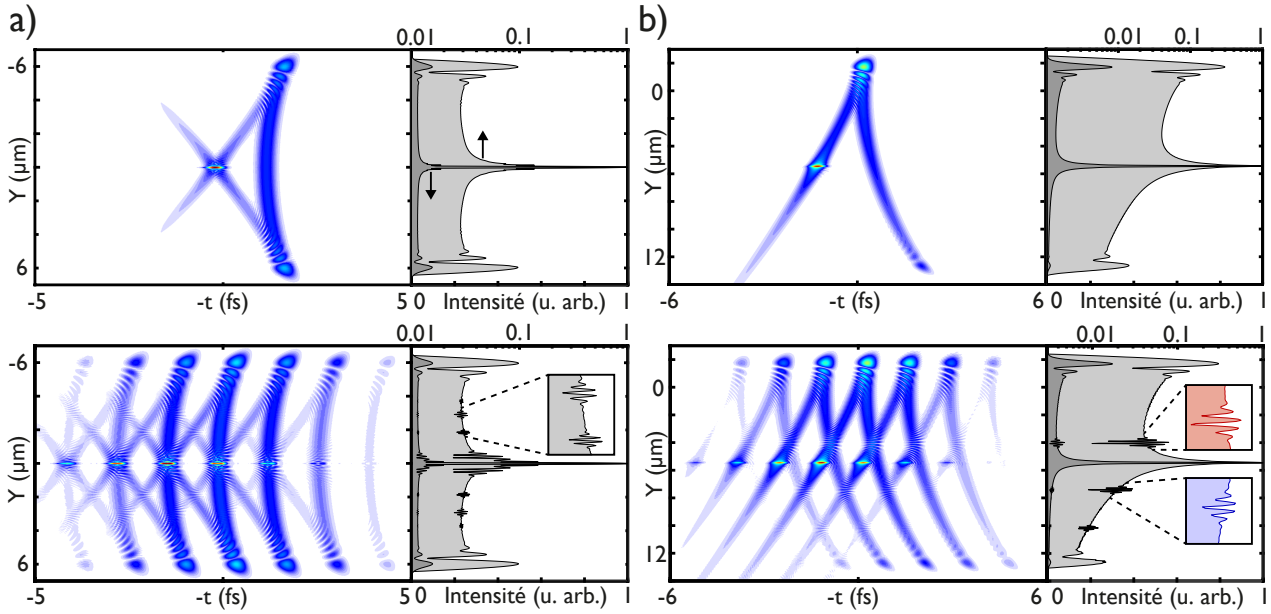


FIGURE 3.25 – **Interférences entre impulsions consécutives d'un train d'impulsions attosecondes.** Module du champ électrique d'une impulsion attoseconde (panneaux supérieurs) et d'un train d'impulsions (panneaux inférieurs) 150 μm avant le foyer paraxial, lorsqu'ils sont focalisés par le miroir sphérique avec une source sur l'axe (a) (Fig. 3.11) et dans le champ (b) (Fig. 3.16). Dans chaque cas, on trace en échelle linéaire (gris foncé) et logarithmique (gris clair) sur le panneau de droite l'intensité intégrée temporellement, soit le signal obtenu par un détecteur ayant une résolution spatiale, mais pas temporelle.

notamment 75 μm avant le foyer paraxial dans le cas d'une focalisation par le miroir sphérique utilisé sur l'axe, cette impulsion est reportée sur la Fig. 3.24 a).

Mais en effectuant la même simulation en partant d'une impulsion limitée par Fourier, voir la Fig. 3.24 b), on voit ces systèmes de franges totalement disparaitre pour faire ressortir la forme en "X" de l'impulsion. De plus, en partant cette fois d'une impulsion initiale possédant une GDD de $-6000\,as^2/rad$, on retrouve à nouveau des interférences temporelles mais inversées par rapport au cas de la GDD positive.

On peut alors interpréter ces franges de la manière suivante : considérons une impulsion constituée de deux fronts se rejoignant. Durant la fusion, l'arrière de l'un des fronts va se superposer à l'avant du second front. Si ces fronts sont chirpés, alors la fréquence instantanée à l'arrière des fronts ne sera pas la même qu'à l'avant, et les deux fréquences se superposant à la jonction des fronts ne seront pas les mêmes. Cela engendrera des battements temporels, qui ne prendront fin que lorsque les fréquences se superposant seront les mêmes, c'est à dire lorsque les deux fronts seront parfaitement superposés l'un sur l'autre.

Train d'impulsions attosecondes

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, beaucoup de sources attosecondes dans le monde génèrent ces impulsions sous forme de trains. La raison à cela réside dans la forme du spectre XUV généré, qui est alors

composé d'harmoniques d'ordre élevé. Ce spectre périodique induit un signal temporel également périodique prenant la forme d'un train d'impulsions attosecondes. Dans l'étude précédente, nous avons pourtant considéré que la source émettait une impulsion attoseconde unique.

De plus, du fait du processus de génération des impulsions, celles-ci sont espacées dans le train d'une demi-période du champ électrique de l'impulsion infrarouge utilisée pour la génération. Dans le cas courant d'une longueur d'onde IR de $800\,nm$, les impulsions seront espacées dans le train d'environ $1.3\,fs$. Or nous avons vu que l'aberration de coma pouvait diviser une impulsion en deux fronts s'écartant rapidement l'un de l'autre. On peut donc se demander ce qu'il adviendra lorsque, dans le cas d'un train d'impulsions attosecondes, la coma séparera ces deux fronts de plus de $1.3\,fs$.

Pour répondre à cette question, nous allons reprendre deux des exemples précédents en partant d'un train d'impulsions. Considérons tout d'abord le cas du miroir sphérique utilisé sur l'axe qui, dans le cas d'une impulsion unique, donnait $150\,\mu m$ avant le foyer paraxial l'impulsion de la Fig. 3.12 a), également reportée sur la Fig. 3.25 a). Cette impulsion a l'avantage de s'étendre en certains points sur plus de $1.3\,fs$. Lorsqu'on focalise un train d'impulsions dans les mêmes conditions, on voit les impulsions se superposer les unes sur les autres. Un phénomène remarquable se produit alors. Lorsque deux impulsions se superposent, elles interfèrent spatialement. Comme le montre la Fig. 3.25 a), ces franges peuvent être résolues sur un détecteur sensible uniquement au profil spatial du rayonnement, tel qu'une caméra CCD. Intéressons nous maintenant à l'impulsion unique de la Fig. 3.16 b) obtenue dans les mêmes conditions que dans l'exemple précédent mais en utilisant le miroir sous l'angle de champ de 1°. En simulant dans les mêmes conditions la focalisation d'un train d'impulsions, on retrouve les franges précédentes, voir la Fig. 3.25 b). Mais contrairement au cas précédent, lorsque deux impulsions consécutives se croisent, elles ne forment qu'un seul système de franges sur le profil spatial. Et plus précisément sur la Fig. 3.25 b) :

- le système de franges coloré en rouge correspond à des interférences entre deux impulsions consécutives du train,
- le système de franges coloré en bleu correspond à des interférences entre deux impulsions du train espacées d'une impulsion dans le train.

Et l'on peut même distinguer un troisième système de franges qui correspond logiquement à des interférences entre deux impulsions du train entre lesquelles se trouvent deux autres impulsions dans le train. Ces impulsions peuvent interférer entre elles car elles ne sont pas indépendantes les unes des autres, elles font partie d'un même train d'impulsions, créé par un unique spectre harmonique. Et c'est bien dans la forme du spectre que réside l'origine réel de ces franges. Ces dernières resteront en effet présentes quelque soit la phase spectrale des impulsions. Il ne faut donc pas confondre ces franges spatiales avec les franges se produisant à la jonction de deux fronts d'impulsion, que nous avons étudié au paragraphe précédent. Ces franges étaient dues à la phase spectrale de l'impulsion, et non à la forme du spectre, et se produisaient dans le domaine temporel. Elles ne sont donc pas visibles sur le profil spatial.

3.3.4 Durée des impulsions aberrantes

En déformant la structure des impulsions attosecondes, les aberrations des optiques ont étalé dans l'espace et dans le temps le rayonnement XUV. En conséquence, la durée de ces impulsions doit avoir augmenté. Mais du fait des couplages spatio-temporels, les propriétés temporelles de l'impulsion, et en particulier sa durée, changent en chaque point. Pour pouvoir malgré tout mesurer une durée sur les impulsions précédentes, nous décidons de considérer l'impulsion intégrée spatialement au foyer paraxial. En se ramener à un signal uniquement temporel, on peut mesurer une durée à mi-hauteur ou RMS comme en l'absence de couplage. En procédant ainsi, nous obtenons les durées suivantes pour quelques uns des exemples pris précédemment :

- Impulsion initiale : 118 as RMS (277 as FWHM),
- Miroirs torique et ellipoïdal en conjugaison $2f-2f$: 118 as RMS (277 as FWHM),
- Miroir parabolique sur l'axe : 157 as RMS (306 as FWHM),
- Miroir sphérique sur l'axe : 331 as RMS (480 as FWHM),
- Miroir parabolique dans le champ : 345 as RMS (317 as FWHM).

Comme nous l'avons vu, les aberrations peuvent créer des fronts d'impulsion très retardés par rapport au noyau principal, mais transportant un très faible flux. Cependant, il est impossible de prendre en compte l'intégralité de ces fronts lors du calcul d'une impulsion, la résolution et la taille du volume de calcul étant limitées. C'est pourquoi ces durées sont probablement sous-estimées, au moins pour la durée RMS.

3.4 Bilan

Pour étudier l'impact des aberrations géométriques sur les impulsions attosecondes, nous avons développé un code de simulation numérique nommé ROSA. Ce code se base sur une double approche géométrique et diffractive du problème, puisqu'il couple un tracé de rayons avec une propagation de l'impulsion par résolution de l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld.

Ce code nous a permis de simuler des situations réalistes de focalisation d'une impulsion attoseconde. En particulier, nous avons étudié le cas des miroirs paraboliques, sphériques, toriques et ellipsoïdaux. Pour résumer les conclusions de cette étude, la Fig. 3.26 illustre les différentes conjugaisons avec les miroirs étudiés et les aberrations présentes dans chaque cas. Le miroir parabolique utilisé sur l'axe comporte une très faible aberration sphérique, à laquelle s'ajoute de la coma et de l'astigmatisme lorsqu'il est utilisé dans le champ. Le miroir sphérique, quant à lui, présente une évolution relativement similaire mais possède une aberration sphérique beaucoup plus importante. Lorsqu'il est utilisé en conjugaison $2f-2f$, le miroir ellipsoïdal ne comporte aucune aberration, alors que le miroir torique possède de très faibles aberrations d'ordres supérieurs. Hors de la conjugaison $2f-2f$, de la coma apparait sur ces miroirs pour des grandissements différents de 1, et l'astigmatisme intervient pour un angle de rasance différent de l'angle optimal. De plus, rappelons que l'influence de l'ouverture numérique est très importante dans le rôle de ces aberrations. Si on la diminue suffisamment, en

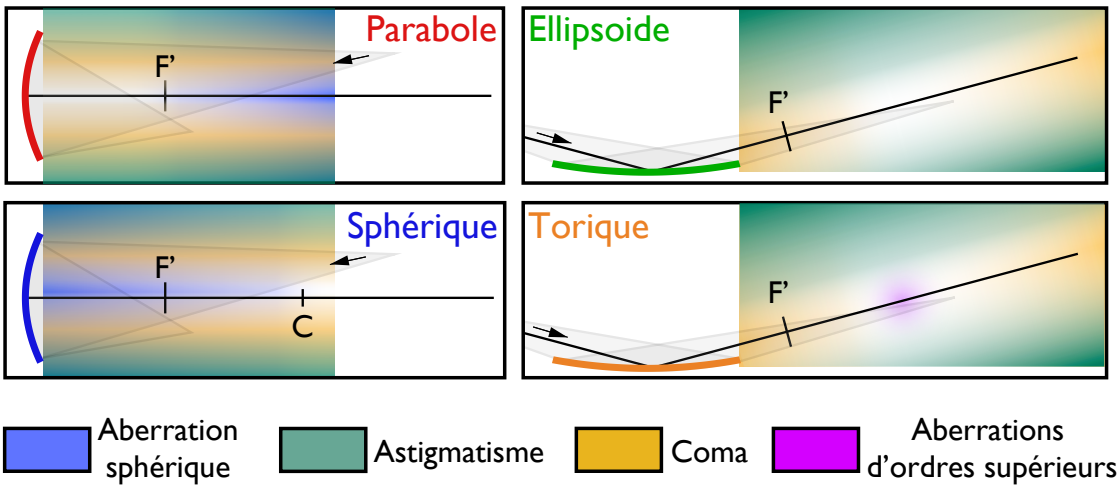


FIGURE 3.26 – **Résumé des aberrations des quatre optiques étudiées.** La carte de couleur représente l'aberration majoritairement présente pour une position donnée du point focal image. Le point F' représente le foyer image et C le centre de courbure du miroir sphérique.

ajoutant un diaphragme de faible ouverture dans le système par exemple, toutes ces aberrations disparaissent.

Nous avons également étudié le rôle des propriétés de l'impulsion initiale sur la structure de l'impulsion finale. Nous avons ainsi constaté que l'atto-chirp était responsable de battements temporels lors de la jonction de plusieurs fronts d'impulsions, et qu'en présence d'un train d'impulsions, des interférences spatiales pouvaient se produire entre impulsions consécutives du train. Enfin, nous avons défini et estimé une durée sur ces impulsions, pour souligner le fait que les aberrations pouvaient provoquer un étirement général des impulsions.

Chapitre 4

Description analytique d'impulsions spatio-temporelles arbitraires

Le chapitre précédent nous a montré que les optiques de focalisation pouvaient avoir un impact très complexe sur la forme et la durée des impulsions attosecondes. Les simulations numériques que nous avons mises en oeuvre permettent de prédire finement l'évolution spatio-temporelle de ces impulsions. Mais nous ne pouvons alors que constater le résultat obtenu à l'issue du calcul numérique, sans comprendre tous les phénomènes physiques sous-jacents. Nous avons donc chercher à traiter analytiquement le problème.

Dans le chapitre 2, nous nous sommes appuyés sur un certain nombre de notions, tels que le spectre, le retard de groupe ou la limite de Fourier, pour décrire une impulsion temporelle. En présence de couplages spatio-temporels, ces grandeurs varient en chaque point, et ne peuvent plus être utilisées en l'état pour décrire la complexité générale de l'impulsion. Des modèles ont été proposés pour décrire ces couplages, les classer en différentes catégories et permettre ainsi de décrire des impulsions spatio-temporelles [Akturk S. et al., 2005, Gabolde P. et al., 2007]. Mais ils se sont limités à des formes simples de couplages pour des profils d'impulsions spatialement et temporellement gaussiens. Pour décrire des impulsions attosecondes aberrantes, nous avons besoin d'un modèle plus général.

4.1 Approche générale du problème

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, dans l'approximation scalaire, un champ électrique spatio-temporel ou spatio-spectral à une position z_0 donnée le long de l'axe de propagation peut s'écrire sous la forme donnée par l'équation (4.1) ou par l'équation (4.2) :

$$E(x, y, z_0, t) = |E(x, y, t)| \cdot e^{i\phi(x,y,t)} \tag{4.1}$$

$$\widetilde{E}(x,y,z_0,\omega) = \left|\widetilde{E}(x,y,\omega)\right| \cdot e^{i\varphi(x,y,\omega)} \tag{4.2}$$

On dit que le champ électrique spatio-temporel, ou spatio-spectral, ne possède pas de couplage spatio-temporel si les variables d'espace et de temps, ou de fréquence, sont séparables. Cela revient à dire que le champ peut s'écrire sous la forme d'un produit d'une fonction temporelle $f(t)$, ou spectrale $\widetilde{f}(\omega)$, et d'une fonction spatiale $g(x,y)$:

$$E(x,y,t) = f(t) \cdot g(x,y) = |f(t)|\,|g(x,y)| \cdot e^{i(\psi(x,y)+\phi(t))} \tag{4.3}$$

$$\widetilde{E}(x,y,\omega) = \widetilde{f}(\omega) \cdot g(x,y) = \left|\widetilde{f}(\omega)\right|\,|g(x,y)| \cdot e^{i(\psi(x,y)+\varphi(\omega))} \tag{4.4}$$

On peut remarquer que, d'après cette définition, une impulsion peut ne posséder aucun couplage et avoir une CEP dépendant de (x,y). En effet, si on réalise un développement de Taylor en ω de la phase spatio-spectrale, il apparaît que le terme $\psi(x,y)$ représente un déphasage absolu de la phase spectrale qui ne jouera un rôle que dans la CEP de l'impulsion. Par contre, en l'absence de couplage, le retard de groupe GD devient indépendant de (x,y) :

$$GD(\omega,x,y) = \frac{d\psi(x,y)+\varphi(\omega)}{d\omega} = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} = GD(\omega) \tag{4.5}$$

En d'autres termes, on dira qu'une impulsion ne possède pas de couplage si :

i) L'amplitude spatio-spectrale peut s'écrire comme le **produit** d'une fonction de l'espace par une fonction de la fréquence. Sinon on dira qu'il y a un **couplage en amplitude**.

ii) La phase spatio-spectrale peut s'écrire comme la **somme** d'une fonction de l'espace et d'une fonction de la fréquence, ou si le retard de groupe ne dépend que de la fréquence. Dans le cas contraire, on dira qu'il y a un **couplage en phase**.

4.1.1 Grandeurs locales et globales

On peut résumer les équations précédentes de la manière suivante : lorsqu'il n'y a pas de couplage, le spectre de l'impulsion aura la même forme en tout point de l'espace, son retard de groupe sera le même en chaque point, et la forme et donc la durée de l'impulsion seront également les mêmes en chaque point. A l'inverse, en présence de couplage, les propriétés de l'impulsion ne seront plus les mêmes en tout point. Pour pouvoir décrire une impulsion spatio-temporelle arbitraire, il faut donc définir des grandeurs plus générales. Pour ce faire, la solution la plus simple consiste à définir deux échelles de travail sur l'impulsion : une échelle locale et une échelle globale [Akturk S. et al., 2005, Gabolde P. et al., 2007]. A l'échelle locale, c'est à dire à un point (x,y) donné, une impulsion redevient un signal purement temporel, et il est facile de définir une

durée d'impulsion ou un spectre. Travailler à l'échelle globale revient à moyenner spatialement les propriétés locales, de manière à obtenir à nouveau des grandeurs dépendant uniquement du temps ou de la fréquence. Ce principe de base peut s'appliquer à toutes les propriétés d'une impulsion définies jusqu'à présent. Cependant, nous allons nous intéresser particulièrement à quatre d'entre elles, à savoir le profil temporel, la durée RMS de l'impulsion, son spectre, et son retard de groupe.

L'impulsion globale

Dans le chapitre précédent, pour pouvoir obtenir la durée d'une impulsion spatio-temporelle attoseconde étirée par les aberrations, nous avions travaillé sur l'impulsion spatialement intégrée. Il s'agit en effet du moyen le plus simple pour définir un profil temporel d'impulsion à partir d'une impulsion spatio-temporelle [Planchon T. A. et al., 2004]. On nomme le signal ainsi obtenu l'impulsion globale :

$$I_G(t) = \iint_{-\infty}^{+\infty} |E(x,y,t)|^2 \, dxdy \tag{4.6}$$

Cette impulsion globale représente le signal temporel que l'on obtiendrait avec une photodiode imaginaire de résolution temporelle suffisante, mais sans résolution spatiale, et dont le plan de détection serait orthogonal à l'axe de propagation de l'impulsion.

La durée globale

Fort logiquement, la durée RMS de l'impulsion globale sera nommée durée globale [Akturk S. et al., 2005, Gabolde P. et al., 2007] :

$$\Delta t_G^2 = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, t^2 dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, dt} - \left(\frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, t dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, dt} \right)^2 \tag{4.7}$$

Le spectre global

Par analogie avec l'impulsion globale, on peut très simplement définir le spectre global S_G comme étant le spectre local $\left|\widetilde{E}(x,y,\omega)\right|^2$ spatialement intégré :

$$S_G(\omega) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \left|\widetilde{E}(x,y,\omega)\right|^2 dxdy \tag{4.8}$$

Le retard de groupe global

Enfin, on peut définir un retard de groupe global GD_G en prenant la moyenne du retard de groupe local $GD(x,y,\omega)$ pondéré par le spectre local :

$$GD_G(\omega) = \langle GD \rangle_{(x,y)} = \frac{\iint_{-\infty}^{+\infty} \left|\widetilde{E}(x,y,\omega)\right|^2 GD(x,y,\omega)\, dxdy}{\iint_{-\infty}^{+\infty} \left|\widetilde{E}(x,y,\omega)\right|^2 dxdy} \tag{4.9}$$

$\langle\rangle_{(x,y)}$ représente la moyenne pondérée par l'intensité spatiale. Par la suite, il sera également pratique de définir la moyenne pondérée par l'intensité spectrale $\langle\rangle_{(\omega)}$. Enfin, la combinaison des moyennes spatiale et spectrale sera résumée en l'opérateur $\langle\rangle_{(x,y,\omega)}$.

Ces grandeurs globales vont par la suite s'avérer très utiles. Elles vont désormais nous servir de propriétés de référence de l'impulsion, et elles permettent d'ores et déjà de redéfinir la notion de couplage. En effet, on peut facilement vérifier qu'en l'absence de couplage, chacune de ces grandeurs globales devient en tout point égale à la grandeur locale associée. Par contre, en présence de couplage, ces propriétés locales vont s'écarter des propriétés globales de référence. En particulier, **le couplage en amplitude** consistera en **un écart du spectre local au spectre global**, et **le couplage en phase en un écart du retard de groupe local au retard de groupe global.**

4.1.2 Réduction à des impulsions temporelles

L'avantage principal des grandeurs globales est de réduire une impulsion spatio-temporelle à des grandeurs dépendant uniquement de t ou de ω, et qui sont bien plus simples à étudier. C'est en particulier le cas pour l'impulsion globale. Mais puisque nous disposons également d'un spectre global et d'un retard de groupe global, on peut définir, en plus de l'impulsion globale, des impulsions temporelles particulières associées à l'impulsion spatio-temporelle :

La limite de Fourier globale

On définit l'impulsion en limite de Fourier globale $I_{TF_G}(t)$ comme étant l'impulsion de spectre le spectre global et de phase nulle :

$$I_{TF_G}(t) = \left|TF\left[\sqrt{S_G}\right]\right|^2 \tag{4.10}$$

L'impulsion découplée

On peut également définir l'impulsion découplée $I_{dec}(t)$ comme l'impulsion ayant pour spectre le spectre global et pour retard de groupe le retard de groupe global :

$$I_{dec}(t) = \left|TF\left[\sqrt{S_G}\cdot\exp\left(i\int_{-\infty}^{\omega} GD_G d\omega'\right)\right]\right|^2 \tag{4.11}$$

En l'absence de couplage, l'impulsion globale correspond à l'impulsion découplée et à l'impulsion locale en chaque point. Quant à l'impulsion en limite de Fourier globale, elle correspond logiquement à la limite de

Fourier usuelle en l'absence de couplage.

4.1.3 Décomposition de la durée globale

Nous allons maintenant nous intéresser à la durée globale de l'impulsion. Nous avons vu dans le chapitre 1 que la durée RMS d'une impulsion sans couplage pouvait s'écrire sous la forme suivante [Walmsley I. A. et al., 2001] :

$$\Delta t^2 = \Delta t_{TF}^2 + \Delta GD^2 \tag{4.12}$$

D'après l'équation (4.12), la durée RMS Δt peut se décomposer en la somme quadratique de deux paramètres :

i) Δt_{TF} est la durée de l'impulsion en limite de Fourier.

ii) ΔGD correspond à l'écart-type des variations spectrales du retard de groupe GD.

Cette décomposition de la durée d'une impulsion sans couplage nous apprend que toute variation spectrale du retard de groupe GD, c'est à dire toute variation non linéaire de la phase spectrale, étirera l'impulsion. De plus, étant dans le cas d'une impulsion sans couplage, les grandeurs globales et locales se confondent, et l'on peut réécrire l'équation (4.12) en utilisant les grandeurs globales. Dans cette équation, on note Δt_{TF_G} la durée RMS de la limite de Fourier globale $I_{TF_G}(t)$.

$$\Delta t_G^2 = \Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2 \tag{4.13}$$

Dans le cas général d'une impulsion couplée, il est toujours possible de décomposer la durée de l'impulsion globale en différents termes. Mais cette fois deux termes supplémentaires τ_{AC} et τ_{PC} s'ajoutent aux deux termes Δt_{TF_G} et ΔGD_G déjà présents :

$$\Delta t_G^2 = \Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2 + \tau_{AC}^2 + \tau_{PC}^2 \tag{4.14}$$

La démonstration complète de cette décomposition est donnée en Annexe A. Cette décomposition de la durée globale va s'avérer être un outil fondamental par la suite. Nous allons donc nous intéresser à chacun des termes qui composent Δt_G^2.

La durée en limite de Fourier globale

Δt_{TF_G} représente la **durée en limite de Fourier globale**. Par définition, elle correspond à la durée de l'impulsion en limite de Fourier globale $I_{TF_G}(t)$, et vérifie également l'équation (4.15) :

$$\Delta t_{TF_G}^2 = K^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\partial \sqrt{S_G(\omega)}}{\partial \omega} \right)^2 d\omega \tag{4.15}$$

Avec K la constante de normalisation égale à $\int_{-\infty}^{+\infty} S_G(\omega)\, d\omega$.

Mais d'après l'équation (4.14), il s'agit également de la plus courte durée globale possible étant données les composantes spectrales en présence. Et $I_{TF_G}(t)$ est donc également la plus courte l'impulsion globale possible. Cette durée limite est atteinte lorsque l'impulsion ne possède pas de couplage spatio-temporel et lorsque sa phase spectrale est linéaire, voir la Fig. 4.1 a).

La dispersion du retard de groupe global

ΔGD_G correspond à la **dispersion du retard de groupe global** et vérifie l'équation :

$$\Delta GD_G^2 = K^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} S_G \cdot GD_G^2 d\omega^2 - K^{-2} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} S_G \cdot GD_G d\omega \right]^2 \tag{4.16}$$

Elle représente la synchronisation globale des composantes spectrales d'une impulsion spatio-temporelle, comme le montre la Fig. 4.1 b). Ce terme représente donc l'impact sur la durée globale de phénomènes tels que le *chirp* temporel ou la dispersion d'ordres supérieurs.

La durée du couplage en amplitude

τ_{AC} représente l'étirement temporel du à un couplage en amplitude. On appelle donc τ_{AC} la **durée du couplage en amplitude**, *AC* étant l'abréviation de *Amplitude Coupling*, voir la Fig. 4.1 c). Cette durée devient nulle si toutes les composantes spectrales sont également réparties dans l'espace, c'est à dire si la durée en limite de Fourier locale $\Delta t_{TF}(x,y)$ est égale à Δt_{TF_G} en tout point, voir l'équation (4.17). τ_{AC} résume donc l'influence sur la durée globale de phénomènes tels que le *chirp* spatial.

$$\tau_{AC} = \left\langle \Delta t_{TF}^2(x,y) - \Delta t_{TF_G}^2 \right\rangle_{(x,y)}^{1/2} \tag{4.17}$$

On voit ici apparaître la différence fondamentale entre la limite de Fourier locale d'une impulsion et la limite de Fourier globale. En effet, τ_{AC} nous montre qu'une impulsion spatio-temporelle peut être limitée par Fourier en tout point de l'espace sans pour autant atteindre la limite par Fourier globale.

La durée du couplage en phase

Enfin, τ_{PC} représente la **durée du couplage en phase**, c'est à dire l'étirement temporel induit par un couplage en phase (*Phase Coupling*). Cette durée quantifie la synchronisation spatiale des composantes spectrales de l'impulsion, voir l'équation (4.18) et la Fig. 4.1 d). Ce terme résume l'influence de phénomènes tels qu'un retard temporel de l'impulsion variable dans l'espace.

$$\tau_{PC} = \left\langle \left[GD(x,y,\omega) - GD_G(\omega) \right]^2 \right\rangle_{(x,y,\omega)}^{1/2} \tag{4.18}$$

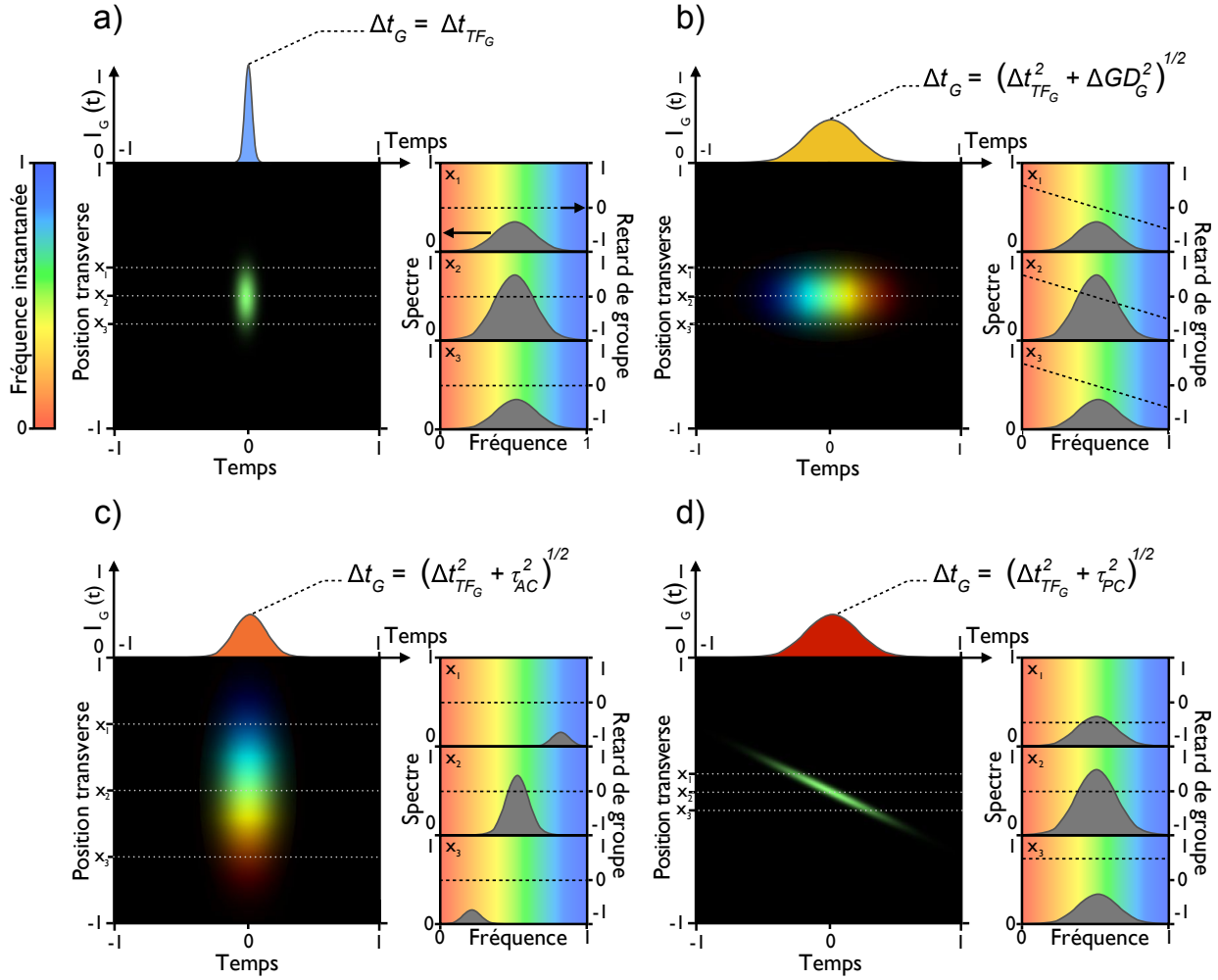


FIGURE 4.1 – **Décomposition de la durée globale d'une impulsion spatio-temporelle arbitraire en quatre durées élémentaires**. Les échelles sont en unités arbitraires. Dans chaque cas, la fréquence instantanée de l'impulsion spatio-temporelle (panneau central) et l'impulsion globale correspondante (partie supérieure) sont représentées, ainsi que le spectre local (courbes colorées en gris) et le retard de groupe local (courbe pointillée noire) pour trois positions différentes (panneau droit). a) La plus courte durée globale possible Δt_{TF_G} est atteinte lorsque toutes les composantes spectrales sont synchronisées dans l'espace et dans le temps et qu'elles sont réparties dans l'espace de manière égale. L'impulsion globale sera étirée par b) toute désynchronisation temporelle des composantes spectrales, due par exemple à un *chirp* temporel, c) toute inhomogénéité dans leur répartition spatiale, induite par des phénomènes tels qu'un *chirp* spatial, ou d) toute désynchronisation spatiale de ces composantes spectrales, causée par exemple par un retard temporel de l'impulsion variant dans l'espace.

L'équation (4.12) nous apprend qu'une impulsion sans couplage spatio-temporel peut être décrite comme une impulsion limitée par Fourier étirée par toute variation non-linéaire de sa phase spectrale. L'équation (4.14) étend cette analyse à des impulsions spatio-temporelles quelconques. Elle établit que tout couplage spatio-temporel, c'est à dire tout écart des grandeurs locales aux grandeurs globales (voir les équations (4.17) et (4.18)), étire une impulsion lumineuse. De plus, il convient de rappeler que l'équation (4.14) est une formule très générale qui s'applique à des impulsions arbitrairement complexes.

4.1.4 Résumé des grandeurs définies

Toutes les grandeurs utilisées sont résumées dans le tableau ci-dessous sous la forme d'une comparaison entre les grandeurs locales, et les grandeurs globales associées. Cependant, certaines quantités n'ont de sens qu'à l'échelle globale, et ne peuvent pas avoir d'équivalent local, tel que τ_{AC}, τ_{PC} ou $I_{dec}(t)$.

Grandeur	**Echelle locale**	**Echelle globale**
Intensité temporelle	$I(x,y,t)$	$I_G(t)$
Spectre	$S(x,y,\omega)$	$S_G(\omega)$
Retard de groupe	$GD(x,y,\omega)$	$GD_G(\omega)$
Impulsion découplée		$I_{dec}(t)$
Limite de Fourier	$I_{TF}(x,y,t)$	$I_{TF_G}(t)$
Durée en limite de Fourier	$\Delta t_{TF}(x,y)$	Δt_{TF_G}
Dispersion des retards de groupe	$\Delta GD(x,y)$	ΔGD_G
Durée du couplage en amplitude		$\tau_{AC} = \left\langle \Delta t_{TF}^2 - \Delta t_{TF_G}^2 \right\rangle_{(x,y)}^{1/2}$
Durée du couplage en phase		$\tau_{PC} = \left\langle [GD - GD_G]^2 \right\rangle_{(x,y,\omega)}^{1/2}$
Durée RMS de l'impulsion	$\Delta t(x,y) = \sqrt{\Delta t_{TF}^2 + \Delta GD^2}$	$\Delta t_G = \sqrt{\Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2 + \tau_{AC}^2 + \tau_{PC}^2}$

Enfin, nous pouvons faire une dernière remarque concernant les durées RMS des trois impulsions temporelles que sont $I_{TF_G}(t)$, $I_{dec}(t)$ et $I_G(t)$. En effet :

i) $I_{TF_G}(t)$ a pour durée Δt_{TF_G},

ii) $I_{dec}(t)$ a une durée Δt_{dec} égale à $\sqrt{\Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2}$ d'après l'équation (4.12) appliquée à une impulsion de spectre S_G et de retard de groupe GD_G,

iii) $I_G(t)$ a pour durée Δt_G qui est égale à $\sqrt{\Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2 + \tau_{AC}^2 + \tau_{PC}^2}$

De manière évidente, la durée globale sera donc toujours supérieure ou égale à la durée de l'impulsion découplée, elle-même étant supérieure ou égale à Δt_{TF_G} :

$$\Delta t_{TF_G} \leq \Delta t_{dec} \leq \Delta t_G \tag{4.19}$$

4.2 Application aux impulsions IR femtosecondes

Nous allons maintenant mettre en application le modèle précédent, et en particulier la décomposition de la durée globale, sur divers exemples. Puisque le formalisme que nous avons développé ne fait aucune hypothèse sur la durée des impulsions ni sur leur domaine spectral, ce modèle n'est pas restreint aux seules impulsions XUV attosecondes. Nous allons tout d'abord le mettre en pratique sur des impulsions infrarouges femtosecondes.

4.2.1 Exemples de base

Nous simulons numériquement une impulsion simple de phase spectrale nulle et sans couplage spatio-temporel. Il s'agit d'une impulsion gaussienne de durée $10\,fs$ RMS et de longueur d'onde centrale $800\,nm$. Le profil spatial de l'impulsion est également gaussien de largeur RMS Δx égale à $1\,\mu m$. Nous ajoutons ensuite diverses distorsions à l'impulsion et calculons numériquement la décomposition de la durée globale dans chaque cas. Pour simplifier les choses, nous ne considérons ici que des impulsions dépendant de (x,t), les équations précédentes restent donc valides si l'on supprime la coordonnée y.

Retard temporel dépendant de l'espace

Considérons tout d'abord une impulsion déformée par un retard temporel variant linéairement dans l'espace avec une pente γ égale à $20\,fs/\mu m$. Les simulations donnent alors l'impulsion inclinée représentée sur la Fig. 4.2 a). La décomposition de la durée globale obtenue numériquement montre que l'impulsion est étirée par un couplage en phase. En effet, il ne peut pas y avoir de couplage en amplitude puisque le spectre local reste le même en tout point. Cette distorsion affecte uniquement le retard de groupe local, ce dernier étant donné par l'équation (4.20) :

$$GD\,(x) = \gamma \cdot (x - x_0) \tag{4.20}$$

Dans cette équation, x_0 correspond à la position centrale de l'impulsion, c'est à dire à $0\,\mu m$. Puisque le retard de groupe local ne dépend pas de ω, toutes les composantes spectrales restent synchronisées à un point donné de l'espace, si bien que le retard de groupe global GD_G est forcément nul. Par contre, comme le montre l'équation (4.5), un retard de groupe local dépendant de x indique un couplage en phase. En effet, l'équation (4.18) donne immédiatement le résultat suivant pour τ_{PC} :

$$\tau_{PC} = |\gamma| \cdot \Delta x \tag{4.21}$$

Enfin, puisque Δx vaut $1\,\mu m$, l'équation (4.21) prévoit un étirement de l'impulsion de $20\,fs$, ce que montrent les simulations numériques de la Fig. 4.2 a).

