



**HAL**  
open science

# Caractérisation et contrôle des profils spatiaux, spectraux et temporels de faisceaux XUV obtenus par génération d'harmoniques d'ordres élevés dans des gaz

Ludovic Quintard

► **To cite this version:**

Ludovic Quintard. Caractérisation et contrôle des profils spatiaux, spectraux et temporels de faisceaux XUV obtenus par génération d'harmoniques d'ordres élevés dans des gaz. Autre. Université de Bordeaux, 2017. Français. NNT : 2017BORD0641 . tel-01785101

**HAL Id: tel-01785101**

**<https://theses.hal.science/tel-01785101>**

Submitted on 4 May 2018

**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.



THÈSE PRÉSENTÉE  
POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR DE  
L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR  
SPÉCIALITÉ LASERS, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

Par Ludovic QUINTARD

**Caractérisation et contrôle des profils spatiaux,  
spectraux et temporels de faisceaux XUV  
obtenus par génération d'harmoniques d'ordres  
élevés dans des gaz**

Soutenue le 12 juillet 2017

**Membres du jury :**

<i>Président :</i>	M.Philippe TAMARAT	Professeur des universités Université de Bordeaux
<i>Rapporteurs :</i>	Mme.Sophie KAZAMIAS	Professeur des universités Université Paris-Sud
	M.Edouard HERTZ	Maître de Conférence Université de Bourgogne
<i>Examineurs :</i>	M.Jaroslav NEJDL	Group leader Institute of Physics AS CR
<i>Directeur de thèse :</i>	M.Éric CONSTANT	Directeur de recherche, CNRS
<i>Encadrant de thèse :</i>	M.Fabrice CATOIRE	Chargé de recherche, CNRS



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>1 Focalisation d'harmoniques d'ordres élevés par contrôle de front d'onde du laser fondamental</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction et motivations	9
1.2 Phase spatiale des harmoniques d'ordres élevés	9
1.2.1 Phase spatiale du faisceau infrarouge générateur	9
1.2.2 Phase spatiale des harmoniques dans le milieu générateur	10
1.3 Contrôle du front d'onde du faisceau fondamental	11
1.3.1 Principe de l'optique adaptative	11
1.3.2 Dispositif utilisé	12
1.3.2.1 Analyseur de front d'onde HASO	12
1.3.2.2 Modulateur de front d'onde HIPAO	13
1.4 Dispositif expérimental	14
1.4.1 Filtrage spatial du fondamental	14
1.4.2 Spectromètre XUV à champ plan	16
1.4.2.1 Fente d'entrée	16
1.4.2.2 Réseau de diffraction sphérique	16
1.4.2.3 Galettes de micro-canaux	16
1.4.2.4 Calibration du spectromètre XUV	16
1.4.3 Imagerie du foyer du laser fondamental à pleine énergie	18
1.5 Modélisation des propriétés spatiales des faisceaux harmoniques par contrôle de front d'onde à l'émission	19
1.5.1 Présentation du modèle développé	19
1.5.2 Simulations en champ intermédiaire	21
1.5.3 Simulations en champ lointain	24
1.6 Étude expérimentale des propriétés spatiales des faisceaux harmoniques	26
1.6.1 Caractérisation du faisceau IR générateur	26
1.6.2 Rayon de courbure des harmoniques	29
1.6.3 Évolution de la taille des harmoniques en champ lointain	31
1.6.4 Focalisation des harmoniques	35
1.6.5 Filtrage spectral XUV	39

1.7	Conclusion et perspectives . . . . .	41
<b>2</b>	<b>Étude et contrôle de faisceaux harmoniques structurés spatialement</b>	<b>43</b>
2.1	Introduction . . . . .	45
2.2	Génération d'harmoniques à haute énergie dans des milieux courts et longs . . . . .	45
2.2.1	Optimisation de l'efficacité de la génération d'harmoniques par contrôle de la taille du faisceau IR . . . . .	45
2.2.2	Impact de l'iris sur les profils spatiaux des faisceaux XUV . . . . .	52
2.3	Étude paramétrique de la génération de faisceaux harmoniques structurés spatialement dans des milieux fins . . . . .	56
2.3.1	Faisceau annulaire . . . . .	56
2.3.1.1	Étude en fonction de l'ordre harmonique . . . . .	56
2.3.1.2	Impact de la longueur et de la pression du milieu générateur . . . . .	57
2.3.1.3	Influence de l'intensité du laser sur le profil annulaire . . . . .	59
2.3.1.4	Conclusion pour l'étude du faisceau annulaire . . . . .	62
2.3.2	Faisceau annulaire centré . . . . .	62
2.3.2.1	Conclusion pour l'étude du faisceau annulaire centré . . . . .	64
2.4	Simulation de l'émission d'harmoniques hors foyer . . . . .	64
2.4.1	Présentation du modèle . . . . .	64
2.4.2	Résultats . . . . .	65
2.4.3	Comparaison des résultats expérimentaux et théoriques . . . . .	67
2.5	Conclusion et perspectives . . . . .	69
<b>3</b>	<b>Contrôle spectral</b>	<b>71</b>
3.1	Introduction . . . . .	73
3.2	Contrôle spectral d'une harmonique . . . . .	73
3.2.1	Introduction . . . . .	73
3.2.2	Dispositif expérimental . . . . .	73
3.2.2.1	Calibration de la paire de prisme . . . . .	74
3.2.2.2	Effet de la phase relative entre les répliques sur le profil temporel . . . . .	75
3.2.3	Résultats pour le faisceau IR . . . . .	76
3.2.3.1	Simulations du spectre IR . . . . .	76
3.2.3.2	Résultats expérimentaux sur le spectre IR . . . . .	78
3.2.3.3	Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux . . . . .	78
3.2.4	Résultats pour le faisceaux XUV . . . . .	81
3.2.5	Conclusion . . . . .	85
3.3	Contrôle du spectre harmonique . . . . .	86
3.3.1	Introduction . . . . .	86

3.3.2	Utilisation des effets macroscopiques pour le contrôle spectral des harmoniques . . . . .	86
3.3.3	Dispositif expérimental . . . . .	87
3.3.3.1	Laser utilisé . . . . .	87
3.3.3.2	Génération et détection d’harmoniques d’ordres élevés . . . . .	89
3.3.4	Résultats expérimentaux . . . . .	90
3.3.5	Contrôle du spectre harmonique . . . . .	96
3.3.6	Conclusion et perspectives . . . . .	98
3.4	Conclusion . . . . .	99
<b>4</b>	<b>Une méthode alternative pour la caractérisation temporelle d’impulsions XUV ultrabrèves : l’ionisation par paliers assistée par XUV</b>	<b>101</b>
4.1	Ionisation par paliers assistée par XUV . . . . .	103
4.1.1	Méthode alternative pour la caractérisation temporelle d’impulsions attosecondes : l’ionisation par paliers . . . . .	103
4.1.2	Ionisation par paliers . . . . .	104
4.2	Résultats expérimentaux . . . . .	106
4.2.1	Présentation du dispositif expérimental . . . . .	106
4.2.2	Analyse des résultats expérimentaux . . . . .	108
4.3	Modélisation de l’expérience à l’aide d’équations de taux . . . . .	111
4.3.1	Description du modèle . . . . .	111
4.3.2	Modélisation des champs IR et XUV . . . . .	113
4.3.3	Détermination des taux . . . . .	114
4.3.3.1	Détermination de $\Gamma_{3s-1}^{XUV}$ et $\Gamma_{3p-1}^{XUV}$ . . . . .	116
4.3.3.2	Détermination de $\Gamma_{Ar^*}^{XUV}$ . . . . .	117
4.3.3.3	Détermination de $\Gamma_{Ar^*}^{IR}$ . . . . .	117
4.3.4	Résultats . . . . .	117
4.4	Caractérisation des impulsions XUV . . . . .	119
4.4.1	Présentation du modèle à trois niveaux . . . . .	119
4.4.2	Conclusion sur le modèle simplifié . . . . .	125
4.5	Système à cinq niveaux : Étude paramétrique . . . . .	125
4.5.1	Influence de l’intensité IR . . . . .	125
4.5.2	Influence de la durée des impulsions XUV attosecondes . . . . .	127
4.5.3	Influence du nombre de photons XUV . . . . .	129
4.5.4	Influence de la durée de l’impulsion IR . . . . .	129
4.5.5	Caractérisation d’un train d’impulsion attoseconde . . . . .	130
4.6	Conclusion et perspectives . . . . .	132
	<b>Conclusion</b>	<b>135</b>

## Résumé

Dans ce travail nous présentons nos travaux réalisés sur le contrôle de la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz. Dans un premiers temps nous montrons comment, en générant les harmoniques hors du foyer du faisceau IR, il est possible de contrôler la phase spatiale des harmoniques dans le milieu générateur permettant d'obtenir un front d'onde divergent, collimaté ou convergent. Par cette méthode nous montrons qu'il est possible de focaliser les harmoniques à des distances pouvant atteindre six longueur de Rayleigh après le point focal du faisceau IR. Nous avons ensuite étudié des faisceaux harmoniques XUV présentant des distributions spatio-spectrales en champ lointain structurées. Dans cette étude nous observons l'influence d'un iris de diamètre variable positionné avant la focalisation de l'IR. Dans un troisième temps nous étudions des méthodes de contrôle du spectre harmonique. Tout d'abord nous avons contrôlé finement la longueur d'onde centrale des harmoniques par modification du contenu spectral de l'IR en superposant deux impulsions IR retardées. Puis nous avons utilisé les effets collectifs de la génération d'harmoniques afin de favoriser une harmonique spécifique ou un groupe d'harmoniques en champ lointain. Enfin, nous présentons une méthode de caractérisation de la durée d'impulsions attosecondes dans le domaine temporel. Cette méthode, appelée ionisation par paliers, utilise l'ionisation comme sonde pour mesurer des durée d'impulsions pouvant atteindre la centaine d'attoseconde.

**Mots clés :** Génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz, structures XUV spatiales et spectrales , impulsion attosecondes, focalisation d'harmoniques, lasers femtosecondes.

---

## Abstract

We present our work on the control of high order harmonic generation in gases. We first show how, by generating the harmonics outside the focus of the IR beam, it is possible to control the spatial phase of the harmonics in the generating medium allowing to obtain a divergent, collimated or convergent wavefront. With this method we show that it is possible to focus the harmonics up to six Rayleigh length after the focal point of the IR beam. Then we study XUV harmonic beams presenting structured spatio-spectral distributions in the far field. In this study, we observe the influence of the diameter of an iris positioned before the focusing of the IR. In a third step we study methods for controlling the harmonic spectrum. First, we finely control the harmonics central wavelength by modifying the spectral content of the IR by adding two delayed IR pulses. Then we used the collective effects of the high order harmonic generation in order to foster a specific harmonic or a group of harmonics in the far field. Finally, we present a method for characterizing the duration of attosecond pulses in the time domain. This method, called ionization ladder, uses ionization as a probe to measure pulse duration of up to hundreds of attosecond.

**Keywords:** High order harmonic generation, spatial et spectral XUV structures ,attosecond pulses, harmonic focusing, femtosecond lasers.

---



# Remerciements

L'écriture des remerciements, un moment que j'ai particulièrement attendu lors de la rédaction de ce manuscrit. La route a été longue mais elle ne s'est jamais faite en solitaire et c'est pour cela que je tenais tant à écrire ces lignes.

Je tiens tout d'abord à remercier toutes les personnes qui m'ont aidé lors de ce long périple qu'est la thèse. Que vous fassiez parti du CELIA, du jury, de ma famille ou de mes amis(ies) proches, vous avez tous contribué à la concrétisation de cette thèse.

Je commence par remercier les membres de mon jury : tout d'abord, les rapporteurs, Sophie Kazamias et Edouard Hertz pour avoir eu le courage de relire mon manuscrit durant une période de vacance où il faisait très chaud. Je remercie aussi Philippe Tamarat et Jaroslav Nejdil pour les discussions scientifiques au sujet de mon manuscrit et pour avoir accepté sans attendre de participer à mon jury.

Mes remerciements vont bien évidemment à mes directeurs de thèse, Éric Constant et Fabrice Catoire, pour tout le temps qu'ils m'ont consacré et pour toutes les connaissances qu'ils m'ont apporté aussi bien sur le plan théorique qu'expérimental. Si je vous remercie aujourd'hui, ce n'est pas juste pour l'aspect formation que vous m'avez apporté mais aussi pour vos qualités humaines qui ne sont pas en reste. Vous avez toujours été présent pour me redonner confiance en moi et je ne vous remercierai jamais assez d'avoir été là quand rien n'allait bien de mon côté.

Je remercie tous les autres membres de l'équipe harmonique qui ont toujours été présent pour répondre à mes nombreuses questions et qui m'ont beaucoup aidé pour les répétitions de ma soutenance. Merci à Valérie Blanchet, Yann Mairesse, Éric Mével, Patrick Martin, Baptiste Fabre, Bernard Pons, Henri Bachau et Hervé Jouin.

Je remercie aussi toutes les équipes du laboratoire qui m'ont permis de réaliser ce travail :

- l'équipe laser, merci à Dominique Descamps (pour toutes les discussions scientifiques et les remarques bien senties), Frédéric Burgy et Clément Pejot (pour avoir fait tout ce qu'ils pouvaient afin de me fournir un beau faisceau tous les jours et pour avoir pris en compte nos différentes requêtes), Cristophe Hazera et Stephane Petit (pour m'avoir donné leur passion des lasers).
- Le service technologie, pour avoir toujours été d'une aide indispensable, merci à Anatoly Filippov, Nikita Fedorov et Laurent Merzeau (merci pour ton travail toujours très rapide et irréprochable et pour m'avoir aidé un nombre de fois incalculable à refermer ma cuve sous vide).

- Pour finir merci au service administratif, merci à Sophie Heurtebise, Emmanuelle Lesage, Celine Oum et Sonia Senut. Vous avez toujours été au top et toujours avec une très bonne humeur.

Je tiens aussi à remercier toutes les équipes avec lesquelles j'ai collaboré durant cette thèse :

- L'équipe de l'ILM. Merci à Franck Lepine, Vincent Lorient et Alexandre Marciniak pour m'avoir fait découvrir de nouvelles méthodes de travail ainsi que pour la bonne humeur durant les soirées de manip.
- L'équipe de l'Imperial College. Merci à Martin Arnold et Konstantin Holzner (pour la très bonne ambiance durant les nombreuses manip et pour les bières) et également merci à Amelle Zair et Roland Guichard pour m'avoir hébergé à Londres durant la collaboration et pour cette semaine très agréable passée à Londres.
- L'équipe du projet FLOWER au début de ma thèse pour m'avoir montré une autre façon de voir la recherche. Merci à Xavier Sarazin, François Couchot et Marcel Urban.