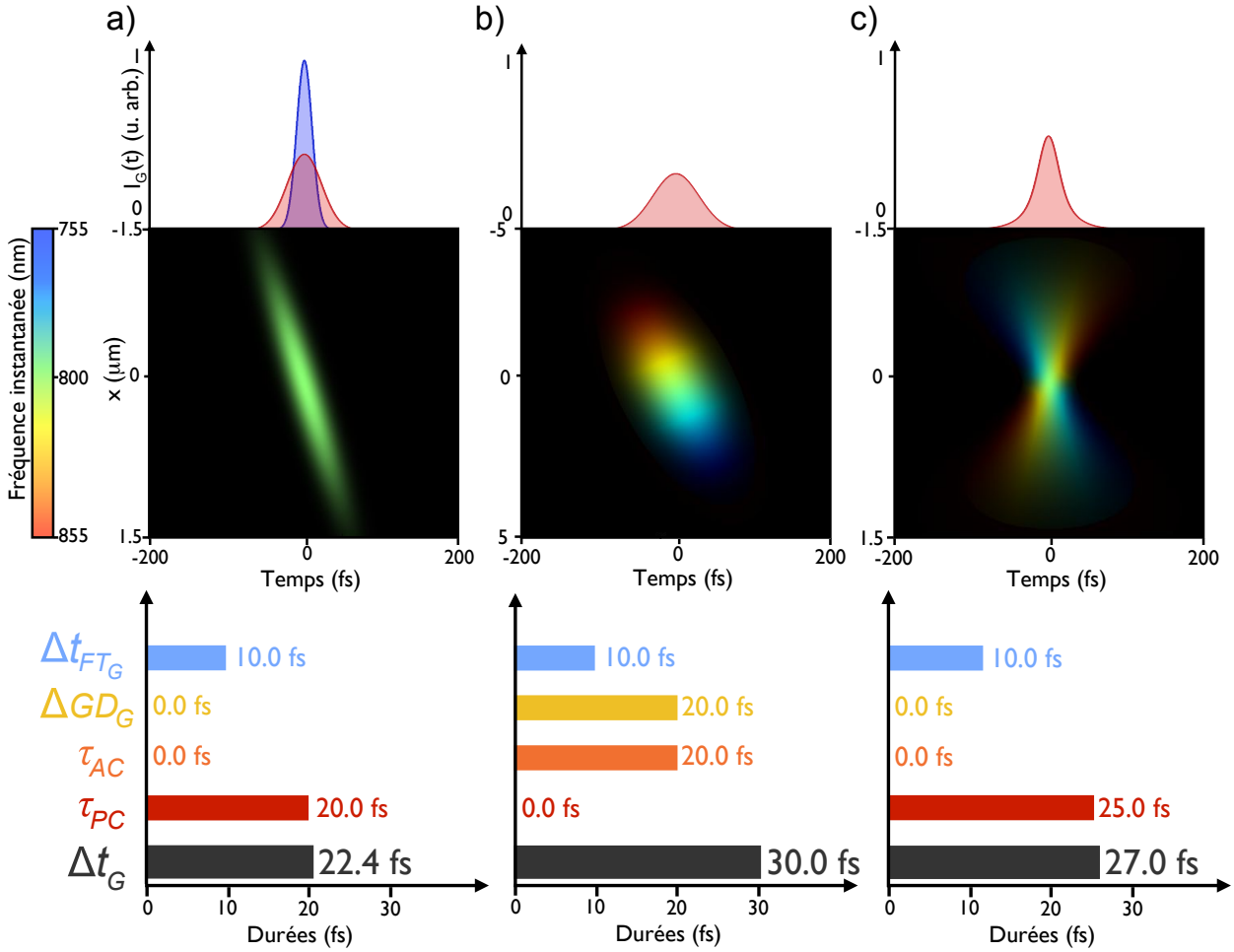


FIGURE 4.2 – **Simulation de trois impulsions spatio-temporelles et calcul numérique de leur décomposition de la durée globale**. Les impulsions spatio-temporelles et les impulsions globales (courbes colorées en rouge) sont représentées sur les panneaux supérieurs. Les décompositions des durées associées sont décrites dans les panneaux inférieurs. a) Inclinaison du front de l'impulsion causée par un retard temporel variant linéairement en x b) Inclinaison du front d'impulsion causée par la combinaison d'un *chirp* spatial et d'un *chirp* temporel. c) Impulsion déformée par une GDD dépendant de x (négative pour les positions négatives sur l'axe x et positive pour les positions positives). La limite de Fourier globale $I_{TF_G}(t)$ des trois impulsions couplées est représentée en a) (courbe colorée en bleu).

Chirps spatial et temporel

Considérons à présent une impulsion déformée par la combinaison d'un *chirp* spatial et d'un *chirp* temporel. Le *chirp* spatial est caractérisé par un décalage spatial ζ des composantes spectrales de $-0.118\,\mu m/nm$, et la GDD induisant le *chirp* temporel est égale à $400\,fs^2/rad$. Il est bien connu qu'ajouter un *chirp* à la fois spatial et temporel incline le front de l'impulsion [Akturk S. et al., 2004], ce phénomène étant visible sur la Fig. 4.2 b). Or, d'après la décomposition de la durée globale, il apparaît que l'impulsion globale est étirée de manière égale par la dispersion du retard de groupe global ΔGD_G et par du couplage en amplitude. En effet, la GDD modifie la phase spectrale tout en laissant le spectre inchangé, comme le montre l'équation (4.22). En conséquence, la GDD ne peut modifier que ΔGD_G ou τ_{PC} :

$$GD(\omega) = GD_G(\omega) = GDD \cdot (\omega - \omega_0) \tag{4.22}$$

où ω_0 vaut $800\,nm$ et représente la fréquence angulaire centrale du spectre. Puisque le retard de groupe local est indépendant de x, $GD(x,\omega)$ est égal à $GD_G(\omega)$ en tout point. τ_{PC} vaut donc zéro et ΔGD_G est donné par l'équation (4.23) :

$$\Delta GD_G = |GDD| \cdot \Delta\omega \tag{4.23}$$

On retrouve l'expression du terme d'étirement d'une impulsion en l'absence de couplage et déformée par une GDD constante [Walmsley I. A. et al., 2001]. Quant au *chirp* spatial, comme le montre l'équation (4.24), il étale spatialement les composantes spectrales, si bien que le spectre local $S(x,\omega)$, donné par l'équation (4.24) devient en chaque point moins large que le spectre global $S_G(\omega)$, comme le montre la Fig. 4.1 c).

$$S(x,\omega) = \exp\left[-\frac{(\omega-\omega_0)^2}{2\Delta\omega^2}\right] \cdot \exp\left[-\frac{(x - x_0 - \zeta(\omega-\omega_0))^2}{2\Delta x^2}\right] \tag{4.24}$$

où $\Delta\omega$ correspond à la largeur RMS du spectre global, c'est à dire du spectre sans *chirp* spatial.

En conséquence, τ_{AC} ne peut pas être nul dans la mesure où la durée de la limite de Fourier locale $\Delta t_{TF}(x)$ devient plus grande que Δt_{TF_G}. En particulier, il a été montré [Gu X. et al., 2004] que l'ajout d'un *chirp* spatial linéaire sur une impulsion de profils temporel et spatial gaussiens, se traduit par une diminution de la largeur RMS du spectre local $\Delta\omega'(x)$:

$$\Delta\omega' = \left(\frac{1}{\Delta\omega^2} + \frac{\zeta^2}{\Delta x^2}\right)^{-1/2} \tag{4.25}$$

De plus, comme nous l'avons vu au chapitre 1, la quantité $\Delta t_{TF} \cdot \Delta\omega'$ vaut $1/2$ pour des impulsions gaussiennes. Cela nous permet de déduire Δt_{TF_G} ainsi que la durée de la limite de Fourier locale $\Delta t_{TF}(x)$, voir les équations (4.26) et (4.27) :

$$\Delta t^2_{TF_G} = \frac{1}{4\Delta\omega^2} \tag{4.26}$$

$$\Delta t^2_{TF} = \left\langle \Delta t^2_{TF} \right\rangle_{(x)} = \frac{1}{4\Delta\omega'^2} = \frac{1}{4\Delta\omega^2} + \frac{\zeta^2}{4\Delta x^2} \tag{4.27}$$

Ainsi, en utilisant la définition de la durée du couplage en amplitude, nous obtenons l'expression de τ_{AC} :

$$\tau_{AC} = \frac{|\zeta|}{2\Delta x} \tag{4.28}$$

Les équations (4.23) et (4.28) prédisent que ΔGD_G et τ_{AC} seront tous deux égaux à $20\,fs$.

Enfin, en comparant les Fig. 4.2 a) et b), on voit qu'il est possible d'incliner le front d'une impulsion, ou plus généralement de déformer le front d'une impulsion, soit en ajoutant un couplage en phase, soit en combinant un couplage en amplitude avec un retard de groupe global non nul. Ce constat va s'avérer important dans le paragraphe 4.2.2 à venir.

GDD dépendant de l'espace

Comme troisième exemple, considérons une GDD variant radialement et caractérisée par un paramètre ρ égal à $500\,fs^2/rad/\mu m$. Plus précisément, l'impulsion représentée sur la Fig. 4.2 c) est déformée par une GDD positive (resp. négative) pour les positions positives (resp. négatives) sur l'axe x, et vaut zéro sur l'axe de propagation. L'impulsion globale résultante est visiblement étirée par ces distorsions. Cependant, d'après la décomposition de la durée globale, l'impulsion n'est pas chirpée puisque ΔGD_G reste nul. En effet, la GDD étant alternativement négative puis positive en différents points de l'espace, $GD_G(\omega)$ vaut zéro. En d'autres termes, les composantes spectrales restent en moyenne synchronisées temporellement. Finalement, la véritable source d'étirement de l'impulsion est le couplage en phase, dans la mesure où le retard de groupe dépend de x. Le retard de groupe local est donné par l'équation (4.29), et la durée du couplage en phase correspondante par l'équation (4.30) :

$$GD(x,\omega) = \rho \cdot (\omega - \omega_0) \cdot (x - x_0) \tag{4.29}$$

$$\tau_{PC} = |\rho| \cdot \Delta x \cdot \Delta\omega \tag{4.30}$$

L'application numérique donne une durée de $25\,fs$ pour τ_{PC}, comme le montre la Fig. 4.2 c).

Il était important de bien comprendre le sens des différentes grandeurs définies précédemment. Et ces trois exemples nous ont permis d'illustrer simplement notre modèle théorique.

4.2.2 Optimisation des couplages et minimisation de la durée globale

Nous allons maintenant nous poser une question simple :

"Une impulsion initialement sans couplage passe à travers un système optique ajoutant des distorsions spatio-temporelles sur l'impulsion. Quelle phase spectrale devra posséder l'impulsion initiale pour minimiser la durée globale de l'impulsion finale ?"

Nous allons voir que la réponse à cette question n'est pas triviale. Pour ce faire, reprenons l'impulsion de départ utilisée dans la partie précédente, à savoir une impulsion gaussienne en limite de Fourier globale, de durée 10 fs RMS, et de largeur spatiale RMS 1 μm, voir l'impulsion initiale sur la Fig. 4.3 a). Considérons que cette impulsion subisse des déformations spatio-temporelles lors de son passage à travers un système optique. En particulier, le système ajoute à l'impulsion trois distorsions précédemment étudiées, à savoir :

- un *chirp* temporel correspondant à une GDD de 1000 fs^2/rad,
- un *chirp* spatial de décalage ζ de $-295\,\mu m/nm$,
- un retard temporel variant linéairement spatialement avec une pente γ de $50\,fs/\mu m$.

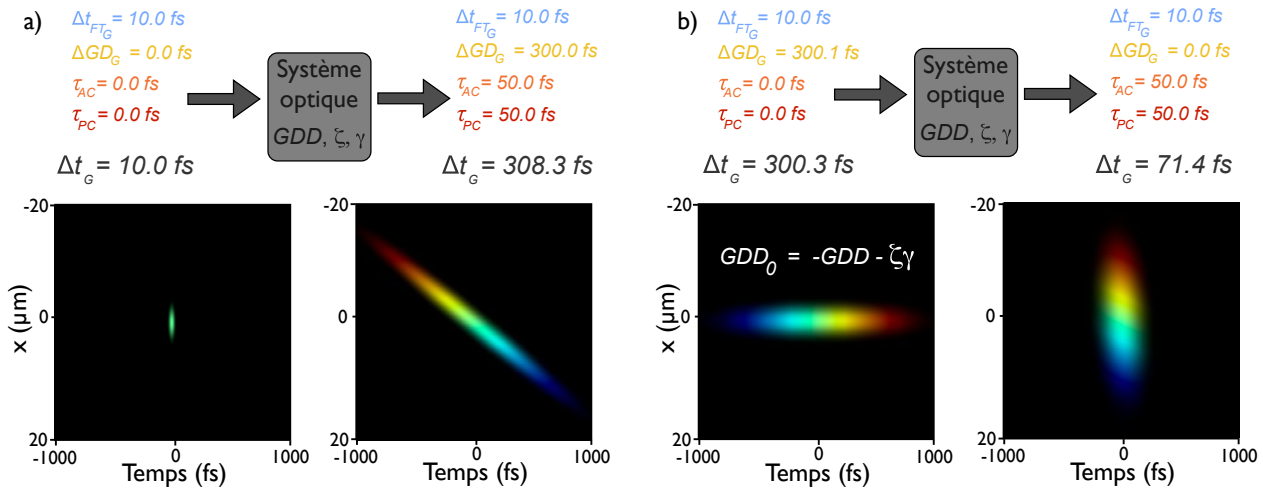


FIGURE 4.3 – **Minimisation de l'impact des couplages sur la durée globale de l'impulsion.** Dans chaque cas, on représente l'impulsion spatio-temporelle et sa fréquence instantanée, ainsi que la décomposition des durées calculées numériquement. Pour toutes ces impulsions, l'échelle des fréquences instantanées est la même que sur la Fig. 4.2. a) Un système optique introduit des distorsions spatio-temporelles sur une impulsion initialement en limite de Fourier globale. b) Le calcul formel de la décomposition des durées de l'impulsion montre qu'il existe une valeur de GDD annulant la durée ΔGD_G du retard de groupe global.

D'après les simulations numériques, ces distorsions vont faire passer la durée globale de 10 fs initialement à 308 fs. En particulier, cette durée semble être essentiellement due au retard de groupe global dont la durée

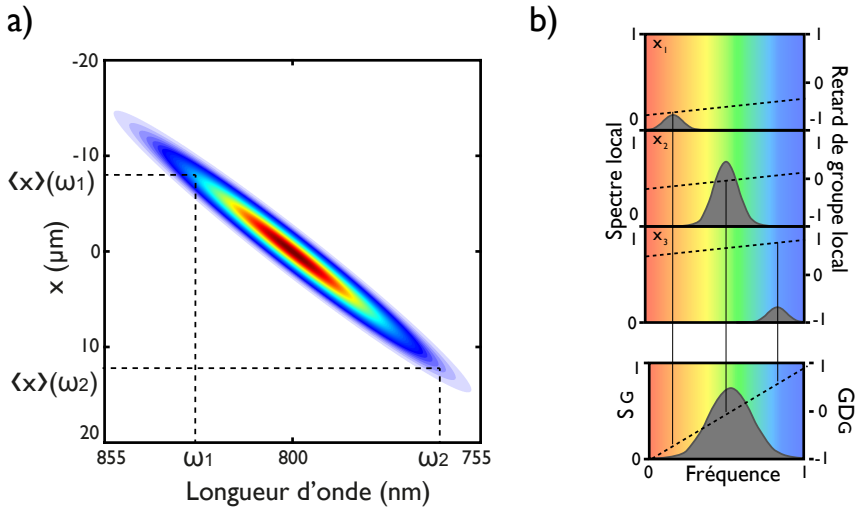


FIGURE 4.4 – **Calcul des grandeurs globales**. a) Evolution de l'intensité spatio-spectrale, c'est à dire du spectre local, de l'impulsion de la Fig. 4.3 a) en sortie du système optique. Le *chirp* spatial est responsable d'un décalage linéaire du spectre local. b) Déduction du spectre global S_G et du retard de groupe global GD_G à partir des grandeurs locales représentées en trois points. Les axes sont en unités arbitraires. Le décalage entre les trois spectres locaux provient du *chirp* spatial, la pente commune aux trois retards de groupes locaux est due à la GDD, et le décalage vertical entre ces retards de groupe est engendré par le retard linéaire de pente γ. Pour déterminer la quantité GD_G, on calcule la moyenne du retard de groupe local pondérée par le spectre local. Mais du fait du *chirp* spatial et du retard linéaire γ, la pente du retard de groupe global est bien supérieure à la GDD induite par le système optique.

ΔGD_G vaut près de $300\,fs$, alors que les durées τ_{AC} et τ_{PC} des couplages valent $50\,fs$ chacune. Pour comprendre l'origine de cette répartition, nous allons une nouvelle fois calculer formellement la décomposition de la durée globale.

Calcul de la décomposition de la durée globale

Le spectre global n'a pas changé par rapport aux exemples précédents et est toujours gaussien de largeur RMS $\Delta\omega$. En effet, les différentes distorsions ne modifient pas les composantes spectrales globalement présentes dans l'impulsion. Cette remarque ne serait plus vraie dans le cas de la traversée d'un milieu absorbant ou d'un milieu à gain. En conséquence, la durée en limite de Fourier globale Δt_{TF_G} garde la même forme qu'avant, et s'écrit toujours $\frac{1}{2\Delta\omega}$. Le spectre local, quant à lui, n'est modifié que par le *chirp* spatial, il prend donc la même forme que dans l'équation (4.24). Et la durée du couplage en amplitude ne dépendant que du spectre local, τ_{AC} vaut $\frac{|\zeta|}{2\Delta x}$. Etant donné le *chirp* temporel et le retard temporel γ, le retard de groupe local s'écrit simplement comme la somme de l'influence de ces deux phénomènes :

$$GD\,(x,\omega) = GDD \cdot (\omega - \omega_0) + \gamma \cdot (x - x_0) \tag{4.31}$$

Calculons maintenant le retard de groupe global. L'équation (4.32) nous montre que $GD_G\,(\omega)$ dépend de la

quantité $\langle x\rangle_{(x)}$. Physiquement, cette grandeur représente la position du centre du profil spatial d'intensité à la composante spectrale ω comme le montre la Fig. 4.4 a), et s'écrit $\int_{-\infty}^{+\infty} S\cdot x dx/\int_{-\infty}^{+\infty} S dx$. Or d'après l'équation (4.24), la forme spatiale locale de $S(x,\omega)$ est proportionnelle à $\exp\left[-\left(x-x_0-\zeta\left(\omega-\omega_0\right)\right)^2/2\Delta x^2\right]$. De manière évidente, on obtient donc que $\langle x\rangle_{(x)}$ vaut $x_0+\zeta\left(\omega-\omega_0\right)$ en présence du *chirp* spatial. Le retard de groupe global et ΔGD_G sont donc donnés par les équations (4.32) et (4.33) :

$$GD_G(\omega)=GDD\cdot(\omega-\omega_0)+\gamma\cdot\left(\langle x\rangle_{(x)}-x_0\right)=(GDD+\gamma\cdot\zeta)\cdot(\omega-\omega_0) \tag{4.32}$$

$$\Delta GD_G=|GDD+\gamma\zeta|\,\Delta\omega \tag{4.33}$$

Enfin, en appliquant l'équation (4.18) de définition de τ_{PC} avec les grandeurs précédemment calculées, on trouve que la durée du couplage en phase garde la même forme que dans l'exemple précédent du retard temporel dépendant de l'espace :

$$\tau_{PC}=\left\langle\left[GD(x,\omega)-GD_G(\omega)\right]^2\right\rangle_{(x,\omega)}^{1/2}=|\gamma|\left\langle\left[(x-x_0)-\left(\langle x\rangle_{(x)}-x_0\right)\right]^2\right\rangle_{(x,\omega)}^{1/2}=|\gamma|\,\Delta x \tag{4.34}$$

Finalement, d'après ces calculs, la durée globale peut se décomposer de la manière suivante :

$$\begin{aligned}\Delta t_{TF_G}&=\tfrac{1}{2\Delta\omega}=20\,fs & \tau_{AC}&=\tfrac{|\zeta|}{2\Delta x}=50\,fs\\ \Delta GD_G&=|GDD+\gamma\zeta|\,\Delta\omega=300\,fs & \tau_{PC}&=|\gamma|\,\Delta x=50\,fs\end{aligned} \tag{4.35}$$

En réalisant l'application numérique, on retrouve comme dans le cas des simulations que le terme responsable de la majeure partie de l'étirement de l'impulsion globale reste ΔGD_G. Or ce terme ne prend pas la forme connue $|GDD|\,\Delta\omega$. Il existe un terme supplémentaire $\gamma\cdot\zeta$ que l'on retrouve dans l'expression (4.32) du retard de groupe global. Et c'est ce terme qui est responsable de la valeur importante de ΔGD_G. En effet, étant donnée la GDD du système de $1000\,fs^2/rad$, si la dispersion du retard de groupe global pouvait s'écrire sous la forme $|GDD|\,\Delta\omega$, l'étirement ne serait que de $50\,fs$ au lieu de $300\,fs$.

Pour comprendre l'origine de ce phénomène, revenons sur les équations que nous venons d'établir. Le terme $\gamma\cdot\zeta$ est apparu dans les calculs lorsque nous avons pondéré le retard de groupe local par le spectre local. Or du fait du *chirp* spatial, ce spectre local est lui-même couplé. Cet effet se combine avec l'influence du retard linéaire γ, ce qui aboutit à un retard de groupe global ayant une pente bien plus élevée que celle due à la simple GDD introduite par le système, ce qu'illustre la Fig. 4.4 b). Cet effet ne se manifeste que s'il y a à la fois le *chirp* spatial et le retard γ, car dans le cas contraire, le produit $\gamma\cdot\zeta$ s'annule et ΔGD_G redevient égal à $|GDD|\,\Delta\omega$.

Il s'agit d'un point important du modèle théorique développé jusqu'à maintenant : **En présence de cou-**

plages en amplitude *et* en phase, le retard de groupe global, et en conséquence ΔGD_G dépendent des couplages. Comme nous le verrons par la suite au paragraphe 4.3.2, cette conclusion n'est pas seulement vraie dans l'exemple présent, elle est générale et peut s'appliquer dans le cas d'impulsions attosecondes déformées par les aberrations.

Il peut sembler étrange que le terme ΔGD_G ne soit pas totalement indépendant des couplages, dont l'influence est normalement décrite par les termes τ_{AC} et τ_{PC}. Cependant, il faut nous rappeler que nous avons développé les équations de la décomposition de la durée globale par analogie avec l'équation (4.12) vraie en l'absence de couplage.

$$\Delta t^2 = \Delta t_{TF}^2 + \Delta GD^2 = \frac{1}{4\Delta\omega^2} + GDD^2\Delta\omega^2 \tag{4.36}$$

Dans cette équation, une réflexion rapide pourrait nous faire penser que ΔGD ne représente que le rôle de la phase spectrale, et Δt_{TF} que celui du spectre. Dans le cas d'une impulsion gaussienne étirée par une GDD, cette équation prend la forme de l'expression (4.36) que nous avons déjà vu. Dans cette équation, la phase spectrale intervient à travers la GDD, et le spectre à travers sa largeur RMS $\Delta\omega$. Or ce paramètre détermine bien la durée en limite de Fourier, mais il intervient également dans l'expression ΔGD puisque le retard de groupe GD y est pondéré par le spectre. Ce dernier joue donc également sur la valeur de l'étirement du à la GDD, et il serait simpliste de penser que le spectre ne fixe que la durée en limite de Fourier pour une impulsion temporelle.

Le fait que ΔGD_G puisse dépendre des couplages est l'analogie de ce phénomène dans le domaine spatio-temporel. Par définition, le retard de groupe global est une quantité dépendant du spectre local potentiellement couplé, il serait donc également simpliste de considérer que la forme du spectre local ne joue que sur les deux durées des couplages.

Mais revenons maintenant à notre problème. Notre but initial était de trouver la phase spectrale à appliquer à l'impulsion sans couplage entrant dans le système optique, et qui minimise la durée globale de l'impulsion finale. Dans l'exemple actuel, il devient clair que la phase spectrale initiale choisie ne devra pas simplement compenser la GDD introduite par le système optique, mais également une partie des couplages.

Minimisation de la durée globale

Etant donnée la décomposition effectuée à l'équation (4.35), il apparait que la GDD du système optique qui va s'appliquer à l'impulsion initiale ne joue que sur ΔGD_G. La phase spectrale initiale ne va donc intervenir que dans ce terme. Et en particulier, en appliquant sur cette dernière une GDD, nommée GDD_0, exactement opposée au terme $GDD + \gamma \cdot \zeta$, il est possible d'annuler la dispersion du retard de groupe global :

$$GDD_0 = -GDD - \gamma \cdot \zeta = -6002.4\, fs^2/rad \tag{4.37}$$

L'application numérique donne alors une valeur pour GDD_0 égale à $-6002.4\,fs^2/rad$. Pour confirmer cette analyse, nous réalisons les mêmes simulations numériques que précédemment, mais en appliquant cette fois la dérive de fréquence optimale à l'impulsion initiale, voir la Fig. 4.3 b). On observe alors que, si l'impulsion initiale a maintenant une durée de $300\,fs$, soit bien plus que précédemment, l'impulsion transmise par le système a vu sa durée passer de $300\,fs$ à $71\,fs$ avec la phase spectrale initiale optimale. La décomposition de la durée globale confirme de plus que le terme ΔGD_G a été annulé.

Concernant la structure spatio-temporelle de l'impulsion finale, il apparait que son front d'impulsion s'est redressé. On peut alors interpréter cette minimisation de la durée globale sous un autre angle plus qualitatif. En effet, comme nous l'avons vu précédemment, il est possible de pencher le front d'une impulsion soit en appliquant un retard temporel variant dans l'espace, soit en ajoutant à la fois des *chirps* spatial et temporel sur l'impulsion. Dans l'exemple que nous avons pris ici, ces deux phénomènes se produisent, et tendent tous les deux à pencher "en arrière" le front d'une impulsion initialement en limite de Fourier globale, voir la Fig. 4.3 a). Cependant, il va exister une valeur de GDD qui, combinée au *chirp* spatial, va pencher le front de l'impulsion "en avant" jusqu'à parfaitement compenser les effets du retard temporel γ.

Cette minimisation de la durée globale est un phénomène très général, que l'on pourra également utiliser sur les impulsions attosecondes aberrantes. Pour ce faire, il suffira d'appliquer à l'impulsion initiale l'opposé du retard de groupe global que possède l'impulsion finale.

4.3 Retour aux impulsions attosecondes aberrantes

Depuis le départ, le développement de ce modèle théorique a été principalement motivé par la possibilité de l'utiliser sur des impulsions attosecondes déformées par les aberrations, et calculées par le code de calcul ROSA. Les distorsions que nous avons appliquées sur les impulsions infrarouges précédentes sont restées relativement simples dans leur forme. Le code ROSA nous a montré que les aberrations pouvaient induire des distorsions très complexes sur le champ électrique attoseconde. Cela va rendre délicate l'utilisation du calcul formel. C'est pourquoi, dans cette partie, nous nous appuierons principalement sur les simulations numériques et le calcul numérique de la décomposition de la durée globale.

4.3.1 Influence des aberrations sur la décomposition de la durée globale

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les aberrations des optiques étaient une source de couplages spatio-temporels pour les impulsions. De plus, le calcul de la durée des impulsions intégrées spatialement, que nous pouvons désormais appeler la durée globale, nous a montré que cette dernière augmentait rapidement en présence d'aberrations. L'envie est donc forte de décomposer cette durée globale pour identifier sous quelle forme y interviennent les aberrations.

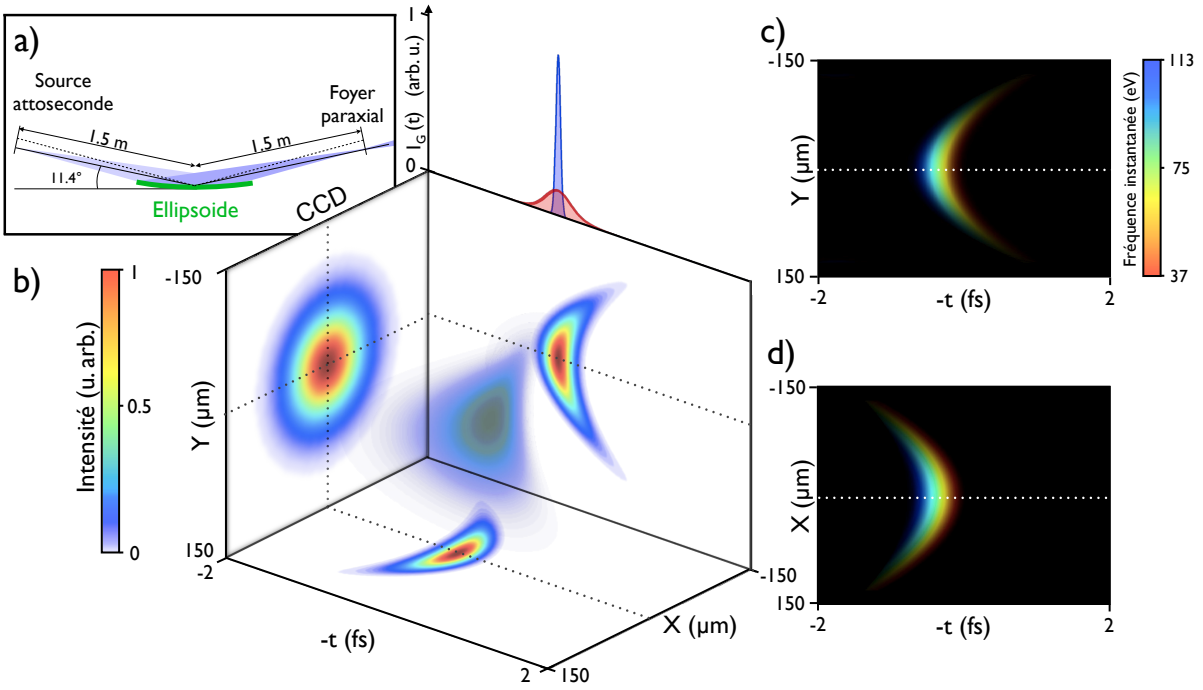


FIGURE 4.5 – **Simulation du champ électrique spatio-temporel d'une impulsion attoseconde en présence d'aberrations**. a) L'impulsion attoseconde est focalisée par un miroir ellipsoidal en incidence rasante, dont l'angle de rasance optimal vaut 11.5 °. Le miroir est réglé pour un angle de rasance de 11.4 ° pour ajouter de l'astigmatisme sur l'impulsion. b) Intensité spatio-temporelle de l'impulsion au foyer paraxial. L'impulsion globale $I_G(t)$ colorée en rouge et la limite de Fourier globale $I_{TF_G}(t)$ en bleu sont représentées au-dessus de la boite. c) (resp. d)) Evolution de la fréquence instantanée de l'impulsion au niveau de la coupe correspondante en b) projetée dans le plan (y,t) (resp. (x,t)). L'astigmatisme provoque l'inversion de la courbure des fronts de l'impulsion entre les deux coupes. L'atto-chirp quant à lui fait varier linéairement la fréquence instantanée de l'impulsion dans son enveloppe.

Evolution de la durée globale avec les aberrations

Pour cela, nous allons reprendre les simulations effectuées au chapitre précédent. Et en particulier, nous allons considérer le miroir ellipsoïdal précédemment étudié d'une focale de $750\,mm$ pour un angle de rasance de 11.5°. Ce miroir a l'avantage de posséder une conjugaison $2f-2f$ parfaitement stigmatique dans laquelle il n'introduit rigoureusement aucune aberration. En comparant l'impulsion dans cette conjugaison et dans une conjugaison aberrante, nous verrons l'effet des aberrations sur la décomposition de la durée globale. Nous allons étudier l'évolution de l'impulsion au foyer paraxial tout en faisant passer l'angle de rasance du faisceau sur le miroir de 11.5° à 11.4°. D'après la Fig. 3.26, en procédant ainsi nous ajouterons progressivement de l'astigmatisme sur l'impulsion.

Et en effet, lorsque le miroir est réglé pour un angle de rasance de 11.4°, la Fig. 4.5. b) nous montre que l'impulsion au foyer paraxial possède la forme familière d'une selle de cheval, caractéristique de l'astigmatisme. De plus, nous pouvons voir que l'impulsion globale est loin d'atteindre la limite de Fourier globale. L'impulsion est en effet étirée par les aberrations mais également par l'atto-chirp, dont les effets sont visibles sur la Fig. 4.5 (c-d).

Pour séparer l'influence de l'atto-chirp et des aberrations, nous allons étudier l'évolution de l'impulsion et de la décomposition de la durée pendant la transition entre la conjugaison rigoureusement stigmatique, c'est à dire le cas dans lequel l'atto-chirp est la seule source d'étirement possible de l'impulsion, et le cas aberrant précédent. Lorsque le miroir est réglé à son angle de rasance optimal de 11.5 °, l'impulsion focalisée est limitée par la diffraction, comme le montre la Fig. 4.6 a). A cet angle, la durée globale obtenue est égale à $118\,as$ ($278\,as$ FWHM). La décomposition montre de plus que Δt_{TF_G} vaut $26\,as$, voir la Fig. 4.6 b). Cette durée est également la durée d'une impulsion en limite de Fourier donnée par l'équation (4.36) en utilisant le spectre gaussien initial. En effet, le spectral global ne change pas durant la réflexion puisque dans toutes les simulations effectuées avec ROSA, la réflectivité du miroir est supposée constante sur tout le spectre. Il en est de même pour la phase spectrale du miroir que l'on considère toujours constante. En conséquence, le terme ΔGD_G de $115\,as$ correspond également à l'étirement temporel d'une impulsion, dont le spectre et la GDD sont le spectre gaussien et la GDD initiaux, ce que confirme l'équation (4.36). Enfin, il apparaît que les deux durées des couplages sont nulles, ce qui semble logique puisque un faisceau gaussien impulsionnel ne possède pas de couplage au niveau de son *waist*.

Considérons cette fois l'évolution de la décomposition de la durée globale en diminuant l'angle de rasance à 11.4 °, c'est à dire en augmentant progressivement l'astigmatisme de l'impulsion attoseconde. La durée globale de l'impulsion passe alors de $118\,as$ dans le cas précédent à $205\,as$ à 11.4 °. Il apparait très vite que cet étirement est uniquement du au terme τ_{PC} initialement nul mais qui passe à $169\,as$ à 11.4 °. Dans le même temps, les simulations montrent que τ_{AC} reste nul en permanence, et que les termes ΔGD_G et Δt_{TF_G} restent inchangés. Expliquons qualitativement cette évolution des différentes durées, en commençant par τ_{PC}.

Il apparait sur la Fig. 4.5 et sur les simulations de la Fig. 3.23 que l'effet principal de l'astigmatisme est

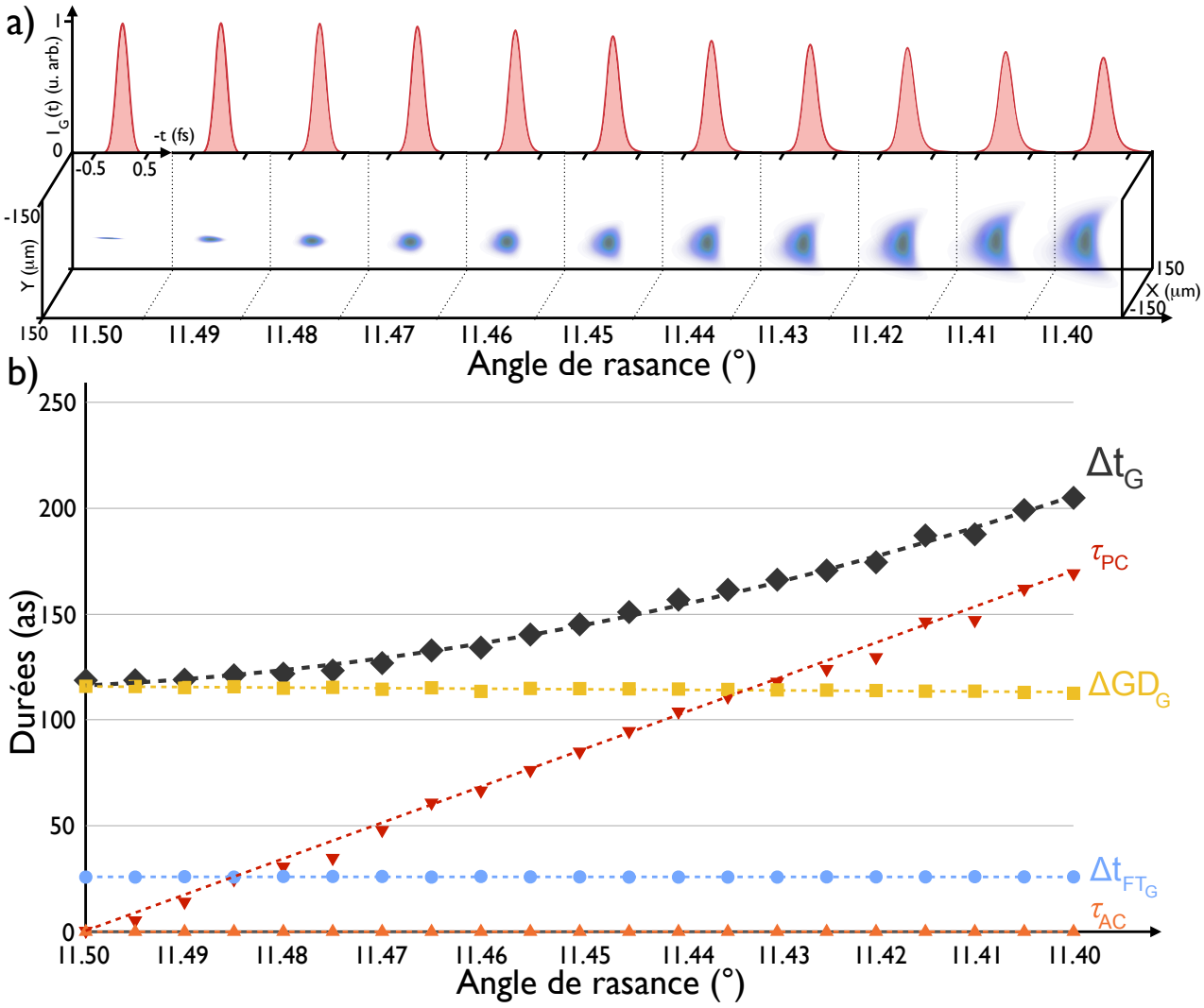


FIGURE 4.6 – **Evolution de la décomposition de la durée globale d'une impulsion attoseconde refocalisée en fonction de la force de l'astigmatisme**, c'est à dire en fonction de l'écart à l'angle de rasance optimal de 11.5°. a) Simulation des impulsions spatio-temporelles (panneaux inférieurs) et de leurs impulsions globales (panneaux supérieurs) en fonction de l'angle de rasance. b) Evolution de la durée globale de l'impulsion (losanges noirs) et de sa décomposition : Δt_{TF_G} (cercles bleus), ΔGD_G (carrés jaunes), τ_{AC} (triangles oranges pointant vers le haut), τ_{PC} (triangles rouges pointant vers le bas), et les tendances associées (lignes pointillées).

de courber le front de l'impulsion. Cette courbure peut s'interpréter comme un retard temporel variant dans l'espace. Or un tel phénomène est similaire au retard temporel linéaire dans l'espace et de pente γ que nous avons déjà étudié, et que nous savons être une forme de couplage en phase. En conséquence, plus l'astigmatisme augmente, plus la durée du couplage en phase est importante. Concernant τ_{AC}, la Fig. 4.5 (c-d) nous montre que l'impulsion reste constituée des mêmes composantes spectrales en tout point de l'espace. La forme du spectre local ne varie donc pas spatialement lorsqu'on ajoute de l'astigmatisme, et la durée du couplage en amplitude reste nulle. De plus, l'impulsion ne possédant que du couplage en phase, le retard de groupe global ne dépend que de l'atto-chirp. Ce dernier étant déterminé uniquement par les conditions de génération de l'impulsion, il reste inchangé quelque soit la forme des aberrations. Et logiquement, ΔGD_G reste constant lui aussi. Enfin, nous avons observé que Δt_{TF_G} restait inchangé. Ceci s'explique par le fait que les aberrations géométriques ne modifient pas les composantes spectrales globalement présentes dans l'impulsion, c'est à dire $S_G(\omega)$.

Enfin, la décomposition de la durée nous confirme que les aberrations sont une source importante de couplages pour les impulsions attosecondes. En particulier, dans l'exemple présent, si nous avions utilisé une impulsion initiale gaussienne limitée par Fourier et de durée $26\,as$ RMS ($61\,as$ à mi-hauteur), l'astigmatisme obtenu à $11.4\,^\circ$ aurait augmenté la durée globale de l'impulsion finale à $171\,as$, soit $402\,as$ à mi-hauteur en considérant que la forme de l'impulsion globale restera gaussienne. Une erreur de 0.1° sur l'angle de rasance multiplierait donc la durée globale de l'impulsion finale par un facteur proche de 7. Cela illustre donc la grande sensibilité des impulsions attosecondes aux aberrations.

Exemple de couplage en amplitude induit par les aberrations

Dans l'exemple précédent, l'impact des aberrations prenait la forme d'un couplage en phase. Cependant, les aberrations peuvent également induire un couplage en amplitude sur l'impulsion. Pour illustrer ce point, reprenons l'exemple de l'impulsion focalisée par le miroir torique utilisé en grandissement 0.5.

Sur la Fig. 3.21, on constate que l'impulsion possède un double front d'impulsion, caractéristique de l'aberration de coma présente dans cette conjugaison. Or en traçant l'intensité spatio-spectrale de l'impulsion obtenue $12.5\,mm$ avant le foyer paraxial, il apparait que le spectre de l'impulsion possède un couplage, voir la Fig. 4.7 b). Il est modulé par des franges de fréquence variable. Ces modulations n'ont aucun lien avec celles observées dans le domaine temporel au niveau de la jonction entre les deux fronts de l'impulsion, qui sont dues, quant à elles, à la phase spectrale de l'impulsion initiale. L'origine des franges sur le spectre local provient en fait de l'interférence dans le domaine spectral des deux fronts temporels de l'impulsion. En effet, en un point donné de l'espace, une impulsion spatio-temporelle déformée par la coma prend la forme de deux impulsions séparées dans le temps. Or un décalage entre les deux impulsions dans le domaine temporel revient à un déphasage dans le domaine spectral. Ce déphasage va se traduire par l'apparition d'un système d'interférences dans le spectre. Au niveau de la zone la plus intense de l'impulsion, le spectre local est parfaitement gaussien puisque

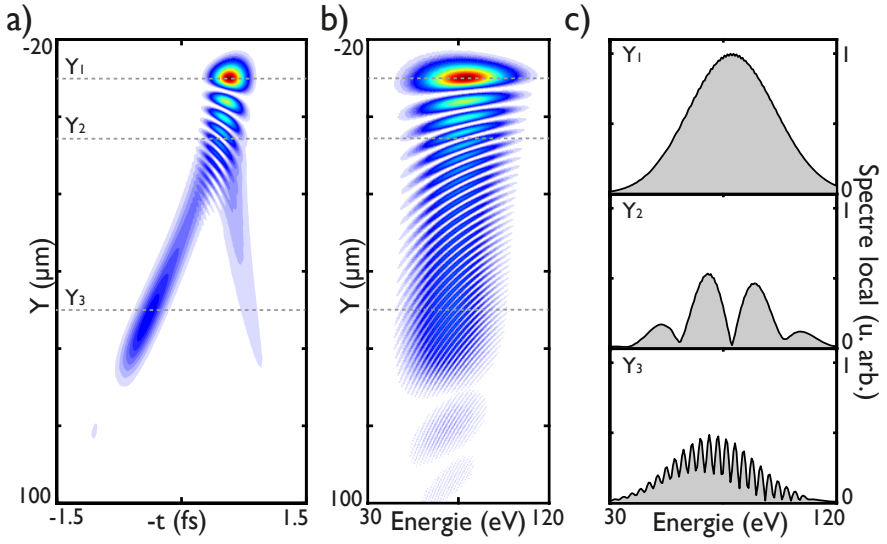


FIGURE 4.7 – **Forme de couplage en amplitude induit par la coma**. a) Profil temporel dans le plan (y, t) de l'impulsion 12.5 mm avant le foyer paraxial, visible sur la Fig. 3.21, focalisée par un miroir torique en grandissement 0.5. b) Intensité spatio-spectrale de l'impulsion. c) Détail du spectre local pour trois positions différentes. Le double front d'impulsion créé par l'aberration de coma se traduit par l'apparition de franges dans le spectre local. Ces franges sont d'autant plus resserrées que les deux fronts d'impulsions sont distants.

l'impulsion n'est composée que d'un front unique dans le domaine temporel. Mais en descendant dans l'aigrette de coma, on divise ce front en deux impulsions séparées par un délai croissant. Et, plus le retard entre les deux impulsions est important, plus les franges se resserrent dans le domaine spectral.

On voit donc que les aberrations peuvent également ajouter des formes complexes de couplage en amplitude sur les impulsions attosecondes. Et nous pouvons donc maintenant interpréter un double front d'impulsion dans les simulations comme un couplage en amplitude.

4.3.2 Minimisation de la durée globale en présence d'aberration

Avant de terminer ce chapitre, revenons sur le concept de minimisation de la durée globale introduit dans le paragraphe précédent 4.2.2. Pour rappel, lorsqu'une impulsion est déformée à la fois par des couplages en amplitude et en phase, il existe une phase spectrale initiale capable de compenser une partie de ces couplages. Pour illustrer la généralité de cette affirmation, nous allons appliquer la minimisation de la durée globale au cas d'une impulsion attoseconde aberrante.

Pour ce faire, il nous faut partir d'une impulsion spatio-temporelle possédant, en plus du couplage en phase, un double-front d'impulsion, synonyme de couplage en amplitude. Nous allons donc considérer une impulsion attoseconde déformée par de l'aberration sphérique proche du foyer marginal, telle que celles de la Fig. 3.24. De plus, dans un premier temps, nous allons partir d'une impulsion initiale de phase spectrale nulle. Ainsi, toute modification du retard de groupe de global sur l'impulsion finale ne pourra être due qu'aux couplages. Nous allons donc partir de l'impulsion de la Fig. 3.24 b), également représentée sur la Fig. 4.8 a). Sa durée

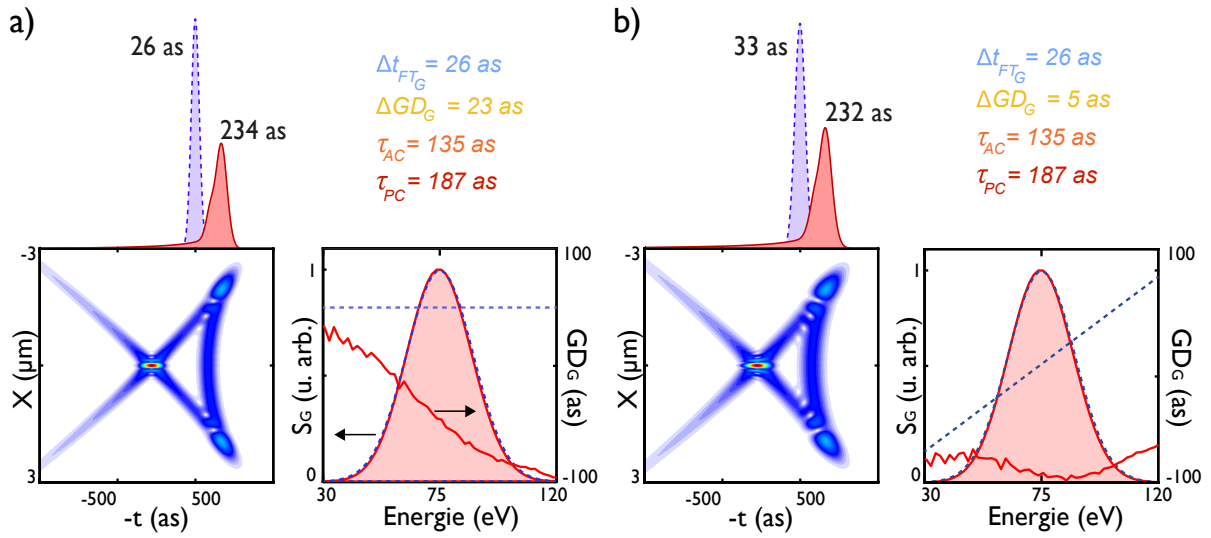


FIGURE 4.8 – **Exemple de minimisation de la durée globale d'une impulsion aberrante.** Impulsion avant (a) et après (b) minimisation de la durée globale. Dans les deux cas, une coupe radiale du module du champ électrique de l'impulsion spatio-temporelle (panneaux inférieurs gauches), ainsi que l'impulsion initiale (courbe pointillée bleue) et l'impulsion globale (courbe continue rouge) sont tracées (panneaux supérieurs gauches). Sur les panneaux inférieurs droits, le spectre initial et le retard de groupe initial (courbes pointillées bleues) sont tracés avec le spectre global et le retard de groupe global de l'impulsion finale (courbes rouges). Enfin, la décomposition de la durée globale dans les deux cas est également détaillée sur les panneaux supérieurs droits.

globale vaut 234 as, et se décompose en une durée en limite de Fourier globale valant une fois de plus 26 as, et deux durées des couplages très élevées de 135 as et 187 as, ce qui confirme la présence des deux types de couplages. Enfin, comme on s'y attendait, la dispersion du retard de groupe global n'est pas nulle mais vaut 23 as. Plus précisément, GD_G semble décroitre relativement linéairement. Sans chercher à expliquer l'origine de cette évolution du retard de groupe global, l'analyse précédente nous dit simplement qu'en appliquant sur l'impulsion initiale un retard de groupe exactement opposé à GD_G, nous pourrons annuler le terme ΔGD_G et diminuer ainsi la durée globale.

Les simulations nous permettent d'estimer la pente du GD_G à environ $-1000\,as^2/rad$, nous décidons donc d'appliquer la GDD opposée sur l'impulsion initiale. Les résultats des simulations sont représentées sur la Fig. 4.8 b). Du fait de la GDD initiale non nulle, de nouvelles interférences apparaissent à la jonction des fronts d'impulsions. Malgré tout, la durée globale de l'impulsion finale en est réduite et passe de 234 as à 232 as. En décomposant cette durée, il apparait que seul le terme ΔGD_G a varié entre les deux situations. Et en particulier, il a pu être diminué de 23 as à 5 as grâce à l'ajout de la GDD initiale, ces 5 as restantes provenant des variations résiduelles du retard de groupe global.

Un gain de 2 as sur la durée globale n'est pas nécessairement intéressant. Cependant, cet exemple nous a montré que la minimisation de la durée globale était bel et bien un principe général et applicable à des cas complexes.

4.4 Bilan

Dans le but de décrire analytiquement des impulsions spatio-temporelles quelconques, nous avons défini une série de grandeurs générales, telles que le spectre global ou le retard de groupe global. En particulier, nous avons montré que la durée RMS globale d'une impulsion spatio-temporelle pouvait se décomposer en quatre durées élémentaires, toutes associées à des phénomènes indépendants.

De plus, nous avons illustré ce modèle avec des cas simples de couplages spatio-temporels sur des impulsions infrarouges femtosecondes. Puis nous avons utilisé ce modèle pour décrire des impulsions attosecondes déformées par les aberrations.

Enfin nous avons vu qu'il était possible de réduire l'influence des couplages sur une impulsion en sortie d'un système optique en appliquant une phase spectrale particulière à l'impulsion entrant dans le système.

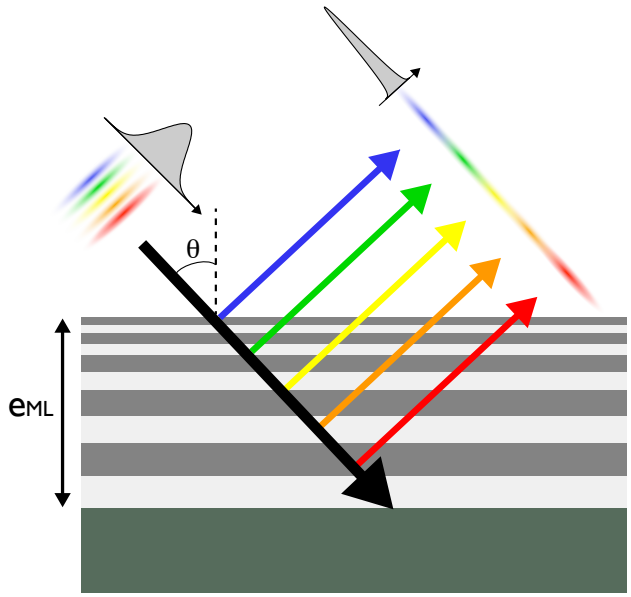


FIGURE 4.9 – ***Chirp* spatial induit par un miroir chirpé sur une impulsion ultrabrève.**

Pour illustrer l'importance que ce modèle théorique aura eu dans le cadre de ces recherches, nous allons prendre l'exemple d'un problème concret auquel nous avons été confronté. Lorsque nous avons recherché les sources de couplages possibles pour une impulsion attoseconde, l'une des questions qui est apparue était celle d'un *chirp* spatial induit par un miroir chirpé. La Fig. 4.9 reprend le schéma du principe simplifié du miroir chirpé. Une impulsion initialement chirpée arrive sur un miroir conçu pour réfléchir les hautes énergies à sa surface, et les basses énergies en profondeur. De cette manière, le faisceau bleu voyant un chemin optique plus court que le faisceau rouge, les composantes spectrales de l'impulsion sont resynchronisées après la réflexion. Mais une simple analyse géométrique de la Fig. 4.9 nous montre également que ces différentes composantes

spectrales doivent ressortir du miroir en étant légèrement décalées les unes par rapport aux autres. Dans ce cas, le *chirp* temporel de l'impulsion initiale a bien été compensé, mais a été remplacé par un *chirp* spatial.

De plus, ce décalage spatial des composantes spectrales n'est jamais pris en compte dans les modèles de calcul de réflectivité complexe d'empilements multicouches, telle que la méthode itérative vue au paragraphe 2.2.1. En effet, on y fait l'hypothèse que le rayon réfléchi, de spectre et de phase spectrale modifiés par le miroir, est émis au niveau du point d'impact du rayon incident. Pour savoir si nos miroirs attosecondes présentés au chapitre 2 se trouvaient réellement être une source de *chirp* spatial significatif, nous avons fait appel à la décomposition de la durée globale. Comme nous l'avons vu au paragraphe 4.2.1, l'étirement τ_{AC} provoqué par un *chirp* spatial linéaire dans le cas d'une impulsion gaussienne prend la forme suivante :

$$\tau_{AC} = \frac{|\zeta|}{2\Delta x} \tag{4.38}$$

Dans cette équation, Δx correspond à la largeur spatiale de l'impulsion sans *chirp* spatial, et ζ exprimée en nm/eV représente le décalage spatial subit par deux composantes spectrales espacées d'un électron-volt. Or étant donné le schéma de la Fig. 4.9, on peut estimer que le décalage spatial maximal vaudra $e_{ML}/cos\theta$ pour une structure multicouche d'épaisseur totale e_{ML} éclairée sous un angle d'incidence θ. En appelant $\Delta\omega$ la largeur spectrale du rayonnement incident, on obtient :

$$\zeta = \frac{e_{ML}}{\Delta\omega \cdot cos\theta} \tag{4.39}$$

Effectuons maintenant l'application numérique. Les structures multicouches du chapitre 2 possédaient une épaisseur totale inférieure à la centaine de nanomètres, et les miroirs de première génération étaient utilisés à 45° d'incidence. On estime que le faisceau XUV possède un diamètre centimétrique en arrivant sur le miroir, et l'on considère une largeur spectrale $\Delta\omega$ de $10\,eV$:

$$\tau_{AC} = \frac{e_{ML}}{2\Delta x \cdot \Delta\omega \cdot cos\theta} \approx 5 \cdot 10^{-4}\,as = 0.5\,zs \tag{4.40}$$

Dans ces conditions, l'étirement de l'impulsion induit par le *chirp* spatial est inférieur à la zeptoseconde, et est en conséquence parfaitement négligeable. La raison principale à cela réside dans la quantité $\frac{e_{ML}}{\Delta x \cdot cos\theta}$ qui représente le rapport entre le décalage nanométrique des composantes spectrales et la taille centimétrique du faisceau. En d'autres termes, un *chirp* spatial n'induit un effet significatif sur la durée globale d'une impulsion que si le décalage spatial des composantes spectrales entre elles est du même ordre de grandeur que la section du faisceau sans *chirp* spatial. En conclusion, un miroir multicouche chirpé n'induira jamais de *chirp* spatial significatif sur une impulsion attoseconde à moins que le faisceau incident sur le miroir ne soit de dimension nanométrique.

Chapitre 5

Couplages spatio-temporels et caractérisation d'impulsions attosecondes

Nous avons vu au chapitre 1 qu'il était possible de reconstruire une impulsion attoseconde sous la forme d'un signal temporel à partir des techniques RABITT et CRAB. Or nous savons maintenant que les impulsions attosecondes peuvent prendre des formes spatio-temporelles complexes du fait des aberrations des optiques. Nous pouvons donc nous demander ce que représente le signal temporel reconstruit lors d'une telle mesure. Pour tenter de répondre à cette question, nous allons utiliser les outils que nous avons développés, tels que le code ROSA ou le modèle analytique précédent.

5.1 Analyse préliminaire

5.1.1 Position du problème

Pour caractériser une impulsion attoseconde, il faut passer par l'intermédiaire d'un paquet d'onde électronique, créé par la photoionisation d'un gaz. En ajoutant un champ infrarouge d'habillage et en mesurant le spectre de ce paquet d'électrons en fonction du retard entre les impulsions IR et XUV, il est possible de reconstruire l'impulsion attoseconde. Cependant, cette analyse suppose que le champ attoseconde a les mêmes propriétés en tout point de l'espace, et se résume donc à un signal temporel. Pour savoir ce qu'il advient en présence de couplages spatio-temporels, nous devons reprendre cette analyse en prenant en compte la dépendance spatiale du champ XUV.

Effet des couplages de l'impulsion XUV sur le paquet d'onde électronique

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, lors de la photoionisation d'un atome par un champ XUV, le paquet d'onde électronique issu du processus possède les mêmes propriétés que l'impulsion XUV en amplitude et en

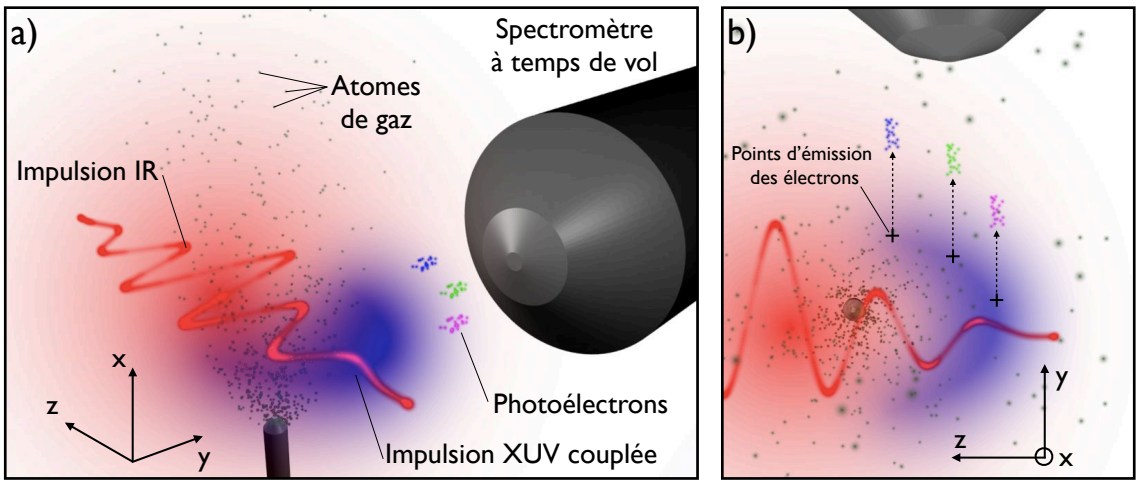


FIGURE 5.1 – **Caractérisation d'une impulsion attoseconde en présence de couplages spatio-temporels.** a) Vue générale de l'interaction entre les champs IR et XUV et les atomes de gaz. b) Vue de dessus. En présence de couplages sur l'impulsion XUV, chaque point de l'impulsion génèrera un paquet d'électrons copiant les propriétés de l'impulsion XUV en ce point. Les photoélectrons bleus sont émis en avance par rapport aux photoélectrons verts et roses, traduisant le fait que l'instant d'arrivée de l'impulsion XUV n'est pas le même en chaque point.

phase. L'interaction ayant lieu dans tout le volume du gaz, un paquet d'électrons élémentaire est produit en chaque point du volume, copiant les propriétés locales du champ électrique XUV. En supposant que les propriétés du gaz soient les mêmes en chaque point de l'espace, on peut donc réécrire les équations (1.39) et (1.40) vues au chapitre 1, et donnant respectivement l'amplitude de probabilité a_0 et le spectre des photoélectrons $\mathcal{S}_0$ locaux créés au point de coordonnées $\mathbf{r} = (x, y, z)$ dans le volume d'interaction :

$$a_0(\mathbf{r}, W) = -i\mathbf{d_v}\left|\widetilde{\mathbf{E}}_{XUV}(\mathbf{r}, W + I_p)\right| \cdot e^{i\varphi_{XUV}(\mathbf{r}, W+I_p)} \tag{5.1}$$

$$\mathcal{S}_0(\mathbf{r}, W) = \left|\mathbf{d_v}\widetilde{\mathbf{E}}_{XUV}(\mathbf{r}, W + I_p)\right|^2 \tag{5.2}$$

Où I_p représente le potentiel d'ionisation du gaz considéré, W l'énergie cinétique des électrons, $\varphi_{XUV}(\mathbf{r}, W)$ la phase spatio-spectrale du champ XUV, et $\mathbf{d_v}$ l'élément de la matrice de transition dipolaire de l'état fondamental à l'état correspondant à l'énergie cinétique W dans le continuum.

Par ces équations, on écrit simplement que **le paquet d'onde électronique macroscopique possède les mêmes couplages spatio-temporels que l'impulsion XUV**, comme l'illustre la Fig. 5.1.

Lorsqu'on ajoute un champ IR pour effectuer la caractérisation du paquet d'onde, chaque paquet d'électrons local va interagir avec ce champ d'habillage. En ajoutant la variable $\mathbf{r}$ sur les grandeurs dépendant de l'espace,

on peut donc réécrire l'expression (1.57) du spectrogramme vue au chapitre 1 du spectre de photoélectrons $\mathcal{S}(\mathbf{r}, W, \tau)$ en présence du champ IR :

$$\mathcal{S}(\mathbf{r}, W, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} P(\mathbf{r}, t-\tau) \cdot G(\mathbf{r}, t) \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 \tag{5.3}$$

Où τ représente le retard entre les impulsions IR et XUV, $P(\mathbf{r}, t)$ correspond au paquet d'onde électronique $\mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)}\mathbf{E}_{XUV}(\mathbf{r}, t)$, et $G(\mathbf{r}, t)$ correspond à la porte de phase $e^{i\phi(\mathbf{r}, t-\tau)}e^{iI_p t/\hbar}$ induite par le champ IR en chaque point du paquet d'onde électronique.

Effet des couplages sur la mesure finale

Pour mesurer expérimentalement un spectre de photoélectrons, on utilise un spectromètre à temps de vol à bouteille magnétique. Cet appareil utilise des lignes de champ magnétique ayant la forme d'une bouteille pour collecter les photoélectrons. Le "goulot" de la bouteille magnétique est placé dans la zone d'interaction des champs IR et XUV avec le gaz. Le volume V dans lequel les photoélectrons sont collectés, délimité par la répartition des lignes de champ magnétique, prend donc la forme d'un cylindre d'une hauteur millimétrique (selon l'axe y sur la Fig. 5.1), et d'un diamètre de quelques centaines de microns [Kruit P.and Read F. H., 1983]. Tous les photoélectrons émis dans ce volume V sont collectés sous un angle solide de $2\pi\ sr$. En dehors de la zone d'interaction, les lignes de champ magnétique, et donc les trajectoires des électrons, s'évasent rapidement pour former le corps de la bouteille magnétique. Les photoélectrons sont alors spatialement dispersés et ne peuvent plus interagir les uns avec les autres. Ils arrivent ensuite sur une galette de microcanaux délivrant un signal contenant l'information sur les temps de vol des électrons. A partir du signal total obtenu, il est impossible de remonter au point d'émission de chaque électron dans la zone d'interaction. De plus, aucune interaction ne pouvant avoir lieu entre les photoélectrons durant le trajet, la mesure finale représente la somme des spectres locaux, et non des amplitudes de probabilité. On peut donc écrire le spectre de photoélectrons effectivement mesuré $\mathcal{S}^{mes}(W, \tau)$ comme l'intégrale spatiale sur le volume V de tous les spectres locaux $\mathcal{S}(\mathbf{r}, W, \tau)$:

$$\mathcal{S}^{mes}(W, \tau) = \iiint_V \mathcal{S}(\mathbf{r}, W, \tau)\, d\mathbf{r} \tag{5.4}$$

Cette équation fait ressortir le caractère volumique de la mesure et montre que les formes prises par l'impulsion durant sa propagation dans le volume d'interaction influeront sur la mesure finale. Par exemple, les évolutions reportées sur les Fig. 3.10 et 3.11 pourraient avoir entièrement lieu dans le volume d'interaction, l'impulsion évoluant significativement sur $300\,\mu m$ dans ces deux cas. Cependant pour simplifier l'étude, nous allons nous placer dans une situation dans laquelle la structure spatio-temporelle de l'impulsion XUV ne variera pas significativement sur quelques centaines de microns, comme dans le cas des conjugaisons des Fig. 3.21 et 3.22. De plus, de part la différence des longueurs d'onde IR et XUV, la tache focale infrarouge sera potentiellement bien plus grande que la tache focale XUV. On fera donc l'approximation que le faisceau IR, et en conséquence la porte de phase $G(\mathbf{r}, t)$, garderont les mêmes propriétés spatiales sur toute l'extension

de l'impulsion XUV. On peut alors réécrire l'équation (5.3) en faisant apparaitre les coordonnées transverses (x, y) :

$$\mathcal{S}(x, y, W, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} P(x, y, t-\tau) \cdot G(t) \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 \tag{5.5}$$

Nous allons maintenant prendre trois exemples simples :

- Commençons en considérant une impulsion en l'absence de couplage. Le champ électrique est alors donné par l'équation (4.4) vue au chapitre 4, et de manière équivalente le paquet d'électrons peut s'écrire :

$$P(x, y, t) = f(t) \cdot g(x, y) \tag{5.6}$$

On obtient de manière triviale que tous les spectres de photoélectrons locaux sont les mêmes à un coefficient de proportionnalité $|g(x, y)|^2$ près. On appellera $\mathcal{S}^{sc}(W, \tau)$ le spectre de photoélectrons sans couplage, qui représente la forme commune de tous les spectres locaux.

$$\mathcal{S}(x, y, W, \tau) = |g(x, y)|^2 \cdot \left| \int_{-\infty}^{+\infty} f(t-\tau) \cdot G(t) \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 = |g|^2 \cdot \mathcal{S}^{sc}(W, \tau) \tag{5.7}$$

Logiquement, le spectre mesuré $\mathcal{S}^{mes}$ prend aussi la forme du spectre sans couplage :

$$\mathcal{S}^{mes}(W, \tau) = \iint |g|^2 \, dxdy \cdot \mathcal{S}^{sc}(W, \tau) \tag{5.8}$$

- Supposons maintenant que l'impulsion attoseconde à caractériser possède une phase nulle et un *chirp* spatial, entrainant des décalages de son spectre local de forme quelconque. Ceux-ci se reportent sur le paquet d'onde électronique sous la forme de décalages en énergie $\delta W(x, y)$ des spectres de photoloélectrons locaux. Depuis le chapitre 4, nous pouvons appeler un tel phénomène un couplage en amplitude. Dans ce cas, en l'absence de champ IR, le paquet d'onde électronique prend la forme suivante :

$$\widetilde{P}(x, y, W) = \left| \widetilde{f}(W - \delta W(x, y)) \right| \cdot g(x, y) \Leftrightarrow P(x, y, t) = f(t) \, e^{-i\delta W(x,y) \cdot t} \cdot g(x, y) \tag{5.9}$$

En présence du champ laser, les spectres de photoélectrons mesurés $\mathcal{S}^{mes}$ s'écrivent :

$$\mathcal{S}(x, y, W, \tau) = |g(x, y)|^2 \cdot \left| \int_{-\infty}^{+\infty} f(t-\tau) \cdot G(t) \cdot e^{i(W - \delta W(x,y))t/\hbar} dt \right|^2 \tag{5.10}$$

$$\mathcal{S}^{mes}(W, \tau) = \iint |g|^2 \cdot \mathcal{S}^{sc}(W - \delta W(x, y), \tau) \, dxdy \tag{5.11}$$

On voit alors que la mesure finale correspondra à la superposition de traces de photoélectrons toutes identiques à celle du cas sans couplage $\mathcal{S}^{sc}$, mais toutes décalées en énergie les unes par rapport aux autres.

- Prenons un dernier exemple et considérons cette fois que le front de l'impulsion attoseconde possède un retard temporel $\delta T(x,y)$ variant dans l'espace, comme dans l'exemple de la Fig. 5.1. Il s'agit d'un couplage en phase rappelant le premier exemple pris au paragraphe 4.2.1. Puisque un électron ne peut être émis en un point que lorsque l'impulsion XUV est arrivée en ce point, les retards temporels de l'impulsion vont être transférés au paquet d'électrons :

$$P(x,y,t) = f(t + \delta T(x,y)) \cdot g(x,y) \tag{5.12}$$

Comme dans le cas précédent, on en déduit l'expression des spectres locaux et mesurés en fonction du spectre de photoélectrons sans couplage :

$$\mathcal{S}(x,y,W,\tau) = |g(x,y)|^2 \cdot \left| \int_{-\infty}^{+\infty} f(t + \delta T(x,y) - \tau) \cdot G(t) \cdot e^{iWt/\hbar} dt \right|^2 \tag{5.13}$$

$$\mathcal{S}^{mes}(W,\tau) = \iint |g|^2 \cdot \mathcal{S}^{sc}(W, \tau - \delta T(x,y))\, dxdy \tag{5.14}$$

On retrouve donc le même phénomène que dans l'exemple précédent du couplage en amplitude : la trace de photoélectrons mesurée correspond à une superposition de traces identiques mais décalées les unes par rapport aux autres de manière quelconque, cette fois selon l'axe du délai τ. Il serait simpliste de dire qu'un couplage en amplitude décalera les spectres selon l'axe W, et un couplage en phase selon l'axe τ. Cependant, ces exemples posent bien le problème en montrant qu'en présence de couplages, des spectres locaux différents se superposeront, et tendront à brouiller le résultat final.

On peut ainsi résumer l'étude précédente de la manière suivante :

– Si **l'impulsion ne possède pas de couplage, une mesure claire émerge**, et toutes les techniques de caractérisation vues au chapitre 1, tels que RABITT ou CRAB, s'appliquent.

– Si **l'impulsion possède des couplages**, la mesure finale correspond à une superposition de traces de photoélectrons élémentaires différentes les unes des autres. Cette superposition devrait brouiller le résultat final, et une caractérisation d'impulsion ne sera plus possible par les méthodes précédentes.

5.1.2 Etude numérique du problème

On ne peut pour autant pas dire qu'une caractérisation deviendra impossible dès la présence du moindre couplage. Il va exister un régime transitoire entre les deux cas précédents, durant lequel les couplages resteront suffisamment faibles pour permettre malgré tout la caractérisation d'une impulsion. Afin d'évaluer la sensibilité de la mesure aux couplages spatio-temporels, nous allons présenter une série de simulations numériques basées sur les impulsions attosecondes aberrantes obtenues avec le code ROSA.

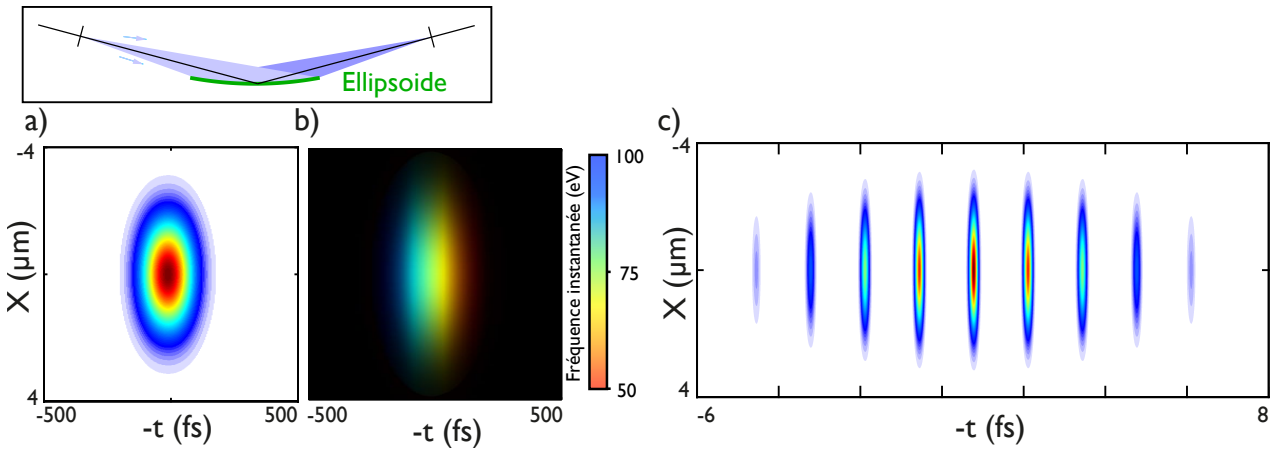


FIGURE 5.2 – **Impulsion et train d'impulsion attoseconde sans couplage au foyer du miroir ellipsoïdal.** Insert : schéma de la conjugaison choisie, à savoir un miroir ellipsoïdal en conjugaison $2f-2f$ à l'angle de rasance optimal. (a-b) Profil d'intensité (a) et de fréquence instantanée (b) de l'impulsion attoseconde au foyer paraxial. La variation de la fréquence instantanée montre la présence de l'atto-chirp. c) Intensité du train d'impulsion attoseconde au foyer paraxial.

Plus particulièrement, nous allons simuler une impulsion refocalisée par un composant optique au foyer paraxial. Considérant qu'un spectromètre à temps de vol soit lui aussi placé au foyer paraxial de l'optique, nous allons calculer les spectres de photoélectrons générés par chaque point de l'impulsion, puis les intégrer spatialement. En procédant ainsi, nous appliquons simplement le raisonnement précédent consistant à dire que le spectromètre à temps de vol n'a pas de résolution spatiale. Nous essaierons ensuite de reconstruire une impulsion attoseconde à l'aide de la technique RABITT puis de la technique CRAB à partir de la trace de photoélectrons intégrée spatialement. Cette étude numérique sera menée en deux temps. Tout d'abord, nous considérerons une impulsion sans aucun couplage spatio-temporel, les résultats obtenus dans cette configuration serviront de référence. Puis, nous travaillerons sur une impulsion déformée par les aberrations. En comparant ces deux situations, nous pourrons en déduire les conséquences des couplages sur la caractérisation de l'impulsion.

Le code ROSA considère que la source attoseconde génère une impulsion sans couplage. Dans le cas présent, le spectre XUV choisi est gaussien centré à $75\,eV$ et de largeur à mi-hauteur $21.3\,eV$, et sera soit continu soit modulé par des harmoniques. Dans ce dernier cas, les harmoniques considérées seront impaires, le champ fondamental ayant une longueur d'onde de $800\,nm$. L'atto-chirp de l'impulsion initiale est pris en compte sous la forme d'une GDD de $4000\,as^2/rad$. Nous fixons le *waist* de l'impulsion à la source à $4.35\,\mu m$ pour obtenir des divergences de $3\,mrad$ à $30\,eV$, $1.2\,mrad$ à $75\,eV$, et $0.8\,mrad$ à $120\,eV$.

Comme dans l'approche analytique précédente, nous allons nous placer dans des situations dans lesquelles nous pourrons négliger la variation de la forme de l'impulsion selon l'axe de propagation z dans le volume d'interaction du spectromètre. De plus, nous considérerons une fois de plus que les propriétés spatiales de l'impulsion infrarouge d'habillage ne varireront pas sur l'extension du faisceau XUV. Cette impulsion sera

gaussienne et d'une longueur d'onde centrale de $800\,nm$. Elle sera quasiment monocycle avec une durée à mi-hauteur de $3.5\,fs$. Pour les mesures RABITT, son intensité sera de $0.01\,TW/cm^2$. Pour les mesures CRAB, nous nous placerons en régime de balayage avec une intensité de $2\,TW/cm^2$. Enfin, nous considérerons que le spectromètre à temps de vol ne mesure que les photoélectrons émis autour de la direction de la polarisation du champ électrique IR. Cela revient à dire que l'angle θ présent dans l'équation (1.44) vaut zéro.