Pour finir les remerciements liés directement au travail de thèse je tiens à remercier des personnes qui ont été très importantes dans la réalisations des expériences. Merci à Antoine Dubrouil pour avoir eu une part très importante dans ma compréhension de la salle de manip et du travail d'expérimentateur et merci à Charles Ballage d'avoir été un stagiaire parfait et pour les nombreuses discussions sur la musique. Je tiens aussi à remercier tous ceux avec qui j'ai pu interagir dans le labo et qui m'ont permis de me sentir bien tout au long de la thèse, merci à Mathieu Dumergue, Amelie Ferre, Illia Thiele, Eirini Papagiannouli, Mokrane Hadj-Bachir et Julien Moreau.

Je vais passer maintenant à tous mes amis(ies) qui me soutiennent et qui m'ont soutenu bien avant et pendant cette thèse. Je pourrais écrire une page sur chacun d'entre vous vu le nombre de discussions importantes que j'ai eu avec vous. Malheureusement je me contenterais de vous citer mais comme vous le savez, vous êtes tous très importants pour moi.

Tout d'abord par ordre chronologique mes amis(ies) d'enfance, collègue et lycée. Merci à Fabien Bergerac, Laurent Crevon (une correction du manuscrit en très peu de temps avec pleins de commentaires "fun" malgré des mots barbares utilisés dans le manuscrit), Alexandre Prin, Mathieu Poignet, Amélie Galand, Aurélie Sans, Natacha Granger (tu m'as toujours soutenu et remonté le moral depuis des années) Simon Marquis, Thomas Pagnon, et Ksamak. Voir autant de personnes que je connais depuis des années qui se déplacent pour venir à ma soutenance m'a beaucoup ému, vous êtes les meilleurs !

Merci à tous les amis(ies) de l'IUT que j'ai rencontré il y a déjà 10 ans et avec qui je passe encore très régulièrement de très bons moments. Merci à Julien Pinta (c'est

grâce à toi que je suis venu continuer mes études à Bordeaux et je ne te remercierai jamais assez), Dimitri Péquin (pour tout le soutien moral durant les mois de rédaction et pour la correction du manuscrit en onze heures, belle perf), Michaël Ricordeau (expert technique de soutenance de thèse et ami sincère), Elodie Pineda-Ricordeau (merci d'avoir toujours été là pour moi), Jean-François Paran et Agnès Bouille (merci pour tous les très bons moments passés à tes côtés et pour tout le soutien que tu m'as apporté durant ces dernières années).

En arrivant sur Bordeaux, je ne pensais pas me faire de vrais amis(ies) car j'avais déjà pleins de personnes importantes pour moi dans ma vie. Je ne me suis que très rarement autant trompé car durant ces huit années, j'ai rencontré des personnes exceptionnelles. Merci à Morgan Vachon (le meilleur binôme de TP et un bluffeur inégalé), Kévin Bougis, Loïc Merceron, Morgane Gandil (pour m'avoir débloqué sur certains sujets et pour m'avoir montré comment prendre soin de moi), Yusuf Karakaya ("c'est compliqué"), Olivier Perié, Émilie Anonier-Frix, Jessica Pericaud, Stéphane Mandin (une pensée pour toi, je ne t'oublierai pas), David Sonfils (ça sonne bien "Sonfils"), Auriane Sonfils, Jean-Baptiste Raba (tu as toujours été présent quand il le fallait et tu as toujours su trouver les mots, merci JB), Jean-Baptiste Perraud, Quentin D'acremont, Elen Duverger Nédellec, Joyce Bou Sleiman, Chloé Merle et Jean-Gabriel Brisset (pour les débats, la création de monstre, pour ta motivation sans faille et pour le "arrête de te manger et sèche tes doigts").

Pour finir, un grand merci à ma famille, qui a toujours respecté mes choix quels qu'ils soient et m'a toujours soutenu. Merci Mamie pour nos longues conversations au téléphone toutes les semaines sur la cuisine, les voyages, les relations, bref sur tout. Merci Papi pour tous les conseils très sage que tu sais toujours placer au bon moment et pour m'avoir poussé très tôt à faire des études. Merci à mon frère et à ma sœur, Quentin et Léa, vous m'avez toujours motivé pour montrer le bon exemple et vous avez toujours montré un amour sans faille. Merci à Fabrice, depuis que l'on se connaît, tu t'es toujours énormément occupé de moi comme un fils et ce malgré une faible différence d'âge entre nous. Pour finir, merci Maman, je ne pourrai pas te remercier assez, tu es la plus forte, tu as réussi à t'occuper de moi malgré tous les malheurs du monde qui te sont tombés dessus dans mon enfance et tu as toujours été là pour moi, encore une fois merci.

Pour finir sur une note plus légère, je tiens à remercier la musique qui m'a toujours accompagné dans ma vie et qui m'accompagnera encore pour longtemps.



# Table des figures

1	Schéma de principe de l'amplification par dérive de fréquence . . . . .	2
2	Spectre harmonique calculé (a). Profil temporel reconstruit (b) après avoir sélectionné des harmoniques dans le plateau (courbe verte) ou des harmoniques de la coupure (courbe rouge) [Catoire <i>et al.</i> , 2014]. . . . .	3
3	Représentation schématique du modèle en trois étapes. Ici le paquet d'onde électronique est représenté en rouge et le puit de potentiel coulombien est représenté en bleu. Figure extraite de la thèse de Julien Higuët [Higuët, 2010]. . . . .	4
1.1	Schéma de principe de la focalisation d'harmoniques par contrôle du front d'onde du faisceau IR intersectant le jet de gaz. . . . .	11
1.2	Principe de l'optique adaptative. Le faisceau est analysé puis corrigé par un modulateur de front d'onde. . . . .	12
1.3	Figure de principe de l'analyseur de front d'onde Shack-Hartmann. . . . .	13
1.4	a) Vue de face du miroir déformable HIPAO et des moteurs pas à pas, b) Vue de coté du miroir. . . . .	13
1.5	Dispositif expérimental utilisé pour la génération d'harmoniques et leur détection. . . . .	14
1.6	Profil spatial du faisceau IR. (a) non filtré, (b) après iris et (c) après filtrage spatial. . . . .	15
1.7	Calibration du spectromètre XUV. . . . .	17
1.8	Profil spatial de faisceaux XUV générés dans le Néon et résolu spectralement pour les harmoniques 19 à 29 (a) et pour les harmoniques 29 à 49 (b). . . . .	18
1.9	Calibration du système d'imagerie. . . . .	19
1.10	Évolution de la distance de focalisation en fonction de la position du milieu générateur pour plusieurs harmoniques. La valeur de Zr est de 2,5 cm. . . . .	22
1.11	Évolution de la taille au col du faisceau XUV en fonction de la position du milieu générateur pour différentes harmoniques. La valeur de Zr est de 2,5 cm. . . . .	22

1.12	Évolution de la distance de focalisation de l’XUV en fonction de la taille du faisceau au col pour les harmoniques 29, 33, 37, 41, 45. Les différents résultats correspondent à des positions du milieu générateur variant de -100 à +100 mm. . . . .	23
1.13	Largeur spatiale à mi-hauteur pour les harmoniques 29, 33, 37, 41, 45 après 2,9 mètres de propagation. . . . .	24
1.14	Largeur spatiale à mi-hauteur de l’harmonique 45 après 2,9 mètres de propagation pour plusieurs valeurs du paramètre $\alpha$ exprimé en $10^{-14}$ cm <sup>2</sup> /W et I est exprimé en $10^{14}$ W/cm <sup>2</sup> . . . . .	25
1.15	Largeur spatiale à mi-hauteur de l’harmonique 29 après 2,9 mètres de propagation pour plusieurs tailles de faisceau au foyer. . . . .	26
1.16	Profil spatial après compression. . . . .	27
1.17	Déformation résiduelle du front d’onde du faisceau IR après correction. . . . .	27
1.18	Reconstruction du profil spatial du faisceau IR au foyer en utilisant les mesures de l’HASO. Pour cette reconstruction, le rapport de Strehl obtenu est de 0,963. . . . .	28
1.19	Profil spatial du faisceau infrarouge mesuré pour plusieurs distances au foyer IR. Non normalisé (a) et normalisé (b). . . . .	28
1.20	Largeur à mi-hauteur verticale et horizontale pour plusieurs positions longitudinales et ajustements par une fonction Gaussienne. . . . .	29
1.21	Schéma de principe de la mesure du rayon de courbure. . . . .	30
1.22	Dépendance du rayon de courbure 37 cm après le foyer IR pour deux positions du milieu générateur. . . . .	30
1.23	Profils spatiaux harmoniques obtenus pour une position du jet de gaz de : (a) 60 mm avant le foyer IR (b) 20 mm après le foyer IR. Le milieu générateur est un jet de Néon de 250 $\mu$ m et la taille du faisceau IR est de 84 $\mu$ m à $z = 0$ . L’intensité estimée est de $5,6 \times 10^{14}$ W/cm <sup>2</sup> . . . . .	32
1.24	Largeur spatiale à mi-hauteur pour les harmoniques sur les galettes de micro-canaux. (a) Pour les harmoniques basses (29 à 37) et (b) pour les harmoniques hautes (39 à 47). . . . .	32
1.25	Signal XUV émis pour plusieurs harmoniques, estimé avec le signal détecté et corrigé par la transmission par la fente. . . . .	34
1.26	Dispositif expérimental utilisé pour l’étude des harmoniques avec un laser présentant une dérive de fréquence spatiale créée par un prisme de petit angle ( $2,5^\circ$ ) situé avant l’iris et le miroir de focalisation de l’IR. . . . .	36
1.27	Spectres de l’IR pour plusieurs positions par rapport au foyer. Pour chaque position sont représentés huit spectres obtenus pour plusieurs hauteurs de la fente (hauteurs identiques pour chaque valeur de $z$ ). . . . .	36
1.28	Profil spatial de l’harmonique 29 après introduction d’une dérive de fréquence spatiale dans le faisceau IR générateur pour trois positions longitudinales du jet de gaz ( $-70$ mm, $-35$ mm et $+25$ mm). . . . .	37

1.29	Profil spatial de l'harmonique 29 après introduction d'une dérive de fréquence spatiale dans le faisceau IR générateur pour plusieurs positions longitudinales du jet de gaz. Le déplacement spatial des harmoniques est lié à un artefact de mesure. . . . .	38
1.30	Profils spatiaux des harmoniques H29 à H49 (ainsi que les ordres deux des harmoniques H59 à H67) obtenus avec un faisceau générateur IR présentant une dérive de fréquence spatiale et un jet de néon placé 50 mm avant le foyer de l'IR (z=-50). . . . .	39
1.31	Spectre Harmonique avec et sans normalisation pour plusieurs positions du milieu générateur et après transmission par le trou de filtrage XUV. . . . .	40
2.1	Réflectivité théorique d'une lame de silice présentant un revêtement en Nb <sub>2</sub> O <sub>5</sub> . Courbes extraites de CXRO. . . . .	46
2.2	Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris et pour des impulsions génératrices ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ avant l'iris. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'Argon de 20 mm située au foyer de l'IR avec une pression de 10 mbar. . . . .	47
2.3	Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris et pour des impulsions incidentes ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'Argon de 20 mm située : 75 mm après le foyer de l'IR (a) ou 75 mm avant le foyer de l'IR (b). . . . .	48
2.4	Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction de la pression dans la cellule de gaz et pour des impulsions fondamentales ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'Argon de 20 mm située 75 mm après le foyer de l'IR. . . . .	49
2.5	Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris. Pour des impulsions génératrices ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ et pour un jet pulsé d'Argon situé 75 mm après le foyer de l'IR (a). Pour plusieurs positions du milieu générateur et pour une énergie incidente de 75 mJ (b). . . . .	49
2.6	Profils spatiaux harmoniques obtenus pour les harmoniques 25 à 39 générées dans l'Argon pour plusieurs conditions. . . . .	51
2.7	Évolution du signal XUV détecté en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu gazeux (jet d'Argon de 250 μm) situé au foyer de l'IR. Les ordres harmoniques représentés vont de 19 à 27 et l'énergie des impulsions avant l'iris est de 14 mJ. . . . .	52

2.8	Évolution du signal détecté en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu gazeux (jet d'Argon de 250 $\mu\text{m}$ ) situé 13,5 cm après le foyer de l'IR (a) et situé 19 cm avant le foyer de l'IR (b). Les ordres harmoniques représentés vont de 19 à 27 et l'énergie des impulsions avant l'iris est de 14 mJ. . . . .	53
2.9	Coupe du faisceau harmonique d'ordre 19 en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu générateur situé au foyer de l'IR. L'énergie des impulsions est de 14 mJ avant l'iris et les harmoniques sont générées dans un jet d'Argon de 250 $\mu\text{m}$ . . . . .	54
2.10	Coupe du faisceau harmonique d'ordre 19 en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu générateur situé 13,5 cm après le foyer de l'IR. Résultats directs (a) et après Symétrisation (b). L'énergie des impulsions est de 14 mJ avant l'iris et les harmoniques sont générées dans un jet d'Argon de 250 $\mu\text{m}$ . . . . .	54
2.11	Coupe du faisceau harmonique d'ordre 19 en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu générateur situé 19 cm avant le foyer de l'IR. Résultats directs (a) et après symétrisation (b). L'énergie des impulsions est de 14 mJ avant l'iris et les harmoniques sont générées dans un jet d'Zrgon de 250 $\mu\text{m}$ . . . . .	55
2.12	Structures typiques observables sur les données de la FIGURE 2.10b (a) après symétrisation. Coupe de ces différentes structures (b). . . . .	56
2.13	Profils spatiaux des harmoniques 19 à 29 générées dans un jet d'Argon situé 13,5 cm avant le foyer IR pour un diamètre d'iris de 12 mm et une énergie laser de 14 mJ avant l'iris (a) et 24 mJ (b). Le jet est centré sur l'axe du laser ( $x = 0$ ) et le faisceau passe juste dessous le tube de 250 $\mu\text{m}$ ( $h = 0$ ). La structure centrale de l'harmonique 21 est un artefact dû à la lumière diffusée. . . . .	57
2.14	Coupe des profils spatiaux des harmonique 19 à 25 générées dans un jet d'Argon situé 13,5 cm avant le foyer IR pour un diamètre d'iris de 12 mm et des énergie laser de 14 mJ (a) et 24 mJ (b) avant l'iris. Le jet est centré ( $x = 0$ ) et le faisceau passe juste dessous le tube de 250 $\mu\text{m}$ ( $h = 0$ ). La structure centrale de l'harmonique 21 est un artefact dû à la lumière diffusée. . . . .	58
2.15	Schéma de principe de la position du jet de gaz par rapport au laser. Le jet est situé loin du foyer si la distance $z$ est supérieure à la longueur de Rayleigh Zr. . . . .	58