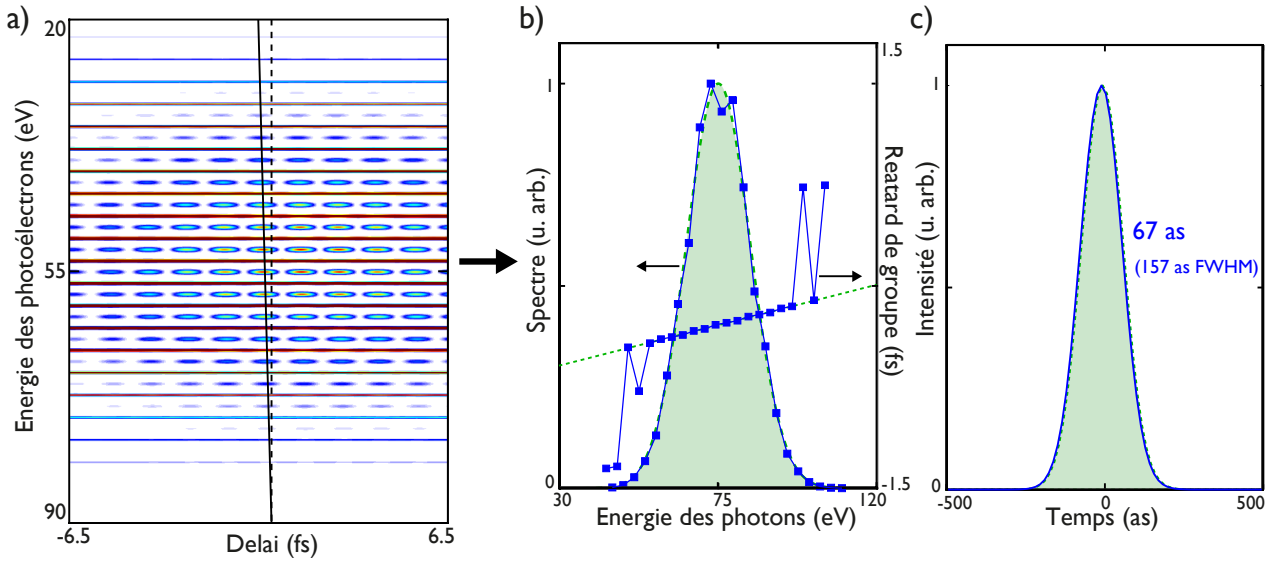


FIGURE 5.3 – **Reconstruction d'une impulsion *en l'absence de couplage* par la technique RABITT.** a) Trace RABITT obtenue en intégrant les spectres de photoélectrons générés par chaque point du train d'impulsions. La désynchronisation linéaire des *sidebands* traduit l'influence de l'atto-chirp. b) Enveloppe du spectre harmonique et retard de groupe mesurés directement sur la trace RABITT en a) (carrés bleus), et comparés aux spectre et retard de groupe initiaux (courbes vertes pointillées). c) Profil d'une impulsion attoseconde du train reconstruit à partir des mesures faites sur la trace RABITT (courbe bleue), et comparée à l'impulsion générée par la source attoseconde (courbe verte pointillées). Les durées RMS et à mi-hauteur sont indiquées.

Caractérisation de l'impulsion en l'absence de couplage

Dans un premier temps, nous allons considérer que l'impulsion à caractériser ne possède pas de couplage au foyer paraxial. Comme nous l'avons vu dans les chapitres 3 et 4, ce type d'impulsion peut être obtenue avec un miroir ellipsoïdal en conjugaison $2f-2f$. Nous allons donc reprendre le miroir ellipsoïdal étudié au paragraphe 3.3.2, et l'utiliser dans la conjugaison présentée sur la Fig. 3.18.

Dans ces conditions, l'impulsion et le train d'impulsion obtenus ne possèdent pas de distorsion spatio-temporelle, comme le montre la Fig. 5.2. Et les impulsions ne sont étirées que par l'atto-chirp. De plus, les résultats présentés sur la Fig. 3.18 montrent que ces impulsions garderont la même forme sur une distance de quelques millimètres le long de l'axe de propagation. Elles n'évolueront pas significativement dans le volume

d'interaction du spectromètre à temps de vol, et nous négligerons donc les variations de la forme de ces impulsions avec la propagation.

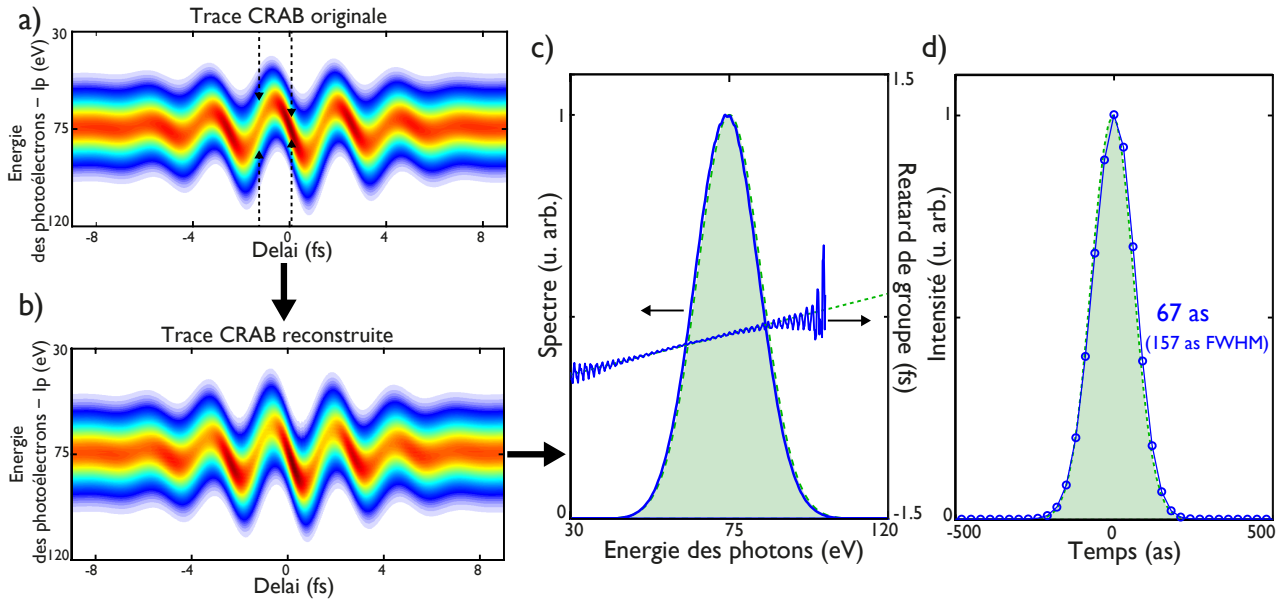


FIGURE 5.4 – **Reconstruction d'une impulsion *en l'absence de couplage* par la technique CRAB.** a) Trace CRAB générée en intégrant tous les spectres élémentaires de photoélectrons émis en chaque point par l'impulsion attoseconde. La dilatation et la compression périodique du spectre de photoélectrons montrent la présence d'une dérive de fréquence sur l'impulsion. b) Trace CRAB reconstruite après 5549 itérations de l'algorithme PCGPA. c) Spectre et retard de groupe reconstruits par l'algorithme (courbes bleues), et comparés aux propriétés de l'impulsion émise par la source (courbes vertes pointillées). d) Impulsion reconstruite par l'algorithme (cercles bleus), et impulsion initiale émise par la source (courbe pointillée verte). Les durées RMS et à mi-hauteur sont indiquées.

RABITT en l'absence de couplage : En sommant les traces RABITT élémentaires générées par chaque point du train d'impulsions de la Fig. 5.2 c), nous obtenons la trace RABITT de la Fig. 5.3 a). Pour rappel, les lignes horizontales continues sur cette trace représentent les ordres harmoniques présents dans le spectre XUV. Entre ces harmoniques apparaissent des pics satellites. Ces derniers oscillent en fonction du délai entre les impulsions IR et XUV avec une phase dépendant de la variation de la phase spectrale entre les deux harmoniques. En d'autres termes, la synchronisation de ces pics satellites entre eux permet de remonter directement au retard de groupe des impulsions attosecondes du train. Ainsi, la désynchronisation linéaire de ces oscillations visible sur la Fig. 5.3 a) est synonyme d'une augmentation linéaire du retard de groupe. Et comme la forme du spectre harmonique se déduit immédiatement de l'intensité des spectres de photoélectrons au niveau des harmoniques, nous pouvons déduire de cette trace RABITT l'enveloppe du spectre harmonique et le retard de groupe associé. Comme le montre la Fig. 5.3 (b-c), on retrouve bien les propriétés spectrales et donc le profil temporel de l'impulsion initiale.

CRAB en l'absence de couplage : L'intégration spatiale des spectres de photoélectrons produit la trace CRAB de la Fig. 5.4 a). L'intensité IR de $2\,TW/cm^2$ que nous avons choisie impose un régime de balayage. Nous pouvons donc reprendre l'interprétation faite au paragraphe 1.2.2 du chapitre 1. Lorsque le paquet d'onde électronique produit par l'impulsion XUV voit une évolution linéaire du champ électrique IR, le spectre de photoélectrons est simplement décalé vers les hautes ou les basses énergies. Ce phénomène se produisant deux fois par période du champ IR, la trace de photoélectrons prend la forme d'un spectre alternativement décalé vers le haut et vers le bas. Durant la transition entre ces deux positions, une modulation de phase quadratique est induite par le champ IR sur le paquet d'électron. Cela va alors provoquer une compression ou dilatation du spectre de photoélectrons si celui-ci possède une dérive de fréquence du fait de l'atto-chirp. On peut retrouver ce phénomène sur la trace CRAB de la Fig. 5.4 a), les flèches noires illustrant l'élargissement et la compression du spectre de photoélectrons induite par la GDD de l'impulsion refocalisée. Pour pouvoir reconstruire l'impulsion attoseconde ayant généré cette trace, nous allons appliquer le PCGPA. Cet algorithme itératif va créer une trace de départ obtenue à partir d'une impulsion attoseconde dont les propriétés sont connues. Puis l'algorithme va progressivement minimiser l'écart entre la trace CRAB originale et celle qu'il reconstruit, ce qui va avoir comme effet de faire converger l'impulsion de départ vers l'impulsion à retrouver.

Nous appliquons cette procédure à la trace CRAB de la Fig. 5.4 a). Après 5549 itérations du PCGPA, nous obtenons la trace reconstruite de la Fig. 5.4 b), l'erreur au sens des moindres carrés entre les deux traces étant de 1.06×10^{-7}. Sur cette trace reconstruite, on peut retrouver le phénomène de compression et de dilatation du spectre de photoélectrons, ce qui montre que l'algorithme a pris en compte la dérive de fréquence de l'impulsion. Et en effet, le retard de groupe reconstruit possède la même pente que celui de l'impulsion initiale, et le spectre est en tout point similaire au spectre initial. En conséquence, l'impulsion reconstruite est bien la même que l'impulsion générée par la source attoseconde.

Lorsque l'impulsion focalisée dans le spectromètre à temps de vol ne possède pas de couplage, la caractérisation de l'impulsion par les techniques RABITT et CRAB donnent les résultats attendus. Nous allons maintenant refaire les simulations précédentes dans le cas d'une impulsion déformée par les aberrations.

Caractérisation d'une impulsion aberrante

D'après l'étude analytique faite au début de ce chapitre, les traces de photoélectrons générées par une impulsion attoseconde aberrante devraient être brouillées du fait des couplages spatio-temporels. Pour vérifier cette interprétation, nous allons simuler une impulsion attoseconde déformée fortement par les aberrations.

Dans la pratique, la force des aberrations que nous pourrons appliquer sur l'impulsion va être limitée par le temps de calcul du code ROSA. En effet, plus la conjugaison est aberrante, plus l'impulsion possède une forme complexe, plus le nombre de rayons à envoyer sur le miroir est important. De plus, l'ajout d'aberrations va étaler l'impulsion dans l'espace et dans le temps, ce qui va augmenter les dimensions du volume de calcul. Nous avons donc choisi une conjugaison aberrante réaliste, et nous considérons un miroir torique de $200 \times 40\,mm$ et

d'une focale de 500 mm pour un angle de rasance de 6°. Ce miroir travaille en grandissement 0.5, la frontale, distance entre la source et le sommet du miroir, vaut donc 1500 mm, et le tirage, distance entre le miroir et le foyer paraxial vaut 750 mm. D'après l'étude menée au chapitre 3, nous nous attendons à voir apparaitre de la coma. De plus, nous ajoutons un écart angulaire de 0.03° sur l'angle de rasance, ce qui est en général inférieur à la précision d'alignement accessible dans la pratique. L'angle de rasance final sera donc de 6.03°, ce qui devrait ajouter de l'astigmatisme sur l'impulsion finale. Le résultat des simulations est reporté sur la Fig. 5.5.

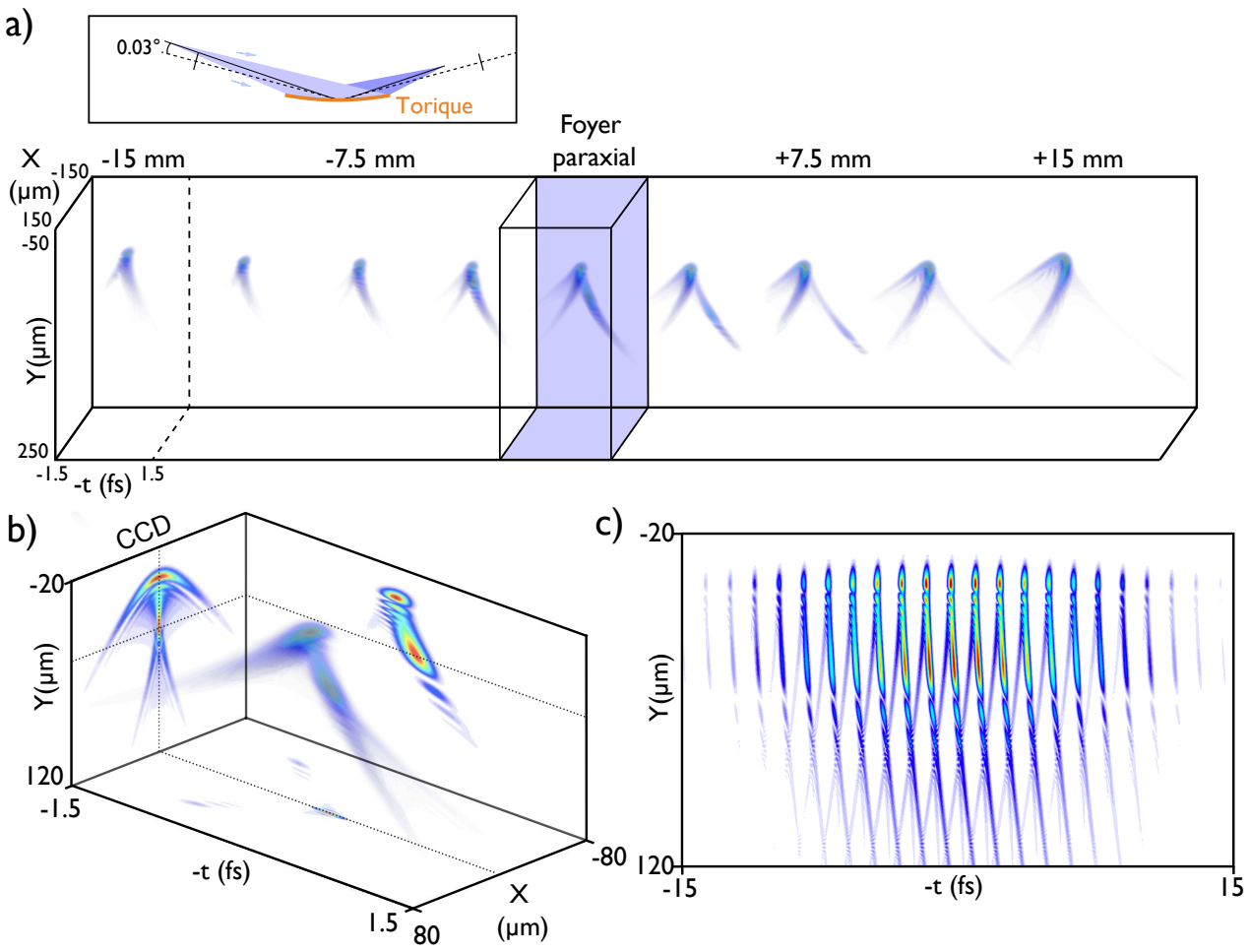


FIGURE 5.5 – **Evolution d'une impulsion et d'un train d'impulsions attosecondes au foyer d'un miroir torique.** a) Insert : schéma de la conjugaison optique étudiée, à savoir un miroir torique de focale 500 mm (angle de rasance optimal 6°) utilisé sous un angle de 6.03° en grandissement 0.5. Evolution spatio-temporelle de l'intensité d'une impulsion attoseconde le long de l'axe de propagation. b) Détail de l'intensité de l'impulsion au foyer paraxial. Les projections dans les plans (x,t) et (y,t) correspondent à deux coupes de l'impulsion 3D situées au niveau des traits pointillés. La projection dans le plan (x,y) correspond à l'impulsion intégrée temporelle, soit l'image que l'on obtiendrait sur une caméra CCD. c) Evolution du module du champ électrique du train d'impulsions attosecondes dans le plan $x = 0\,\mu m$.

Jusqu'à présent, nous n'avons pas mentionné les temps pris par les simulations ROSA. Mais à titre indicatif, pour calculer les impulsions 3D de la Fig. 5.5 a) autres que celle au foyer paraxial, nous avons envoyé entre 100000 et 350000 rayons sur le miroir. Chaque impulsion a demandé entre 3 et 17 h de calcul. Concernant l'impulsion au foyer paraxial que nous avons utilisée pour le calcul des spectres de photoélectrons, nous avons augmenté la résolution du volume de calcul pour résoudre les plus fines évolutions de l'impulsion. Le calcul a au final pris 36 h et a formé un volume de données d'environ 2 Go. De plus, l'échantillonnage du volume de calcul étant fin, le nombre de spectres de photoélectrons élémentaires à calculer fut assez important. Et le calcul de la trace RABITT présentée sur la Fig. 5.6 a pris 37 h. Ces quelques chiffres montrent que ces simulations auront poussé le code ROSA jusqu'aux limites de ses possibilités sur un ordinateur standard.

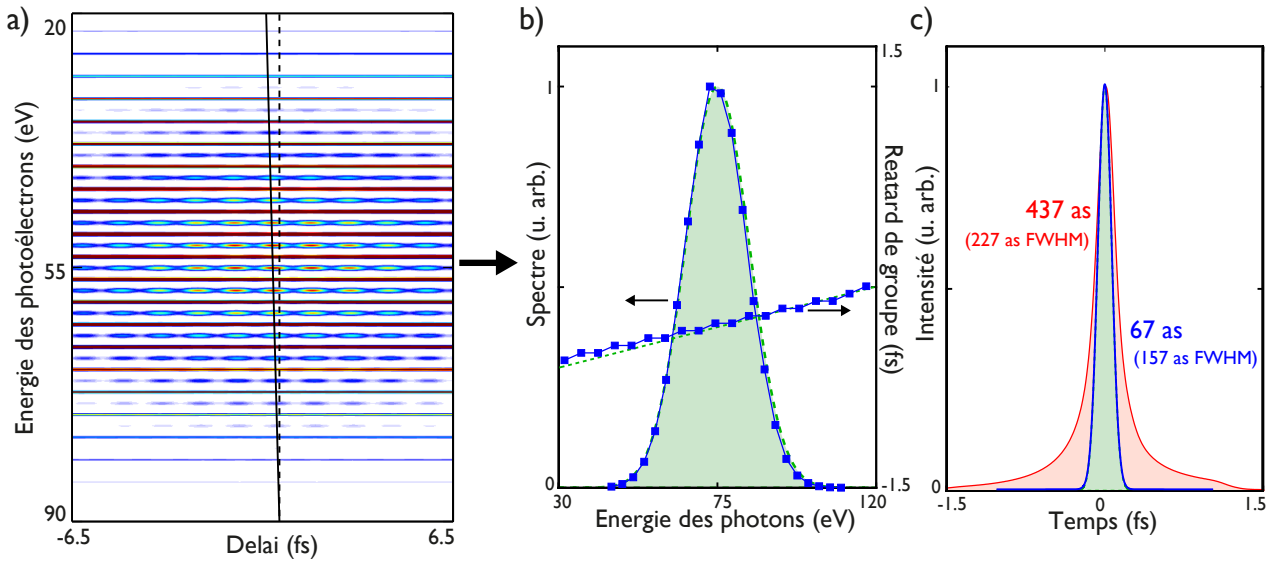


FIGURE 5.6 – **Reconstruction d'une impulsion *en présence de couplages* par la technique RABITT.** a) Trace RABITT obtenue en intégrant les spectres de photoélectrons générés par chaque point du train d'impulsions. On observe un brouillage des oscillations des pics satellites du à la structure spatio-temporelle du train d'impulsions. Malgré tout, la désynchronisation linéaire des *sidebands* due à l'atto-chirp reste visible. b) Enveloppe du spectre harmonique et retard de groupe mesurés directement sur la trace RABITT en a) (carrés bleus), et comparés aux spectre et retard de groupe initiaux (courbes vertes pointillées). c) Comparaison du profil d'une impulsion attoseconde du train reconstruit à partir des mesures faites sur la trace RABITT (courbe bleue), et de celui d'une impulsion du train émis par la source (courbe pointillée verte), avec l'impulsion globale (courbe continue rouge) associée à l'impulsion spatio-temporelle de la Fig. 5.5 b). Les durées RMS et à mi-hauteur sont indiquées.

Comme le montre la Fig. 5.5 a), l'évolution non symétrique de l'impulsion de part et d'autre du foyer paraxial traduit la présence d'astigmatisme. La forme des impulsions est marquée par le double front du à l'aberration de coma. Cette présence de coma est confirmée par l'allure en aigrette du profil spatial de l'impulsion, visible sur la Fig. 5.5 b). Enfin, la présence d'un double front d'impulsion peut s'accompagner, dans le cas d'un train d'impulsions, d'interférences entre impulsions du train. Ce phénomène se produit également

dans le cas présent, voir la Fig. 5.5 c). Cela montre que les aberrations présentes dans la conjugaison choisie donnent aux impulsions attosecondes une structure spatio-temporelle particulièrement complexe.

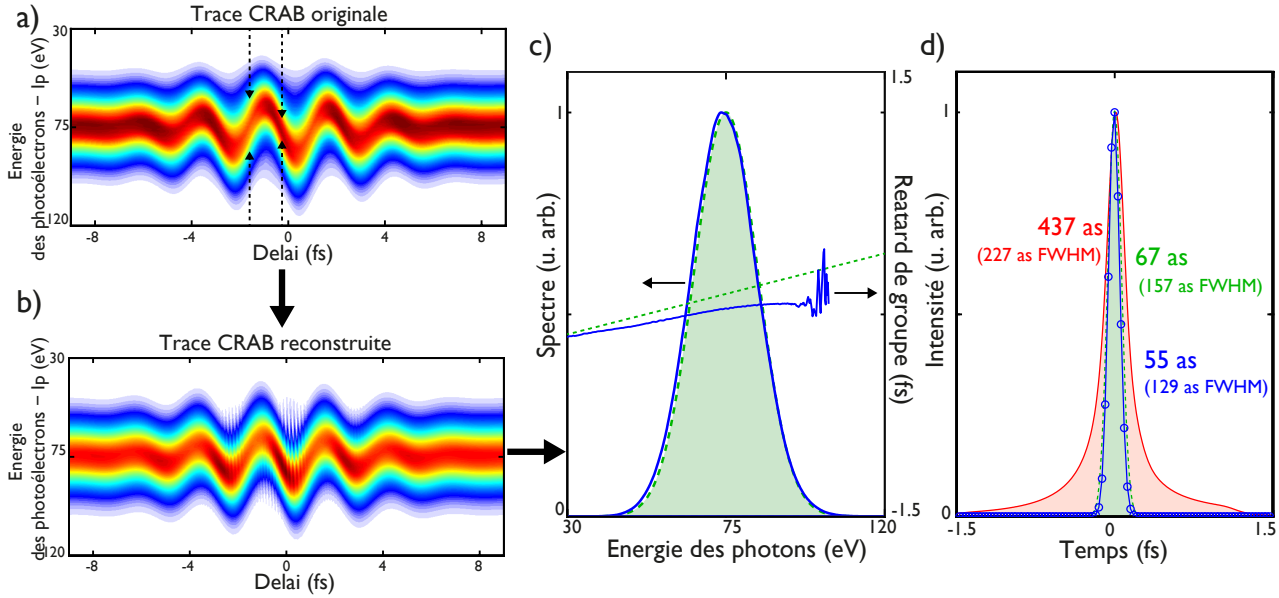


FIGURE 5.7 – **Reconstruction d'une impulsion *en présence de couplages* par la technique CRAB.** a) Trace CRAB générée en intégrant tous les spectres élémentaires de photoélectrons émis en chaque point par l'impulsion attoseconde. Cette intégration lisse l'évolution de la trace CRAB, mais il est toujours possible de distinguer la dilatation et la compression des spectres de photoélectrons dues au *chirp* de l'impulsion. b) Trace CRAB reconstruite après 12765 itérations du PCGPA. c) Spectre et retard de groupe reconstruits par l'algorithme (courbes bleues), et comparés aux propriétés de l'impulsion émise par la source (courbes vertes pointillées). d) Comparaison de l'impulsion reconstruite par l'algorithme (cercles bleus), et de l'impulsion initiale émise par la source (courbe pointillée verte), avec l'impulsion globale (courbe continue rouge) associée à l'impulsion spatio-temporelle de la Fig. 5.5 b). Les durées RMS et à mi-hauteur sont indiquées.

RABITT en présence de couplages : La Fig. 5.5 a) nous montre que la forme de l'impulsion évolue significativement sur une distance de quelques millimètres. L'épaisseur du volume d'interaction dans le spectromètre ayant une épaisseur de quelques centaines de microns, nous allons pouvoir une nouvelle fois négliger la dépendance en z du champ attoseconde lors de la mesure. Nous allons donc appliquer la même procédure que dans le cas précédent en l'absence de couplage, et calculer la trace RABITT intégrée spatialement associée à l'impulsion au foyer paraxial. Le résultat apparait sur la Fig. 5.6 a). Une comparaison rapide révèle une forme de la trace RABITT relativement similaire à celle de la Fig. 5.3 : les oscillations des pics satellites paraissent moins contrastées, mais cela n'empêche pas d'observer la désynchronisation linéaire de ces oscillations. Il reste donc possible de mesurer un retard de groupe, et d'après la Fig. 5.6 b), celui-ci reste identique au retard de groupe de l'impulsion initiale. Le spectre mesuré étant également identique au spectre initial, le train d'impulsion reconstruit se compose d'impulsions similaires à celles générées au niveau de la source attoseconde, soit des impulsions gaussiennes d'une durée RMS de 67 as. Mais la structure spatio-temporelle de la Fig. 5.5 b) suggère

pourtant que l'impulsion globale sera bien plus longue. Le double front d'impulsion créé par la coma devrait en effet transférer de l'énergie dans les pieds de l'impulsion globale. Nous comparons donc cette impulsion globale avec l'impulsion reconstruite, voir la Fig. 5.6 c). Et effectivement, il apparait que l'impulsion globale possède une durée RMS de 437 as bien supérieure à celle de l'impulsion initiale et reconstruite. En présence de couplages, non seulement une mesure RABITT semble donc toujours possible, mais l'impulsion reconstruite semble correspondre à celle existant en l'absence de couplage.

CRAB en présence de couplages : L'intégration spatiale des spectres de photoélectrons donne le résultat de la Fig. 5.7 a). Avant d'appliquer le PCGPA pour reconstruire l'impulsion, nous pouvons déjà faire quelques remarques sur la trace obtenue. Comme dans le cas de la mesure RABITT, la trace est loin d'être totalement brouillée par les couplages. Certes, on peut noter que les oscillations du spectre de photoélectrons semblent lissées par rapport à la trace CRAB de la Fig. 5.7 a). Néanmoins, comme dans le cas de la mesure RABITT précédente, cela n'empêche pas d'observer l'influence de l'atto-chirp sur la trace. On retrouve en effet le phénomène de compression et de dilatation du spectre de photoélectrons en présence d'une dérive de fréquence sur l'impulsion attoseconde. En appliquant le PCGPA sur cette trace, nous obtenons après 12765 itérations la trace reconstruite de la Fig. 5.7 b) sur laquelle deux éléments sont à noter. Tout d'abord, il apparait que l'algorithme a bien identifié la présence d'une dérive de fréquence puisque la compression et la dilatation périodique du spectre de photoélectrons est clairement visible sur la trace reconstruite. Le second détail remarquable réside dans la présence d'oscillations très rapides au centre de la trace, et qui ne sont pas présentes sur la trace originale. Nous reviendrons sur l'origine de ce phénomène dans le paragraphe suivant, et intéressons nous maintenant au spectre et au retard de groupe reconstruit, visibles sur la Fig. 5.7 c). Alors que le premier correspond parfaitement au spectre initial, le retard de groupe diffère visiblement de celui émis par la source. Comme nous l'avons vu sur la trace reconstruite, l'algorithme a bien reconstruit une dérive de fréquence mais celle-ci semble légèrement plus faible que prévu. Risquons nous à une explication. En régime de balayage, plus la différence entre le spectre compressé et celui dilaté est marquée, plus la dérive de fréquence est importante. A l'inverse, lorsque cette distinction n'est plus visible, l'impulsion est limitée par Fourier. Dans notre cas, comme la trace originale a été lissée par les couplages, la distinction est moins franche entre le spectre compressé et celui dilaté, ce que le PCGPA peut interpréter comme une diminution de la dérive de fréquence. En conséquence, l'impulsion reconstruite par l'algorithme est légèrement plus courte que l'impulsion initiale, avec une durée RMS de 55 as contre 67 as pour l'impulsion initiale. Mais comme dans le cas de l'impulsion reconstruite par la technique RABITT, cette impulsion reconstruite reste bien plus courte que l'impulsion globale, voir la Fig. 5.7 d).

Ces simulations numériques ont donné lieu à des résultats différents de ceux attendus. Alors que nous pensions initialement que les couplages brouilleraient totalement les spectres de photoélectrons, ces simulations nous ont montré qu'une caractérisation d'impulsion restait possible malgré la présence de forts couplages. De plus, les impulsions reconstruites par les techniques RABITT et CRAB sont dans les deux cas bien plus courtes que l'impulsion globale, et même plus courte que l'impulsion initiale dans le cas de la technique CRAB. Mais

les couplages ne sont pas pour autant sans effet sur les traces RABITT et CRAB. Et si nous voulons trouver une explication à ces résultats contre-intuitifs, une partie de la réponse résidera probablement dans les effets des couplages visibles sur les traces RABITT et CRAB.

Conséquences des couplages visibles sur la mesure finale

Une impression générale se dégage des simulations précédentes. Dans le cas de la mesure RABITT comme de la mesure CRAB, un brouillage de la trace a lieu en présence de couplages, mais ce brouillage reste insuffisant pour empêcher une caractérisation.

Sur la trace RABITT, ce brouillage se manifeste au niveau des pics satellites. En effet, la seule différence visible entre les traces RABITT avec et sans couplage des Fig. 5.3 a) et 5.6 a) vient du contraste des oscillations des pics satellites. Pour faire une mesure quantitative de ce brouillage de la trace, nous allons mesurer le contraste moyen de ces oscillations. Et comme ces pics satellites n'ont pas tous la même intensité, et donc le même poids dans le résultat final, nous allons pondérer le contraste des pics satellites par le spectre. Concrètement, nous allons mesurer un contraste C_{2q} sur le pic satellite d'ordre $2q$, q étant un nombre entier, créé par les harmoniques d'ordres $2q-1$ et $2q+1$. Ces harmoniques ayant des intensités $I_{2q\pm1}$, nous allons pondérer ce contraste par l'intensité I_{2q} correspondant à la moyenne $\left(I_{2q-1}+I_{2q+1}\right)/2$ des intensités précédentes. Nous allons ainsi obtenir un contraste moyen $\langle C_{2q}\rangle$:

$$\langle C_{2q}\rangle = \frac{\sum_{2q} I_{2q}\cdot C_{2q}}{\sum_{2q} I_{2q}} \tag{5.15}$$

En mesurant ce contraste moyen sur la trace RABITT obtenue en l'absence de couplage sur la Fig. 5.3 a), nous obtenons une valeur de 98.4 %. Visiblement, le contraste moyen n'atteint donc pas 100 %, même lorsque l'impulsion qui génère la trace RABITT ne possède aucun couplage. Nous verrons par la suite l'explication de ce phénomène. De plus, en réitérant la mesure de contraste sur la trace RABITT de la Fig. 5.6 a), nous obtenons cette fois un contraste moyen de 54.5 %. Les aberrations ont donc diminué le contraste d'un facteur proche de 2.

Dans le cas de la mesure CRAB, nous avons vu en comparant les Fig. 5.4 a) et 5.7 a) que les oscillations du spectre de photoélectrons semblaient moins bien contrastées en présence de couplages. Cependant, on ne peut plus définir simplement le contraste d'une trace CRAB à l'inverse d'une trace RABITT. Nous allons donc utiliser une autre grandeur.

Le PCGPA reconstruit une impulsion en minimisant l'erreur au sens des moindres carrés entre la trace CRAB originale et une seconde trace. Mais les traces CRAB originales avec et sans couplage des Fig. 5.4 a) et 5.7 a) comportent le même nombre de points et les mêmes bornes. De plus, lorsqu'on applique le PCGPA, celui-ci part de la même impulsion de départ pour ces deux traces. En conséquence, toute différence dans l'erreur finale entre les traces originales et reconstruites sera un effet des couplages. Plus précisément, la trace CRAB reconstruite en l'absence de couplage sur la Fig. 5.4 b) a été obtenue après 5549 itérations du

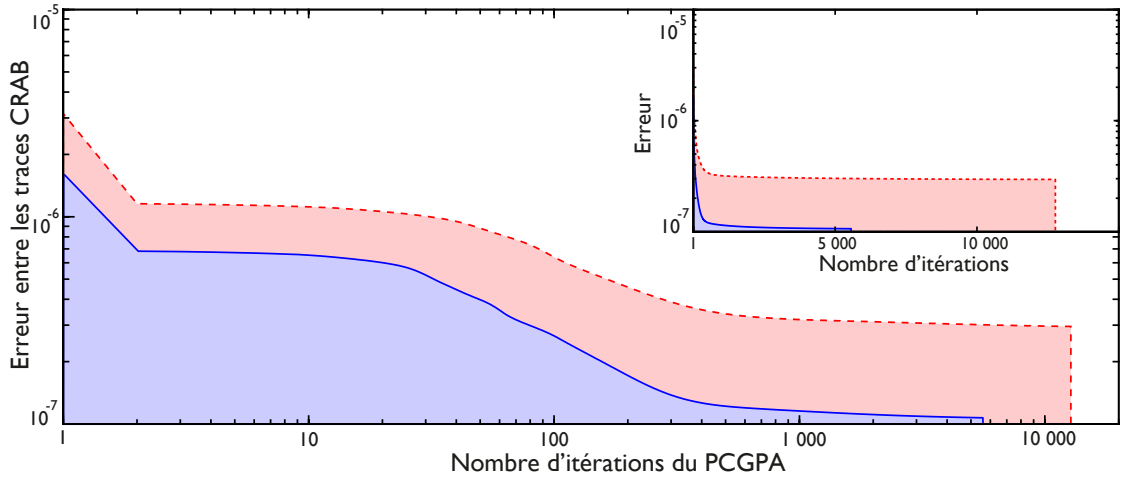


FIGURE 5.8 – **Evolution de l'erreur entre la trace CRAB originale et la trace CRAB reconstruite avec et sans couplage sur l'impulsion attoseconde.** Chaque itération du PCGPA diminue l'erreur au sens des moindres carrés entre la trace CRAB originale et la trace reconstruite. Cette évolution de l'erreur est tracée dans un repère "log-log" ("semi-log" pour l'insert) en traits continus bleus dans le cas de l'impulsion sans couplage de la Fig. 5.4, et en trait pointillés rouges dans le cas de l'impulsion couplée de la Fig. 5.7.

PCGPA, aboutissant à une erreur entre les deux traces de 1.06×10^{-7}. La trace CRAB de la Fig. 5.7 b), quant à elle, a été reconstruite après 12765 itérations, pour une erreur finale de 2.95×10^{-7}. Nous voyons donc qu'en présence de couplages, une erreur trois fois plus important entre les traces est obtenue malgré deux fois plus d'itérations. Pour aller encore plus loin dans cette analyse, nous traçons sur la Fig. 5.8 l'évolution de l'erreur entre les traces originale et reconstruite en fonction du nombre d'itérations de l'algorithme. Dans leurs formes, les évolutions de l'erreur en l'absence et en présence de couplage sont assez similaires. Sur les premières centaines d'itérations, l'algorithme converge assez rapidement vers la trace originale. Après avoir reproduit sa forme globale, il s'applique à reproduire les détails de la trace. Cela se traduit par un point d'inflexion dans l'évolution de l'erreur, particulièrement visible sur l'insert de la Fig. 5.8, à partir duquel le gain sur le résultat final devient assez faible. Pour être certain que le résultat obtenu sera optimal, nous laissons volontairement l'algorithme aller bien au-delà de ce point d'inflexion. Malgré cela, il apparait clairement qu'en présence de couplages, l'algorithme ne parvient pas à minimiser l'erreur aussi bien qu'en l'absence de couplage. Il n'arrive donc pas à reproduire tous les détails de la trace originale.

Le PCGPA part du principe que la trace originale est un spectrogramme, qui peut donc s'écrire sous la forme de l'équation 1.57, et qu'il existe des profils d'impulsion attoseconde et de porte de phase qui permettent de reproduire exactement cette trace. Si ce raisonnement est juste quand il n'y a aucun couplage sur l'impulsion attoseconde, il ne l'est plus en présence de couplages. Et ceci explique en partie les oscillations rapides que nous avions observées sur la Fig. 5.7 b). En effet, les couplages étalent le signal dans les zones creuses entre deux oscillations du spectre de photoélectrons. Pour minimiser l'écart avec cette trace, l'algorithme va chercher à ajouter lui aussi du signal dans ces zones. Et ces oscillations sont le seul moyen qu'il ait trouvé pour le faire

en appliquant l'équation (1.57) pour que la trace reconstruite soit un spectrogramme.

Les conséquences des couplages visibles sur les spectres de photoélectrons nous donnent un début d'explication. Nous allons maintenant avoir une approche plus analytique et nous appuyer sur le modèle théorique développé au chapitre précédent. Nous étudierons tout d'abord en détail le cas de la technique RABITT. Les simulations nous ont montré que le contraste moyen $\langle C_{2q} \rangle$ d'une trace RABITT semblait être une grandeur dans laquelle se trouvent l'influence des couplages. Nous allons donc tenter d'expliquer la dépendance de cette quantité aux couplages. De plus, nous tenterons de trouver la raison pour laquelle l'impulsion reconstruite par RABITT est plus courte que l'impulsion globale. Enfin, nous étudierons les conséquences des couplages sur la trace de photoélectrons en régime de balayage.

5.2 Conséquences des couplages sur la mesure RABITT

De manière simplifiée, une trace RABITT peut se résumer en deux familles de niveaux d'énergie : les ordres harmoniques impairs $2q \pm 1$, et les pics satellites d'ordres $2q$. Nous allons nous intéresser successivement à l'impact des couplages sur ces deux parties de la trace RABITT. Les simulations précédentes nous ont montré que l'approximation consistant à négliger la dépendance en z du champ attoseconde dans le volume d'intégration du spectromètre se justifiait dans de nombreux cas. Pour cette étude analytique, nous partirons donc de l'équation suivante pour décrire la trace RABITT mesurée $\mathcal{S}^{mes}(W, \tau)$:

$$\mathcal{S}^{mes}(W, \tau) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{S}(x, y, W, \tau)\, dxdy \tag{5.16}$$

Où τ représente toujours le délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR, W l'énergie des photoélectrons, et $\mathcal{S}(x, y, W, \tau)$ le spectre de photoélectrons local au point de coordonnées (x, y) dans le volume d'interaction.

Impact sur les harmoniques

Les Fig. 5.3 a) et 5.6 a) montrent que l'intensité des spectres de photoélectrons, au niveau des ordres harmoniques impairs, peut en première approximation être considérée comme constante en fonction de τ. Nous avons vu au chapitre 1 qu'en l'absence de couplage le spectre de photoélectrons à ces énergies était une réplique du spectre harmonique. En présence de couplages, ce raisonnement est toujours vrai à l'échelle locale, et chaque spectre de photoélectrons local $\mathcal{S}_{2q\pm1}(x, y)$ reproduit le profil d'intensité $i_{2q\pm1}(x, y)$ du spectre de photons en ce point.

$$\mathcal{S}^{mes}_{2q\pm1}(\tau) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} i_{2q\pm1}(x, y)\, dxdy \tag{5.17}$$

Au niveau des ordres harmoniques, l'intensité de la trace RABITT sera donc proportionnelle au spectre de photons intégré spatialement, c'est à dire au spectre global. Par la suite, l'intégrale $\iint i_{2q\pm1} dxdy$, soit le spectre harmonique global, sera notée $I_{2q\pm1}$.

Impact sur les pics satellites

L'étude précédente nous a montré que l'influence des couplages sur la trace RABITT se faisait sentir au niveau des pics satellites et en particulier sur leur contraste. Pour trouver une explication à ce phénomène, reprenons les équations (1.50) et (1.51) du chapitre 1 expliquant l'origine des pics satellites sur une trace RABITT. Comme nous l'avons vu, ces pics satellites apparaissent lorsque des photoélectrons absorbent ou émettent un photon infrarouge. En supposant que les propriétés des atomes ionisés ne dépendent pas de l'espace, les amplitudes $a_{2q}^{(\pm)}$ de ces deux chemins quantiques, pour un pic satellite d'ordre $2q$, s'écrivent à l'échelle locale de la manière suivante :

$$a_{2q}^{(-)}(x,y,\tau) \propto \left|M_{2q}^{(-)}\right| e^{i\phi_{2q}^{(-)}} \cdot \sqrt{i_{2q-1}(x,y,t-\tau)} e^{i\phi_{2q-1}(x,y,t-\tau)} \cdot \sqrt{i_{IR}(x,y,t)} e^{i\phi_{IR}(x,y,t)} \tag{5.18}$$

$$a_{2q}^{(+)}(x,y,\tau) \propto \left|M_{2q}^{(+)}\right| e^{i\phi_{2q}^{(+)}} \cdot \sqrt{i_{2q+1}(x,y,t-\tau)} e^{i\phi_{2q+1}(x,y,t-\tau)} \cdot \sqrt{i_{IR}(x,y,t)} e^{-i\phi_{IR}(x,y,t)} \tag{5.19}$$

Où $\left|M_{2q}^{(\pm)}\right| e^{i\phi_{2q}^{(\pm)}}$ est un facteur complexe propre au gaz utilisé pour la photoionisation, $i_{2q\pm1}(x,y,t)$ et $\phi_{2q\pm1}(x,y,t)$ sont respectivement l'intensité et la phase spatio-temporelles de l'harmonique d'ordre $2q \pm 1$. Et de la même manière, $i_{IR}(x,y,t)$ et $\phi_{IR}(x,y,t)$ représentent l'intensité et la phase spatio-temporelles de l'impulsion infrarouge d'habillage.

La dépendance en t des intensités i_{IR} et $i_{2q\pm1}$ implique que les pics satellites disparaitront pour des délais τ importants, c'est à dire lorsque l'impulsion IR et le train d'impulsions attosecondes ne se recouvriront plus dans le temps. Par la suite, nous allons nous intéresser uniquement aux spectres de photoélectrons situés au "centre" de la trace RABITT, c'est à dire à ceux obtenus pour des délais τ faibles devant les durées de l'impulsion IR et de l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes. Dans ces conditions, les intensités i_{IR} et $i_{2q\pm1}$ varieront peu en fonction du temps, et on pourra les considérer comme indépendantes de t. En appelant $\Delta\phi_{2q}^{at}$ la différence $\phi_{2q}^{(-)} - \phi_{2q}^{(+)}$, on peut écrire le spectre de photoélectrons local en fonction des grandeurs précédentes :

$$\begin{aligned}\mathcal{S}_{2q}(x,y,\tau) &= \left|a_{2q}^{(+)} + a_{2q}^{(-)}\right|^2 = \left|a_{2q}^{(+)}\right|^2 + \left|a_{2q}^{(-)}\right|^2 \\ &\quad + 2\left|a_{2q}^{(+)}\right|\left|a_{2q}^{(-)}\right| \cdot cos\left(2\phi_{IR} + \phi_{2q-1} - \phi_{2q+1} + \Delta\phi_{2q}^{at}\right)\end{aligned} \tag{5.20}$$

En supposant l'absence de toute dérive de fréquence sur l'impulsion IR, et en considérant que la phase spectrale XUV ne varie pas sur la largeur d'une harmonique, on peut écrire les équations suivantes :

$$\phi_{2q\pm1}(x,y,t-\tau) = (2q \pm 1)\,\omega_{IR}(t-\tau) + \varphi_{2q\pm1}(x,y) \tag{5.21}$$

$$\phi_{IR}(x,y,t) = \omega_{IR}t + \varphi_{IR}(x,y) \tag{5.22}$$

Où $\varphi_{2q\pm1}$ et φ_{IR} représentent respectivement les phases absolues des harmoniques et de l'impulsion IR, qui peuvent toujours dépendre de (x,y).

Dans ces conditions, le retard de groupe GD_{2q} du train d'impulsions attosecondes à l'ordre $2q$ va également dépendre de l'espace :

$$GD_{2q}(x,y) \approx \frac{\varphi_{2q+1}(x,y) - \varphi_{2q-1}(x,y)}{2\omega_{IR}} \tag{5.23}$$

En réécrivant l'équation 5.20 en prenant en compte les calculs précédents, nous obtenons l'expression de l'intensité $\mathcal{S}_{2q}(x,y,\tau)$ du spectre de photoélectrons local pour le pic satellite $2q$:

$$\mathcal{S}_{2q}(x,y,\tau) \propto i_{IR}(x,y) \cdot [\left|M_{2q}^{(+)}\right|^2 i_{2q+1}(x,y) + \left|M_{2q}^{(-)}\right|^2 i_{2q-1}(x,y)$$

$$+ 2\left|M_{2q}^{(+)}\right|\left|M_{2q}^{(-)}\right|\sqrt{i_{2q+1}i_{2q-1}} \cdot cos\left(2\omega_{IR}(\tau - GD_{2q}(x,y)) + 2\varphi_{IR}(x,y) + \Delta\phi_{2q}^{at}\right)] \tag{5.24}$$

Dans cette équation, nous avons pris en compte la dépendance spatiale des différentes grandeurs intervenant lors d'une mesure RABITT, telles que le profil spatial $i_{IR}(x,y)$ de l'impulsion IR d'habillage, ou le retard de groupe local $GD_{2q}(x,y)$ des impulsions attosecondes. Nous allons maintenant identifier tous les phénomènes, autres que les couplages de l'impulsion attoseconde, pouvant diminuer le contraste des pics satellites, et faire des hypothèses de manière à pouvoir tous les négliger. Nous pourrons alors étudier le mécanisme exact de la perte de contraste due aux couplages.

5.2.1 Hypothèses sur les autres sources de perte de contraste

Les transitions à deux photons deux couleurs

En toute rigueur, les transitions à deux photons deux couleurs $(+)$ et $(-)$ ne sont pas équiprobables. Considérons deux harmoniques consécutives de même intensité, en l'absence de tout couplage sur l'impulsion attoseconde, et en considérant les propriétés de l'impulsion IR indépendantes de (x,y), l'intégration spatiale de l'équation précédente nous donne :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{S}_{2q}(x,y,\tau)\,dxdy \propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left(2\omega_{IR}(\tau - GD_{2q}) + 2\varphi_{IR} + \Delta\phi_{2q}^{at}\right) \tag{5.25}$$

Où C_{2q}vaut $\frac{2\left|M_{2q}^{(+)}\right|\left|M_{2q}^{(-)}\right|}{\left|M_{2q}^{(+)}\right|^2+\left|M_{2q}^{(-)}\right|^2}$.

On voit alors que le contraste C_{2q} du pic satellite ne vaut pas 100 % si les quantités $\left|M_{2q}^{(\pm)}\right|$ ne sont pas égales. Ces grandeurs peuvent varier en fonction de l'ordre du pic satellite et du gaz utilisé mais nous sup-

poserons qu'elles sont très proches. Par la suite, nous allons donc considérer les transitions systématiquement équiprobables et nous négligerons le faible déphasage $\Delta\phi_{2q}^{at}$.

L'impulsion IR d'habillage

Considérons une fois de plus que les deux harmoniques consécutives ont la même intensité et que l'impulsion attoseconde ne possède pas de couplage. Si nous ne faisons aucune hypothèse sur les propriétés spatiales de l'impulsion IR, le pic satellite mesuré s'écrit :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} i_{IR}(x,y) \cdot [1 + cos(2\omega_{IR}(\tau - GD_{2q}) + 2\varphi_{IR}(x,y))]\, dxdy \tag{5.26}$$

Cette équation prend donc la forme d'une somme de sinusoïdes déphasées les unes par rapport aux autres et pondérées par l'intensité infrarouge. Si le front d'onde de l'impulsion d'habillage varie significativement dans les zones où l'intensité spatiale IR est importante, une perte de contraste interviendra. Comme dans les simulations précédentes, nous allons maintenant considérer que l'impulsion XUV reste au centre du faisceau d'habillage, et voit une phase et une intensité infrarouge constantes. De plus, par la suite, nous choisirons que φ_{IR} vaut arbitraitrement zéro pour ne pas alourdir les équations.

L'integration de la mesure

Il est généralement nécessaire d'intégrer les spectres de photoélectrons sur un grand nombre de tirs pour obtenir un signal clair. Mais si les propriétés des impulsion IR et XUV varient légèrement tir à tir, une perte de contraste supplémentaire interviendra. Nous ne prendrons pas en compte ces phénomènes par la suite.

En négligeant tous ces phénomènes, nous nous plaçons dans une situation dans laquelle la seule source de perte de contraste possible sera la structure spatio-temporelle de l'impulsion attoseconde. Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution du contraste moyen $\langle C_{2q} \rangle$ en fonction des couplages.

5.2.2 L'équation CARROTS

En intégrant spatialement l'équation (5.24), on obtient l'expression suivante pour le profil du pic satellite mesuré :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} i_{2q+1}(x,y) + i_{2q-1}(x,y) + 2\sqrt{i_{2q+1} i_{2q-1}} \cdot cos\left[2\omega_{IR}(\tau - GD_{2q}(x,y))\right] dxdy \tag{5.27}$$

En négligeant la dépendance en z du champ attoseconde, ou encore l'influence spatiale du champ IR, nous avons fait les mêmes approximations pour établir cette équation que celles faites lors du calcul numérique des spectres de photoélectrons dans le paragraphe 5.1.2. Le profil des pics satellites prédit par cette équation

devrait donc formellement correspondre à ceux obtenus sur les Fig. 5.3 a) et 5.6 a) pour des délais τ autour de zéro.

De plus, les simulations numériques nous ont montré que même en présence de couplages sur le train d'impulsions attosecondes, les pics satellites continuaient d'osciller avec un contraste moindre. Nous allons donc faire l'hypothèse que l'équation (5.27) pourra s'écrire sous la forme d'une sinusoïde affectée d'un contraste C_{2q} :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{2q}^{mes}\right)\right] \tag{5.28}$$

Nous allons mettre à profit le formalisme développé au chapitre 4 pour trouver une expression pour le retard de groupe mesuré GD_{2q}^{mes}, et pour le contraste C_{2q} en présence de couplages. A l'issue des simulations numériques, nous avions défini un contraste moyen $\langle C_{2q}\rangle$ pour estimer la perte de contraste générale de la trace RABITT. Nous allons donc à nouveau nous intéresser à cette grandeur, que nous essaierons d'exprimer en fonction de la décomposition de la durée globale de l'impulsion attoseconde :

$$\langle C_{2q}\rangle = \frac{\sum_{2q} I_{2q} \cdot C_{2q}}{\sum_{2q} I_{2q}} = f\left(\Delta t_{TF_G}, \Delta GD_G, \tau_{AC}, \tau_{PC}\right) \tag{5.29}$$

Avec I_{2q} toujours égal à $\left(I_{2q-1} + I_{2q+1}\right)/2$.

Comme nous allons le voir, une telle écriture va s'avérer fort pratique, puisqu'elle nous permettra de relier directement l'étirement de l'impulsion du aux couplages et la perte de contraste induite sur la trace RABITT par ces même couplages. Par la suite, nous désignerons l'équation (5.29) par l'expression *Contrast Alteration on a RABITT trace Resulting in an Observable Temporo-spatial Stretch*, soit CARROTS en abrégé.

CARROTS en l'absence de couplage

Pour commencer, voyons la forme prise par le retard de groupe mesuré GD_{2q}^{mes} et par l'équation CARROTS en l'absence de tout couplage. Par définition, le spectre local $i_{2q\pm1}(x,y)$ pourra s'écrire comme le produit d'une fonction de l'espace $|g(x,y)|^2$ et d'une intensité harmonique $k_{2q\pm1}$, et le retard de groupe sera indépendant de (x,y). Dans ce cas, le spectre harmonique global $I_{2q\pm1}$ sera égal à $k_{2q\pm1} \cdot \iint |g(x,y)|^2 dxdy$, et l'équation (5.27) s'écrira :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto \left(k_{2q+1} + k_{2q-1} + 2\sqrt{k_{2q+1}k_{2q-1}} \cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{2q}\right)\right]\right) \cdot \iint_{-\infty}^{+\infty} |g(x,y)|^2 dxdy$$

$$\propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{2q}\right)\right] \tag{5.30}$$

Où le contraste C_{2q} prend la forme $2\sqrt{I_{2q+1}I_{2q-1}}/\left(I_{2q+1} + I_{2q-1}\right)$.

En l'absence de couplage, on retrouve donc un résultat intuitif. Le retard de groupe mesuré correspond au retard de groupe en tout point de l'impulsion, et le contraste C_{2q} est uniquement déterminé par l'écart en intensité des deux sources qui interfèrent, on parle alors de contraste cohérent. Un tel contraste vaudra 100 % si les deux harmoniques consécutives ont la même intensité.

Intéressons nous maintenant à l'équation CARROTS, soit à l'expression du contraste moyen $\langle C_{2q} \rangle$ en fonction des durées élémentaires de l'impulsion. Une fois n'est pas coutume, nous allons prendre le problème à l'envers et chercher à exprimer ces durées élémentaires en fonction de $\langle C_{2q} \rangle$. D'après l'équation (4.15) vue au chapitre 4, la durée en limite de Fourier globale Δt_{TF_G} est reliée au spectre global $S_G(\omega)$ par l'expression :

$$\Delta t_{TF_G}^2 = K^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\partial \sqrt{S_G(\omega)}}{\partial \omega} \right)^2 d\omega \tag{5.31}$$

Dans le cas d'un spectre harmonique, nous allons pouvoir faire l'approximation suivante :

$$\frac{\partial \sqrt{S_G}}{\partial \omega}_{2q} \approx \frac{\sqrt{I_{2q+1}} - \sqrt{I_{2q-1}}}{2\omega_{IR}} \tag{5.32}$$

En intégrant le carré de cette dérivée sur tous les ordres $2q$ des pics satellites, et en mettant la constante de normalisation K sous la forme $\sum_{2q} I_{2q}$, on obtient :

$$\begin{aligned} \Delta t_{TF_G}^2 = K^{-1} \textstyle\sum_{2q} \left(\frac{\sqrt{I_{2q+1}} - \sqrt{I_{2q-1}}}{2\omega_{IR}} \right)^2 &= K^{-1} \tfrac{1}{4\omega_{IR}^2} \cdot \textstyle\sum_{2q} \left(I_{2q+1} + I_{2q-1} - 2\sqrt{I_{2q+1} I_{2q-1}} \right) \\ &= \frac{1}{2\omega_{IR}^2} \cdot \left(\frac{\sum_{2q} \frac{I_{2q+1} + I_{2q-1}}{2}}{\sum_{2q} I_{2q}} - \frac{\sum_{2q} I_{2q} \frac{\sqrt{I_{2q-1} I_{2q+1}}}{I_{2q}}}{\sum_{2q} I_{2q}} \right) \end{aligned} \tag{5.33}$$

En remarquant que le premier terme entre parenthèses vaut 1 et que le rapport $\frac{\sqrt{I_{2q-1} I_{2q+1}}}{I_{2q}}$ dans le second terme correspond au contraste cohérent C_{2q} précédent, l'équation se simplifie :

$$\Delta t_{TF_G}^2 = \frac{1}{2\omega_{IR}^2} \left(1 - \frac{\sum_{2q} I_{2q} C_{2q}}{\sum_{2q} I_{2q}} \right) \tag{5.34}$$

Où l'on retrouve l'expression du contraste moyen $\langle C_{2q} \rangle$.

Cette expression nous sera plus utile sous sa forme inversée, ce qui donne l'équation CARROTS en l'absence de couplage :

$$\langle C_{2q} \rangle = 1 - 2\omega_{IR}^2 \Delta t_{TF_G}^2 \tag{5.35}$$

D'après l'équation CARROTS, en l'absence de couplage, le contraste moyen des pics satellites est directement relié à la durée RMS en limite de Fourier globale de chaque impulsion du train. En conséquence, le contraste moyen ne peut jamais être de 100%, Δt_{TF_G} n'étant jamais nul. En effet, le contraste cohérent d'un

pic satellite dépend uniquement de la variation relative d'intensité entre les deux harmoniques consécutives. En l'absence de couplage, le contraste moyen $\langle C_{2q} \rangle$ représente donc les variations moyennes de l'enveloppe du spectre harmonique, comme le montre la Fig. 5.9. Et ces variations moyennes ne sont jamais nulles puisqu'un spectre possède toujours une largeur finie, qui fixe sa durée en limite de Fourier.

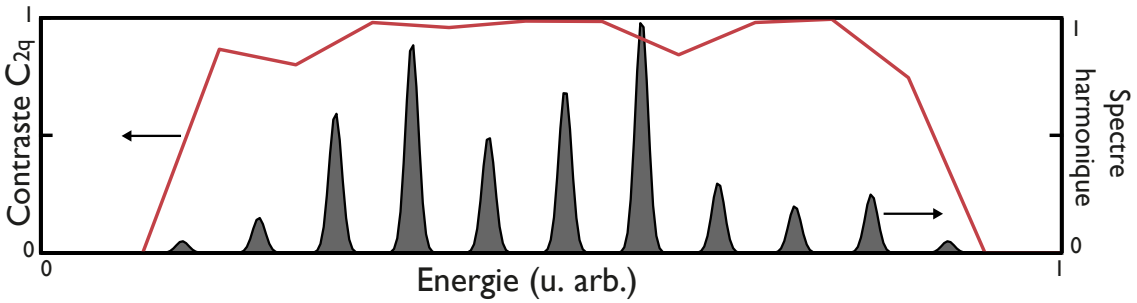


FIGURE 5.9 – **Evolution du contraste cohérent des pics satellites d'une trace RABITT.** Le contraste moyen des pics satellites d'une trace RABITT ne peut jamais être de 100 %. Cette limite provient de la forme de l'enveloppe du spectre qui varie nécessairement.

Prenons pour terminer un exemple numérique. Lors des simulations numériques précédentes, nous avions considéré un spectre initial, et donc un spectre global final, gaussien de largeur à mi-hauteur 21.3 eV. L'équation (4.26) vue au chapitre 4 donne une durée Δt_{TF_G} de 36 as. Dans le cas d'un champ IR d'habillage de longueur d'onde 800 nm, l'équation (5.35) prédit un contraste moyen suivant :

$$\langle C_{2q} \rangle = 98.6\% \tag{5.36}$$

Or au paragraphe 5.1.2, nous avions mesuré sur la trace RABITT en l'absence de couplage un contraste moyen de 98.4 %. Nous retrouvons un résultat très proche de celui prédit par l'équation CARROTS. Mais cette équation va devenir véritablement intéressante en présence de couplages.

CARROTS en présence de couplage en amplitude

Nous allons donc maintenant considérer que les impulsions du train mesuré par la technique RABITT possèdent un couplage en amplitude de forme arbitraire, mais pas de couplage en phase. On peut alors montrer, voir l'annexe B, que le profil $\mathcal{S}_{2q}^{mes}$ du pic satellite mesuré s'écrit toujours sous la forme suivante :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes} \propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{2q}\right)\right] \tag{5.37}$$

On voit alors que quelle que soit la force du couplage en amplitude, le retard de groupe mesuré GD_{2q}^{mes} reste le retard de groupe GD_{2q} effectivement présent en tout point de l'impulsion. **Un couplage en amplitude n'a donc pas d'influence sur le retard de groupe reconstruit**.

Nous allons donc plutôt nous intéresser au contraste moyen $\langle C_{2q} \rangle$. Il est alors possible d'écrire l'équation CARROTS sous la forme :

$$\langle C_{2q} \rangle = 1 - 2\omega_{IR}^2 \left(\Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2 \right) \tag{5.38}$$

La démonstration de cette équation est reportée dans l'annexe B. D'après l'équation (5.39), il est possible de relier l'étirement produit par un couplage en amplitude sur les impulsions du train avec le contraste moyen de la trace RABITT. Et en particulier, plus la durée du couplage en amplitude τ_{AC} sera importante, plus le contraste diminuera.

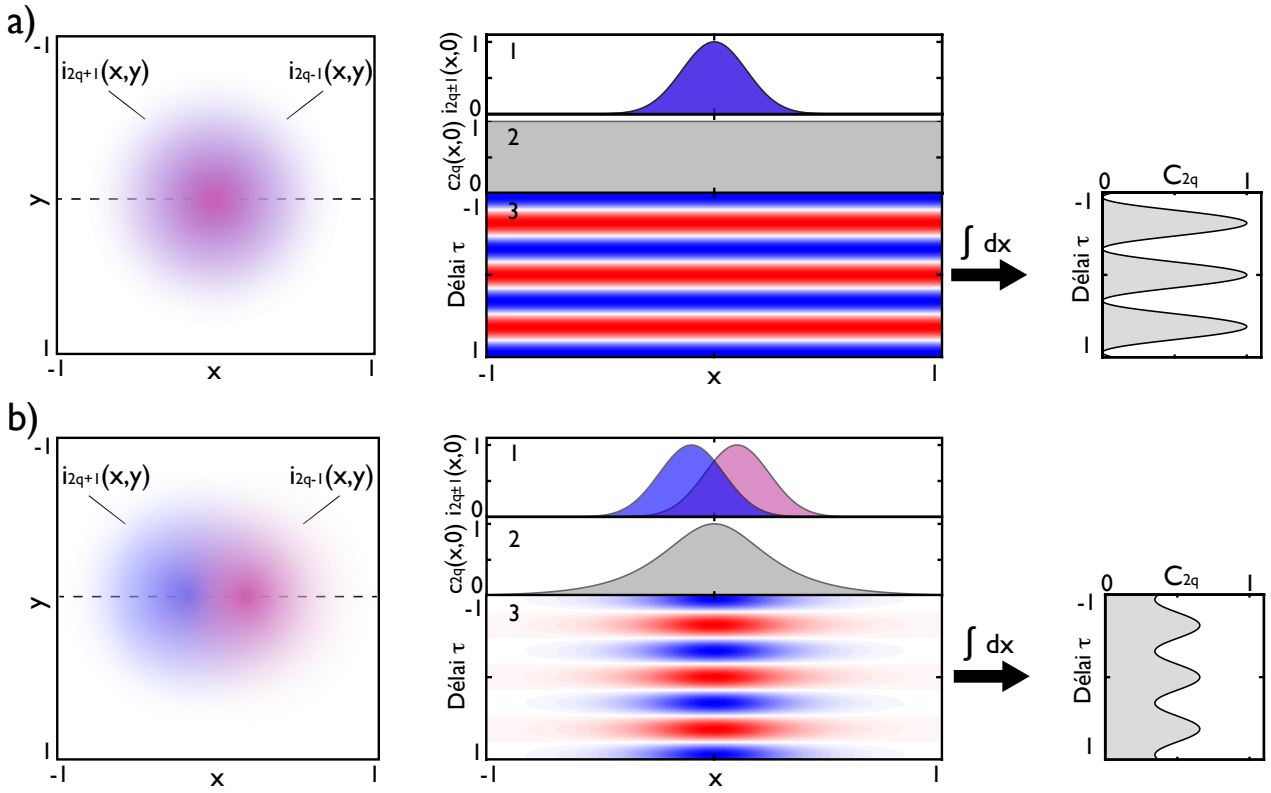


FIGURE 5.10 – **Perte de contraste des pics satellites d'une trace RABITT due à un couplage en amplitude.** Construction du profil du pic satellite mesuré (panneaux de droite) en l'absence (a) et en présence (b) de couplage en amplitude. Dans les deux cas, on trace les profils spatiaux $i_{2q\pm1}(x, y)$ des deux harmoniques consécutives (panneaux de gauche). On représente également (1) une coupe de ces profils $i_{2q\pm1}(x, 0)$, (2) le contraste cohérent $c_{2q}(x, 0)$ en chaque point, et (3) l'impact sur l'oscillation du pic satellite produit en chaque point. Tous les axes sont en unités arbitraires.

La Fig. 5.10 b) décrit l'origine de ce phénomène : imaginons que le recouvrement spatial entre deux harmoniques consécutives d'ordres $2q\pm1$ ne soit pas parfait. Dans la zone de recouvrement, les intensités locales des deux harmoniques resteront proches, et les photoélectrons émis depuis cette zone produiront un pic satellite d'ordre $2q$ bien contrasté. Mais hors de cette zone, une des harmoniques deviendra dominante, et localement

le contraste cohérent du pic satellite s'effondrera. Comme la trace RABITT finale intègre spatialement la contribution de tous les photoélectrons, le contraste final du pic satellite en sera dégradé. Une autre manière de voir les choses consiste à dire que les oscillations des pics satellites naissent de l'existence en un point donné des deux chemins quantiques (−) et (+), décrits par les équations (5.18) et (5.19) précédentes. Si les faisceaux harmoniques ne se recouvrent pas, un seul chemin quantique permet d'accéder au niveau d'énergie du pic satellite, les interférences quantiques n'ont pas lieu, et les pics satellites n'oscillent pas.

Prenons maintenant un exemple numérique pour illustrer les conséquences de l'équation (5.39). En particulier, on peut se demander quel sera l'étirement maximal de l'impulsion induit par le couplage en amplitude, et tel qu'une mesure RABITT reste possible. Cela revient à réécrire l'équation CARROTS en considérant que le contraste moyen vaut 0 :

$$\frac{1}{\sqrt{2}\cdot\omega_{IR}} = \sqrt{\Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2} \tag{5.39}$$

En considérant que ce phénomène se produira pour des valeurs de τ_{AC} bien supérieures à Δt_{TF_G}, nous pouvons négliger cette dernière quantité dans l'équation précédente. Nous obtenons alors l'expression de la durée du couplage en amplitude τ_{AC}^{max} détruisant le contraste moyen des pics satellites :

$$\tau_{AC}^{max} = \frac{T_{IR}}{\pi\sqrt{8}} \tag{5.40}$$

Dans cette équation, T_{IR} représente la période du champ électrique infrarouge d'habillage. En considérant que ce champ possède une longueur d'onde centrale de $800\,nm$, cette durée RMS vaut alors :

$$\tau_{AC}^{max} = 300\,as \tag{5.41}$$

Les impulsions attosecondes du train pourront être étirées de près de $300\,as$ par un couplage en amplitude avant que la trace RABITT ne devienne inexploitable. En particulier, dans les simulations numériques précédentes, l'impulsion sans couplage émise par la source attoseconde était gaussienne d'une durée RMS de $67\,as$, sa limite de Fourier étant de $36\,as$. L'ajout d'un couplage en amplitude d'une durée τ_{AC} de $300\,as$ se traduirait par une augmentation d'un facteur proche de 4.5 de la durée globale RMS. En supposant que la forme de l'impulsion globale resterait gaussienne malgré le couplage en amplitude, sa durée à mi-hauteur passerait de $157\,as$ initialement à $722\,as$. Entre ces deux situations, une mesure RABITT restera faisable.

L'origine de cette robustesse de la trace RABITT au couplage en amplitude apparait clairement dans l'équation CARROTS. La perte de contraste induite par le couplage dépend uniquement du rapport de la durée τ_{AC} avec la période du champ IR d'habillage. Comme cette dernière est nécessairement bien supérieure à la durée de l'impulsion attoseconde, le couplage en amplitude devra étirer fortement l'impulsion avant d'affecter significativement le contraste des pics satellites. Ajoutons enfin que l'évolution de la perte de contraste n'est pas linéaire avec l'étirement mais quadratique. De faibles étirements provoqueront donc une perte de contraste

totalement négligeable, alors que pour des valeurs de τ_{AC} proches de τ_{AC}^{max}, le contraste diminuera brutalement.

CARROTS en présence de couplage en phase

Pour terminer, établissons le profil du pic satellite mesuré $\mathcal{S}_{2q}^{mes}$ en présence d'un couplage en phase. Cette fois, le retard de groupe GD_{2q} dépendra donc de l'espace. En supposant que ce couplage en phase est décrit par une durée τ_{PC} faible devant la période infrarouge, nous pouvons établir l'équation suivante, voir l'annexe B :

$$\mathcal{S}_{2q} \propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right)\right] \tag{5.42}$$

Dans le régime d'un couplage en phase faible et en supposant que le contraste cohérent $\frac{2\sqrt{I_{2q-1}I_{2q+1}}}{I_{2q-1}+I_{2q+1}}$ garde des valeurs proches d'un pic satellite à l'autre, on peut établir une nouvelle expression pour l'équation CARROTS :

$$\langle C_{2q} \rangle = \left(1 - 2\omega_{IR}^2 \Delta t_{TF_G}^2\right) \cdot \left(1 - 2\omega_{IR}^2 \tau_{PC}^2\right) \tag{5.43}$$

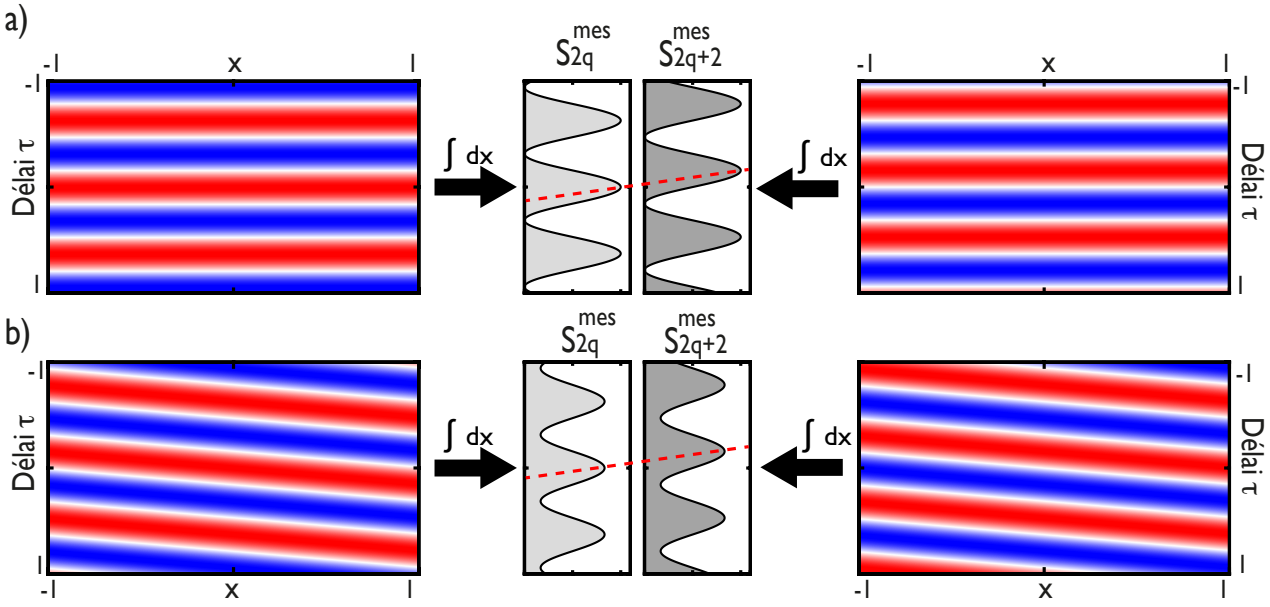


FIGURE 5.11 – **Perte de contraste des pics satellites due à un couplage en phase.** Construction de deux pics satellites mesurés consécutifs $\mathcal{S}_{2q}^{mes}$ et $\mathcal{S}_{2q+2}^{mes}$ (panneaux du centre) par intégration de pics satellites élémentaires produits en différents points de l'espace (panneaux latéraux), sans (a) et avec (b) un couplage en phase. Dans ce second cas, les oscillations des pics satellites mesurés sont moins contrastées, mais il reste possible de mesurer la synchronisation relatives de ces oscillations entre les différents pics satellites.

Comme dans le cas du couplage en amplitude précédent, l'équation CARROTS établit que tout couplage en phase diminuera le contraste moyen des pics satellites. Cependant, le mécanisme de cette perte de contraste n'est pas le même que dans le cas précédent.

Comme l'illustre la Fig.5.11, sans couplage en phase, GD_{2q} est indépendant de l'espace et tous les pics satellites élémentaires à un ordre $2q$ donné oscillent avec la même phase. L'intégration spatiale de la mesure aboutit donc à un pic satellite aux oscillations très contrastées. On peut alors appliquer le principe de la mesure RABITT et mesurer la synchronisation relative des oscillations des différents pics satellites pour mesurer GD_{2q}. Mais en présence d'un couplage en phase, GD_{2q} dépend de l'espace. Les pics satellites élémentaires produits en chaque point ont donc tous des phases légèrement différentes, mais qui varient autour d'une tendance moyenne, à savoir le retard de groupe global. L'intégration spatiale de la mesure produit des pics satellites dont le contraste a diminué. Mais il est toujours possible de mesurer la désynchronisation moyenne des pics satellites entre eux. Ceci explique donc le fait que le retard de groupe mesuré corresponde au retard de groupe global.

Terminons par une application numérique de cette nouvelle forme de l'équation CARROTS en reprenant l'impulsion initiale utilisée pour les simulations numériques. Puisque l'équation CARROTS a été établie en considérant que la durée du couplage en phase resterait faible devant la période du champ infrarouge, nous considérons une valeur de τ_{PC} de $100\,as$. Un tel étirement augmentera d'un facteur proche 2 la durée de l'impulsion initialement de $67\,as$. Cependant, le contraste moyen vaudra :

$$\langle C_{2q} \rangle = 87.6\,\% \tag{5.44}$$

Nous voyons donc qu'un étirement significatif de l'impulsion s'associe à une faible perte de contraste des pics satellites. Et une fois de plus, l'origine réside dans la période importante du champ IR d'habillage comparée aux durées des couplages.

5.2.3 Impulsion reconstruite par RABITT

L'équation CARROTS nous a confirmé que tout couplage produisait une perte de contraste des pics satellites. Mais il reste une dernière question en suspend. Nous avons constaté lors des simulations numériques que l'impulsion reconstruite par la technique RABITT était bien plus courte que l'impulsion globale. Tentons d'expliquer ce phénomène au regard de l'étude que nous venons de mener.

Comme nous l'avons vu avec l'équation (5.16), le spectre mesuré sur la trace RABITT correspond au spectre global. De plus, dans les deux situations précédentes d'un couplage en amplitude et d'un couplage en phase faible, nous avons vu que le retard de groupe mesuré sur la trace correspondait au retard de groupe global, voir les équations (5.37) et (5.42). L'impulsion temporelle $I_{mes}(t)$ reconstruite par la technique RABITT est donc l'impulsion dont le spectre et le retard de groupe sont respectivement le spectre global et le retard de groupe global. Cette impulsion porte un nom puisqu'il s'agit de l'impulsion découplée $I_{dec}(t)$ que nous avions défini au paragraphe 4.1.2 du chapitre 4 :

$$I_{mes}(t) = \left| TF\left[\sqrt{S_G} \cdot \exp\left(i \int_{-\infty}^{\omega} GD_G d\omega' \right) \right] \right|^2 = I_{dec}(t) \tag{5.45}$$

Or l'une des propriétés de cette impulsion, donnée par l'équation (4.19), est que sa durée est toujours inférieure ou égale à la durée globale. En effet, la durée Δt_{mes} de l'impulsion découplée et reconstruite par RABITT s'écrit :

$$\Delta t_{mes} = \sqrt{\Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2} \tag{5.46}$$

Mais la durée globale fait intervenir des durées supplémentaires :

$$\Delta t_G = \sqrt{\Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2 + \tau_{AC}^2 + \tau_{PC}^2} \tag{5.47}$$

Les durées des couplages ne jouent que sur le contraste de la trace RABITT, c'est le principe de l'équation CARROTS, mais ne sont jamais prises en compte dans l'impulsion reconstruite, qui est donc plus courte que l'impulsion globale en présence de couplages :

$$\Delta t_{mes} \leq \Delta t_G \tag{5.48}$$

En toute rigueur, cette conclusion n'est établie formellement que dans les cas particuliers précédents, à savoir soit la présence de couplage en amplitude, soit la présence d'un faible couplage en phase. Et nous n'avons pas pu établir une expression de l'équation CARROTS ou du retard de groupe mesuré pour une impulsion spatio-temporelle arbitrairement complexe.