2.16 Coupes des profils spatiaux de l'harmonique 19 intégrés sur la largeur spectrale de l'harmonique sans normalisation (a) et avec (b). Ces coupes sont obtenues pour des hauteurs de jet variant de $h = 0$ mm (au plus près du faisceau IR) à $h = 4$ mm par pas de 1 mm. L'iris a un diamètre de 12 mm, l'énergie avant l'iris est de 14 mJ et le jet est pratiquement centré transversalement ( $x = -0,1$ mm). . . . .	59
2.17 Coupes des profils spatiaux de l'harmonique 19 intégrés sur la largeur spectrale de l'harmonique sans normalisation (a) et avec (b). Ces coupes sont obtenues pour des positions transverses du jet variant de $x = -0,8$ à $x = 0,8$ mm par pas de 0,4 mm. L'iris a un diamètre de 12 mm, l'énergie avant l'iris est de 14 mJ et le jet est à la hauteur minimale ( $h = 0$ mm). . . . .	60
2.18 Évolution des profils spatiaux de l'harmonique 19 intégrés sur la largeur spectrale de l'harmonique avec normalisation. Ces profils sont obtenus en faisant varier l'énergie de l'impulsion incidente. L'iris a un diamètre de 12 mm, le jet est situé 13,5 cm après le foyer et le jet est à la hauteur minimale ( $h = 0$ ) et centré transversalement ( $x = 0$ ). . . . .	61
2.19 Évolution du diamètre du profil annulaire XUV observé pour plusieurs énergies et pour plusieurs harmoniques. Les harmoniques sont générées dans un jet d'Argon de 250 $\mu\text{m}$ situé 13,5 cm après le foyer de l'IR et pour un diamètre d'iris de 12 mm. . . . .	61
2.20 Profils spatiaux des harmoniques 19 à 29 générées dans un jet d'Argon situé 9 cm avant le foyer IR pour un diamètre d'iris de 16,5 mm et des énergie laser de 17 mJ (a) et 20,5 mJ (b) avant l'iris. Le jet est centré ( $x = 0$ ) et le faisceau passe juste dessous le tube de 250 $\mu\text{m}$ ( $h = 0$ ). . . . .	63
2.21 Profils spatiaux annulaires centrés normalisés. Les harmoniques sont générées dans un jet d'Argon situé 9 cm avant le foyer IR pour un diamètre d'iris de 16,5 mm. Les coupes sont représentées pour plusieurs énergies de génération pour l'harmonique 19 (a) et pour plusieurs harmoniques (b) pour une énergie de 20,5 mJ avant l'iris. . . . .	63
2.22 Profils spatiaux XUV normalisés et générés dans un jet d'Argon situé 9 cm avant le foyer IR pour un diamètre d'iris de 16,5 mm. Ces coupes sont obtenues pour plusieurs hauteurs du jet de gaz qui changent la pression et la longueur du milieu (a) et pour plusieurs positions transverses du jet de gaz qui changent la pression dans le milieu générateur (b). . . . .	64
2.23 Profil spatial de l'harmonique 19 sans normalisation (a) et avec normalisation (b) pour plusieurs diamètres d'iris. Dans cette étude le milieu générateur est situé au foyer et le plan d'observation est situé 2,9 m après le foyer. . . . .	66

2.24	Profil IR normalisé, simulé au niveau du milieu générateur (insert sans normalisation) (a). Profil spatial XUV simulé en champ lointain normalisé (insert sans normalisation) (b). Pour l'harmonique 19 et un milieu générateur situé 13,5 cm avant le foyer. . . . .	66
2.25	Profil IR normalisé simulé au niveau du milieu générateur (insert sans normalisation) (a). Profil spatial XUV simulé en champ lointain normalisé (insert sans normalisation) (b). Pour l'harmonique 19 et un milieu générateur situé 13,5 cm après le foyer. . . . .	67
2.26	Profil spatial expérimental de l'IR 13,5 cm après le foyer. Pour un diamètre d'iris de 12 mm (a) et pour un diamètre d'iris de 14 mm (b). . . . .	68
2.27	Profil spatial harmonique expérimental et simulé observé en champ lointain généré pour un milieu générateur situé 13,5 cm après le foyer et pour un diamètre de l'iris de génération de 12,5 cm. Pour l'harmonique 19 (a) et pour l'harmonique 25 (b). . . . .	68
3.1	Dispositif de mise en forme temporelle d'impulsion. . . . .	74
3.2	Détermination de l'épaisseur de cristal pour une position du prisme de : 16 mm sur la platine de translation(a) ou 40 mm sur la platine de translation (b). . . . .	75
3.3	Effets de la phase relative entre deux impulsions de même amplitude séparées de leur largeur à mi-hauteur. . . . .	76
3.4	Spectres IR pour des épaisseurs de quartz allant de 0 à 3 mm (a). Spectre IR pour des épaisseurs de quartz de 1,2 1,4 et 3 mm (b). . . . .	77
3.5	Longueur d'onde centrale en fonction de l'épaisseur de quartz traversée. . . . .	77
3.6	Spectres IR expérimentaux pour plusieurs épaisseur de quartz (a). Spectre IR expérimentaux pour des épaisseurs de quartz de 1,215 1,224 et 1,233 mm (b). . . . .	78
3.7	Longueur d'onde centrale mesurée expérimentalement en fonction de l'épaisseur de quartz traversée. . . . .	79
3.8	Spectres IR expérimentaux pour plusieurs épaisseurs de quartz (a). Spectre IR simulé pour plusieurs épaisseurs de quartz (a). . . . .	80
3.9	Longueur d'onde centrale en fonction de l'épaisseur de quartz traversée. . . . .	80
3.10	Spectres harmoniques expérimentaux bruts obtenus avec un jet de 4 bar de Néon. Le délai entre les répliques varie de 31,97 fs pour le spectre (a) à 33,3 fs pour le spectre (f) par pas de 272 as. . . . .	82
3.11	a) : Spectre XUV généré dans le Néon en fonction du délai entre les deux impulsions. b) : Largeur des harmoniques générées par le chemin court en fonction du délai entre les deux impulsions. c) : Longueur d'onde centrale du spectre IR en fonction du délai entre les impulsions. . . . .	83
3.12	Évolution de la longueur d'onde centrale du faisceau IR ainsi que de l'harmonique 21 pour plusieurs délais. . . . .	84

3.13	Spectre XUV pour plusieurs positions du jet de gaz. . . . .	84
3.14	Spectre XUV généré dans l'Argon en fonction du délai entre les deux impulsions. . . . .	85
3.15	Diagramme d'accord de phase pour différents lieux du milieu d'interaction. (a) Sur l'axe ( $r=0$ ), au niveau du foyer ( $z=0$ ). (b) Sur l'axe, après le foyer ( $z>0$ ). (c) Sur l'axe, avant le foyer ( $z<0$ ). (d) Hors axe, avant le foyer. Figures extraites de [Balcou <i>et al.</i> , 1997]. . . . .	87
3.16	Trace d'autocorrélation des impulsions amplifiées. L'encart représente le profil spatial des impulsions laser amplifiées. . . . .	88
3.17	Représentation schématique de la chambre de génération XUV et du spectromètre XUV. . . . .	89
3.18	Réflectivité théorique des différents éléments du spectromètre : Miroir semi-réfléchissant présentant un revêtement en $Nb_2O_5$ (ligne) et miroirs présentant un revêtement en Or (ligne pointillée) à un angle de rasance de $22,5^\circ$ . La transmission totale du spectromètre (cercle et échelle de droite) est représentée pour une largeur spectrale allant de 30 à 100 eV. . . . .	90
3.19	Spectres harmoniques observés après génération dans un jet de gaz (les trois premières figures) à l'aide de MCP situées au plan image ou après émission dans une cellule de gaz semi-infinie (les trois figures inférieures) à l'aide de MCP situées 5 cm après le plan image. Les ordres harmoniques maximum observés sont 23 pour la génération d'harmoniques dans le Xenon et 31 pour la génération dans l'Argon et le Krypton. . . . .	91
3.20	Spectres harmoniques observés pour la génération dans une cellule semi-infinie pour plusieurs valeurs du diamètre de l'iris. Encart : Évolution du signal intégré en fonction du diamètre de l'iris. . . . .	93
3.21	Courant émis par la photodiode XUV protégée par deux filtres aluminium en fonction de la pression de Xénon. . . . .	94
3.22	Évolution du spectre XUV pour plusieurs diamètres d'iris après génération d'hamoniques dans une cellule semi-infinie emplie d'Argon à une pression de 200 mbar (les quatre figures supérieures) ou de Krypton (les quatre figures inférieures) pour plusieurs pressions (100 et 250 mbar) et diamètre d'iris (15 et 19 mm). On observe une sélection spectrale permettant la sélection de quelques harmoniques prédominantes. . . . .	96
4.1	Schéma de principe de l'ionisation par paliers dans un schéma où la première ionisation est réalisée par le faisceau IR (ionisation multiphotonique) et la seconde ionisation est réalisée par le faisceau XUV (ionisation simple à un photon). . . . .	105
4.2	Évolution de la population d'ions $Ar^{2+}$ en fonction du délai entre l'XUV et l'IR pour plusieurs durées d'impulsions XUV. Ces simulations sont réalisées pour l'Argon et commentées en détail dans la section 4.4. . . . .	106

4.3	Dispositif expérimental utilisé pour la génération des harmoniques et leur caractérisation par marche d'ionisation. . . . .	107
4.4	Schéma de principe d'un spectromètre d'imagerie de vecteur vitesse (VMI). . . . .	108
4.5	Spectre XUV généré dans l'Argon et détecté à l'aide de galettes de micro-canaux montrant les harmoniques 11 à 29. . . . .	109
4.6	Évolution de la population d'Ar <sup>2+</sup> en fonction du délai entre l'IR et l'XUV. La puissance IR utilisée est de 840 mW et sa durée à mi-hauteur est de 30 fs. . . . .	110
4.7	Niveaux d'énergie considérés dans ce modèle pour les ions Ar <sup>+</sup> et Ar <sup>2+</sup> . Ces niveaux sont comparés au spectre expérimental représenté en violet. Dans ce schéma de principe les atomes, ions ionisés une fois et ions ionisés deux fois sont représentés respectivement sur fond rouge, vert et bleu. . . . .	111
4.8	Niveaux d'énergie et transitions considérés dans ce modèle pour les ions Ar <sup>+</sup> et Ar <sup>2+</sup> . Les flèches violettes correspondent aux transitions à un photon XUV et les flèches rouges correspondent aux transitions IR. La flèche bleue correspond à une relaxation. . . . .	112
4.9	Spectre XUV normalisé ajusté utilisé pour les calculs. . . . .	114
4.10	Profil temporel normalisé de l'XUV obtenu après avoir utilisé la transformée de Fourier inverse sur le spectre XUV reconstruit et en considérant une dérive de fréquence nulle. . . . .	115
4.11	Sections efficaces pour les différents niveaux $3s3p^64p$ , $3s3p^65p$ et $3s3p^66p$ depuis le niveau fondamental. . . . .	115
4.12	Sections efficaces de photo-ionisation de l'Argon pour les niveaux $3s^23p^5$ et $3s3p^6$ depuis le niveau fondamental. . . . .	116
4.13	Évolution de la population d'Ar <sup>2+</sup> simulée et expérimentale en fonction du délai entre l'impulsion IR et l'impulsion XUV. Simulation réalisée pour une durée à mi-hauteur de l'IR de 25 fs, pour un train d'impulsion de 7,4 fs et pour 10 <sup>6</sup> photons par impulsion XUV. . . . .	118
4.14	Zoom de la FIGURE 4.13 sur l'évolution de la population d'Ar <sup>2+</sup> simulée en fonction du délai entre l'impulsion IR et l'impulsion XUV. . . . .	119
4.15	Niveaux d'énergie et transitions utilisés dans le modèle simplifié. . . . .	120
4.16	(a) Évolution de la population d'ions ionisés une fois et du champ IR en fonction du temps pour une impulsion IR de durée 9,6 fs à mi-hauteur. (b) Évolution de la dérivée de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps. . . . .	121
4.17	Évolution de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps pour plusieurs intensités représenté en échelle logarithmique sur l'axe des ordonnées. (a) Dans le Néon. (b) Dans l'Argon. . . . .	122

4.18 (a) Évolution de la population d'ions ionisés deux fois en fonction du délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR. (b) Évolution de la dérivée de la population d'ions ionisés deux fois en fonction du délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR. . . . .	123
4.19 Largeur de la dérivée de la population d'ions $\text{Ar}^{2+}$ en fonction de la durée de l'impulsion XUV pour une intensité IR de (a) $3,16 * 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , (b) $5,62 * 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , (c) $8,78 * 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . . . . .	124
4.20 Évolution de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps pour différentes intensités dans l'Argon pour une impulsion pompe de 400 nm. . . . .	125
4.21 (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ normalisée pour plusieurs intensités IR. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour plusieurs intensités IR. Dans ce calcul, l'impulsion IR est de durée 25 fs à mi-hauteur et l'impulsion XUV est de durée 208 as à mi-hauteur. . . . .	126
4.22 Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ en fonction du délai pour différentes intensités IR. Dans ce calcul, l'impulsion IR est de durée 25 fs à mi-hauteur et l'impulsion XUV est de durée 208 as à mi-hauteur. . . . .	127
4.23 (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour différentes durées d'impulsion attoseconde. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour plusieurs durées d'impulsion attoseconde. . . . .	128
4.24 Largeur à mi-hauteur au carré de la dérivée de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ en fonction du carré de la largeur à mi hauteur de l'impulsion XUV pour différentes intensités IR. . . . .	128
4.25 (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour plusieurs nombres de photons XUV. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour plusieurs nombres de photons XUV. . . . .	129
4.26 (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour plusieurs durées d'impulsion IR. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour plusieurs durées d'impulsions IR. . . . .	130
4.27 (a) Profils temporels considérés pour une impulsion XUV isolée, pour deux impulsions XUV et pour un train d'impulsion XUV. (b) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ pour une impulsion XUV isolée, pour deux impulsions XUV et pour un train d'impulsion XUV. . . . .	131
4.28 Largeur à mi-hauteur au carré de la dérivée de la population d' $\text{Ar}^{2+}$ en fonction du carré de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion XUV pour une impulsion isolée ou pour un train d'impulsion. . . . .	132



# Introduction

*“ Yesterday is history, tomorrow is a mystery, but today is a gift. That is why it is called the present. ”*

---

Master Oogway

Cette thèse s’est déroulée au laboratoire CELIA (Centre Lasers Intenses et Applications) au sein du groupe Harmoniques et Applications sous la direction de Éric CONSTANT et de Fabrice CATOIRE. Les expériences et simulations ont été réalisées entre 2013 et 2017 et couvrent principalement les domaines de la génération d’harmoniques obtenues par un laser de forte énergie hors foyer ainsi que le contrôle des propriétés spatiales, spectrales et temporelles des harmoniques.