Cependant, les simulations numériques que nous avons effectuées au début de ce chapitre ne nous plaçaient pas nécessairement dans ces régimes particuliers. En effet, en calculant numériquement la décomposition de la durée globale de $437\,as$, nous obtenons les durées suivantes :

$$\begin{aligned} \Delta t_{TF_G} &= 36\,as \qquad \tau_{AC} = 186\,as \\ \Delta GD_G &= 25\,as \qquad \tau_{PC} = 393\,as \end{aligned} \tag{5.49}$$

Il apparait alors que l'impulsion aberrante de la Fig. 5.5 a) est déformée à la fois par des couplages en amplitude et en phase, et qu'en plus, ce couplage en phase n'est plus vraiment perturbatif. Et malgré tout, les conclusions de notre étude analytique restent valides pour cette impulsion. Un fort étirement de l'impulsion du aux couplages, induit une faible perte de contraste, le contraste moyen obtenu numériquement étant toujours supérieur à 50 %, et l'impulsion reconstruite est plus courte que l'impulsion globale. On peut donc supposer que ces conclusions sont relativement générales.

5.3 Conséquences des couplages en régime de balayage

L'étude précédente a permis d'expliquer un grand nombre de phénomènes observés lors des simulations du paragraphe 5.1.2. Cependant, elle ne s'applique pas aux traces CRAB, et n'explique donc pas pourquoi la trace simulée en régime de balayage de la Fig. 5.7 a) reste peu influencée par les couplages de l'impulsion attoseconde. Pour tenter d'expliquer l'allure de cette trace de photoélectrons, nous allons effectuer une étude qualitative. Plus précisément, nous allons illustrer la manière dont interviennent les couplages en amplitude et en phase sur une trace en régime de balayage. Nous pourrons ainsi déterminer les zones de la trace sur lesquelles l'influence des deux types de couplages se fait sentir.

Influence d'un couplage en amplitude

Considérons l'impulsion aberrante au foyer paraxial utilisée pour les simulations numériques du paragraphe 5.1.2. La Fig. 5.12 montre les traces de photoélectrons générées en trois points de l'impulsion. Si leur forme générale reste la même, on peut remarquer l'apparition d'oscillations sur les traces, qui deviennent de plus en plus resserrées à mesure que les deux fronts d'impulsions s'écartent. Or nous avions constaté sur la Fig. 4.7 du chapitre 4 que le double front d'impulsion apparaissant en présence de coma était une forme de couplage en amplitude. Le spectre local de l'impulsion était alors modulé par des franges d'autant plus resserrées que les fronts étaient écartés. Comme le couplage en amplitude de l'impulsion attoseconde est transféré au paquet d'onde électronique durant la mesure, les traces de photoélectrons locales seront elles aussi modulées par ces franges.

Cependant, ces modulations n'apparaissent pas sur la trace intégrée spatialement. Essayons d'expliquer cela en considérant le cas des bords latéraux de la trace, c'est à dire des spectres de photoélectrons obtenus pour des retards τ très importants entre les impulsions XUV et IR. Dans ces conditions, les deux impulsions ne se recouvrent plus temporellement, et les spectres de photoélectrons produits ne dépendent plus de τ. Le spectre de photoélectrons $\mathcal{S}_0(W,x,y)$ généré en chaque point de l'impulsion correspondra donc au spectre local de l'impulsion. Une intégration spatiale ayant lieu lors de la mesure, le spectre de photoélectrons $\mathcal{S}^{mes}(W,\pm\infty)$ mesuré sur les bords de la trace sera donc le spectre global de l'impulsion.

$$\mathcal{S}^{mes}(W,\pm\infty) = \iint_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{S}_0(W,x,y)\,dxdy \propto S_G(\omega + I_p/\hbar) \tag{5.50}$$

Cette conclusion explique la disparition sur la trace des franges visibles sur les traces locales. De plus, le PCGPA utilisé dans la technique CRAB s'appuie sur ces spectres latéraux pour reconstruire le spectre de l'impulsion. Il est donc normal que les spectres reconstruits sur les Fig. 5.4 c) et 5.7 c) correspondent au spectre de l'impulsion initiale, puisque celui-ci est égal au spectre global de l'impulsion aberrante.

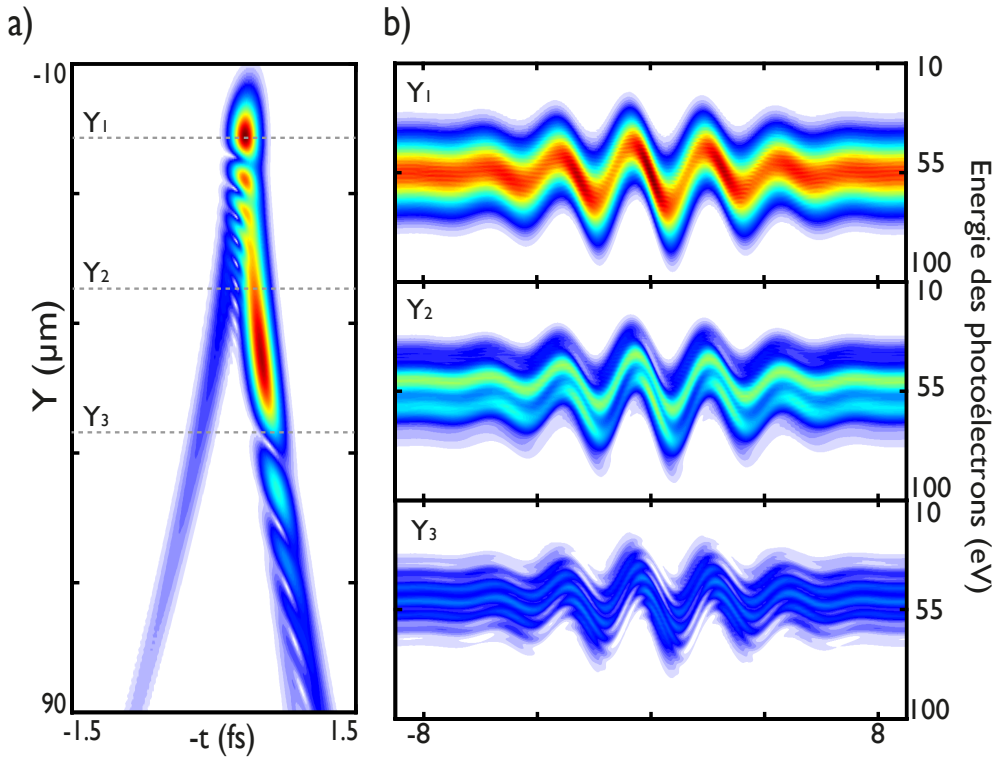


FIGURE 5.12 – **Effet du couplage en amplitude de l'impulsion aberrante sur les spectres de photoélectrons en régime de balayage.** a) Module du champ électrique de l'impulsion de la Fig. 5.5 dans le plan $x = 0\,\mu m$. b) Traces de photoélectrons générées par trois points de l'impulsion situés au niveau des pointillés. Le double front d'impulsion induit par la coma module le spectre local de l'impulsion et par conséquent le spectre de photoélectrons.

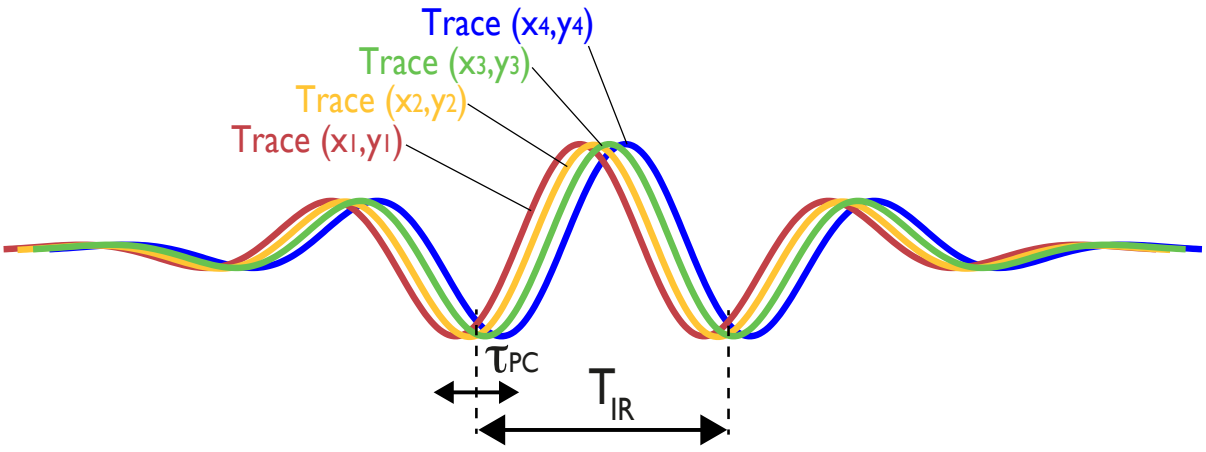


FIGURE 5.13 – **Effets d'un couplage en phase simple sur la trace de photoélectrons en régime de balayage.** Chaque oscillation colorée représente l'allure d'une trace de photoélectrons en régime de balayage généré par un point (x, y) de l'impulsion.

Influence d'un couplage en phase

Reprenons maintenant l'exemple du couplage en phase simple du paragraphe 5.1.1 dans lequel une impulsion subissait des retards locaux $\delta T(x,y)$. Le retard de groupe de l'impulsion s'écrit $GD(\omega) + \delta T(x,y)$ avec GD le retard de groupe de l'impulsion en l'absence de couplage. L'effet de ce couplage sur la mesure finale est de superposer des traces locales de photoélectrons ayant toute la même forme mais étant décalées selon l'axe τ :

$$\mathcal{S}^{mes}(W,\tau) = \iint |g|^2 \cdot \mathcal{S}^{sc}(W, \tau - \delta T(x,y))\, dxdy \tag{5.51}$$

Comme l'illustre la Fig. 5.13, tant que les retards $\delta T(x,y)$ restent faibles devant la période T_{IR} du champ d'habillage, la forme de la trace mesurée $\mathcal{S}^{mes}(W,\tau)$ est peu perturbée. De plus, en notant que GD_G vaut $GD + \langle \delta T \rangle_{(x,y)}$, on obtient immédiatement que la dispersion spatiale RMS de ces retards $\Delta_{(x,y)}\delta T$ correspond en fait à la durée τ_{PC}, et donc à l'étirement de l'impulsion :

$$\tau_{PC} = \sqrt{\left\langle (GD - GD_G)^2 \right\rangle_{(x,y,\omega)}} = \Delta_{(x,y)}\delta T \tag{5.52}$$

La trace de photoélectrons ne sera significativement affectée par le couplage en phase que si τ_{PC} est du même ordre de grandeur que la période du champ infrarouge :

$$\tau_{PC} << T_{IR} \Leftrightarrow \mathcal{S}^{mes}(W,\tau) \approx \mathcal{S}^{sc}(W,\tau) \tag{5.53}$$

Le faible impact des distorsions spatio-temporelles sur la trace CRAB de la Fig. 5.7 a) peut donc s'expliquer par la faiblesse des durées des couplages comparée à la période T_{IR}. Nous retrouvons ainsi la même explication que celle obtenue pour la technique RABITT. Cela n'est pas surprenant dans la mesure où les techniques RABITT et CRAB sont basées sur les mêmes phénomènes physiques, à savoir un processus de photoionisation induit par l'impulsion attoseconde en présence d'un champ IR d'habillage. Seule la manière d'extraire la phase spectrale de la mesure change d'une technique à l'autre.

5.4 Bilan

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés à la sensibilité des techniques de caractérisation d'impulsions attosecondes aux couplages spatio-temporels, induits par des composants optiques. Une analyse préliminaire nous a montré que ces distorsions spatio-temporelles provoquaient un brouillage des spectres de photoélectrons. Nous avons mené une série de simulations numériques du processus de caractérisation d'une impulsion aberrante. Ces dernières nous ont montré que le brouillage induit par les couplages restait faible même en présence de fortes distorsions spatio-temporelles, et que l'impulsion reconstruite dans ces conditions par les techniques RABITT et CRAB était plus courte que l'impulsion globale.

Pour comprendre l'origine de ces phénomènes, nous avons effectué une étude analytique du problème en utilisant le modèle développé au chapitre 4. Les conclusions de cette étude montrent que, sur une trace RABITT, les couplages influencent directement le contraste moyen des oscillations des pics satellites. Dans certains cas particuliers, il est possible d'établir une relation, que nous avons nommée équation CARROTS, entre ce contraste moyen et les durées des couplages. Cette relation fait apparaitre que les couplages n'auront un impact significatif que si leurs durées deviennent non négligeables devant la période du champ infrarouge d'habillage. Cette dernière étant de l'ordre de quelques femtosecondes, une impulsion attoseconde pourra subir des distorsions importantes avant que la trace RABITT ne soit totalement brouillée. L'étude analytique montre également que l'impulsion mesurée par la technique RABITT est reconstruite à partir du spectre global et du retard de groupe global. L'influence des couplages sur l'impulsion n'étant pas prise en compte, cette impulsion reconstruite possède une durée nécessairement plus faible que celle de l'impulsion globale.

Pour terminer, nous avons étudié la sensibilité aux couplages des spectres de photoélectrons en régime de balayage. Cette étude nous a montré que les spectres de photoélectrons latéraux représentaient toujours le spectre global de l'impulsion. Enfin, en considérant un exemple particulier de couplage en phase, nous avons établi que, comme dans le cas de la technique RABITT, la trace en régime de balayage resterait peu affectée par le couplage en phase de l'impulsion attoseconde tant que la durée du couplage serait faible devait la période du champ infrarouge.

Conclusion et perspectives

Avec seulement dix années d'existence, l'attoscience est encore jeune. Si des progrès considérables ont été effectués depuis la première génération d'une impulsion attoseconde en 2001, de nombreux défis restent à surmonter pour généraliser l'utilisation de ces impulsions. En particulier, les composants optiques attosecondes auront une importance cruciale dans le développement de ces sources dans les années à venir. A travers ce travail, nous nous sommes donc intéressés au rôle que pouvaient jouer de tels composants optiques sur une source d'impulsions attosecondes. Nous avons montré qu'ils pouvaient améliorer les propriétés du rayonnement, en effectuant par exemple une post-compression, mais également les dégrader, en ajoutant des aberrations géométriques. Après avoir récapitulé les résultats marquants de notre étude, nous proposerons un certain nombre de perspectives.

Conclusion

L'atto-chirp, c'est à dire la dérive de fréquence intrinsèque des impulsions attosecondes, est un phénomène limitant la durée de ces impulsions. Dans ce contexte, nous avons développé une première génération de miroirs multicouches attosecondes. Leurs performances furent optimisées sur la plage spectrale $35 - 55\,eV$ pour obtenir une dispersion des retards de groupe nul pour l'un d'entre eux et d'une valeur de $-4500\,as^2/rad$ et $-8500\,as^2/rad$ pour les deux autres, avec des réflectivités comprises entre 10 et 25 %. Nous avons fabriqué ces miroirs, puis nous avons caractérisé leur réflectivité sur la ligne de métrologie du synchrotron Elettra, et leur phase spectrale sur une source d'impulsions attosecondes du CEA Saclay. Les mesures ont révélé un très bon accord avec les performances simulées [Diveki Z. et al.]. En particulier, nous avons pu observer la première compression d'une impulsion attoseconde par un miroir multicouche chirpé [Bourassin-Bouchet C. et al., 2011a]. Enfin, nous avons montré que l'on pouvait ajouter de la dispersion du troisième ordre (TOD) sur les impulsions en combinant ces miroirs avec un filtre d'aluminium, et qu'il était possible fixer la valeur de cette TOD en modifiant l'angle d'incidence du faisceau attoseconde sur les miroirs.

Nous avons également conçu et fabriqué une seconde génération de miroirs multicouches, en cherchant cette fois à optimiser directement le profil temporel des impulsions attosecondes réfléchies. En combinant l'un de ces miroirs avec un filtre hybride très large bande, nous avons montré qu'il était théoriquement possible d'obtenir

des impulsions monocycles ayant des durées à mi-hauteur comprises entre $59\,as$ et $47\,as$. Ces durées théoriques sont inférieures à celles des plus courtes impulsions générées à ce jour. De plus, nous avons caractérisé sur le synchrotron Elettra la réflectivité et la phase spectrale de ces miroirs. En particulier, cette dernière a pu être mesurée de manière absolue par le biais de mesures de photocourants de surface. Ceci nous a permis d'obtenir, pour l'un de ces miroirs, une mesure du temps que passera l'impulsion dans la structure multicouche durant sa réflexion, ainsi qu'une estimation expérimentale du déphasage induit par le miroir sur la phase de l'enveloppe par rapport à la porteuse de l'impulsion attoseconde [Bourassin-Bouchet C. et al., b]. Ces résultats ont donc montré qu'il était possible d'utiliser des miroirs multicouches pour façonner directement le champ électrique d'une impulsion attoseconde.

Nous nous sommes également intéressé aux éléments optiques permettant de focaliser les impulsions attosecondes. Plus précisément, nous avons développé un code de simulation numérique nommé ROSA pour "*Reflective Optical Systems for Attopulses*". Ce code utilise un tracé de rayons pour connaître l'impact géométrique du composant optique sur l'impulsion, puis propage cette dernière jusqu'au foyer par un calcul prenant en compte les effets de la diffraction. Nous avons ainsi pu étudier l'évolution spatio-temporelle des impulsions attosecondes autour de la zone focale dans des conditions réalistes de focalisation par des miroirs de forme parabolique, sphérique, torique ou ellipsoïdale.

Ces simulations nous ont permis de souligner la très grande sensibilité des impulsions attosecondes aux aberrations géométriques des optiques [Bourassin-Bouchet C. et al., 2010]. En effet, une variation de quelques dizaines de nanomètres dans la longueur des chemins optiques est suffisante pour déformer le front d'une impulsion attoseconde. La forme de ces distorsions spatio-temporelles dépend des aberrations intervenant dans la configuration optique choisie. En particulier, nous avons montré que l'aberration de coma divisait une impulsion attoseconde en deux fronts distincts, produisant deux vagues d'arrivée du rayonnement attoseconde. Dans le cas d'un train d'impulsions attosecondes, si ces aberrations sont suffisamment fortes, alors des impulsions consécutives du train pourront se recouvrirent en certains points et produire des interférences spatiales. Enfin, nous avons montré que les aberrations géométriques dispersaient le rayonnement dans l'espace et dans le temps, et augmentaient de fait la durée des impulsions attosecondes focalisées. Nous avons ainsi illustré l'importance du choix et du réglage des optiques de focalisation sur une ligne attoseconde.

Pour compléter cette étude numérique des impulsions attosecondes, nous avons développé un modèle analytique permettant de décrire une impulsion spatio-temporelle de forme arbitraire [Bourassin-Bouchet C. et al., 2011b]. Plus particulièrement, nous avons montré qu'une telle impulsion voyait sa durée fixée par quatre phénomènes :

- la durée en limite de Fourier globale et notée Δt_{TF_G}, imposée par l'intégralité des composantes spectrales présentes dans l'impulsion,
- la durée du couplage en amplitude τ_{AC}, correspondant à l'étirement induit sur l'impulsion par des défauts dans le recouvrement spatial de ces composantes spectrales,

- la dispersion du retard de groupe global ΔGD_G, traduisant la synchronisation moyenne des composantes spectrales dans l'impulsion,
- la durée du couplage en phase τ_{PC}, représentant l'étirement du à l'écart à cette synchronisation moyenne à travers le faisceau.

Nous avons illustré ce modèle analytique et cette décomposition de la durée d'impulsion par divers exemples, dans le cas d'impulsions femtosecondes infrarouges et dans le cas d'impulsions attosecondes aberrantes.

Pour terminer, nous nous sommes intéressés au processus de caractérisation d'une impulsion attoseconde par les techniques actuelles en présence de distorsions spatio-temporelles. En nous appuyant sur les simulations numériques du code ROSA, nous avons montré que, même en présence de fortes distorsions spatio-temporelles de l'impulsion attoseconde, une caractérisation restait possible et conduisait à mesurer une impulsion plus courte que l'impulsion réelle [Bourassin-Bouchet C. et al., a]. Pour expliquer l'origine de ce phénomène, nous avons utilisé le modèle analytique précédent pour établir une équation que nous avons nommée CARROTS ("*Contrast Alteration on a RABITT trace Resulting in an Observable Temporo-spatial Stretch*"). Grâce à cette équation, nous avons montré que la robustesse du processus de caractérisation aux distorsions spatio-temporelles de l'impulsion provenait de l'utilisation d'un champ électrique infrarouge d'habillage de grande période comparée à la durée de l'impulsion attoseconde. Ce travail souligne donc la nécessité de développer des techniques permettant une caractérisation spatio-temporelle complète des impulsions attosecondes.

Perspectives

Les sources attosecondes évoluent en permanence, et il sera nécessaire que les composants optiques attosecondes et les moyens de les caractériser suivent ces évolutions. En particulier, la post-compression d'une impulsion attoseconde et sa caractérisation par les techniques RABITT ou CRAB ne peuvent prendre tout leur sens que si l'on peut s'assurer, dans le même temps, qu'aucun couplage ne viendra dégrader l'impulsion. Il sera donc également essentiel de pouvoir mesurer les couplages d'une impulsion attoseconde.

Miroirs attosecondes dans la fenêtre de l'eau

Une des perspectives des sources attosecondes dans les années à venir est l'élargissement des spectres harmoniques jusqu'à la fenêtre de l'eau. Cette bande spectrale correspond à la zone $280eV - 530eV$ ($2.34\,nm - 4.4\,nm$) et est délimitée par les seuils d'absorption du carbone et de l'oxygène. Elle fut nommée ainsi par les biologistes du fait de la faible absorption de l'eau et des composés organiques par rapport aux autres matériaux dans cette gamme spectrale. Obtenir des harmoniques jusqu'à ces énergies permettrait de générer des impulsions sous les $10\,as$ [Popmintchev T. et al., 2008, Chen M.-C. et al., 2010, Popmintchev T. et al., 2010] si l'atto-chirp était correctement compensé.

A l'occasion du stage dans notre équipe de Ryan Léon, étudiant américain de niveau *undergraduate* dans

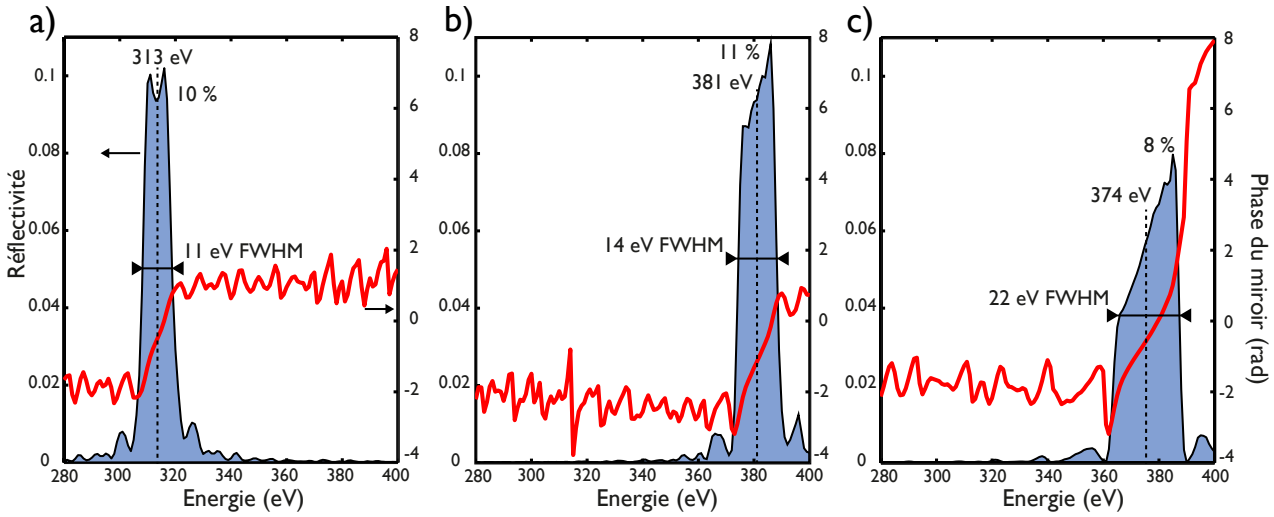


FIGURE 1 – **Trois exemples de miroirs multicouches pour la manipulation d'impulsions attosecondes dans la fenêtre de l'eau.** Dans les trois cas, la courbe colorée en bleue représente la réflectivité des miroirs, et la courbe rouge leur phase. La réflectivité maximale du miroir, l'énergie centrale et la largeur à mi-hauteur de la réfléctivité sont indiquées dans les trois cas.

le cadre du programme d'échange REU, nous avons démarré une étude sur le développement de miroirs multicouches large bande dans la fenêtre de l'eau. Comme nous l'avons vu lors de la comparaison entre les miroirs diélectriques pour les impulsions IR et les miroirs multicouches attosecondes, un saut d'une gamme spectrale à une autre s'accompagne aussi d'un changement des matériaux utilisés. Dans le cas de la fenêtre de l'eau, les matériaux assurant un meilleur contraste d'indice sont cette fois le scandium Sc et le platine Pt. Il n'est cependant pas plus aisé de réfléchir la lumière dans cette gamme spectrale et les réflectivités atteignables excèdent rarement la dizaine de pourcents, comme le montrent les exemples de miroirs présentés sur la Fig. 1. Ces miroirs optimisés pour une incidence de 45° ont des bandes passantes comprises entre la dizaine et la vingtaine d'électron-volts, tout en gardant une phase relativement linéaire. Ils permettraient donc le transport d'impulsions attosecondes, mais sans compensation possible de l'atto-chirp. De plus, à ces hautes énergies, le rayonnement peut pénétrer beaucoup plus profondément dans la matière avant d'être absorbé. En conséquence, ces miroirs sont composés de plus d'une centaine de couches au lieu d'une vingtaine pour les miroirs de seconde génération, et d'une dizaine pour ceux de première génération, qui avaient été développés pour des énergies beaucoup plus faibles. Il est également possible de décaler l'énergie centrale réfléchie par ces miroirs, voir la Fig. 1 (a-b). Il existe malgré tout une limite, puisque le scandium possède un seuil autour de $400\,eV$, rendant impossible l'optimisation de structures multicouches à base de Scandium au-dessus de cette énergie. Même s'il s'agit là de résultats préliminaires, ces exemples montrent que les miroirs attosecondes multicouches sont prêts à suivre l'évolution prochaine des sources attosecondes.

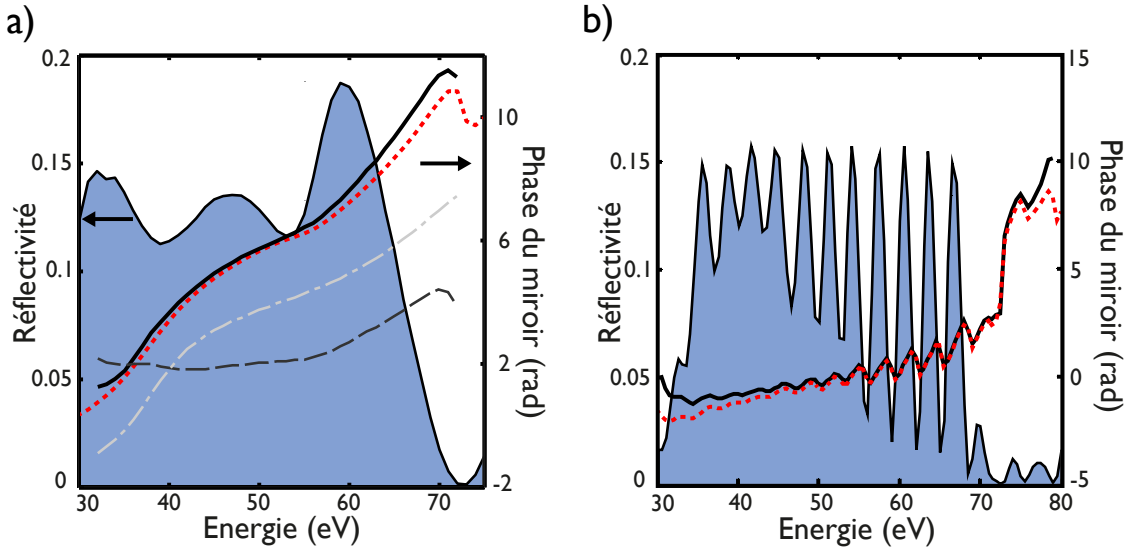


FIGURE 2 – **Reconstruction de la phase d'un miroir multicouche par mesure de réflectivité grâce aux relations de Kramers-Kronig** Pour a) et b), la courbe colorée en bleu représente la réflectivité du miroir, la ligne pointillée rouge correspond à la phase simulée du miroir, et la ligne continue noire représente la phase obtenue grâce à l'équation (1). a) Reconstruction de la phase de *matto* 13, la ligne en pointillés gris foncés (resp. en pointillés mixtes gris clairs) représente la phase reconstruite uniquement à partir du terme intégral de gauche dans l'équation (1) (resp. uniquement à partir du terme de droite du aux zéros complexes). b) Comparaison de la phase simulée de *matto* 8 (ligne noire continue) avec celle reconstruite à partir de la réflectivité simulée sur la bande $30 - 80\,eV$ et de l'équation (1).

Mesure de la phase de miroirs par les relations de Kramers-Kronig

Une seconde perspective développée lors du stage d'Alexander Anderson dans l'équipe, également dans le cadre du programme d'échange REU, consisterait à parvenir à mesurer la phase d'un miroir multicouche simplement à partir de la connaissance de sa réflectivité. Parmi les divers miroirs optimisés jusqu'à présent, on a pu en effet remarquer que, dans chaque cas, la phase n'était jamais indépendante de la réflectivité. La Fig. 1 illustre parfaitement cette constatation, la phase devenant linéaire uniquement au niveau du pic de réflectivité. Ce phénomène est une conséquence directe des relations de Kramers-Kronig. Ces équations relient en effet les parties réelle et imaginaire de certaines fonctions à variable complexe. Et il est possible de montrer que la réflectivité complexe $r_{mir}(\omega)$ d'un miroir entre dans cette catégorie de fonctions, si l'on considère la fréquence angulaire ω comme une variable complexe $\omega_1 + i\omega_2$. Pour retrouver la réflectivité complexe habituelle, il suffit alors de considérer cette "réflectivité complexe étendue" $r_{mir}(\omega_1 + i\omega_2)$ en fonction de la partie réelle de ω uniquement. L'astuce finale consiste alors à appliquer les relations de Kramers-Kronig non pas à $r_{mir}(\omega_1 + i\omega_2)$ mais à son logarithme $ln(r_{mir})$. En effet, procéder ainsi permet d'obtenir une fonction de partie réelle $1/2 \cdot ln(R_{mir})$ et de partie imaginaire φ_{mir}. Les relations de Kramers-Kronig prédisent alors que ces deux quantités seront liées par l'équation suivante [Grosse P. and Offermann V., 1991] :

$$\varphi_{mir}(\omega) = \frac{-\omega}{\pi}\mathcal{P}\int_0^{+\infty} \frac{ln\left(R_{mir}(\omega')\right)d\omega'}{\omega'^2-\omega^2} + 2\cdot\sum_{k=1}^{n}\arctan\left(\frac{\omega-a_k}{b_k}\right) \quad (1)$$

Où $\mathcal{P}$ représente la valeur principale de Cauchy.

D'après l'équation (1), connaître la réflectivité R_{mir} permet de déduire la phase du miroir φ_{mir}. Cette équation, en apparence prometteuse, s'avère dans la pratique très délicate à utiliser. En effet, le terme de droite de l'équation (1) représente l'influence sur la phase φ_{mir} des "zéros complexes", c'est à dire des fréquences complexes $a_k + ib_k$ à partie imaginaire positive ($b_k > 0$) et telles que $r_{mir}(a_k + ib_k)$ valent zéro. Chaque zéro complexe ajoute sur φ_{mir} un saut de phase π du fait la fonction arctan. Pour prendre un exemple concret, nous avions constaté que chaque annulation de la réflectivité R_{mir} s'accompagnait d'un saut de phase, comme on peut le voir sur les Fig. 2.8 et 2.20 par exemple. Nous savons maintenant qu'il s'agit d'une conséquence de la présence d'un zéro complexe à cette énergie. Cependant, tous les zéros complexes ne sont pas aussi simples à mesurer, et dans la plupart des cas, il est même impossible de déduire leur présence à partir de la connaissance de la seule réflectivité R_{mir}. Et ceci constitue une limite majeure à l'utilisation des relations de Kramers-Kronig puisqu'on ne peut pas rigoureusement déterminer φ_{mir} sans connaître tous les zéros complexes. Pour illustrer l'importance des zéros complexes dans la reconstruction de la phase, nous avons tenté de reconstruire la phase de *matto* 13 en utilisant les relations de Kramers-Kronig. On trace en pointillés gris foncés sur la Fig. 2 a) la phase reconstruite à partir du terme intégral à gauche de l'équation (1), c'est à dire celui dépendant de R_{mir}. La forme de la phase de *matto* 13 n'est pas du tout respectée, la phase obtenue semblant avoir une GDD positive alors que *matto* 13 possède une GDD fortement négative entre $35\,eV$ et $55\,eV$. Par contre, si l'on simule la phase reconstruite en prenant uniquement en compte le terme de droite de l'équation (1), c'est à dire celui dépendant de la position des zéros complexes, on obtient une phase de forme très proche de la phase réelle de *matto* 13. La majeure partie de l'information sur la phase est donc contenue dans les zéros complexes plus que dans la réflectivité.

Enfin, en admettant que les zéros complexes soient accessibles à la mesure, il existe une dernière limite à l'utilisation des relations de Kramers-Kronig. En effet, le terme de gauche de l'équation (1) stipule que l'influence de la réflectivité doit être intégrée de $0\,eV$ à l'infini. Cette condition ne pouvant bien entendue jamais être remplie, une solution consiste à extrapoler intelligemment la réflectivité [Grosse P. and Offermann V., 1991] pour les plus hautes et les plus basses énergies. Ceci a néanmoins un impact sur la phase reconstruite comme le montre la Fig. 2 b). Sur cet exemple, la phase de *matto* 8 a été reconstruite à partir de la réfléctivité simulée du miroir sur la plage $30-80\,eV$ et extrapolée pour les autres énergies. Les zéros complexes sont pris en compte dans le calcul de sorte que les différences entre la phase simulée et la phase reconstruite ne peuvent provenir que de l'effet de l'extrapolation de la réflectivité. On voit sur la Fig. 2 b) que la phase reconstruite tend à s'écarter de la phase simulée autour de $30\,eV$ et $80\,eV$, l'erreur sur la phase étant non négligeable sur une plage d'une dizaine d'électron-volts autour du bord. L'extrapolation produit un effet de bord aux limites de la plage sur laquelle la réflectivité est connue.

Toutes ces limites rendent l'utilisation des relations de Kramers-Kronig incertaine dans l'immédiat. Cependant, il existe quelques pistes pour surmonter ces problèmes. Concernant les zéros complexes, nous avons vu que la mesure de réflectivité seule ne permettait pas de déterminer leurs positions. Des informations supplémentaires sur la structure multicouche étant nécessaire, on pourrait imaginer mesurer également la transmission de l'empilement [Grosse P. and Offermann V., 1991]. Une autre manière de faire serait de coupler les relations de Kramers-Kronig aux mesures de photocourants. Ces dernières étant capable de reconstruire la phase très précisément sur certaines plages spectrales, les relations de Kramers-Kronig pourraient permettre de reconstruire la phase sur les gammes spectrales manquantes ou d'améliorer la précision sur la phase sur les plages déjà mesurées. Enfin, nous avons vu lors de la caractérisation des miroirs de seconde génération qu'il était possible de mesurer la réflectivité d'un miroir sur des plages spectrales de près de $120\,eV$. En conséquence, les effets de bord sur la phase dus à l'extrapolation de la réflectivité peuvent devenir négligeables sur la majeure partie de la plage spectrale de mesure.

Vers une caractérisation et un façonnage spatio-temporels

L'autre perspective principale de ce travail de recherche réside dans la caractérisation et l'utilisation des couplages spatio-temporels d'une impulsion attoseconde. Les techniques RABITT et CRAB sont très puissantes pour caractériser le profil temporel d'une impulsion attoseconde sans couplage. Mais pour accéder à la structure spatiale de l'impulsion, il faudra développer de nouvelles techniques. Une telle caractérisation ouvrira la voie à des méthodes de façonnage spatio-temporel d'impulsions attosecondes comme il en existe dans le régime femtoseconde [Vaughan J. C. et al., 2002, Hornung T. et al., 2004, Katz O. et al., 2011, McCabe D. J. et al., 2011].

Mesures des couplages sur une impulsion attoseconde

Pour caractériser spatio-temporellement une impulsion dans le domaine attoseconde, la première idée serait de chercher à transposer les méthodes actuellement développées dans le domaine femtoseconde [Dorrer C. et al., 2002, Gabolde P. and Trebino R., 2006, Bowlan P. et al., 2008a, Alonso B. et al., 2010]. Mais ces techniques sont souvent basées sur des composants optiques n'ayant pas d'équivalent dans le domaine XUV. C'est pourquoi, au lieu de chercher à caractériser l'impulsion attoseconde complète, il sera sans doute plus simple, dans un premier temps, de ne chercher à mesurer que les couplages d'une impulsion attoseconde.

Le point de départ le plus simple est celui de la mesure du spectre local, et donc de Δt_{TF_G} et de τ_{AC}. Ceux-ci peuvent être obtenus à l'aide d'un spectromètre possédant une résolution spatiale [Gu X. et al., 2004]. La forme du couplage en phase et τ_{PC} peuvent être obtenus avec un simple analyseur de front d'onde. Ce type d'appareil mesure la forme de fronts d'onde monochromatiques mais ne peut pas remonter à la relation de phase entre ces fronts d'onde, c'est à dire à la phase spectrale. En effet, le front d'onde mesuré $\varphi_{xp}(x, y, \omega')$ à une fréquence ω' peut être vu comme un front d'onde centré $\varphi(x, y, \omega') - \langle\varphi\rangle_{(x,y)}(\omega')$ ne contenant aucune information

sur la phase spectrale. En revenant à l'expression τ_{PC}, on voit clairement que le phénomène de couplage en phase ne dépend que de ces fronts d'onde centrés. On peut alors très bien imaginer remonter à la répartition du couplage en phase en réalisant des mesures de fronts d'onde résolues spectralement. Cette approche a d'ailleurs été implémentée récemment pour caractériser les couplages d'une source harmonique [Frumker E. et al., 2009].

$$\tau_{PC} = \left\langle \left(GD - \langle GD \rangle_{(x,y)} \right)^2 \right\rangle_{(x,y,\omega)}^{1/2} = \left\langle \left(\frac{\partial \varphi_{xp}}{\partial \omega} \right)^2 \right\rangle_{(x,y,\omega)}^{1/2} \tag{2}$$

Mais il existe un autre moyen d'accéder aux couplages spatio-temporels d'une impulsion sans mesure de phase spectrale [Dorrer C. and Walmsley I. A., 2002]. Cette solution utilise deux répliques de l'impulsion décalées spatialement et déphasées que l'on envoie dans un spectromètre ayant une résolution spatiale. En procédant ainsi, on obtient le spectre local ainsi que les variations spatiales de la phase spectrale. En terme de durées élémentaires, on accède ainsi à Δt_{TF_G}, τ_{AC} and τ_{PC}. Et des efforts récents ont été fait pour transposer cette technique aux impulsions attosecondes [**?**Austin D. R. et al., 2011].

Dès que les couplages spatio-temporels sont accessibles à la mesure, il devient possible de les utiliser à notre avantage au lieu de les subir. Cela s'apparente alors à du façonnage spatio-temporel.

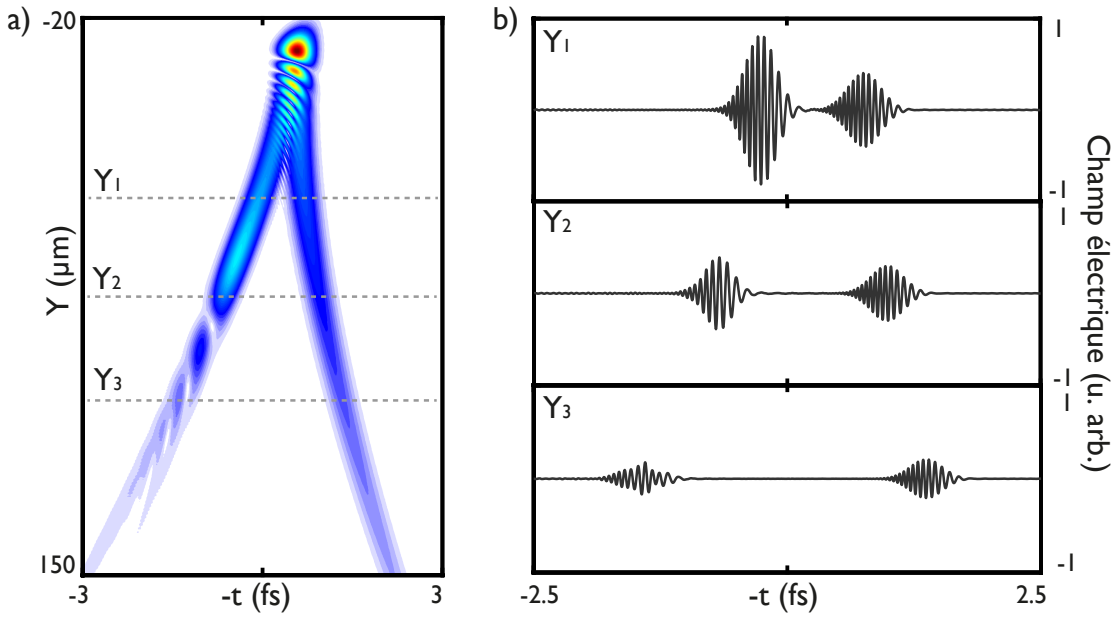


FIGURE 3 – **Exemple d'une expérience pompe-sonde attoseconde monocoup utilisant le double front d'impulsion créé par la coma.** a) Impulsion attoseconde en présence de coma tirée de la Fig. 3.21 b). b) Evolution du champ électrique attoseconde au niveau des traits pointillés de la coupe en a). Analyser la réponse du milieu en différents points de la tache focale revient à l'étudier pour différents délais entre les deux impulsions.

Expérience pompe-sonde monocoup

Beaucoup de concepts intéressants de façonnage spatio-temporel reposent simplement sur l'idée d'un multiplexage spatial des propriétés temporelles de l'impulsion : si l'on est capable de façonner une impulsion dont les propriétés temporelles sont différentes en chaque point de l'espace, il est possible de réaliser en une seule impulsion ce qui en demandait plusieurs en l'absence de couplage.

Illustrons ce concept dans le cas d'une expérience pompe-sonde. Dans ce type d'expérience, une première impulsion dite de pompe interagit avec une cible. Une seconde impulsion est envoyée pour sonder la réponse du milieu après le passage de la première impulsion. En répétant l'opération pour différents retards entre les deux impulsions, on peut par exemple remonter au temps mis par le milieu pour se relaxer. Imaginons maintenant que l'on envoie sur la cible une impulsion spatio-temporelle composée de deux fronts s'écartant progressivement l'un de l'autre, comme dans le cas d'une impulsion déformée par de la coma. Si l'interaction de l'impulsion avec la cible peut être résolue spatialement, alors il est possible de mesurer en un tir la réponse du milieu pour différents retards entre les deux fronts de l'impulsion.

Dans le domaine attoseconde, nous pourrions imaginer réaliser des expériences de type pompe-sonde monocoup en réglant volontairement l'optique de focalisation dans une conjugaison comportant de la coma, comme l'illustre la Fig. 3, et en résolvant spatialement la réponse du milieu. De plus, la répartition du flux entre les deux fronts de l'impulsion pourrait être ajustée en modifiant la répartition du flux à la surface du miroir focalisant. Enfin, l'aspect monocoup pourra avoir des avantages lorsque la source attoseconde ne possède pas une grande cadence.

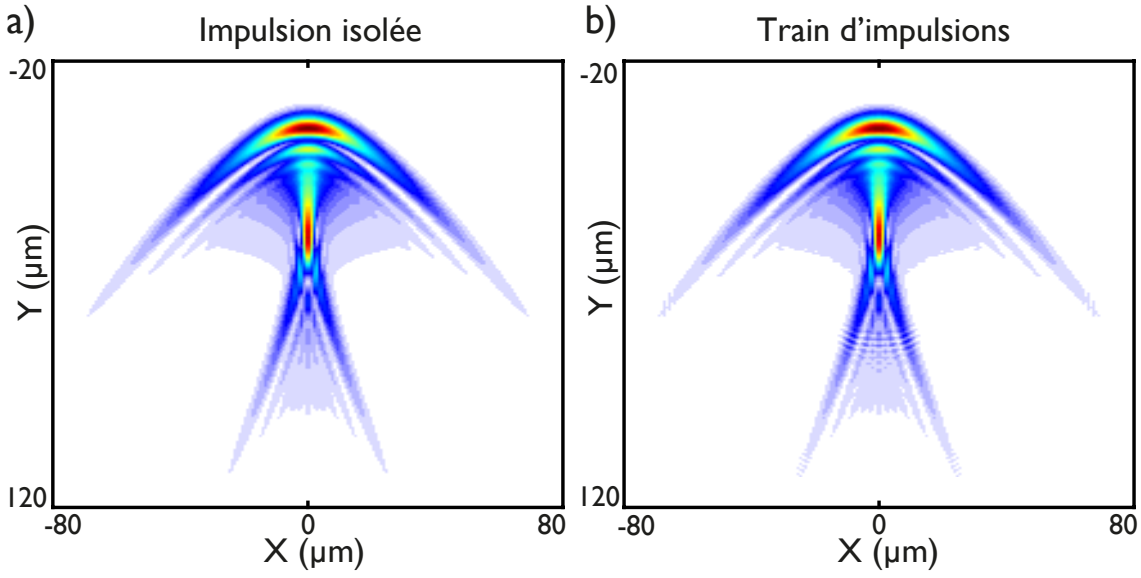


FIGURE 4 – **Taches focales générées par une impulsion isolée et un train d'impulsions en présence de coma.** a) Tache focale créée au foyer paraxial par l'impulsion de la Fig. 5.5 b). b) Tache focale obtenue dans les mêmes conditions qu'en a) mais dans le cas du train d'impulsions de la Fig. 5.5 c). Le recouvrement d'impulsions consécutives du train à cause de la coma crée des franges spatiales dans le bas de l'aigrette.

Interférences entre impulsions du train

Restons dans les applications possibles du double front d'impulsion créé par la coma. Lors du processus de génération d'une impulsion attoseconde isolée, un léger changement des conditions de génération, telles que la CEP de l'impulsion infrarouge, peut aboutir à la génération de deux impulsions ou même d'un train d'impulsions au lieu d'une seule impulsion. Imaginons que l'on procède à une imagerie de la tache focale en présence de coma, à l'aide d'une caméra CCD ou de techniques alternatives [Valentin C. et al., 2003]. Si des franges sont présentes sur la tache focale, comme dans le cas la Fig. 4 b), alors on pourra en déduire que plus d'une impulsion attoseconde ont été générées.

En effet, le double front d'impulsion créé par la coma va faire se superposer des impulsions consécutives du train, qui interféreront spatialement. De plus, comme nous l'avons vu au chapitre 3, si seulement deux impulsions sont créées, les fronts des impulsions ne se croiseront qu'une fois, et un seul système de franges apparaitra sur la tache focale. Si trois impulsions successives sont générées, un nouveau système de franges provenant de l'interférence entre la première et la troisième impulsion viendra se former sur la tache focale sous les premières franges. Dans le cas général, si la coma est assez forte pour faire interférer toutes les impulsions du train entre elles, et si tous les systèmes de franges ainsi produits peuvent être résolus par le système d'imagerie, alors leur nombre N indiquera que $N + 1$ impulsions sont présentes dans le train. Cependant, ces franges ne sont dues qu'à la forme du spectre généré qui devient harmonique lorsque plusieurs impulsions sont émises. Cette technique ne donne donc aucune information sur la phase spectrale des impulsions générées, qui peut être aussi bien nulle qu'aléatoire.

Impulsion "gauffre"

Considérons un dernier exemple de façonnage spatio-temporel basé sur l'utilisation du *chirp* spatial. En dispersant spatialement les composantes spectrales d'une impulsion, le *chirp* spatial transfère la forme du spectre de l'impulsion dans son profil spatial, comme le montre la Fig. 5 (a-b). Dans le cas d'un train d'impulsions attosecondes, on s'attend à ce que l'ajout d'un *chirp* spatial produise une impulsion ayant un profil spatial de la forme du spectre harmonique. De plus, si le *chirp* spatial est suffisamment fort, les harmoniques ne se recouvriront plus spatialement et le train d'impulsions attosecondes disparaitra. Mais il existe un régime intermédiaire durant lequel le train d'impulsions existe toujours et les harmoniques ne sont pas encore totalement séparées spatialement. Et dans ce cas, le train d'impulsions prend la forme d'un damier ou d'une gauffre. L'insert de la Fig. 5 (d) confirme que cette impulsion se crée lorsque les différentes harmoniques se recouvrent encore partiellement spatialement. Mais malgré des efforts intenses, nous n'avons trouvé aucune utilité directe à une telle impulsion. Il reste la beauté du phénomène.

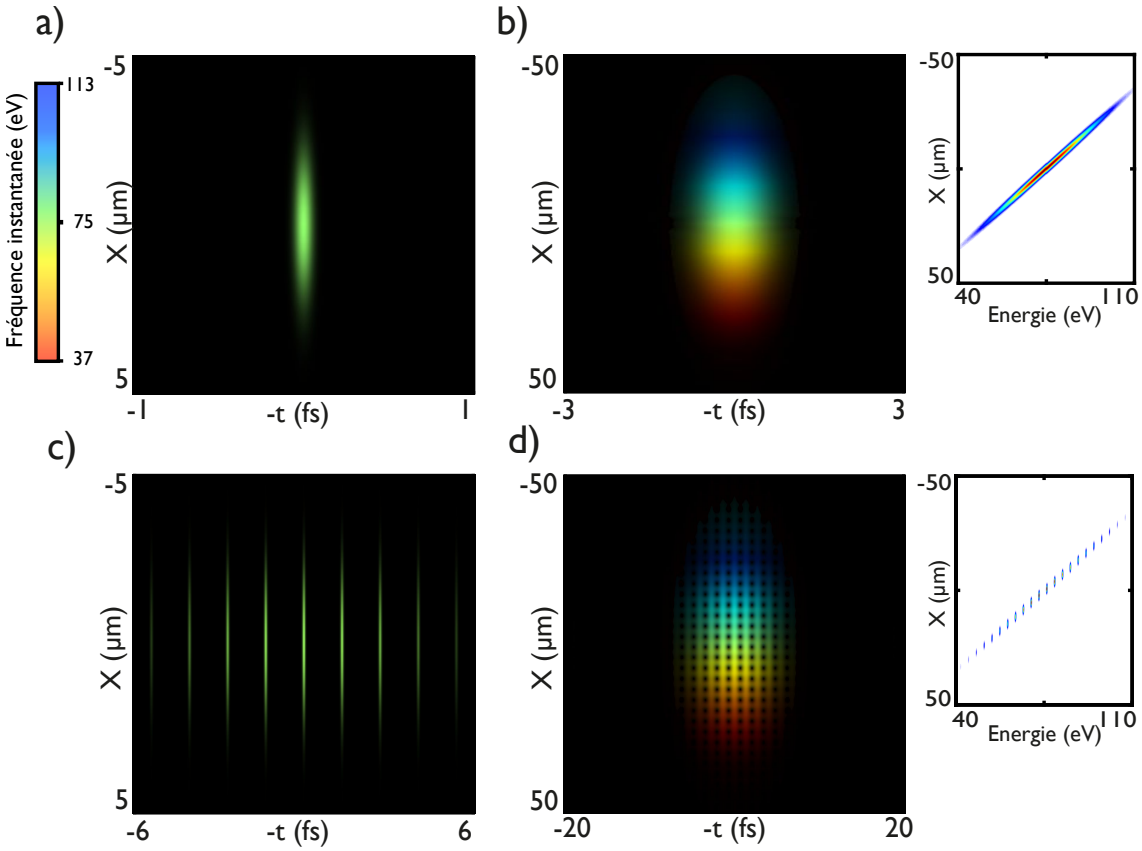


FIGURE 5 – **Façonnage d'une impulsion en forme de "gauffre" par ajout de *chirp* spatial sur un train d'impulsions attosecondes.** Impulsion attoseconde en limite de Fourier globale (a) à laquelle on ajoute du *chirp* spatial (b). Insert : spectre local de l'impulsion en b). Train d'impulsions attosecondes en limite de Fourier globale (c), l'ajout de *chirp* spatial provoque la création d'une impulsion "gauffre" (d). Insert : spectre local de l'impulsion "gauffre".

Annexe A

Démonstration de la décomposition de la durée globale

Considérons la durée RMS Δt_G de l'impulsion spatialement intégrée appelée impulsion globale $I_G(t)$:

$$\Delta t_G^2 = \langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2 = K^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, t^2 dt - \left(K^{-1} \int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, t dt \right)^2 \tag{A.1}$$

où K représente une constante de normalisation égale à $\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t)\, dt$.

A.0.1 Calcul de $\langle t \rangle^2$

Pour pouvoir développer l'équation (A.1), il nous faut d'abord calculer le terme $\langle t \rangle^2$, ce qui donne l'équation (A.2) :

$$\langle t \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t) t dt}{\int_{-\infty}^{+\infty} I_G(t) dt} = K^{-1} \iint\int_{-\infty}^{+\infty} |E(x,y,t)|^2\, t dt dx dy$$

$$= K^{-1} \iiint_{-\infty}^{+\infty} E^*(x,y,t) \cdot E(x,y,t)\, t \cdot dt dx dy \tag{A.2}$$

où $E^*(x,y,t)$ correspond au complexe conjugué de $E(x,y,t)$. En utilisant le théorème de Parseval, on obtient l'équation (A.3) :

$$\langle t \rangle = -iK^{-1} \iiint_{-\infty}^{+\infty} \widetilde{E}^*(x,y,\omega)\, \frac{\partial \widetilde{E}(x,y,\omega)}{\partial \omega} dx dy d\omega \tag{A.3}$$

où $\widetilde{E}(x,y,\omega)$ représente la transformée de Fourier de $E(x,y,t)$ et est égal à $\left|\widetilde{E}(x,y,\omega)\right| \exp(i\varphi(x,y,\omega))$.

Pour simplifier l'écriture des équations, $\left|\widetilde{E}\left(x,y,\omega\right)\right|$ (resp. $\varphi\left(x,y,\omega\right)$) deviendra par la suite $\left|\widetilde{E}\right|$ (resp. φ). De plus, $\langle t\rangle$ étant une quantité réelle, on obtient l'équation (A.4) :

$$\begin{aligned}\langle t\rangle &= -iK^{-1}\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|\exp\left(-i\varphi\right)\left[\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}+i\left|\widetilde{E}\right|\frac{\partial\varphi}{\partial\omega}\right]\exp\left(i\varphi\right)dxdyd\omega\\ &= 0+K^{-1}\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|^{2}\frac{\partial\varphi}{\partial\omega}dxdyd\omega\end{aligned}\tag{A.4}$$

En remarquant que K est égal à $\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|^{2}d\omega dxdy$, on obtient l'équation (A.5) :

$$\langle t\rangle=\frac{\iint_{-\infty}^{+\infty}\left(\int_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|^{2}d\omega\right)\langle GD\rangle_{(\omega)}\,dxdy}{\iint_{-\infty}^{+\infty}\left(\int_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|^{2}d\omega\right)dxdy}=\left\langle\langle GD\rangle_{(\omega)}\right\rangle_{(x,y)}=\langle GD\rangle_{(x,y,\omega)}\tag{A.5}$$

Enfin, on peut décomposer $\langle t\rangle^{2}$ sous la forme donnée par l'équation (A.6) :

$$\begin{aligned}\langle t\rangle^{2}=\langle GD\rangle_{(x,y,\omega)}^{2}&=\left\langle\langle GD\rangle_{(x,y)}\right\rangle_{(\omega)}^{2}+\left\langle\langle GD\rangle_{(x,y)}^{2}\right\rangle_{(\omega)}-\left\langle\langle GD\rangle_{(x,y)}^{2}\right\rangle_{(\omega)}\\ &=\left\langle\langle GD\rangle_{(x,y)}^{2}\right\rangle_{(\omega)}-\Delta GD_{G}^{2}\end{aligned}\tag{A.6}$$

A.0.2 Calcul de $\langle t^{2}\rangle$

Il nous reste à calculer $\left\langle t^{2}\right\rangle$. L'utilisation du théorème de Parseval donne l'équation (A.7) :

$$\begin{aligned}\left\langle t^{2}\right\rangle &= K^{-1}\int_{-\infty}^{+\infty}I_{G}\left(t\right)t^{2}dt=K^{-1}\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left[\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^{2}+\left|\widetilde{E}\right|^{2}\left(\frac{\partial\varphi}{\partial\omega}\right)^{2}\right]dxdyd\omega\\ &= K^{-1}\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^{2}dxdyd\omega+\left\langle GD^{2}\right\rangle_{(x,y,\omega)}\end{aligned}\tag{A.7}$$

En s'appuyant sur la définition du spectre global $S_{G}\left(\omega\right)$, voir l'équation (4.8), on peut établir l'équation (A.8) :

$$\begin{aligned}\left(\frac{\partial\left(S_{G}(\omega)\right)^{1/2}}{\partial\omega}\right)^{2}=\frac{1}{4S_{G}(\omega)}\left(\frac{\partial S_{G}(\omega)}{\partial\omega}\right)^{2}&=\frac{1}{4S_{G}(\omega)}\left(\iint_{-\infty}^{+\infty}\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|^{2}}{\partial\omega}dxdy\right)^{2}\\ &=\frac{1}{S_{G}\left(\omega\right)}\left(\iint_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}dxdy\right)^{2}\end{aligned}\tag{A.8}$$

De plus, l'inégalité de Cauchy-Schwarz permet d'obtenir l'inégalité (A.9) :

$$\left(\iint_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}dxdy\right)^2 \leq \iint_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|^2 dxdy\cdot\iint_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^2 dxdy$$

$$\Leftrightarrow \left(\frac{\partial\left(S_G\left(\omega\right)\right)^{1/2}}{\partial\omega}\right)^2 \leq \iint_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^2 dxdy \tag{A.9}$$

On peut alors définir une durée du couplage en amplitude τ_{AC} qui est une quantité positive ou nulle homogène à une durée :

$$K^{-1}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial S_G\left(\omega\right)^{1/2}}{\partial\omega}\right)^2 d\omega + \tau_{AC}^2 = K^{-1}\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^2 dxdyd\omega \tag{A.10}$$

Il est alors facile de vérifier que τ_{AC} est nul s'il n'y a pas de couplage en amplitude, c'est à dire si $\left|\widetilde{E}\right|$ peut s'écrire comme le produit d'une fonction dépendant de ω et d'une fonction dépendant des variables spatiales transverses (x, y). De plus :

$$K^{-1}\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial S_G\left(\omega\right)^{1/2}}{\partial\omega}\right)^2 d\omega = K^{-1}\int_{-\infty}^{+\infty} I_{TF_G}\left(t\right)t^2dt = \Delta t_{TF_G}^2 \tag{A.11}$$

où $I_{TF_G}\left(t\right)$ représente la limite de Fourier globale qui est, par définition, la transformée de Fourier de l'amplitude de $S_G\left(\omega\right)$. En remarquant que le carré de la durée de la limite de Fourier local $\Delta t_{TF}^2\left(x,y\right)$ est égal à $\int_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^2 d\omega / \int_{-\infty}^{+\infty}\left|\widetilde{E}\right|^2 d\omega$, on obtient l'équation (A.12) :

$$K^{-1}\iiint_{-\infty}^{+\infty}\left(\frac{\partial\left|\widetilde{E}\right|}{\partial\omega}\right)^2 dxdyd\omega = \frac{\iint_{-\infty}^{+\infty}\left(\int_{-\infty}^{+\infty}\left|E\right|^2 dt\right)\Delta t_{TF}^2\left(x,y\right)dxdy}{\iint_{-\infty}^{+\infty}\left(\int_{-\infty}^{+\infty}\left|E\right|^2 dt\right)dxdy} = \left\langle\Delta t_{TF}^2\left(x,y\right)\right\rangle_{(x,y)} \tag{A.12}$$

Les équations (A.7), (A.10), (A.11) et (A.12) permettent d'obtenir l'équation (A.13) :

$$\left\langle t^2\right\rangle = \Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2 + \left\langle GD^2\right\rangle_{(x,y,\omega)} \tag{A.13}$$

où τ_{AC} vaut $\left\langle\Delta t_{TF}^2\left(x,y\right) - \Delta t_{TF_G}^2\right\rangle_{(x,y)}^{1/2}$.

Enfin, en utilisant les équations (A.1), (A.6) et (A.13), on obtient la durée RMS de l'impulsion globale donnée par l'équation (A.14) :

$$\Delta t_G^2 = \Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2 + \left\langle\left\langle GD^2\right\rangle_{(x,y)}\right\rangle_{(\omega)} - \left\langle\left\langle GD\right\rangle_{(x,y)}^2\right\rangle_{(\omega)} + \Delta GD_G^2$$

$$= \Delta t_{TF_G}^2 + \Delta GD_G^2 + \tau_{AC}^2 + \tau_{PC}^2 \tag{A.14}$$

où τ_{PC} est égale à $\left\langle \left\langle GD^2 \right\rangle_{(x,y)} - \left\langle GD \right\rangle_{(x,y)}^2 \right\rangle_{(\omega)}^{1/2}$, et peut également s'écrire $\left\langle \left(GD - GD_G\right)^2 \right\rangle_{(x,y,\omega)}^{1/2}$.

On peut remarquer que s'il n'y a pas de couplage en phase, c'est à dire si le retard de groupe GD ne dépend pas de (x, y), τ_{PC} est nul quelque soit la phase spectrale.

Annexe B

Démonstration de l'équation CARROTS en présence de couplages

Pour ne pas alourdir inutilement les calculs à venir, nous remplacerons la notation $2q \pm 1$ des ordres harmoniques par un indice $\pm$. Par exemple, le profil spatial $i_{2q+1}(x,y)$ de l'harmonique $2q+1$ s'écrira simplement $i_+(x,y)$.

B.1 Cas d'un couplage en amplitude

Commençons par supposer la présence d'un couplage en amplitude arbitrairement complexe sur le train d'impulsion.

B.1.1 Equation du pic satellite

Partons de l'équation intégrale (5.27) vue au paragraphe 5.2.2 donnant l'expression du spectre de photoélectrons $\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau)$ mesuré sur le pic satellite $2q$:

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} i_- + i_+ + 2\sqrt{i_- \cdot i_+} \cdot cos\left(2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{2q}\right)\right) dxdy \tag{B.1}$$

Puisque l'impulsion ne possède pas de couplage en phase, le retard de groupe GD_{2q} est indépendant de (x,y) et correspond également au retard de groupe global $GD_{G_{2q}}$, et l'équation précédente peut donc s'écrire :

$$\mathcal{S}_{2q}(\tau) \propto I_- + I_+ + \iint_{-\infty}^{+\infty} 2\sqrt{i_- i_+} dxdy \cdot cos\left(2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right)\right)$$

$$\propto 1 + C_{2q} \cdot cos\left(2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right)\right) \tag{B.2}$$

Dans cette équation, C_{2q} vaut $\frac{\iint_{-\infty}^{+\infty} 2\sqrt{i_- \cdot i_+} \cdot dxdy}{I_- + I_+}$

B.1.2 Equation CARROTS

Interessons nous maintenant à l'équation CARROTS. Nous avons établi dans l'annexe A l'expression suivante :

$$\Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2 = K^{-1} \iiint_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\partial \left| \widetilde{E} \right|}{\partial \omega} \right)^2 dxdyd\omega \tag{B.3}$$

Cette équation fait intervenir la dérivée par rapport à ω de la racine carrée du spectre local. Dans le cas d'un spectre harmonique, nous allons faire la même approximation que celle de l'équation (5.32) et considérer que cette quantité s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{\partial \left| \widetilde{E} \right|}{\partial \omega}_{2q} \approx \frac{\sqrt{i_+} - \sqrt{i_-}}{2\omega_{IR}} \tag{B.4}$$

En écrivant K sous la forme $\sum_{2q} I_{2q}$, avec I_{2q} toujours égal à $\frac{I_+ + I_-}{2}$, l'intégrale précédente prend la forme :

$$\begin{aligned} \Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2 &= K^{-1} \textstyle\sum_{2q} \iint_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{\sqrt{i_+} - \sqrt{i_-}}{2\omega_{IR}} \right)^2 dxdy \\ &= \frac{1}{2\omega_{IR}^2} \left(\frac{\sum_{2q} \frac{I_+ + I_-}{2}}{\sum_{2q} I_{2q}} - \frac{\sum_{2q} \iint_{-\infty}^{+\infty} \sqrt{i_- i_+} dxdy}{\sum_{2q} I_{2q}} \right) \end{aligned} \tag{B.5}$$

On peut alors remarquer que le premier terme entre parenthèses vaut 1 et que le second peut s'écrire :

$$\frac{\sum_{2q} \iint_{-\infty}^{+\infty} \sqrt{i_- i_+} dxdy}{\sum_{2q} I_{2q}} = \frac{\sum_{SB} I_{2q} \cdot \frac{\iint_{-\infty}^{+\infty} 2\sqrt{i_- \cdot i_+} dxdy}{I_- + I_+}}{\sum_{SB} I_{2q}} = \frac{\sum_{SB} I_{2q} \cdot C_{2q}}{\sum_{SB} I_{2q}} = \langle C_{2q} \rangle \tag{B.6}$$

Et en inversant l'équation (B.5), on obtient l'équation CARROTS dans le cas d'un couplage en amplitude arbitrairement complexe :

$$\langle C \rangle_{SB} = 1 - 2\omega_{IR}^2 \left(\Delta t_{TF_G}^2 + \tau_{AC}^2 \right) \tag{B.7}$$

B.2 Cas d'un couplage en phase

Nous traitons maintenant le cas de la présence d'un couplage en phase sur les impulsions du train.

B.2.1 Equation du pic satellite

Partons à nouveau de l'expression (5.27) du spectre de photoélectrons $\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau)$ mesuré :

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} i_- + i_+ + 2\sqrt{i_- \cdot i_+} \cdot cos\left(2\omega_{IR}\tau - 2\omega_{IR}GD_{2q}(x,y)\right) dxdy$$

$$\propto 1 + \frac{1}{I_- + I_+} \iint_{-\infty}^{+\infty} 2\sqrt{i_- \cdot i_+} \cdot cos\left(2\omega_{IR}\tau - 2\omega_{IR}GD_{2q}\right) dxdy \tag{B.8}$$

De plus, si l'on considère qu'il n'y a pas de couplage en amplitude, on peut établir ces trois relations :

$$i_\pm = k_\pm \cdot |g(x,y)|^2 \tag{B.9}$$

$$I_\pm = k_\pm \cdot \iint_{-\infty}^{+\infty} |g(x,y)|^2 dxdy \tag{B.10}$$

$$\sqrt{i_- i_+} = \sqrt{k_- k_+} \cdot |g(x,y)|^2 \tag{B.11}$$

A partir des relations précédentes, on peut faire apparaitre une moyenne spatiale $\langle\rangle_{(x,y)}$ dans l'expression de $\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau)$:

$$\mathcal{S}_{2q}^{mes}(\tau) \propto 1 + \frac{2\sqrt{k_- k_+}}{k_- + k_+} \cdot \frac{\iint_{-\infty}^{+\infty} |g(x,y)|^2 \cdot cos(2\omega_{IR}\tau - 2\omega_{IR}GD_{2q}) dxdy}{\iint_{-\infty}^{+\infty} |g(x,y)|^2 dxdy}$$

$$\propto 1 + \frac{2\sqrt{I_- I_+}}{I_- + I_+} \cdot \langle cos\left(2\omega_{IR}\tau - 2\omega_{IR}GD_{2q}\right)\rangle_{(x,y)} \tag{B.12}$$

On voit donc le pic satellite oscille avec la phase du cosinus moyen. Concentrons nous maintenant sur la moyenne du cosinus. En faisant apparaitre le retard de groupe global $GD_{G_{2q}}$, et en utilisant une relation trigonométrie, on peut décomposer ce terme de la manière suivante :

$$\left\langle cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right) - 2\omega_{IR}\left(GD_{2q}(x,y) - GD_{G_{2q}}\right)\right]\right\rangle_{(x,y)} =$$

$$\left\langle cos\left[2\omega_{IR}\left(GD_{2q}(x,y) - GD_{G_{2q}}\right)\right]\right\rangle_{(x,y)} \cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right)\right] +$$

$$\left\langle sin\left[2\omega_{IR}\left(GD_{2q}(x,y) - GD_{G_{2q}}\right)\right]\right\rangle_{(x,y)} \cdot sin\left[2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right)\right] \tag{B.13}$$

Pour simplifier l'équation précédente, nous allons nous placer en régime perturbatif, et faire l'hypothèse que les retards de groupe locaux $GD_{2q}(x,y)$ s'écartent peu du retard de groupe global $GD_{G_{2q}}$ comparé à la période du champ IR d'habillage. On peut donc faire un développement limité au second ordre :

$$\langle cos\left[2\omega_{IR}\tau - 2\omega_{IR}GD_{2q}(x,y)\right]\rangle_{(x,y)} =$$

$$\left\langle 1 - 2\omega_{IR}^2\left(GD_{2q}(x,y) - GD_{G_{2q}}\right)^2\right\rangle_{(x,y)} \cdot cos\left(2\omega_{IR}\left(\tau - GD_{G_{2q}}\right)\right) +$$

$$\left\langle 2\omega_{IR}\left(GD_{2q}\left(x,y\right)-GD_{G_{2q}}\right)\right\rangle_{(x,y)}\cdot sin\left(2\omega_{IR}\left(\tau-GD_{G_{2q}}\right)\right) \tag{B.14}$$

En remarquant alors que que la quantité $\left\langle\left(GD_{2q}\left(x,y\right)-GD_{G_{2q}}\right)\right\rangle_{(x,y)}$ vaut $\langle GD_{2q}\rangle_{(x,y)}-\langle GD_{2q}\rangle_{(x,y)}$ et est donc nulle, la moyenne spatiale du cosinus se simplifie :

$$\langle cos\left(2\omega_{IR}\tau-2\omega_{IR}GD_{2q}\left(x,y\right)\right)\rangle_{(x,y)}=\left(1-2\omega_{IR}^{2}\Delta_{(x,y)}GD_{2q}^{2}\right)\cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau-GD_{G_{2q}}\right)\right] \tag{B.15}$$

Dans cette équation, $\Delta_{(x,y)}GD_{2q}^{2}$ vaut $\left\langle\left(GD_{2q}-GD_{G_{2q}}\right)^{2}\right\rangle_{(x,y)}^{1/2}$, et représente la variance spatiale de $GD_{2q}\left(x,y\right)$. Or, si l'on moyenne spectralement cette quantité, que l'on a supposé faible, on retrouve l'expression de τ_{PC}^{2}. Notre approximation précédente revient donc dire que τ_{PC} doit rester faible devant la période infrarouge. Sous cette condition, le profil du pic satellite en présence de couplage en phase peut s'écrire :

$$\mathcal{S}_{2q}\propto 1+C_{2q}\cdot cos\left[2\omega_{IR}\left(\tau-GD_{G_{2q}}\right)\right] \tag{B.16}$$

Avec C_{2q} égal à $\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}\cdot\left(1-2\omega_{IR}^{2}\Delta_{(x,y)}GD_{2q}^{2}\right)$.

B.2.2 Equation CARROTS

Pour évaluer l'équation CARROTS, nous considérons maintenant le contraste moyen de la trace RABITT :

$$\langle C_{2q}\rangle=\left\langle\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}\cdot\left(1-2\omega_{IR}^{2}\Delta_{(x,y)}GD_{2q}^{2}\right)\right\rangle_{(\omega)}$$

Si l'on suppose que le contraste cohérent $\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}$ reste sensiblement constant d'un pic satellite à l'autre, c'est à dire que deux harmoniques consécutives varient avec le même rapport d'intensité sur l'ensemble du spectre, alors on peut écrire :

$$\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}\approx\left\langle\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}\right\rangle_{(\omega)} \tag{B.17}$$

Sous cette approximation, le contraste moyen devient :

$$\langle C_{2q}\rangle=\left\langle\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}\right\rangle_{(\omega)}\cdot\left(1-2\omega_{IR}^{2}\left\langle\Delta_{(x,y)}GD^{2}\right\rangle_{(\omega)}\right)$$

En développant $\frac{2\sqrt{I_{-}I_{+}}}{I_{-}+I_{+}}$ selon l'équation (5.34) et en reconnaissant τ_{PC}^{2} dans l'expression $\left\langle\Delta_{(x,y)}GD^{2}\right\rangle_{(\omega)}$, on obtient l'équation CARROTS dans le cas d'un couplage en phase faible et sous l'hypothèse du contraste cohérent constant sur les différents pics satellites :

$$\langle C_{2q}\rangle=\left(1-2\omega_{IR}^{2}\Delta t_{TF_{G}}^{2}\right)\cdot\left(1-2\omega_{IR}^{2}\tau_{PC}^{2}\right)$$

Abréviations

BEAR : *Bending magnet for Emission, Absorption and Reflectivity*

CARROTS : *Contrast Alteration on a RABITT trace Resulting in an Observable Temporo-spatial Stretch*

CEP : *Carrier Envelope Phase*

CCD : *Charge Coupled Device*

CRAB : *Complete Reconstruction of Attosecond Bursts*

FROG : *Frequency-Resolved Optical Gating*

FWHM : *Full Width at Half Maximum*

GD : *Group Delay*

GDD : *Group Delay Dispersion*

HHG : *High Harmonic Generation*

IR : Infrarouge

LUCA : Laser Ultra-Court Accordable

PCGPA : *Principal Component Generalized Projections Algorithm*

RABITT : *Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transition*

RMS : *Root Mean Square*

ROSA : *Reflective Optical Systems for Attopulses*

SEA TADPOLE : *Spatially Encoded Arrangment for Temporal Analysis by Dispersing a Pair Of Light E-beams*

SHG : *Second Harmonic Generation*

SPAM : Service Photons, Atomes et Molécules

SPIDER : *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction*

TEY : *Total Electron Yield*

TF : Transformée de Fourier

TOD : *Third-Order Dispersion*

XUV : *X-rays and extreme UltraViolet*

Liste des publications

Spatio-temporal distortions of attosecond pulses

C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, F. Delmotte and P. Chavel

J. Opt. Soc. Am. A **27**, 1395-1403 (2010)

Control of the attosecond synchronization of XUV radiation with phase-optimized mirrors

C. Bourassin-Bouchet, Z. Diveki, S. de Rossi, E. English, E. Meltchakov, O. Gobert, D. Guénot, B. Carré, F. Delmotte, P. Salières and T. Ruchon

Opt. Express **19**, 3809-3817 (2011)

Duration of ultrashort pulses in the presence of spatio-temporal coupling

C. Bourassin-Bouchet, M. Stephens, S. de Rossi, F. Delmotte and P. Chavel

Opt. Express **19**, 17357-17371 (2011)

Shaping of single-cycle sub-50 attosecond pulses with multilayer mirrors

C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, J. Wang, E. Meltchakov, A. Giglia, N. Mahne, S. Nannarone and F. Delmotte

New Journal of Physics (accepté)

Theoretical and experimental studies of extreme broadband phase-controlled attosecond mirrors

Z. Diveki, C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, E. English, E. Meltchakov, O. Gobert, D. Guénot, B. Carré, F. Delmotte, P. Salières and T. Ruchon

(en préparation)

Characterization of attosecond pulses distorted by optical aberrations

C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi and F. Delmotte

(en préparation)

Actes de conférences et *proceedings* :

EUV multilayer optics for space science and ultrafast science

F. Delmotte, S. de Rossi, C. Bourassin-Bouchet, E. Meltchakov, A. Ziani, F. Choueikani, F. Bridou, A. Jérome, and F. Varnière,

Proc. of SPIE **7995**, 79952Q-79952Q-6 (2010)

Optiques pour les impulsions attosecondes

C. Bourassin-Bouchet, Z. Diveki, S. de Rossi, E. English, E. Meltchakov, O. Gobert, D. Guénot, B. Carré, F. Delmotte, T. Ruchon, P. Chavel and P. Salières

Proc. of UVX 2010, 35-40 (2011)

Design, deposition and characterization of multilayer mirrors for ultrashort pulses in the attosecond domain

S. de Rossi, C. Bourassin-Bouchet, E. Meltchakov, F. Delmotte, Z. Diveki T. Ruchon, P. Salières and B. Carré,

Proc. of SPIE **8168**, 816817-1 816817-7 (2011)

Bibliographie

Akturk S., Gu X., Zeek E., and Trebino R. Pulse-front tilt caused by spatial and temporal chirp. *Opt. Express*, 12(19) :4399–4410, Sep 2004. doi : 10.1364/OPEX.12.004399. URL http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-12-19-4399.

Akturk S., Gu X., Gabolde P., and Trebino R. The general theory of first-order spatio-temporal distortions of gaussian pulses and beams. *Opt. Express*, 13(21) :8642–8661, Oct 2005. doi : 10.1364/OPEX.13.008642. URL http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-13-21-8642.

Akturk S., Gu X., Bowlan P., and Trebino R. Spatio-temporal couplings in ultrashort laser pulses. *Journal of Optics*, 12(9) :093001, 2010. URL http://stacks.iop.org/2040-8986/12/i=9/a=093001.