## Lasers

La première émission laser a été obtenue par Théodore MAIMAN [Maiman, 1960] en 1960 et depuis presque soixante ans, les propriétés des sources laser n’ont cessé de s’améliorer. L’une des caractéristiques les plus importantes du développement des lasers est la génération d’impulsions ultra-brèves permettant de sonder des phénomènes ultra-rapides et d’induire des effets non-linéaires. En effet, les premiers lasers impulsionnels permettaient d’obtenir des impulsions nanosecondes ( $1 \text{ ns} = 10^{-9} \text{ s}$ ) mais il a fallu attendre 1981 pour que le premier laser femtoseconde ( $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$ ) soit développé [Fork *et al.*, 1981]. Ces lasers impulsionnels permettent d’obtenir des durées d’impulsions proches du cycle optique (2,66 fs pour une impulsion centrée à 800 nm). Pour amplifier ces impulsions ultra-brèves il est nécessaire de les faire traverser des milieux amplificateurs. Or, les intensités moyennes  $I_m$  peuvent, dans le cas d’impulsions ultra-brèves, devenir très importantes. L’intensité moyenne est donnée par :

$$I_m = \frac{E}{\tau.S}, \quad (1)$$

où  $E$  est l’énergie,  $\tau$  la largeur à mi-hauteur de l’impulsion et  $S$  l’aire moyenne du faisceau. Ces impulsions très intenses peuvent entraîner des effets qui détériorent les caractéristiques du faisceau, comme l’auto-modulation de phase [Shimizu, 1967], l’auto-focalisation [Marburger, 1975] ou la filamentation plasma [Hercher, 1964]. Afin de diminuer ces intensités moyennes on peut, comme le montre la formule 1, étirer

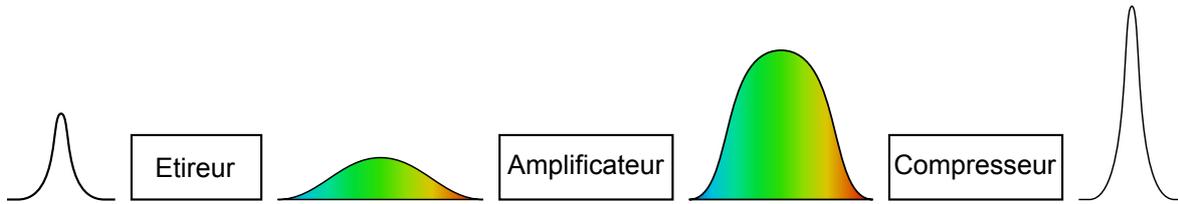


FIGURE 1 – Schéma de principe de l'amplification par dérive de fréquence

temporellement les impulsions. C'est la méthode dite CPA (Chirped Pulse Amplification) dont la démonstration a été faite par D. STRICKLAND et G. MOUROU en 1985 [Strickland et Mourou, 1985]. Le principe de la méthode est schématisé sur la FIGURE 1. Par cette méthode, pour étirer les impulsions, on va modifier la phase spectrale en utilisant un étireur. Avant de passer dans le milieu amplificateur, l'impulsion est étirée temporellement (en ajoutant une phase quadratique dans le domaine spectral). L'étireur permettra donc de réduire l'intensité crête à un niveau où les effets non-linéaires non désirés ne sont pas ou peu présents. Suite à l'amplification, l'impulsion traverse un compresseur qui recomprime temporellement l'impulsion (en ajoutant une phase opposée à celle de l'étireur) afin de retrouver sa durée initiale. Cette méthode est à la base de toutes les méthodes d'amplification d'impulsions brèves actuelles.

Il est ainsi possible de générer des impulsions ultra-brèves et de forte puissance. La durée de ces impulsions permet d'étudier des dynamiques femtosecondes à l'aide d'expériences de type pompe-sonde. Dans une expérience de type pompe-sonde, une pompe modifie un système et une sonde mesure l'état du système pour plusieurs délais après la modification.

Afin d'étudier des dynamiques électroniques dans les atomes ou les molécules, il est nécessaire d'avoir accès à une sonde plus courte que les temps caractéristiques d'évolution qui peuvent atteindre l'attoseconde ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ). Pour produire des impulsions aussi brèves, il est nécessaire d'avoir un rayonnement de spectre très large ( $\Delta\omega \times \Delta\tau_{min} = 4 \ln 2$  si l'on considère un spectre Gaussien) de l'ordre de 18 eV pour des impulsions de 100 as. Cette contrainte implique d'avoir une fréquence centrale dans l'XUV. Une telle source permettant de générer un spectre large bande dans l'XUV peut être obtenue par génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz.

### Génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz

La génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz est un processus non-linéaire qui a été mis en évidence par [McPherson *et al.*, 1987] et [Ferray *et al.*, 1988] à la fin des années 80. Ce phénomène a lieu lorsqu'un laser intense (laser "fondamental" de période optique  $T_0$  et de fréquence  $\omega_0 = \frac{2\pi}{T_0}$ , avec un éclairement de l'ordre de  $I \approx 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ) interagit avec un gaz et l'ionise. Dans ce processus,  $n$  photons à la fréquence fondamentale du laser générateur vont permettre l'émission d'un photon  $n$  fois plus énergétique de pulsation  $\omega_n = n\omega_0$ . Dans un milieu gazeux, la pseudo-période  $\frac{T_0}{2}$  du processus de génération implique que seules les harmoniques impaires sont émises. Le spectre lié

à cette émission se présente ainsi sous la forme d'un peigne de fréquences multiples impaires de la fréquence du laser générateur. Un spectre typique calculé est représenté sur la FIGURE 2a.

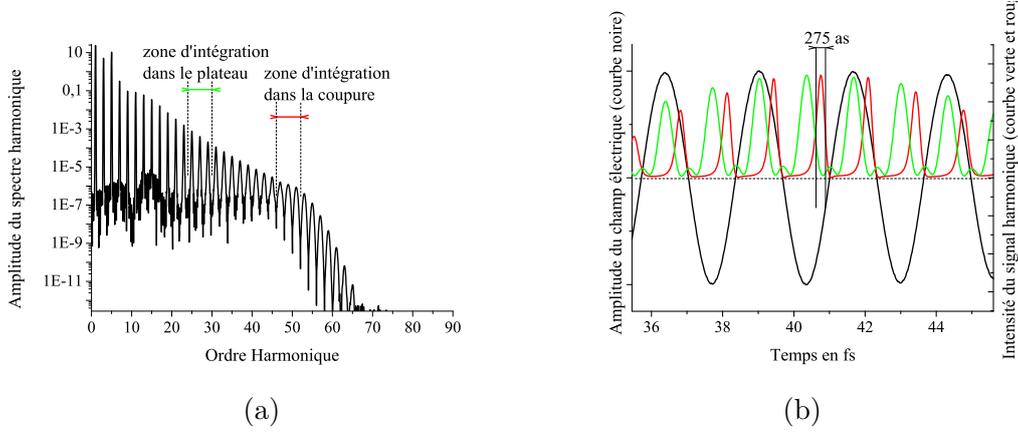


FIGURE 2 – Spectre harmonique calculé (a). Profil temporel reconstruit (b) après avoir sélectionné des harmoniques dans le plateau (courbe verte) ou des harmoniques de la coupure (courbe rouge) [Catoire *et al.*, 2014].

Le rayonnement ainsi généré possède plusieurs propriétés :

- Une même direction de propagation que le faisceau de génération ;
- Une cohérence spatiale et temporelle ;
- Il se présente sous la forme de trains d'impulsions attosecondes séparées par une demie période optique après filtrage spectral.

Des exemples de trains d'impulsions attosecondes sont représentés sur la FIGURE 2b pour la sélection de deux zones dans le spectre harmonique.

### Modélisation de la génération d'harmoniques

Dans les années 1990, une première modélisation de la génération d'harmoniques a été présentée par [Corkum, 1993] et [Schafer *et al.*, 1993]. Ce modèle semi-classique permet d'expliquer le comportement d'un atome unique dans un régime de champ fort en polarisation linéaire. Ce modèle décompose le mécanisme de génération d'harmoniques en trois étapes qui sont représentées sur la FIGURE 3 :

1. **Ionisation** : L'ionisation a lieu dans un régime où la barrière de potentiel vue par l'électron est abaissée en présence du champ laser. Une portion du paquet d'onde électronique lié est alors ionisée par effet tunnel.
2. **Accélération** : Sous l'effet du champ laser oscillant, le paquet d'électrons ionisés acquiert de l'énergie cinétique. L'énergie instantanée acquise lors de cette oscillation est proportionnelle à  $U_p$  où :

$$U_p \text{ [eV]} = 9,33 \times I [10^{14} \text{W/cm}^2] \times \lambda^2 [\mu\text{m}^2], \quad (2)$$

est l'énergie pondéromotrice. Cette énergie correspond à l'énergie moyenne d'oscillation d'un électron dans le champ laser.

3. **Recombinaison** : Une portion du paquet d'onde libéré a une probabilité non nulle de revenir à proximité de l'ion parent. Une recombinaison vers l'état fondamental est alors possible en émettant un photon XUV. L'énergie maximale des électrons dans ce cas est de  $3,2 U_p$ , donc l'énergie maximale des photons émis est de  $3,2 U_p + I_p$  où  $I_p$  est l'énergie d'ionisation.

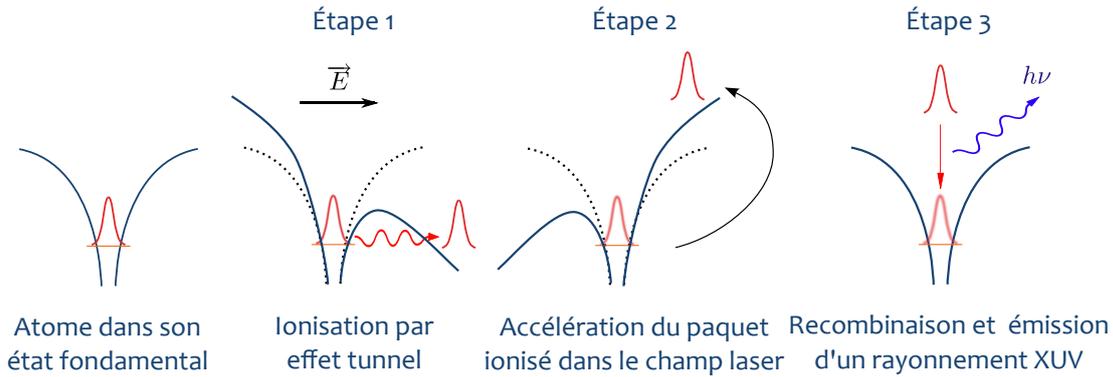


FIGURE 3 – Représentation schématique du modèle en trois étapes. Ici le paquet d'onde électronique est représenté en rouge et le puit de potentiel coulombien est représenté en bleu. Figure extraite de la thèse de Julien Higuët [Higuët, 2010].

Ce modèle, bien que relativement simple, permet de décrire la génération d'harmoniques et de reproduire quantitativement les résultats obtenus à l'aide de modèles complètement quantiques et ceux obtenus expérimentalement.

Nous allons maintenant traiter de la dépendance de la génération d'harmoniques avec l'intensité du laser générateur. Afin de contrôler la génération d'harmoniques d'ordres élevés, il est possible de modifier l'énergie des impulsions en changeant directement l'énergie du laser générateur ou en utilisant un iris de diamètre réglable sur le trajet du faisceau. Il est ainsi possible de contrôler l'ordre maximal des harmoniques en modifiant l'intensité de génération. Cependant, lorsque l'intensité de génération est trop importante, il est possible d'ioniser totalement le milieu. Il apparaît ainsi une saturation de la génération d'harmoniques qui peuvent être générées uniquement dans le front montant de l'impulsion génératrice (avant l'ionisation complète du milieu). Si l'on se place dans une gamme d'intensité permettant la génération d'harmoniques et sans observer de saturation, il est possible d'écrire l'intensité des harmoniques en fonction de l'intensité de l'IR de la manière suivante :

$$I_q = I_{IR}^{q_{eff}}. \quad (3)$$

Avec  $q$  l'ordre harmonique considéré et  $q_{eff}$  le coefficient effectif de non-linéarité.

Si l'on considère un milieu générateur infiniment fin et en supposant que l'intensité IR de génération présente un profil temporel Gaussien d'intensité  $I_{IR}$  et de phase  $\varphi_{IR}$ , nous obtenons un champ harmonique  $E_q$  de phase  $\varphi_q$  [Varjú *et al.*, 2005] :

$$E_q(t, r) = |E_{IR}(t, r)|^{\frac{q_{eff}}{2}} \exp(i\varphi_q(t, r)) \exp(iq\omega_0 t), \quad (4)$$

$$\varphi_q(t, r) = q\varphi_{IR}(r) - \alpha_q I_{IR}(t, r), \quad (5)$$

Le modèle cité ici ne prend en compte que la réponse de l'atome unique. Or le signal détecté lors d'expériences est un signal macroscopique composé des réponses individuelles de chaque émetteur qui peuvent interférer entre elles. Le champ macroscopique émis sera plus efficace lorsque la différence de phase entre les émetteurs sera la plus faible. Ces conditions d'accord de phase macroscopiques seront détaillées dans le chapitre 3.

### Motivations

Comme nous venons de le montrer, la génération d'harmoniques est un phénomène qui a bientôt trente ans. Comme toute science qui a de la maturité, certaines habitudes restent très ancrées dans la communauté.

Par exemple l'accord de phase est un phénomène qui a été majoritairement étudié par la communauté XUV que ce soit sur le plan théorique ou expérimental. Ces effets ont été confirmés dans de nombreux articles [Balcou *et al.*, 1997], [Constant *et al.*, 1999], [Kazamias *et al.*, 2003], [Mével *et al.*, 2000] et [Rundquist *et al.*, 1998] et il est accepté que les faisceaux XUV ont des profils spatiaux quasi-parfaits. Cependant, lorsque nous générons des harmoniques à l'aide d'impulsions femtosecondes de forte énergie, nous observons des harmoniques disposant de structures spatio-spectrales complexes, de front d'onde convergent et qui nous montrent que l'accord de phase n'est pas le phénomène qui joue le rôle le plus important durant la génération d'harmoniques. Il est donc crucial de comprendre l'origine physique de ces effets.

Pour les mesures de durées d'impulsions, les premières caractérisations temporelles d'impulsions attosecondes ont été démontrées en 2001 par [Hentschel *et al.*, 2001] et par [Paul *et al.*, 2001] et ont été mesurées, à l'aide de la méthode RABBITT (Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of Two-photon Transition). Il existe de nombreuses techniques pour mesurer les impulsions attosecondes et les plus utilisées sont la méthode RABBITT, la méthode FROG-CRAB [Mairesse et Quéré, 2005], l'autocorrélation [Takahashi *et al.*, 2013] [Tzallas *et al.*, 2005] et la méthode Streaking [Constant *et al.*, 1997]. Ces méthodes ont chacune leurs avantages et leurs inconvénients mais elles peuvent être séparées en deux catégories. Les méthodes réalisées directement dans le domaine temporel comme le Streaking ou l'autocorrélation et les méthodes réalisées dans le domaine spectral permettant ensuite de reconstruire le profil temporel sous certaines hypothèses comme les techniques FROG-CRAB ou RABBITT. Les rares mesures comparatives ont par ailleurs donné des valeurs différentes [Kruse *et al.*, 2010] entre les deux approches et il est nécessaire de multiplier

les méthodes de mesures afin d'avoir des méthodes qui correspondent aux contraintes expérimentales. C'est pourquoi nous avons développé une nouvelle méthode de caractérisation d'impulsions attosecondes dans le domaine temporel.

### **Plan du manuscrit**

Ce manuscrit est composé de quatre chapitres.

Le premier chapitre montre comment, à l'aide d'une génération hors foyer IR, contrôler la phase spatiale des harmoniques d'ordres élevés lors du processus de génération. Ce contrôle de la phase spatiale permet de générer des harmoniques présentant un front d'onde divergent, collimaté ou convergent. Pour le front d'onde convergent nous montrons qu'il est possible, par contrôle du processus de génération, de focaliser les harmoniques après une certaine distance de propagation.

Dans le second chapitre nous effectuons une étude sur des faisceaux harmoniques structurés spatialement. Dans cette étude nous observons l'influence d'un iris de diamètre variable, positionné avant le miroir de focalisation sur le faisceau fondamental, sur le flux de photons et nous en définissons les conditions optimales sur le flux de photons XUV. Dans un second temps, nous observons que cet iris a une forte influence sur les profils spatiaux des harmoniques ainsi émises et nous avons cherché à comprendre l'origine de ces structures.

Dans un troisième chapitre nous étudions des méthodes de contrôle du spectre d'harmonique. Tout d'abord, nous étudions le contrôle fin de la longueur d'onde des harmoniques par contrôle du contenu spectral de l'IR à l'aide de matériaux biréfringents. Dans un second temps nous utilisons les effets collectifs de la génération d'harmoniques afin de favoriser des harmoniques ou des groupes d'harmoniques dans le spectre généré.

Pour finir, dans un quatrième chapitre, nous présentons une méthode de caractérisation d'impulsions attosecondes dans le domaine temporel. Cette méthode, appelée ionisation par paliers, utilise l'ionisation comme sonde subfemtoseconde pour mesurer la durée d'impulsions attosecondes.

# Chapitre 1

## Focalisation d'harmoniques d'ordres élevés par contrôle de front d'onde du laser fondamental

*« 1.21 gigawatts! 1.21 gigawatts.  
Great Scott »*

---

Dr. Emmett Brown

### Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Introduction et motivations</b>	<b>9</b>
<b>1.2</b>	<b>Phase spatiale des harmoniques d'ordres élevés</b>	<b>9</b>
1.2.1	Phase spatiale du faisceau infrarouge générateur	9
1.2.2	Phase spatiale des harmoniques dans le milieu générateur	10
<b>1.3</b>	<b>Contrôle du front d'onde du faisceau fondamental</b>	<b>11</b>
1.3.1	Principe de l'optique adaptative	11
1.3.2	Dispositif utilisé	12
1.3.2.1	Analyseur de front d'onde HASO	12
1.3.2.2	Modulateur de front d'onde HIPAO	13
<b>1.4</b>	<b>Dispositif expérimental</b>	<b>14</b>
1.4.1	Filtrage spatial du fondamental	14
1.4.2	Spectromètre XUV à champ plan	16
1.4.2.1	Fente d'entrée	16
1.4.2.2	Réseau de diffraction sphérique	16
1.4.2.3	Galettes de micro-canaux	16
1.4.2.4	Calibration du spectromètre XUV	16
1.4.3	Imagerie du foyer du laser fondamental à pleine énergie	18
<b>1.5</b>	<b>Modélisation des propriétés spatiales des faisceaux harmoniques par contrôle de front d'onde à l'émission</b>	<b>19</b>

1.5.1	Présentation du modèle développé . . . . .	19
1.5.2	Simulations en champ intermédiaire . . . . .	21
1.5.3	Simulations en champ lointain . . . . .	24
<b>1.6</b>	<b>Étude expérimentale des propriétés spatiales des faisceaux harmoniques . . . . .</b>	<b>26</b>
1.6.1	Caractérisation du faisceau IR générateur . . . . .	26
1.6.2	Rayon de courbure des harmoniques . . . . .	29
1.6.3	Évolution de la taille des harmoniques en champ lointain . . . . .	31
1.6.4	Focalisation des harmoniques . . . . .	35
1.6.5	Filtrage spectral XUV . . . . .	39
<b>1.7</b>	<b>Conclusion et perspectives . . . . .</b>	<b>41</b>

---

## 1.1 Introduction et motivations

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un phénomène modérément efficace ( $10^{-5}$ ) et les intensités XUV utilisables sont souvent trop faibles pour étudier la physique en régime non-linéaire. Cependant, l'utilisation de lasers femtosecondes de forte énergie (lasers femtosecondes multi-milijoule permettant d'obtenir des puissances instantanées terawatts) associée à de grandes longueurs de focalisation pour l'HHG permet d'accroître le volume générateur et ainsi d'augmenter le flux de photons XUV. Cependant, cela rend les systèmes expérimentaux peu compacts (focale de 10 à 20 m)[Takahashi *et al.*, 2013]. Une alternative à cette configuration consiste à produire les harmoniques d'ordres élevés avec un système utilisant des focales plus courtes (1 à 2 m) puis de générer les harmoniques hors foyer pour augmenter le volume générateur. Or la qualité de front d'onde et du profil spatial des sources laser TW en dehors du foyer (ou de la zone de Rayleigh) réduit l'efficacité de génération des harmoniques. En effet, en dehors de cette zone, le profil spatial du faisceau fondamental n'est pas parfait et cela conduit à une détérioration du profil spatial du faisceau XUV. Notre approche consiste à corriger le front d'onde du laser et à le filtrer spatialement afin d'améliorer son profil d'intensité, ceci permettant alors l'utilisation de miroirs de focalisation ayant des focales de quelques mètres. Nous montrons ici que la génération hors foyer IR nous permet également de contrôler la phase spatiale des harmoniques d'ordres élevés lors du processus de génération. Ce contrôle de la phase spatiale nous permet d'obtenir des harmoniques d'ordres élevées comportant un front d'onde divergent, collimaté ou convergent. Avec le front d'onde convergent, nous montrons qu'il est possible de focaliser les harmoniques après une certaine distance de propagation par contrôle cohérent du processus de génération.

## 1.2 Phase spatiale des harmoniques d'ordres élevés

### 1.2.1 Phase spatiale du faisceau infrarouge générateur

Dans cette partie nous considérons l'évolution spatiale d'un faisceau IR Gaussien TEM00 dont le champ s'écrit :

$$E(r, z) = E_0 \left( \frac{w_0}{w(z)} \right) \exp \left( \frac{-r^2}{w^2(z)} \right) \exp(-i\varphi(r, z)), \quad (1.1)$$

où  $z$  est la coordonnée suivant l'axe de propagation du laser (avec origine au foyer) et où  $w(z)$  est la distance entre le centre de l'axe du faisceau et la position où l'intensité du faisceau est multipliée par  $e^{-2}$  (c'est la taille, ou col du faisceau).  $E_0$  est le champ maximal au foyer et  $w_0$  est la taille du faisceau au foyer.

L'intensité IR pour un faisceau Gaussien s'écrit :

$$I(r, z) = I_0 \left( \frac{w_0}{w(z)} \right)^2 \exp \left( \frac{-2r^2}{w^2(z)} \right). \quad (1.2)$$

Dans la formule du champ,  $\varphi$  est la phase du faisceau IR qui s'exprime comme :

$$\varphi(r, z) = \underbrace{kz}_{\text{Phase axiale}} + \underbrace{k \frac{r^2}{2R(z)}}_{\text{Phase sphérique}} - \underbrace{\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right)}_{\text{Phase de Gouy}}. \quad (1.3)$$

Par rapport à une onde plane, la phase d'un faisceau Gaussien contient deux termes supplémentaires. Une phase longitudinale (la phase de Gouy) et une phase radiale (la phase sphérique) qui est responsable de la forme sphérique du front d'onde.

- La phase de Gouy implique que l'onde gaussienne est déphasée sur l'axe d'une phase  $\varphi_G$  par rapport à une onde plane. Ce déphasage lié à l'onde gaussienne tend vers  $\frac{\pi}{2}$  pour un  $z \rightarrow -\infty$  et vers  $\frac{-\pi}{2}$  pour un  $z \rightarrow \infty$ .
- La phase radiale donne aux surfaces d'ondes des formes sphériques de rayon  $R(z) = z \left[ 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right]$ . Ainsi le rayon de courbure de la phase du faisceau laser IR varie en fonction de la position  $z$  et est minimal pour les positions  $\pm z_R$ .

## 1.2.2 Phase spatiale des harmoniques dans le milieu générateur

En considérant un milieu générateur infiniment fin et en supposant que l'intensité IR de génération présente un profil spatial Gaussien d'intensité  $I_{IR}$  et de phase  $\varphi_{IR}$ , nous obtenons un champ harmonique  $E_q$  de phase  $\varphi_q$  [Salières *et al.*, 1995] [Varjú *et al.*, 2005] [Gaarde et Schafer, 2002] [Carlström *et al.*, 2016].

$$E_q(t, r) = |E_{IR}(t, r)|^{q_{eff}} \exp(i\varphi_q(t, r)) \exp(iq\omega_0 t), \quad (1.4)$$

$$\varphi_q(t, r) = q\varphi_{IR}(r) - \alpha_q(\tau)I_{IR}(t, r), \quad (1.5)$$

où  $q$  correspond à l'ordre des harmoniques (impaires),  $\tau$  est le temps d'excursion correspond au chemin quantique considéré (trajectoire longue ou courte) et où  $q_{eff}$  est l'ordre effectif de non-linéarité de la génération qui dépend de l'intensité de génération et de l'ordre des harmoniques. L'expression (1.5) montre que la phase spatiale des harmoniques est liée à deux termes. Le terme correspondant à la phase du faisceau IR générateur ( $q\varphi_{IR}(r)$ ), induit une onde sphérique convergente avant le foyer IR et une onde sphérique divergente après le foyer. S'il n'y avait que ce terme, le front d'onde des harmoniques serait le même que celui du laser fondamental et les harmoniques se focaliseraient dans le même plan que le faisceau IR. Le deuxième terme, correspondant à la phase atomique qui apparaît lors de la génération d'harmoniques, augmente la divergence du faisceau XUV dès que le faisceau IR a un maximum d'intensité sur l'axe. Cette phase dépend de l'intensité du faisceau générateur ainsi que du coefficient  $\alpha_q$ . Ce dernier dépend lui même de l'ordre harmonique et du chemin quantique considéré  $\tau$  (chemin long, court ou coupure). Le contrôle de la phase spatiale et de l'intensité du faisceau IR générateur doit donc permettre de contrôler la phase spatiale des harmoniques émises. En jouant sur la phase de l'IR et sur son profil d'intensité, il serait

alors possible de déterminer des conditions expérimentales permettant que la phase des harmoniques corresponde à la phase d'une onde convergente, ce qui permettrait une focalisation du faisceau XUV à une distance donnée de la source de gaz. Ce phénomène est illustré sur la FIGURE 1.1.

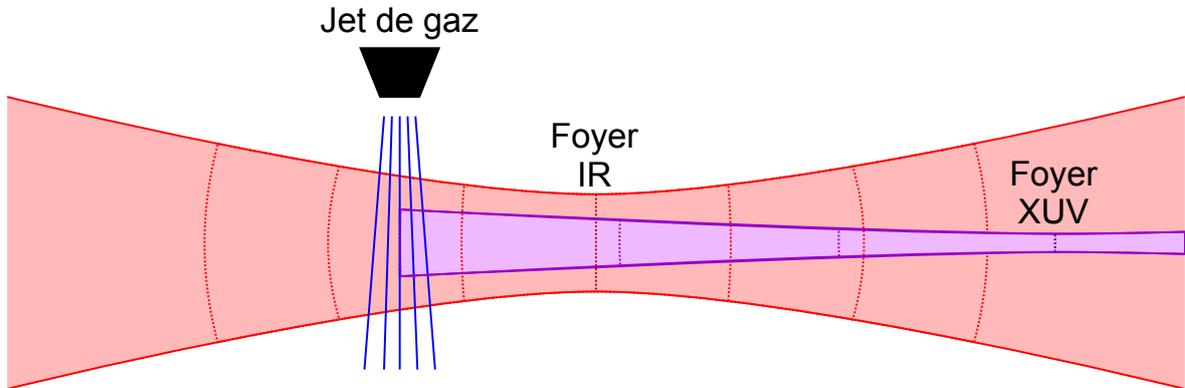


FIGURE 1.1 – Schéma de principe de la focalisation d'harmoniques par contrôle du front d'onde du faisceau IR intersectant le jet de gaz.

La formule de la phase des harmoniques (1.5) montre aussi que la phase spatiale des harmoniques est dépendante de l'ordre harmonique  $q$  ainsi que du paramètre  $\alpha$  qui varie lui même en fonction de l'harmonique considérée. Il est donc important de connaître comment se comporte la phase des harmoniques lors d'une génération hors foyer. De plus, pour les mesures ou applications relevant d'impulsions attosecondes, les méthodes utilisées supposent que le front de phase des différentes harmoniques est le même pour toutes les fréquences et qu'elles sont focalisables au même point. Hypothèses qui commencent à être remises en cause [Frumker *et al.*, 2012].

Pour contrôler au mieux la phase spatiale de l'IR dans notre expérience, la solution adoptée consiste en l'utilisation d'un miroir déformable couplé à un analyseur de front d'onde.

## 1.3 Contrôle du front d'onde du faisceau fondamental

### 1.3.1 Principe de l'optique adaptative

L'optique adaptative est une technologie permettant d'améliorer les propriétés de systèmes optiques en corrigeant les déformations de la phase spatiale de ceux-ci. Cette technologie est utilisée dans divers domaines tels que l'astronomie, la médecine, la biologie et les lasers. La méthode de l'optique adaptative peut être décomposée en trois parties.

1. L'analyse du front d'onde
2. Le calcul de la correction à apporter

### 3. La modulation du front d'onde

Après réflexion sur le modulateur de front d'onde, le faisceau à corriger est analysé par l'analyseur de front d'onde afin d'en caractériser la phase spatiale. Les caractéristiques du front d'onde sont ensuite analysées par le programme de contrôle afin de calculer les modifications à lui apporter pour effectuer la correction demandée. Celle-ci est ensuite envoyée au modulateur de front d'onde afin qu'il effectue les déformations nécessaires. Le principe de l'optique adaptative est représenté sur la FIGURE 1.2.