Alonso B., Sola I. J., Varela O., Hernández-Toro J., Méndez C., San Román J., Zaïr A., and Roso L. Spatiotemporal amplitude-and-phase reconstruction by fourier-transform of interference spectra of high-complex-beams. *J. Opt. Soc. Am. B*, 27(5) :933–940, May 2010. doi : 10.1364/JOSAB.27.000933. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-27-5-933.

Antoine P., L'Huillier A., and Lewenstein M. Attosecond pulse trains using high–order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 77 :1234–1237, Aug 1996. doi : 10.1103/PhysRevLett.77.1234. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.77.1234.

Aquila A., Salmassi F., and Gullikson E. Metrologies for the phase characterization of attosecond extreme ultraviolet optics. *Opt. Lett.*, 33(5) :455–457, Mar 2008. doi : 10.1364/OL.33.000455. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-33-5-455.

Aseyev S. A., Ni Y., Frasinski L. J., Muller H. G., and Vrakking M. J. J. Attosecond angle-resolved photoelectron spectroscopy. *Phys. Rev. Lett.*, 91 :223902, Nov 2003. doi : 10.1103/PhysRevLett.91.223902. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.91.223902.

Austin D. R., Witting T., Arrell C. A., Frank F., Wyatt A. S., Marangos J. P., Tisch J. W. G., and Walmsley I. A. Lateral shearing interferometry of high-harmonic wavefronts. *Opt. Lett.*, 36(10) :1746–1748, May 2011. doi : 10.1364/OL.36.001746. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-36-10-1746.

Baltuška A., Udem T., Uiberacker M., Hentschel M., Goulielmakis E., Gohle C., Holzwarth R., Yakovlev V. S., Scrinzi A., Hänsch T. W., and Krausz F. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421 :611–615, 2003. doi : 10.1038/nature01414. URL `http://www.nature.com/nature/journal/v421/n6923/abs/nature01414.html`.

Bor Z. Distortion of femtosecond laser pulses in lenses. *Opt. Lett.*, 14(2) :119–121, Jan 1989. doi : 10.1364/OL.14.000119. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-14-2-119`.

Bourassin-Bouchet C., de Rossi S., and Delmotte F. Characterization of attosecond pulses distorted by optical aberrations. *en préparation*, a.

Bourassin-Bouchet C., de Rossi S., Wang J., Meltchakov E., Giglia A., Mahne N., Nannarone S., and Delmotte F. Shaping of single-cycle sub-50 attosecond pulses with multilayer mirrors. *New Journal of Physics (accepté)*, b.

Bourassin-Bouchet C., de Rossi S., Delmotte F., and Chavel P. Spatiotemporal distortions of attosecond pulses. *J. Opt. Soc. Am. A*, 27(6) :1395–1403, Jun 2010. doi : 10.1364/JOSAA.27.001395. URL `http://josaa.osa.org/abstract.cfm?URI=josaa-27-6-1395`.

Bourassin-Bouchet C., Diveki Z., de Rossi S., English E., Meltchakov E., Gobert O., Guénot D., Carré B., Delmotte F., Salières P., and Ruchon T. Control of the attosecond synchronization of xuv radiation with phase-optimized mirrors. *Opt. Express*, 19(4) :3809–3817, Feb 2011a. doi : 10.1364/OE.19.003809. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-19-4-3809`.

Bourassin-Bouchet C., Stephens M., de Rossi S., Delmotte F., and Chavel P. Duration of ultrashort pulses in the presence of spatio-temporal coupling. *Opt. Express*, 19(18) :17357–17371, Aug 2011b. doi : 10.1364/OE.19.017357. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-19-18-17357`.

Boutu W., Haessler S., Merdji H., Breger P., Waters G., Stankiewicz M., Frasinski L. J., Taïeb R., Caillat J., Maquet A., Monchicourt P., Carré B., and Salières P. Coherent control of attosecond emission from aligned molecules. *Nature Physics*, 4 :545, 2008. doi : 10.1038/nphys964. URL `http://www.nature.com/nphys/journal/v4/n7/full/nphys964.html`.

Bowlan P., Fuchs U., Trebino R., and Zeitner U. D. Measuring the spatiotemporal electric field of tightly focused ultrashort pulses with sub-micron spatial resolution. *Opt. Express*, 16(18) :13663–13675, Sep 2008a. doi : 10.1364/OE.16.013663. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-16-18-13663`.

Bowlan P., Gabolde P., Coughlan M. A., Trebino R., and Levis R. J. Measuring the spatiotemporal electric field of ultrashort pulses with high spatial and spectral resolution. *J. Opt. Soc. Am. B*, 25(6) :A81–A92, Jun 2008b. doi : 10.1364/JOSAB.25.000A81. URL `http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-25-6-A81`.

Bridou F. and Pardo B. A. Automatic characterization of layers stacks from reflectivity measurements. application to the study of the validity conditions of grazing x-rays reflectometry. *Journal of Optics*, 21(4) :183, 1990. URL http://stacks.iop.org/0150-536X/21/i=4/a=005.

Burnett N. H., Baldis H. A., Richardson M. C., and Enright G. D. Harmonic generation in co_2 laser target interaction. *Appl. Phys. Lett.*, 31 :172–174, 1977.

Carman R. L., Forslund D. W., and Kindel J. M. Visible harmonic emission as a way of measuring profile steepening. *Phys. Rev. Lett.*, 46 :29–32, Jan 1981a. doi : 10.1103/PhysRevLett.46.29. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.46.29.

Carman R. L., Rhodes C. K., and Benjamin R. F. Observation of harmonics in the visible and ultraviolet created in co_2-laser-produced plasmas. *Phys. Rev. A*, 24 :2649–2663, Nov 1981b. doi : 10.1103/PhysRevA.24.2649. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.24.2649.

Chen M.-C., Arpin P., Popmintchev T., Gerrity M., Zhang B., Seaberg M., Popmintchev D., Murnane M. M., and Kapteyn H. C. Bright, coherent, ultrafast soft x-ray harmonics spanning the water window from a tabletop light source. *Phys. Rev. Lett.*, 105 :173901, Oct 2010. doi : 10.1103/PhysRevLett.105.173901. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.105.173901.

Corkum P. B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71 :1994–1997, Sep 1993. doi : 10.1103/PhysRevLett.71.1994. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.71.1994.

Diveki Z., Bourassin-Bouchet C., de Rossi S., English E., Meltchakov E., Gobert O., Guénot D., Carré B., Delmotte F. Salières P., and Ruchon T. Theoretical and experimental studies of extreme broadband phase-controlled attosecond mirrors. *en préparation.*

Dombi P., Yakovlev V. S., O'Keeffe K., Fuji T., Lezius M., and Tempea G. Pulse compression with time-domain optimized chirped mirrors. *Opt. Express*, 13(26) :10888–10894, Dec 2005. doi : 10.1364/OPEX.13.010888. URL http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-13-26-10888.

Dorrer C. and Salin F. Phase amplitude coupling in spectral phase modulation. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 4 :342 – 345, 1998. doi : 10.1109/2944.686740.

Dorrer C. and Walmsley I. A. Simple linear technique for the measurement of space-time coupling in ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 27(21) :1947–1949, Nov 2002. doi : 10.1364/OL.27.001947. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-27-21-1947.

Dorrer C., Kosik E. M., and Walmsley I. A. Direct space time-characterization of the electric fields of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 27(7) :548–550, Apr 2002. doi : 10.1364/OL.27.000548. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-27-7-548.

Doumy G., Wheeler J., Blaga C., Catoire F., Chirla R., Colosimo P., March A. M., Agostini P., and Dimauro L. F. The frontiers of attosecond physics. In *Pushing the Frontiers of Atomic Physics*, pages 333–343, 2009. doi : 10.1142/9789814273008_0032.

Dykhne A. M. and Yudin G. L. Stimulated effects upon "jarring" of an electron in an external electromagnetic field. *Soviet Physics Uspekhi*, 20(1) :80, 1977. URL http://stacks.iop.org/0038-5670/20/i=1/a=A04.

Farkas G. and Tóth C. Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases. *Phys. Rev. A*, 168(5-6) :447 – 450, 1992. ISSN 0375-9601. doi : 10.1016/0375-9601(92)90534-S. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/037596019290534S.

Feng X., Gilbertson S., Mashiko H., Wang H., Khan S. D., Chini M., Wu Y., Zhao K., and Chang Z. Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers. *Phys. Rev. Lett.*, 103 :183901, Oct 2009. doi : 10.1103/PhysRevLett.103.183901. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.103.183901.

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. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3) : L31, 1988. URL http://stacks.iop.org/0953-4075/21/i=3/a=001.

Fiorini C., Sauteret C., Rouyer C., Blanchot N., Seznec S., and Migus A. Temporal aberrations due to misalignments of a stretcher-compressor system and compensation. *IEEE J. Quantum Electron*, 30 :1662–1670, 1994. doi : 10.1109/3.299499.

Froehly C., Colombeau B., and Vampouille M. Shaping and analysis of picosecond light pulses. *Progress in Optics*, 20 :63–153, 1983. doi : 10.1016/S0079-6638(08)70277-4. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079663808702774.

Frumker E., Paulus G. G., Niikura H., Villeneuve D. M., and Corkum P. B. Frequency-resolved high-harmonic wavefront characterization. *Opt. Lett.*, 34(19) :3026–3028, Oct 2009. doi : 10.1364/OL.34.003026. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-34-19-3026.

Fuchs U., Zeitner U., and Tünnermann A. Ultra-short pulse propagation in complex optical systems. *Opt. Express*, 13(10) :3852–3861, May 2005. doi : 10.1364/OPEX.13.003852. URL http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-13-10-3852.

Gabolde P. and Trebino R. Single-shot measurement of the full spatio-temporal field of ultrashort pulses with multi-spectral digital holography. *Opt. Express*, 14(23) :11460–11467, Nov 2006. doi : 10.1364/OE.14.011460. URL http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-14-23-11460.

Gabolde P., Lee D., Akturk S., and Trebino R. Describing first-order spatio-temporal distortions in ultrashort pulses using normalized parameters. *Opt. Express*, 15(1) :242–251, Jan 2007. doi : 10.1364/OE.15.000242. URL http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-15-1-242.

Gautier J. *Etude et élaboration de revêtements multicouches pour l'optique extrême UV dans la gamme spectrale* $30 - 50\,nm$. Thèse de l'Université Paris-Sud effectuée au Laboratoire Charles Fabry de l'Institut d'Optique, 2005.

Gautier J., Delmotte F., Roulliay M., Bridou F., Ravet M.-F., and Jérome A. Study of normal incidence of three-component multilayer mirrors in the range 20-40 nm. *Appl. Opt.*, 44(3) :384–390, Jan 2005. doi : 10.1364/AO.44.000384. URL http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-44-3-384.

Gautier J., Delmotte F., Bridou F., Ravet M.-F., Varnière F., Roulliay M., Jérôme A., and Vickridge I. Characterization and optimization of magnetron sputtered sc/si multilayers for extreme ultraviolet optics. *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, 88 :719–725, 2007. ISSN 0947-8396. URL http://dx.doi.org/10.1007/s00339-007-4041-6. 10.1007/s00339-007-4041-6.

Goulielmakis E., Schultze M., Hofstetter M., Yakovlev V. S., Gagnon J., Uiberacker M., Aquila A. L., Gullikson E. M., Attwood D. T., Kienberger R., Krausz F., and Kleineberg U. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 320(5883) :1614–1617, 2008. doi : 10.1126/science.1157846. URL http://www.sciencemag.org/content/320/5883/1614.abstract.

Grosse P. and Offermann V. Analysis of reflectance data using the kramers-kronig relations. *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, 52 :138–144, 1991. ISSN 0947-8396. URL http://dx.doi.org/10.1007/BF00323731. 10.1007/BF00323731.

Gu X., Akturk S., and Trebino R. Spatial chirp in ultrafast. *Optics Communications*, 242(4-6) :599 – 604, 2004. ISSN 0030-4018. doi : 10.1016/j.optcom.2004.09.004. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0030401804008855.

Gustafsson E., Ruchon T., Swoboda M., Remetter T., Pourtal E., López-Martens R., Balcou Ph., and L'Huillier A. Broadband attosecond pulse shaping. *Opt. Lett.*, 32(11) :1353–1355, Jun 2007. doi : 10.1364/OL.32.001353. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-32-11-1353.

Hardouin A., Delmotte F., Ravet M.-F., Bridou F, Jérôme A., Varnière F., Montcalm C., Hedacq S., Gullikson E., and Aubert P. Experimental study of cr/sc multilayer mirrors for the nitrogen k[sub alpha]-emission line. *Journal of Vacuum Science and Technology A : Vacuum, Surfaces, and Films*, 26(3) :333–337, 2008. doi : 10.1116/1.2891248. URL http://link.aip.org/link/?JVA/26/333/1.

Harris S. E., Macklin J. J., and Hänsch T. W. Atomic scale temporal structure inherent to high-order harmonic generation. *Opt. Com.*, 100(5-6) :487 – 490, 1993. ISSN 0030-4018. doi : 10.1016/0030-4018(93)90250-9. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0030401893902509.

Hauri C. P., Kornelis W., Helbing F. W., Heinrich A., Couairon A., Mysyrowicz A., Biegert J., and Keller U. Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 79 :673–677, 2004. ISSN 0946-2171. URL `http://dx.doi.org/10.1007/s00340-004-1650-z`. 10.1007/s00340-004-1650-z.

Hentschel M., Spielmann Ch., Reider G. A., Brabec T., Corkum P., Heinzmann U., Drescher M., and Krausz F. Attosecond metrology. *Nature*, 414 :509–513, 2001. doi : doi:10.1038/35107000. URL `http://www.nature.com/nature/journal/v414/n6863/full/414509a.html`.

Hofstetter M., Schultze M., Fieß M., Dennhardt B., Guggenmos A., Gagnon J., Yakovlev V. S., Goulielmakis E., Kienberger R., Gullikson E. M., Krausz F., and Kleineberg U. Attosecond dispersion control by extreme ultraviolet multilayer mirrors. *Opt. Express*, 19(3) :1767–1776, Jan 2011. doi : 10.1364/OE.19.001767. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-19-3-1767`.

Hornung T., Vaughan J. C., Feurer T., and Nelson K. A. Degenerate four-wave mixing spectroscopy based on two-dimensional femtosecondpulse shaping. *Opt. Lett.*, 29(17) :2052–2054, Sep 2004. doi : 10.1364/OL.29.002052. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-29-17-2052`.

Horvath Z. L., Kovács A. P., and Bor Z. Distortion of ultrashort pulses caused by aberrations. In *15th International Conference on Ultrafast Phenomena*, page ThD16. Optical Society of America, 2006. URL `http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=UP-2006-ThD16`.

Hu M.-H., Le Guen K., André J.-M., Jonnard P., Meltchakov E., Delmotte F., and Galtayries A. Structural properties of al/mo/sic multilayers with high reflectivity for extreme ultraviolet light. *Opt. Express*, 18(19) : 20019–20028, Sep 2010. doi : 10.1364/OE.18.020019. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-18-19-20019`.

Iaconis C. and Walmsley I. A. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 23(10) :792–794, May 1998. doi : 10.1364/OL.23.000792. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-23-10-792`.

Itatani J., Quéré F., Yudin G. L., Ivanov M. Yu., Krausz F., and Corkum P. B. Attosecond streak camera. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :173903, Apr 2002. doi : 10.1103/PhysRevLett.88.173903. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.173903`.

Itatani J., Levesque J., Zeidler D., Niikura H., Pépin H., Kieffer J. C., Corkum P. B., and Villeneuve D. M. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432 :867–871, 2004. doi : 10.1038/nature03183. URL `http://www.nature.com/nature/journal/v432/n7019/abs/nature03183.html`.

Jones D. J., Diddams S. A., Ranka, J. K., Stentz A., Windeler R. S., Hall J. L., and Cundiff S. T. Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science*, 288

(5466) :635–639, 2000. doi : 10.1126/science.288.5466.635. URL http://www.sciencemag.org/content/288/5466/635.abstract.

Kane D. J., Rodriguez G., Taylor A. J., and Clement T. S. Simultaneous measurement of two ultrashort laser pulses from a single spectrogram in a single shot. *J. Opt. Soc. Am. B*, 14(4) :935–943, Apr 1997. doi : 10.1364/JOSAB.14.000935. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-14-4-935.

Kaplan D. and Tournois P. Theory and performance of the acousto optic programmable dispersive filter used for femtosecond laser pulse shaping. *J. Phys. IV*, 12 :5–69, 2002. doi : http://dx.doi.org/10.1051/jp4:20020098. URL http://jp4.journaldephysique.org/index.php?option=com_article&access=doi&doi=10.1051/jp4:20020098&Itemid=129.

Katz O., Small E., Bromberg Y., and Silberberg Y. Focusing and compression of ultrashort pulses through scattering media. *Nature Photonics*, 5 :372–377, 2011. doi : 10.1038/nphoton.2011.72.

Kempe M. and Rudolph W. Femtosecond pulses in the focal region of lenses. *Phys. Rev. A*, 48 :4721–4729, Dec 1993. doi : 10.1103/PhysRevA.48.4721. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.48.4721.

Kienberger R., Goulielmakis E., Uiberacker M., Baltuska A., Yakovlev V., Bammer F., Scrinzi A., Westerwalbesloh Th., Kleineberg U., Heinzmann U., Drescher M., and Krausz F. Atomic transient recorder. *Nature*, 427 :817–821, 2004. doi : 10.1038/nature02277. URL http://www.nature.com/nature/journal/v427/n6977/abs/nature02277.html.

Kim K. T., Kim C. M., Baik M.-G., Umesh G., and Nam C. H. Single sub-50-attosecond pulse generation from chirp-compensated harmonic radiation using material dispersion. *Phys. Rev. A*, 69 :051805, May 2004. doi : 10.1103/PhysRevA.69.051805. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.69.051805.

Kirkpatrick S., Gelatt C. D., and Vecchi M. P. Optimization by simulated annealing. *Science*, 220(4598) : 671–680, 1983. doi : 10.1126/science.220.4598.671. URL http://www.sciencemag.org/content/220/4598/671.abstract.

Kitzler M., Milosevic N., Scrinzi A., Krausz F., and Brabec T. Quantum theory of attosecond xuv pulse measurement by laser dressed photoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 88 :173904, Apr 2002. doi : 10.1103/PhysRevLett.88.173904. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.173904.

Ko D. H., Kim K. T., Park J., Lee J., and Nam C. H. Attosecond chirp compensation over broadband high-order harmonics to generate near transform-limited 63 as pulses. *New Journal of Physics*, 12 :063008, 2010. doi : 10.1088/1367-2630/12/6/063008. URL http://iopscience.iop.org/1367-2630/12/6/063008/.

Krause J. L., Schafer K. J., and Kulander K. C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 68 :3535–3538, Jun 1992. doi : 10.1103/PhysRevLett.68.3535. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.68.3535.

Kruit P.and Read F. H. Magnetic field paralleliser for 2pi electron-spectrometer and electron-image magnifier. *Journal of Physics E : Scientific Instruments*, 16(4) :313, 1983. URL `http://stacks.iop.org/0022-3735/16/i=4/a=016`.

Kulander K. C., Schafer K. J., and Krause J. L. *Proceedings of the Workshop, Super Intense Laser Atom Physics (SILAP) III*. B. Piraux (Plenum Press, New York), 1994.

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. A*, 49 :2117–2132, Mar 1994. doi : 10.1103/PhysRevA.49.2117. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.49.2117`.

Loch R. A., Dubrouil A., Sobierajski R., Descamps D., Fabre B., Lidon P., van de Kruijs R. W. E., Boekhout F., Gullikson E., Gaudin J., Louis E., Bijkerk F., Mével E., Petit S., Constant E., and Mairesse Y. Phase characterization of the reflection on an extreme uv multilayer : comparison between attosecond metrology and standing wave measurements. *Opt. Lett.*, 36(17) :3386–3388, Sep 2011. doi : 10.1364/OL.36.003386. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-36-17-3386`.

López-Martens R., Varjú K., Johnsson P., Mauritsson J., Mairesse Y., Salières P., Gaarde M. B., Schafer K. J., Persson A., Svanberg S., Wahlström C.-G., and L'Huillier A. Amplitude and phase control of attosecond light pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 94 :033001, Jan 2005. doi : 10.1103/PhysRevLett.94.033001. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.94.033001`.

Macleod H. A. *Thin-Film Optical Filters*. Hilger, Bristol (UK), 2nd edition, 1986.

Mairesse Y. *Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes*. Thése de doctorat de l'Université Paris-Sud XI, page 25, 2005.

Mairesse Y. and Quéré F. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys. Rev. A*, 71 :011401, Jan 2005. doi : 10.1103/PhysRevA.71.011401. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.71.011401`.

Mairesse Y., de Bohan A., Frasinski L. J., Merdji H., Dinu L. C., Monchicourt P., Breger P., Kovacev M., Taïeb R., Carré B., Muller H. G., Agostini P., and Salières P. Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays. *Science*, 302(5650) :1540–1543, 2003. doi : 10.1126/science.1090277. URL `http://www.sciencemag.org/content/302/5650/1540.abstract`.

Mairesse Y., de Bohan A., Frasinski L. J., Merdji H., Dinu L. C., Monchicourt P., Breger P., Kovačev M., Auguste T., Carré B., Muller H. G., Agostini P., and Salières P. Optimization of attosecond pulse generation. *Phys. Rev. Lett.*, 93 :163901, Oct 2004. doi : 10.1103/PhysRevLett.93.163901. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.93.163901`.

Martinez O. E. Grating and prism compressors in the case of finite beam size. *J. Opt. Soc. Am. B*, 3 (7) :929–934, Jul 1986. doi : 10.1364/JOSAB.3.000929. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-3-7-929.

McCabe D. J., Tajalli A., Austin D. R., Bondareff P., Walmsley I. A., Gigan S., and Chatel B. Spatio-temporal focusing of an ultrafast pulse through a multiply scattering medium. *Nature Commun.*, 2 :447, 2011. doi : doi:10.1038/natcomms1434.

McPherson A., Gibson G., Jara H., Johann U., Luk T. S., McIntyre I. A., Boyer K., and Rhodes C. K. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(4) : 595–601, Apr 1987. doi : 10.1364/JOSAB.4.000595. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-4-4-595.

Meltchakov E., Hecquet C., Roulliay M., de Rossi S., Ménesguen Y., Jérôme A., Bridou F., Varnière F., Ravet-Krill M.-F., and Delmotte F. Development of al-based multilayer optics for euv. *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, 98 :111–117, 2010. ISSN 0947-8396. URL http://dx.doi.org/10.1007/s00339-009-5445-2. 10.1007/s00339-009-5445-2.

Meyzonnette J.-L. and Lépine T. *Bases de radiométrie optique*. Cépadués, 2nd edition, 2001.

Midorikawa K., Nabekawa Y., and Suda A. Xuv multiphoton processes with intense high-order harmonics. *Progress in Quantum Electronics*, 32(2) :43 – 88, 2008. ISSN 0079-6727. doi : 10.1016/j.pquantelec.2008.04.001. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079672708000128.

Morlens A.-S., Balcou P., Zeitoun P., Valentin C., Laude V., and Kazamias S. Compression of attosecond harmonic pulses by extreme-ultraviolet chirped mirrors. *Opt. Lett.*, 30(12) :1554–1556, Jun 2005. doi : 10.1364/OL.30.001554. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-30-12-1554.

Morlens A.-S., López-Martens R., Boyko O., Zeitoun Ph., Balcou Ph., Varjú K., Gustafsson E., Remetter T., L'Huillier A., Kazamias S., Gautier J., Delmotte F., and Ravet M.-F. Design and characterization of extreme-ultraviolet broadband mirrors for attosecond science. *Opt. Lett.*, 31(10) :1558–1560, May 2006. doi : 10.1364/OL.31.001558. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-31-10-1558.

Muller H. G. Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions. *Applied Physics B : Lasers and Optics*, 74 :s17–s21, 2002. ISSN 0946-2171. URL http://dx.doi.org/10.1007/s00340-002-0894-8. 10.1007/s00340-002-0894-8.

Ménesguen Y., de Rossi S., Meltchakov E., and Delmotte F. Aperiodic multilayer mirrors for efficient broadband reflection in the extreme ultraviolet. *Applied Physics A : Materials Science and Processing*, 98 :305–309, 2010. ISSN 0947-8396. URL http://dx.doi.org/10.1007/s00339-009-5400-2. 10.1007/s00339-009-5400-2.

Nannarone S., Borgatti F., DeLuisa A., Doyle B. P., Gazzadi G. C., Giglia A., Finetti P., Mahne N., Pasquali L., Pedio M., Selvaggi G., Naletto G., Pelizzo M. G., and Tondello G. The bear beamline at elettra. *AIP Conference Proceedings*, 705(1) :450–453, 2004. doi : 10.1063/1.1757831. URL `http://link.aip.org/link/?APC/705/450/1`.

Nomura Y., Hörlein R., Tzallas P., Dromey B., Rykovanov S., Major Z., Osterhoff J., Karsch S., Veisz L., Zepf M., Charalambidis D., Krausz F., and Tsakiris G. D. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas. *Nature Physics*, 5 :124–128, 2009. doi : 10.1038/nphys1155. URL `http://www.nature.com/nphys/journal/v5/n2/full/nphys1155.html`.

Olivier N. and Beaurepaire E. Third-harmonic generation microscopy with focus-engineered beams : a numerical study. *Opt. Express*, 16(19) :14703–14715, Sep 2008. doi : 10.1364/OE.16.014703. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-16-19-14703`.

Osvay K., Kovács A. P., Heiner Z., Kurdi G., Klebniczki J., and Csatari M. Angular dispersion and temporal change of femtosecond pulses from misaligned pulse compressors. *IEEE J. Quantum Electron*, 10 :213–220, 2004. doi : 10.1109/JSTQE.2003.822917.

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(5522) :1689–1692, 2001. doi : 10.1126/science.1059413. URL `http://www.sciencemag.org/content/292/5522/1689.abstract`.

Paye J., Ramaswamy M., Fujimoto J. G., and Ippen E. R. Measurement of the amplitude and phase of ultrashort light pulses from spectrally resolved autocorrelation. *Opt. Lett.*, 18(22) :1946–1948, Nov 1993. doi : 10.1364/OL.18.001946. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-18-22-1946`.

Pepper S. V. Optical analysis of photoemission. *J. Opt. Soc. Am.*, 60(6) :805–812, Jun 1970. doi : 10.1364/JOSA.60.000805. URL `http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=josa-60-6-805`.

Pervak V., Ahmad I., Fulop J., Trubetskov M. K., and Tikhonravov A. V. Comparison of dispersive mirrors based on thetime-domain and conventional approaches, for sub-5-fs pulses. *Opt. Express*, 17(4) :2207–2217, Feb 2009. doi : 10.1364/OE.17.002207. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-17-4-2207`.

Planchon T. A., Ferré S., Hamoniaux G., Chériaux G., and Chambaret J.-P. Experimental evidence of 25-fs laser pulse distortion in singlet beamexpanders. *Opt. Lett.*, 29(19) :2300–2302, Oct 2004. doi : 10.1364/OL.29.002300. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-29-19-2300`.

Poletto L., Frassetto F., and Villoresi P. Design of an extreme-ultraviolet attosecond compressor. *J. Opt. Soc. Am. B*, 25(7) :B133–B136, Jul 2008. doi : 10.1364/JOSAB.25.00B133. URL `http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-25-7-B133`.

Popmintchev T., Chen M.-C., Cohen O., Grisham M. E., Rocca J. J., Murnane M. M., and Kapteyn H. C. Extended phase matching of high harmonics driven by mid-infrared light. *Opt. Lett.*, 33(18) :2128–2130, Sep 2008. doi : 10.1364/OL.33.002128. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-33-18-2128.

Popmintchev T., Chen M.-C., Arpin P., Murnane M. M., and Kapteyn H. C. The attosecond nonlinear optics of bright coherent x-ray generation. *Nature Photonics*, 4 :822–832, 2010. doi : 10.1038/nphoton.2010.256. URL http://www.nature.com/nphoton/journal/v4/n12/abs/nphoton.2010.256.html.

Potter E. D., Herek J. L., Pedersen S., Liu Q., and Zewail A. H. Femtosecond laser control of a chemical reaction. *Nature*, 355 :66–68, 1992. doi : doi:10.1038/355066a0. URL http://www.nature.com/nature/journal/v355/n6355/abs/355066a0.html.

Quéré F., Itatani J., Yudin G. L., and Corkum P. B. Attosecond spectral shearing interferometry. *Phys. Rev. Lett.*, 90 :073902, Feb 2003. doi : 10.1103/PhysRevLett.90.073902. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.90.073902.

Salières P., L'Huillier A., and Lewenstein M. Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 74 :3776–3779, May 1995. doi : 10.1103/PhysRevLett.74.3776. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.74.3776.

Sansone G., Benedetti E., Calegari F., Vozzi C., Avaldi L., Flammini R., Poletto L., Villoresi P., Altucci C., Velotta R., Stagira S., De Silvestri S., and Nisoli M. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314 (5798) :443–446, 2006. doi : 10.1126/science.1132838. URL http://www.sciencemag.org/content/314/5798/443.abstract.

Seres J., Seres E., Verhoef A. J., Tempea G., Streli C., Wobrauschek P., Yakovlev V., Scrinzi A., Spielmann Ch., and Krausz F. Source of coherent kiloelectronvolt x-rays. *Review of Scientific Instruments*, 433 : 596, 2005. doi : 10.1038/433596a. URL http://www.nature.com/nature/journal/v433/n7026/full/433596a.html?lang=en.

Sola I. J., Mével E., Elouga L., Constant E., Strelkov V., Poletto L., Villoresi P., Benedetti E., Caumes J.-P., Stagira S., Vozzi C., Sansone G., and Nisoli M. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating. *Nature Physics*, 2 :319–322, 2006. doi : 10.1038/nphys281. URL http://www.nature.com/nphys/journal/v2/n5/full/nphys281.html.

Soufli R. and Gullikson E. M. Absolute photoabsorption measurements of molybdenum in the range 60-930 ev for optical constant determination. *Appl. Opt.*, 37(10) :1713–1719, Apr 1998. doi : 10.1364/AO.37.001713. URL http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-37-10-1713.

Spiller E. *SPIE Optical Engineering Press, Bellingham.* 1994.

Steinmeyer G., Sutter D. H., Gallmann L., Matuschek N., and Keller U. Frontiers in ultrashort pulse generation : Pushing the limits in linear and nonlinear optics. *Science*, 286(5444) :1507–1512, 1999. doi : 10.1126/science.286.5444.1507. URL `http://www.sciencemag.org/content/286/5444/1507.abstract`.

Suman M., Monaco G., Pelizzo M.-G., Windt D. L., and Nicolosi P. Realization and characterization of an xuvmultilayer coating for attosecond pulses. *Opt. Express*, 17(10) :7922–7932, May 2009. doi : 10.1364/OE.17.007922. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-17-10-7922`.

Sussman B. J., Lausten R., and Stolow A. Focusing of light following a 4-f pulse shaper : Considerations for quantum control. *Phys. Rev. A*, 77 :043416, Apr 2008. doi : 10.1103/PhysRevA.77.043416. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.77.043416`.

Szipöcs R., Ferencz K., Spielmann Ch., and Krausz F. Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers. *Opt. Lett.*, 19(3) :201–203, Feb 1994. doi : 10.1364/OL.19.000201. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-19-3-201`.

Tate J., Auguste T., Muller H. G., Salières P., Agostini, P., and DiMauro L. F. Scaling of wave-packet dynamics in an intense midinfrared field. *Phys. Rev. Lett.*, 98 :013901, Jan 2007. doi : 10.1103/PhysRevLett.98.013901. URL `http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.98.013901`.

Thomann I., Bahabad A., Liu X., Trebino R., Murnane M. M., and Kapteyn H. C. Characterizing isolated attosecond pulses from hollow-core waveguidesusing multi-cycle driving pulses. *Opt. Express*, 17(6) :4611–4633, Mar 2009. doi : 10.1364/OE.17.004611. URL `http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-17-6-4611`.

Tournois P. Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems. *Opt. Com.*, 140 :245–249, 1997. doi : 10.1016/S0030-4018(97)00153-3. URL `http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0030401897001533`.

Trebino R. and Kane D. J. Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses : frequency-resolved optical gating. *J. Opt. Soc. Am. A*, 10(5) :1101–1111, May 1993. doi : 10.1364/JOSAA.10.001101. URL `http://josaa.osa.org/abstract.cfm?URI=josaa-10-5-1101`.

Tzallas P., Charalambidis D., Papadogiannis N. A., Witte K., and Tsakiris G. D. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 426 :267–271, 2003. doi : 10.1038/nature02091.

Valentin C., Douillet D., Kazamias S., Lefrou Th., Grillon G., Augé F., Mullot G., Balcou Ph., Mercère P., and Zeitoun Ph. Imaging and quality assessment of high-harmonic focal spots. *Opt. Lett.*, 28(12) :1049–1051, Jun 2003. doi : 10.1364/OL.28.001049. URL `http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-28-12-1049`.

Varjú K., Mairesse Y., Agostini P., Breger P., Carré B., Frasinski L. J., Gustafsson E., Johnsson P., Mauritsson, J., Merdji H., Monchicourt P., L'Huillier A., and Salières P. Reconstruction of attosecond pulse trains using

an adiabatic phase expansion. *Phys. Rev. Lett.*, 95 :243901, Dec 2005. doi : 10.1103/PhysRevLett.95.243901. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.95.243901.

Vaughan J. C., Feurer T., and Nelson K. A. Automated two-dimensional femtosecond pulse shaping. *J. Opt. Soc. Am. B*, 19(10) :2489–2495, Oct 2002. doi : 10.1364/JOSAB.19.002489. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-19-10-2489.

Verluise F., Laude V., Huignard J.-P., Tournois P., and Migus A. Arbitrary dispersion control of ultrashort optical pulses with acoustic waves. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(1) :138–145, Jan 2000. doi : 10.1364/JOSAB.17.000138. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-17-1-138.

Walmsley I. A., Waxer L., and Dorrer C. The role of dispersion in ultrafast optics. *Review of Scientific Instruments*, 72(1) :1–29, 2001. doi : 10.1063/1.1330575. URL http://link.aip.org/link/?RSI/72/1/1.

Ward J. F. and New G. H. C. Optical third harmonic generation in gases by a focused laser beam. *Phys. Rev.*, 185 :57–72, Sep 1969. doi : 10.1103/PhysRev.185.57. URL http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.185.57.

Wefers M. M. and Nelson K. A. Analysis of programmable ultrashort waveform generation using liquid-crystal spatial light modulators. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12(7) :1343–1362, Jul 1995. doi : 10.1364/JOSAB.12.001343. URL http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-12-7-1343.

Weiner A. M. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Review of Scientific Instruments*, 71 (5) :1929–1960, 2000. doi : 10.1063/1.1150614. URL http://link.aip.org/link/?RSI/71/1929/1.

Wonisch A., Westerwalbesloh Th., Hachmann W., Kabachnik N., Kleineberg U., and Heinzmann U. Aperiodic nanometer multilayer systems as optical key components for attosecond electron spectroscopy. *Thin Solid Films*, 464-465(0) :473 – 477, 2004. ISSN 0040-6090. doi : 10.1016/j.tsf.2004.06.040. URL http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0040609004007783. <ce :title>Proceedings of the 7th International Symposium on Atomically Controlled Surfaces, Interfaces and Nanostructures</ce :title>.

Yoshiki K., Ryosuke K., Hashimoto M., Hashimoto N., and Araki T. Second-harmonic-generation microscope using eight-segment polarization-mode converter to observe three-dimensional molecular orientation. *Opt. Lett.*, 32(12) :1680–1682, Jun 2007. doi : 10.1364/OL.32.001680. URL http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-32-12-1680.

Résumé

Les plus brefs flashs de lumière qui puissent être produits en laboratoire actuellement ont des durées de quelques dizaines d'attosecondes ($1\,as = 10^{-18}\,s$), et ne peuvent être créés que dans le domaine extrême-ultraviolet (XUV). Le développement de composants optiques capables de contrôler et de mettre en forme ce rayonnement attoseconde est crucial pour permettre à ces impulsions de se généraliser. Cette thèse porte donc sur l'étude et la réalisation de tels composants. Les impulsions attosecondes ont la particularité de comporter une dérivée de fréquence intrinsèque au processus utilisé pour leur génération. Cela a pour effet d'augmenter leur durée. Nous avons donc développé des miroirs multicouches capables d'induire une dérive de fréquence opposée sur les impulsions s'y réfléchissant, permettant ainsi de les compresser. En caractérisant les impulsions attosecondes réfléchies par ces miroirs, nous avons pour la première fois observé une telle compression des impulsions attosecondes. Nous avons également développé des miroirs multicouches théoriquement capables de compresser des impulsions sous la barre symbolique des 50 as, soit en dessous du record actuel de durée d'une impulsion lumineuse. La mesure de ces impulsions requiert leur focalisation dans un spectromètre. Or les miroirs focalisants généralement utilisés peuvent très rapidement introduire des aberrations géométriques. A l'aide de simulations numériques et d'une étude analytique, nous avons montré que ces aberrations pouvaient très fortement déformer la structure spatio-temporelle des impulsions attosecondes, provoquant une augmentation de leur durée. Enfin, nous avons montré que ces effets n'étaient pas pris en compte par les techniques actuelles de caractérisation d'impulsions attosecondes, cela pouvant amener à mesurer une impulsion attoseconde plus courte qu'elle ne l'est en réalité.

Mots-clés: impulsions XUV attosecondes, post-compression d'impulsions, miroirs multicouches XUV, aberrations géométriques, couplages spatio-temporels, caractérisation d'impulsions attosecondes

Abstract

The shortest flashes of light ever produced so far have durations of a few tens of attoseconds ($1\,as = 10^{-18}\,s$), and can only be generated in the extreme ultraviolet spectral range (XUV). Developing optical components able to control and shape such attosecond radiation is crucial to generalize the use of these light pulses. This is the topic of this work. Attosecond pulses happen to be chirped due to the physical process used to generate them. This phenomenon leads to an increase in their duration. Consequently, we developed inversely chirped multilayer mirrors, allowing one to compress the pulses during their reflection off the mirrors. By measuring these reflected pulses, we observed for the first time such a compression of attosecond pulses. Moreover, we developed another set of multilayer mirrors theoretically able to compress pulses below 50 as. That is below the current pulse duration record. Furthermore, the measurement of these pulses requires that they be focussed into a spectrometer. However, typically used focusing mirrors can add geometric aberrations. By the use of numerical simulations and thanks to an analytic study, we showed that these aberrations could strongly distort the spatio-temporal structure of the pulses, and increase their duration. Moreover, we showed that this phenomenon was not taken into account by current attosecond pulse characterization techniques. This could lead to determining the pulse duration to be shorter than it actually is.

Keywords: attosecond XUV pulses, pulse compression, XUV multilayer mirrors, geometric aberrations, space-time coupling, characterization of attosecond pulses