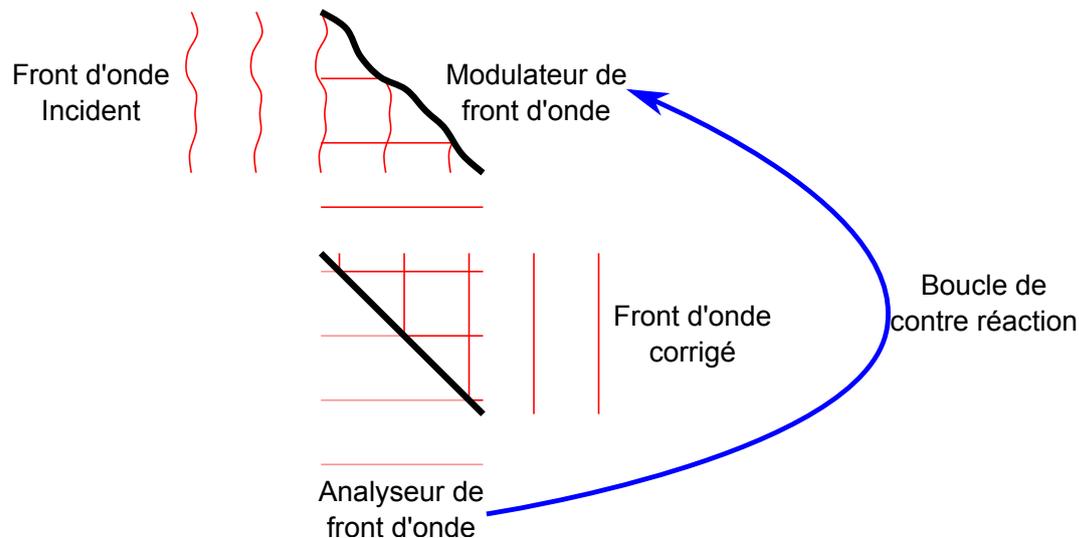


FIGURE 1.2 – Principe de l'optique adaptative. Le faisceau est analysé puis corrigé par un modulateur de front d'onde.

## 1.3.2 Dispositif utilisé

### 1.3.2.1 Analyseur de front d'onde HASO

Un analyseur de front d'onde Shack-Hartmann est composé d'une matrice de micro-lentilles ayant la même distance focale et d'un détecteur de lumière de type CCD. Chaque micro-lentille focalise une partie du faisceau incident sur le capteur CCD. La position du point focal dépend alors de la déformation locale du front d'onde du faisceau incident. Cette position varie autour d'une position de référence (déterminée lors de la fabrication de l'analyseur) correspondant à un front d'onde sans déformation. Le capteur délivre ainsi une image composée d'un nombre de taches focales correspondant au nombre de micro-lentilles. Le calcul de la distance entre la tache focale mesurée et le point de référence permet, avec un algorithme adapté, de remonter au front d'onde du faisceau. Le principe de l'analyseur de front d'onde Shack-Hartmann est représenté sur la FIGURE 1.3. L'analyseur de front d'onde utilisé dans cette expérience est un analyseur HASO 32 d'Imagine Optic. Le diamètre des micro-lentilles est de 150  $\mu\text{m}$  et leur distance focale est de 5 mm.

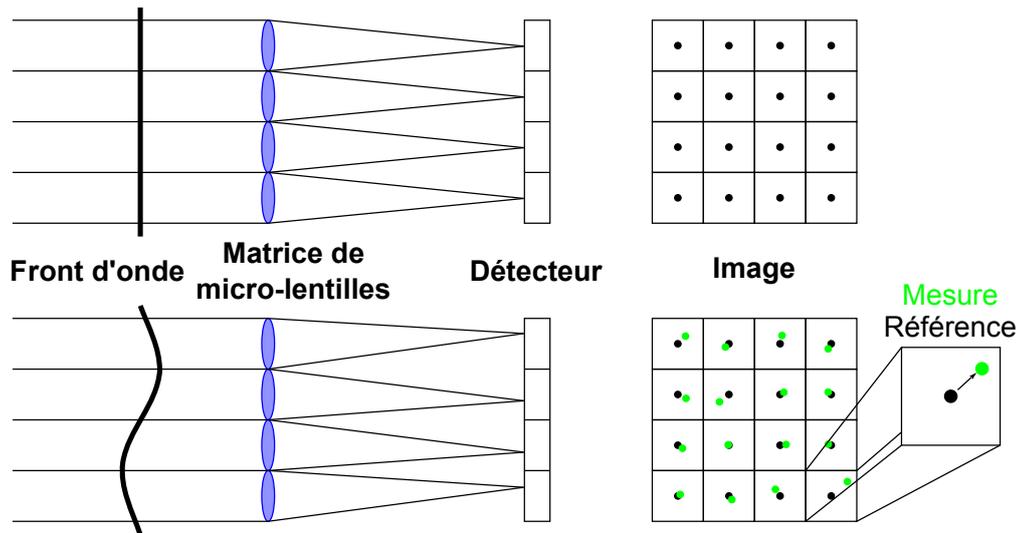


FIGURE 1.3 – Figure de principe de l'analyseur de front d'onde Shack-Hartmann.

### 1.3.2.2 Modulateur de front d'onde HIPAO

Le modulateur de front d'onde HIPAO [Canova *et al.*, 2007] [Lefaudeaux *et al.*, 2012] (High Power Adaptive Optics) est un miroir déformable développé par ISP System en collaboration avec Imagine Optic et le laboratoire CELIA. Ce miroir, composé d'un revêtement diélectrique large bande (705-920 nm) permet de tenir des flux de 170 mJ/cm<sup>2</sup> et est donc compatible avec les chaînes TW. Ce miroir, également compatible aux expériences sous vide, est composé d'un ensemble de 47 moteurs pas à pas lui permettant de conserver les corrections apportées même lorsqu'il n'est plus alimenté et garantissant une grande stabilité. La puissance des moteurs permet d'utiliser une membrane épaisse (BK7) disposant d'un revêtement réfléchissant standard.

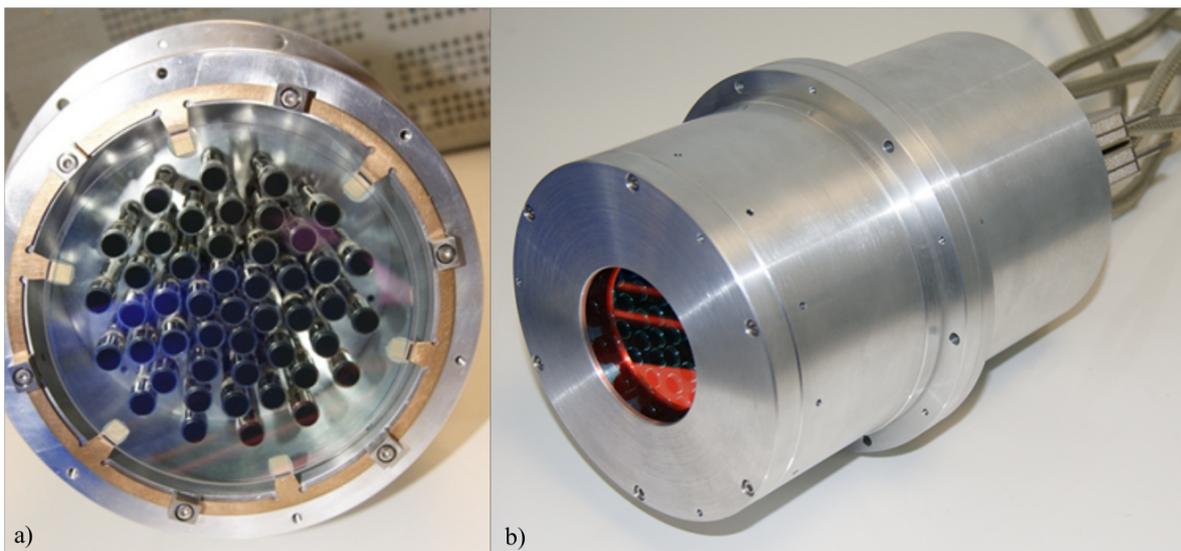


FIGURE 1.4 – a) Vue de face du miroir déformable HIPAO et des moteurs pas à pas, b) Vue de côté du miroir.

## 1.4 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé (FIGURE 1.5) est un laser TW (CPA Ti : Saph), 10 Hz, 40 fs couplé à un dispositif de filtrage spatial installé avant le compresseur. Après

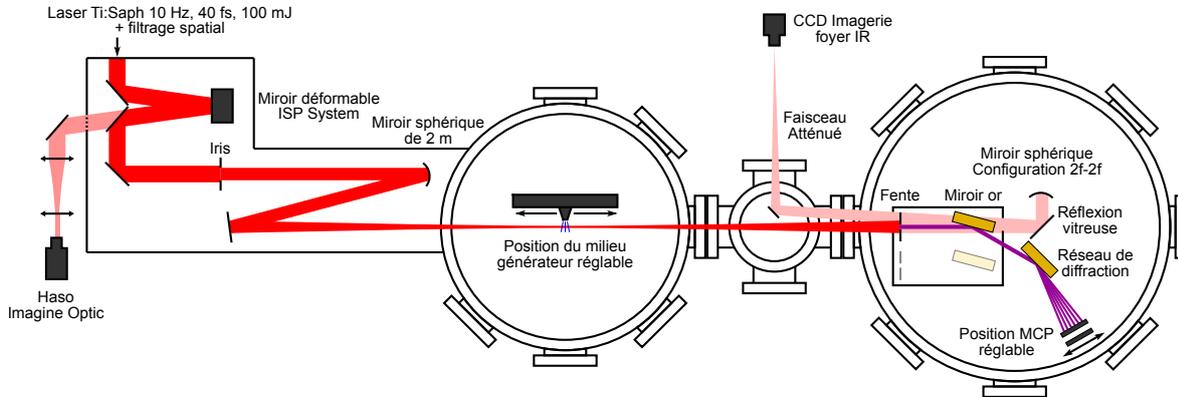


FIGURE 1.5 – Dispositif expérimental utilisé pour la génération d'harmoniques et leur détection.

compression et propagation sous vide, le front d'onde de ce laser IR est corrigé sous vide à l'aide du couple miroir déformable et analyseur de front d'onde. Le faisceau traverse un iris de diamètre 20 mm (pour un faisceau incident de 8,4 mm de FWHM) qui assure une symétrie cylindrique et est focalisé par un miroir sphérique de 2 m de focale dans un jet pulsé de Néon (250  $\mu\text{m}$  de diamètre en sortie de la tuyère cylindrique). La taille du foyer est de 98  $\mu\text{m}$  de largeur à mi-hauteur (FWHM) correspondant à une longueur de Rayleigh d'environ 3 cm ( $w_0 = 84 \mu\text{m}$ ).

Le jet est placé sur des platines de translation motorisées, ce qui permet de varier la position du milieu générateur par rapport au foyer de l'IR. Le faisceau harmonique est ensuite analysé à l'aide d'un spectromètre XUV à réseau en champ plan.

Le spectromètre est composé d'une fente d'entrée de 500  $\mu\text{m}$ , d'un miroir en or amovible puis d'un réseau XUV sphérique ("Hitachi Aberration-Corrected Concave Gratings for flat field Spectrographs" ref : 001-0660\*3) en incidence rasante qui diffracte les longueurs d'ondes XUV vers des galettes de micro-canaux équipées d'un écran phosphore couplé à une caméra CCD.

### 1.4.1 Filtrage spatial du fondamental

Le faisceau Ti : Saph amplifié utilisé dans nos expériences est initialement asymétrique et structuré spatialement (FIGURE 1.6a) ce qui est commun sur les lasers femtosecondes térawatts. Afin de réaliser au mieux notre expérience il est nécessaire de s'approcher de conditions idéales, c'est à dire avoir un faisceau IR quasi-Gaussien quelle que soit la position  $z$  d'observation et d'éviter (ou limiter) toute sur-intensité locale qui pourrait créer des modifications du front d'onde des harmoniques émises. Pour s'approcher au mieux de ces conditions, un dispositif de filtrage spatial a été installé en amont du compresseur.

Ce dispositif est constitué d'un iris qui sélectionne la partie centrale du faisceau, d'une lentille de focale 2 m focalisant dans un trou de filtrage de diamètre  $200\ \mu\text{m}$  localisé dans une cellule à vide puis d'un miroir sphérique de deux mètres de focale pour collimater le faisceau sortant.

L'intérêt de ce dispositif est que les variations rapides d'intensité du profil spatial, liées aux sur-intensités du faisceau, correspondent à des fréquences spatiales élevées qui ne sont pas focalisées sur l'axe au foyer et sont supprimées par le trou de filtrage. Dans notre système nous utilisons un trou de filtrage en verre afin de limiter l'endommagement lié à la focalisation. Il est ainsi possible, avec ce dispositif, de filtrer des impulsions étirées ayant des énergies de l'ordre de la centaine de mJ et nous observons des transmissions de l'ordre de 50 % de l'énergie incidente. Sur la FIGURE 1.6 est représenté le profil spatial du laser avant filtrage (FIGURE 1.6a), après insertion d'un iris (FIGURE 1.6b) et après passage dans le dispositif de filtrage spatial (FIGURE 1.6c).

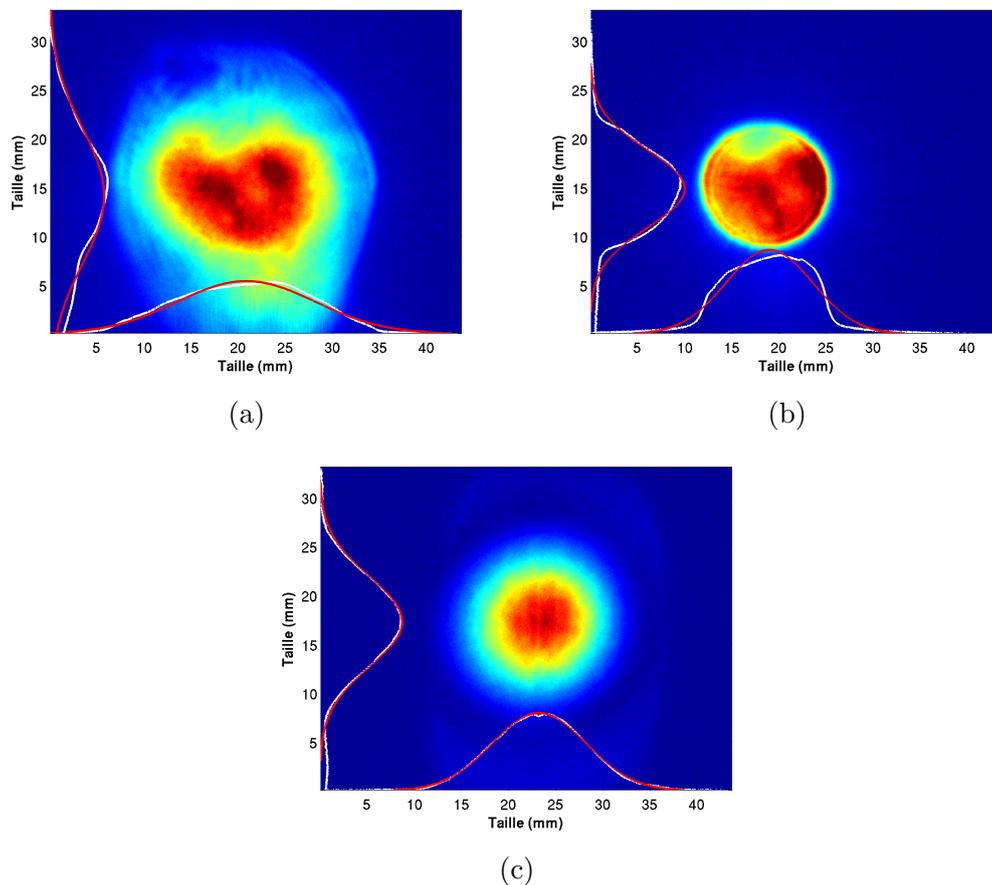


FIGURE 1.6 – Profil spatial du faisceau IR. (a) non filtré, (b) après iris et (c) après filtrage spatial.

On observe bien que le faisceau est plus symétrique et régulier après le filtrage spatial. Il reste une légère asymétrie dans le faisceau filtré. Cette asymétrie aurait pu être réduite avec un trou de filtrage plus petit mais la transmission et la stabilité auraient elles aussi été réduites. Nous avons donc accepté ce compromis qui donne un faisceau amélioré et une transmission de 50 %. Nous avons observé que ce système était

utilisable plusieurs semaines sans détérioration du trou de filtrage mais qu'il pouvait nécessiter un ré-alignement au cours de la journée.

## 1.4.2 Spectromètre XUV à champ plan

### 1.4.2.1 Fente d'entrée

La fente d'entrée du spectromètre est une fente de largeur 500  $\mu\text{m}$ , située à 1,8 m de la source, et qui définit la résolution du spectromètre XUV. La fente ainsi que le miroir de renvoi en or, situé derrière celle-ci, sont placés sur une platine de translation qui permet de ne pas utiliser le spectromètre XUV et ainsi de se servir du faisceau pour des applications ou pour d'autres dispositifs de diagnostic (photodiode XUV, imagerie de l'IR, etc...).

### 1.4.2.2 Réseau de diffraction sphérique

Afin d'analyser spectralement et spatialement les harmoniques générées, nous utilisons un réseau de diffraction sphérique à champ plan ("Hitachi Aberration-Corrected Concave Gratings for flat field Spectrographs" ref : 001-0660\*3) qui permet de diffracter les harmoniques. Ce réseau à pas variable, (1200 traits/mm) de dimensions 40 x 70 mm, est utilisé avec un angle d'incidence de  $87^\circ$ . Dans cette configuration, le réseau permet d'imager la fente sur les galettes de micro-canaux dans la dimension spectrale (axe horizontal) et de laisser diverger les harmoniques dans la dimension spatiale (axe vertical). Ceci permet d'obtenir des images résolues spectralement du faisceau XUV.

### 1.4.2.3 Galettes de micro-canaux

Les galettes de micro-canaux (MCP) sont basées sur le principe des photomultiplicateurs et permettent de détecter les photons dans la gamme des XUV. Les photons XUV diffractés par le réseau interagissent avec les MCP et provoquent l'éjection d'électrons qui sont accélérés (et multipliés) par la tension appliquée aux galettes, électrons qui viennent ensuite exciter un écran phosphore. Afin d'enregistrer les spectres XUV obtenus, l'écran phosphore est observé par une caméra CCD 12 bit. Les MCP utilisées sont de marque Photonis et de diamètre 40 mm. Elles sont placées sur une platine de translation et peuvent être déplacées pour observer plusieurs gammes de longueur d'onde. Les positions standards utilisées dans ce manuscrit sont - 40 mm (observation des harmoniques 15 à 19), -15,8 mm (observation des harmoniques 19 à 29) et 22 mm (observation des harmoniques 29 à 49).

### 1.4.2.4 Calibration du spectromètre XUV

Afin de calibrer le spectromètre XUV en longueur d'onde nous utilisons la loi des réseaux :

$$\sin r = \sin i - m \frac{\lambda}{a}, \quad (1.6)$$

où  $r$  et  $i$  sont respectivement les angles de réflexion et d'incidence, où  $m$  est l'ordre de diffraction et où  $a$  est le pas du réseau. Le réseau dispose de 1200 traits/mm, l'angle d'incidence est de  $87^\circ$  et le détecteur se trouve à 61 cm du réseau. Il nous est donc possible de déterminer l'écart angulaire entre chaque harmonique et ainsi d'en déduire la distance séparant les harmoniques sur le détecteur. Expérimentalement la distance entre chaque harmonique est mesurée (0,0447 mm/pix) et sur la FIGURE 1.7 est représentée cette distance en fonction de l'ordre harmonique. Les distances théoriques calculées à l'aide de la formule des réseaux sont représentées ainsi que les distances obtenues expérimentalement. Les distances expérimentales sont tracées pour plusieurs ordres pour la première harmonique considérée.

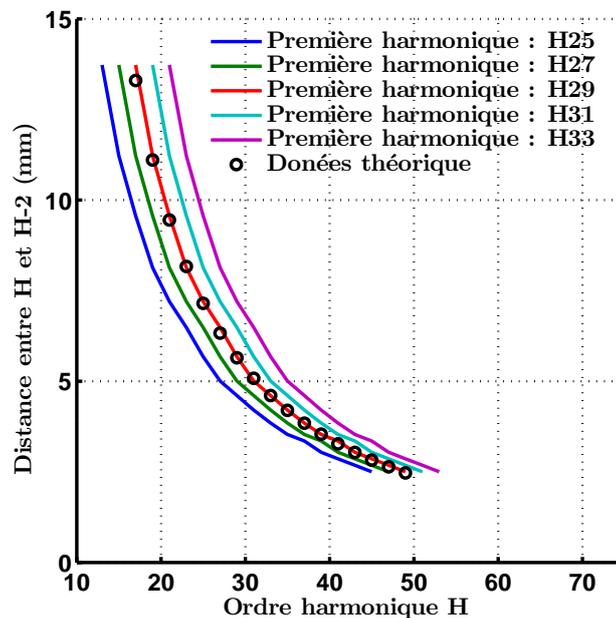


FIGURE 1.7 – Calibration du spectromètre XUV.

La FIGURE 1.7 montre que la première harmonique observée sur notre détecteur est l'harmonique 29 pour la position du détecteur considérée (MCP = 22 mm).

Ce spectromètre nous permet d'observer les profils spatiaux des harmoniques sur une grande gamme de longueurs d'onde et combine une bonne résolution spatiale (sub-millimétrique) et spectrale (qui dépend de l'ordre harmonique considéré).

La FIGURE 1.8 montre le profil spatial de faisceaux XUV générés dans le Néon et résolu spectralement. On observe clairement que le profil spatial change avec l'ordre harmonique.

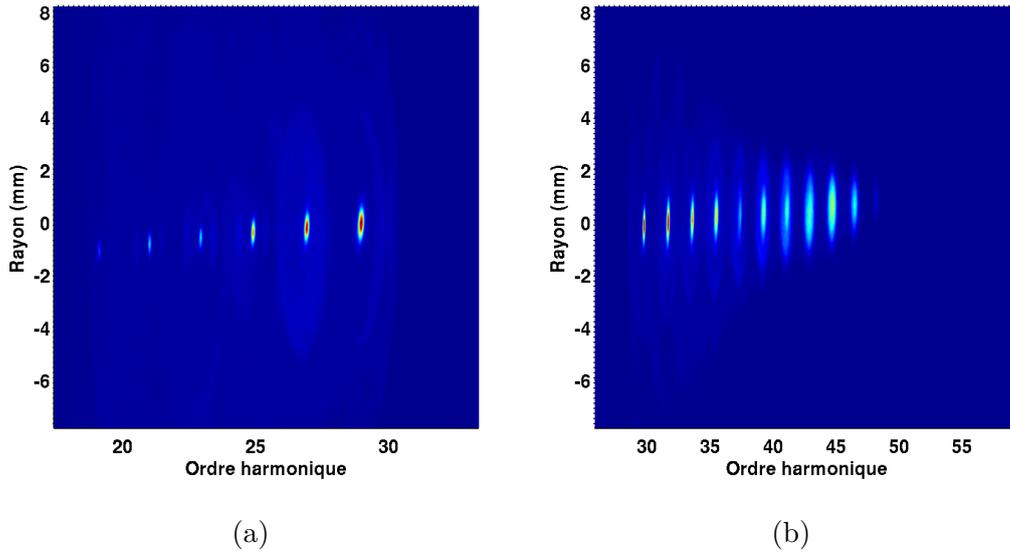


FIGURE 1.8 – Profil spatial de faisceaux XUV générés dans le Néon et résolu spectralement pour les harmoniques 19 à 29 (a) et pour les harmoniques 29 à 49 (b).

### 1.4.3 Imagerie du foyer du laser fondamental à pleine énergie

Afin de caractériser spatialement, à proximité du foyer, le faisceau IR utilisé lors de l'expérience, un dispositif d'imagerie de faisceau a été installé. Ce dispositif est constitué de deux réflexions vitreuses qui atténuent le faisceau, d'un miroir sphérique de focale un mètre situé à environ deux mètres du foyer et d'une caméra située à proximité du foyer image. Il permet d'imager le faisceau IR au foyer ainsi qu'autour du foyer en déplaçant la caméra longitudinalement. Ce système permet d'imager le faisceau IR sans devoir diminuer son énergie et ainsi d'imager le faisceau IR dans les conditions d'utilisation.

Pour calibrer le système d'imagerie suivant l'axe longitudinal, nous avons imagé un objet situé sous le jet et enregistré la position de la caméra donnant l'image la plus nette en fonction de la position du jet de gaz. On peut voir cette calibration sur la FIGURE 1.9 et celle-ci nous a permis ensuite de caractériser spatialement le faisceau IR à plusieurs positions autour du foyer.

Cette calibration nous a aussi permis de caractériser le système d'imagerie qui a un grandissement longitudinal de 0,83. On en déduit que le grandissement axial est de 0,91 ce qui est conforme aux distances objet-image mesurées.

L'ensemble de ces dispositifs expérimentaux permet de contrôler finement les conditions de génération d'harmoniques et de caractériser les faisceaux XUV émis. Avant d'analyser les résultats expérimentaux obtenus avec l'XUV, nous avons développé un modèle permettant d'étudier les caractéristiques spatiales des faisceaux harmoniques générés dans un jet de gaz.

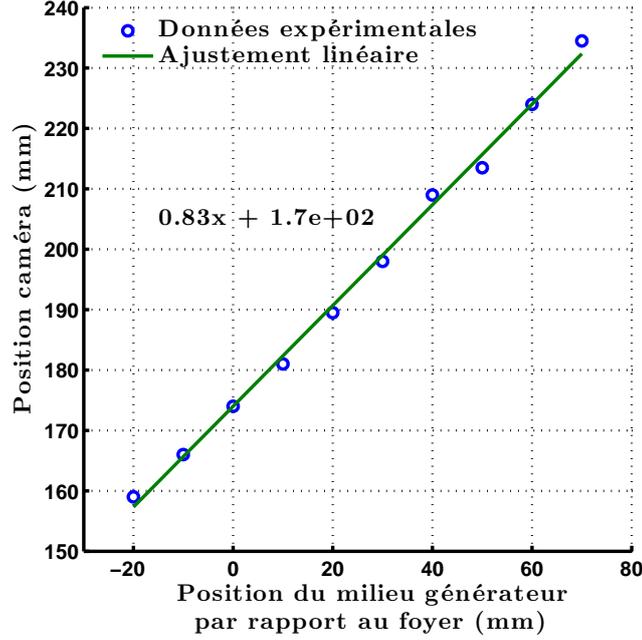


FIGURE 1.9 – Calibration du système d'imagerie.

## 1.5 Modélisation des propriétés spatiales des faisceaux harmoniques par contrôle de front d'onde à l'émission

### 1.5.1 Présentation du modèle développé

On considère les faisceaux IR et XUV comme des faisceaux Gaussiens ayant des rayons de courbure complexes  $q(z)$  donnés par :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - \frac{i\lambda}{\pi w^2(z)}, \quad (1.7)$$

où  $R(z)$  est le rayon de courbure du faisceau et où  $w(z)$  est la taille au col.

Dans le plan d'émission, la taille du faisceau XUV ( $w(z)$ )<sup>1</sup> est liée à la taille du faisceau IR ( $w_{IR}(z)$ ) par l'ordre effectif de non-linéarité  $q_{eff}$  via la formule :

$$w(z) = \frac{w_{IR}}{\sqrt{q_{eff}}}. \quad (1.8)$$

Cette formule traduit le fait que l'efficacité du processus de génération est proportionnelle à l'intensité du faisceau fondamental mise à une certaine puissance ( $q_{eff}$ ) qui traduit l'ordre de non-linéarité du processus (cf. [Introduction](#)). Cette hypothèse implique que le faisceau XUV a un profil d'intensité Gaussien si l'IR a un profil d'intensité Gaussien.

1. Pour la suite du manuscrit lorsqu'il sera question de grandeurs liées au faisceau IR, un indice "IR" sera présent sur la notation. Lorsqu'il sera question de grandeurs liées au faisceau XUV aucun indice ne sera présent à l'exception d'un indice  $q$  pour discerner l'ordre.

Lorsque l'on connaît les caractéristiques d'un faisceau Gaussien dans un plan (à savoir  $R(z)$ ,  $w(z)$ ), il est possible de connaître les caractéristiques de ce faisceau dans un autre plan et en particulier dans le plan du foyer.

Connaissant les caractéristiques du faisceau XUV dans le plan du jet, on cherche  $z$ , la position du foyer XUV par rapport au milieu générateur ainsi que la taille du foyer  $w_0$  avec  $q_0 = \frac{i\pi w_0^2}{\lambda}$ .

On a  $q(z) = q_0 + z$ , (par définition  $z > 0$  si le foyer est situé après la position du jet) ce qui donne :

$$\frac{1}{q_0 + z} = \frac{1}{R(z)} - \frac{i\lambda_q}{\pi w^2(z)}, \quad (1.9)$$

que l'on peut réécrire :

$$i \frac{\pi w(z=0)^2}{\lambda_q} + z = \frac{\frac{1}{R} + \frac{i\lambda_q q_{eff}}{\pi w_{IR}(z)^2}}{\frac{1}{R^2} + \frac{\lambda_q^2 q_{eff}^2}{\pi^2 w_{IR}(z)^4}}. \quad (1.10)$$

En identifiant les termes réels et imaginaires on obtient :

$$z = \frac{R}{1 + \frac{R^2 \lambda_q^2 q_{eff}^2}{\pi^2 w_{IR}(z)^4}}, \quad (1.11)$$

$$w_0^2 = \frac{\frac{R^2 \lambda_q^2 q_{eff}}{\pi^2 w_{IR}^2}}{1 + \frac{R^2 \lambda_q^2 q_{eff}^2}{\pi^2 w_{IR}(z)^4}}. \quad (1.12)$$

Ces résultats analytiques donnent la position du foyer XUV par rapport au milieu générateur ainsi que sa taille.

Pour connaître le rayon de courbure de l'XUV dans le plan de génération, il faut considérer sa phase spatiale.

Ici le rayon de courbure  $R$  du faisceau XUV est issu de deux contributions, l'une liée à la phase de l'infrarouge ( $q\varphi_{IR}(r)$ ) et l'autre liée à la phase atomique qui dépend de l'intensité IR ( $\alpha I_{IR}(t, r)$ ). On peut écrire :

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{R^{IR}} + \frac{1}{R^{\alpha I}}. \quad (1.13)$$

$R^{IR}$  est le rayon de courbure introduit par la phase de l'infrarouge et  $R^{\alpha I}$  est le rayon de courbure lié au terme de phase  $\alpha I_{IR}(t, r)$  provenant de la génération d'harmoniques.

Pour le premier terme, en considérant une phase sphérique de la forme  $\frac{2\pi}{\lambda} \frac{r^2}{2R(z)}$ , on remarque que le rayon de courbure est égal au rayon de courbure du faisceau IR générateur. S'il n'y avait que le premier terme, les faisceaux IR et XUV auraient la même courbure et seraient focalisés au même endroit.

Nous observons que le second terme lié à la phase atomique, inhérent au processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés, peut changer le plan de focalisation de l'XUV de manière très significative.

Pour calculer le second terme, il faut considérer l'intensité du faisceau IR qui s'écrit :

$$I_{IR}(r, z) = I_{IR} \left( \frac{w_{IR}(z=0)}{w_{IR}(z)} \right)^2 \exp \left( \frac{-2r^2}{w_{IR}^2(z)} \right). \quad (1.14)$$

En considérant une émission uniquement à proximité de l'axe optique, on peut approximer cette Gaussienne par une parabole en faisant un développement limité du profil d'intensité :

$$I_{IR}(r, z) = I_{IR} \left( \frac{w_{IR}(z=0)}{w_{IR}(z)} \right)^2 \left( 1 - \frac{2r^2}{w_{IR}^2(z)} \right). \quad (1.15)$$

Sous cette hypothèse, la phase  $\alpha I$  est identique à la phase d'une onde sphérique. On peut écrire le rayon de courbure de cette onde :

$$\frac{1}{R^{\alpha I}} = \frac{2\alpha I_0 w_{IR}(z=0)^2 \lambda_q}{w_{IR}^4(z) \pi}. \quad (1.16)$$

Il est donc possible, en faisant ces hypothèses simplificatrices ( $\alpha$  constant, émission proche de l'axe), de calculer la position du foyer de chaque harmonique ainsi que sa taille au col.

Ces formules analytiques montrent que le foyer du faisceau XUV n'est généralement pas situé à la même position que le foyer du faisceau IR et nous avons voulu étudier les caractéristiques de ces faisceaux.

## 1.5.2 Simulations en champ intermédiaire

Afin d'étudier la propagation des faisceaux harmoniques à l'aide de notre modèle, nous avons calculé la position du foyer des harmoniques par rapport au foyer de l'IR en fonction de la position du milieu générateur. Ces résultats sont représentés sur la [FIGURE 1.10](#) et montrent que les foyers XUV peuvent être très éloignés du foyer du faisceau IR.

Les calculs ont été réalisés en considérant un foyer IR de  $w_0 = 83 \mu\text{m}$ , un ordre effectif de non-linéarité  $q_{eff}$  de 4,7, un  $\alpha$  de  $3 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  et une intensité de  $5,6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  qui correspondent à nos paramètres expérimentaux typiques lors de la génération d'harmoniques dans le Néon.

Par convention, l'harmonique est focalisée après le milieu générateur lorsque la distance de focalisation calculée du faisceau XUV est positive. Si la distance de focalisation est négative, cela indique que l'harmonique est émise avec un front d'onde divergent dont le foyer virtuel se trouverait à la distance de focalisation calculée.

On observe sur la [FIGURE 1.10](#) que lorsque le milieu générateur est placé avant le foyer du faisceau IR, il est possible de focaliser le faisceau XUV nettement après le foyer IR. En particulier pour un milieu générateur localisé à  $z = -20 \text{ mm}$ , l'harmonique d'ordres 37 est focalisée à environ 15 cm après le foyer de l'IR et cet écart représente environ cinq fois la valeur de la longueur de Rayleigh de l'IR.

La taille des harmoniques au foyer XUV a aussi été calculée en fonction de la position du milieu générateur et cette taille est représentée sur la [FIGURE 1.11](#).

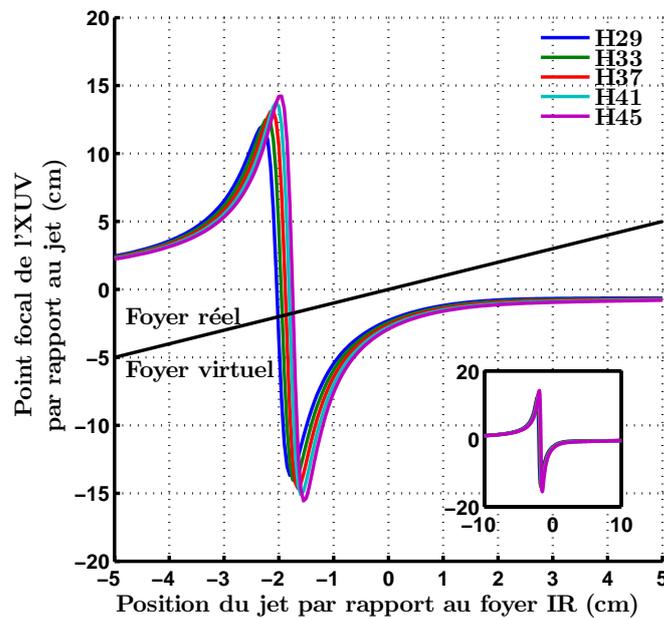


FIGURE 1.10 – Évolution de la distance de focalisation en fonction de la position du milieu générateur pour plusieurs harmoniques. La valeur de  $Z_r$  est de 2,5 cm.

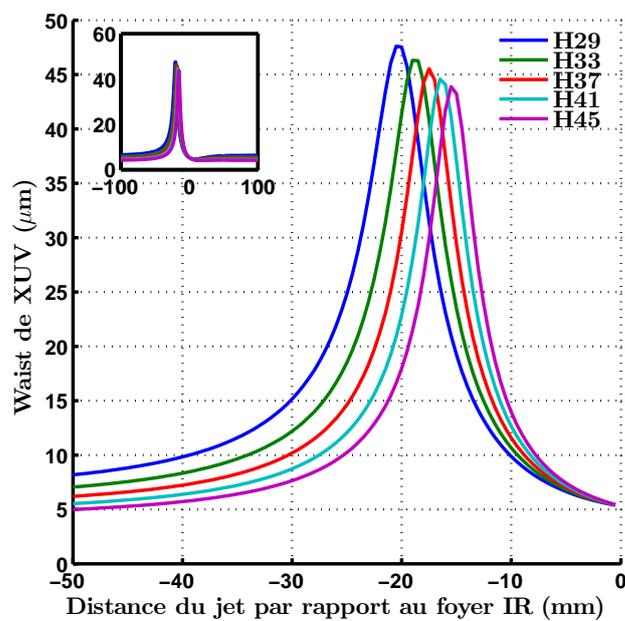


FIGURE 1.11 – Évolution de la taille au col du faisceau XUV en fonction de la position du milieu générateur pour différentes harmoniques. La valeur de  $Z_r$  est de 2,5 cm.

Sur cette figure, toutes les tailles de faisceau XUV en leur foyer sont représentées quelque soit la position du milieu générateur. Les tailles correspondant à une focalisation du faisceau XUV sont réelles (position du milieu générateur  $\lesssim -10\text{mm}$ ). Les autres tailles correspondent à la taille du foyer virtuel des harmoniques qui sont divergentes dans le milieu générateur. On observe qu'il est possible, dans ces conditions, d'obtenir des foyers XUV réels de l'ordre de la dizaine de  $\mu\text{m}$ . On observe aussi sur ces simulations qu'il est possible de modifier drastiquement cette taille en déplaçant le milieu générateur puisque les tailles vont de 5 à 45  $\mu\text{m}$ .

Pour observer plus précisément la relation entre la distance de focalisation et la taille du faisceau XUV, ces valeurs ont été représentées sur la FIGURE 1.12.

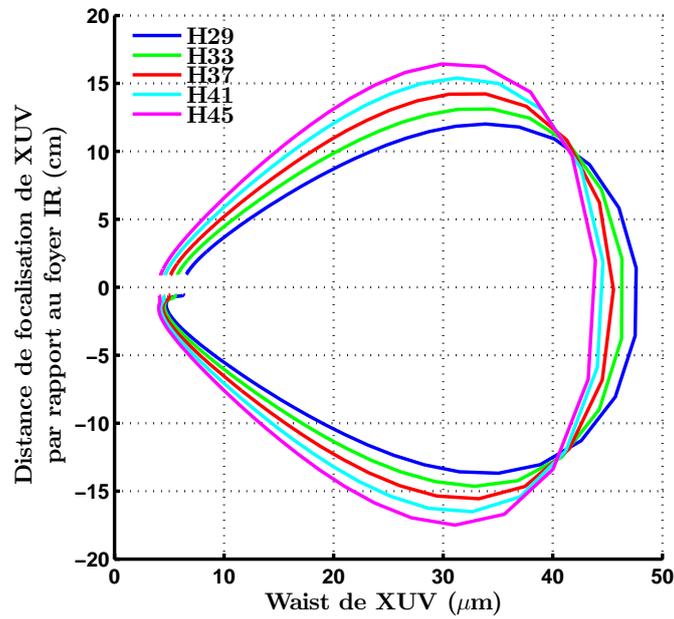


FIGURE 1.12 – Évolution de la distance de focalisation de l'XUV en fonction de la taille du faisceau au col pour les harmoniques 29, 33, 37, 41, 45. Les différents résultats correspondent à des positions du milieu générateur variant de -100 à +100 mm.

Sur cette figure la partie comprenant une ordonnée (distance de focalisation) positive (respectivement négative) correspond à des harmoniques convergentes (respectivement divergentes) dans le milieu générateur. On observe qu'il est possible de focaliser les harmoniques d'ordres élevés à environ 15 cm du foyer de l'IR (environ 5 à 6 fois la longueur de Rayleigh) pour des tailles au col de plusieurs dizaines de  $\mu\text{m}$ . Il est aussi possible de réduire la taille du col à 5  $\mu\text{m}$  simplement en déplaçant le milieu générateur. Ce changement de taille est donc très significatif dans nos conditions expérimentales et devrait être observable expérimentalement. Cependant, la caractérisation des harmoniques n'est pas possible directement sur leur plan de focalisation en raison de la forte intensité IR qui y est présente. Néanmoins la caractérisation des harmoniques est possible en champ lointain ou intermédiaire. Nous avons réalisé des simulations en

champ lointain afin d'observer l'impact de la focalisation des harmoniques sur le profil des faisceaux en champ lointain.

### 1.5.3 Simulations en champ lointain

Les galettes de micro-canaux sont situées à 2,9 m du foyer de l'IR, nous avons donc simulé la propagation des harmoniques pour calculer leurs tailles au niveau du détecteur. Les résultats sont représentés sur la FIGURE 1.13 et ont été calculés pour les mêmes paramètres que pour les simulations en champ intermédiaire ( $\alpha = 3 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$ ,  $w_{IR}(z = 0) = 83 \text{ }\mu\text{m}$  et  $q_{eff} = 4, 7$ ).

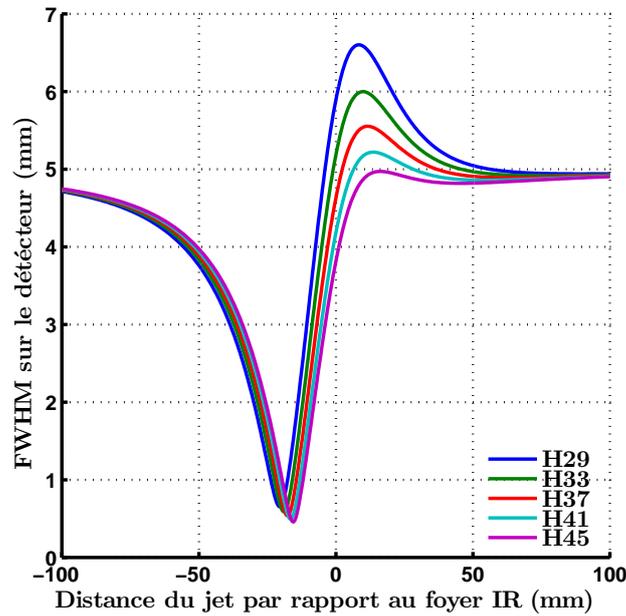


FIGURE 1.13 – Largeur spatiale à mi-hauteur pour les harmoniques 29, 33, 37, 41, 45 après 2,9 mètres de propagation.

Sur cette figure nous observons un minimum marqué de la taille des harmoniques en champ lointain pour un milieu générateur placé avant le foyer de l'IR. En comparant à la FIGURE 1.10 on observe que ce minimum de la taille des harmoniques coïncide avec un maximum de la taille du foyer XUV. Dans ces simulations, il apparaît ainsi que lorsque les harmoniques sont focalisées loin du milieu générateur, et donc que leur foyer est plus grand, le faisceau XUV a un minimum de divergence qui se traduit en champ lointain par une taille minimale.

Ces simulations ont été réalisées en considérant un paramètre  $\alpha$  constant bien qu'il existe une dépendance de  $\alpha$  avec l'ordre harmonique et l'intensité.

Une étude sur l'influence du paramètre  $\alpha$  est représentée sur la FIGURE 1.14 où  $\alpha$  est en unité de  $10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  et  $I$  est en unité de  $10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ .

Sur cette figure on remarque que quelle que soit la valeur du paramètre  $\alpha$ , l'allure générale est maintenue mais le maximum est plus ou moins prononcé. De plus, l'aug-

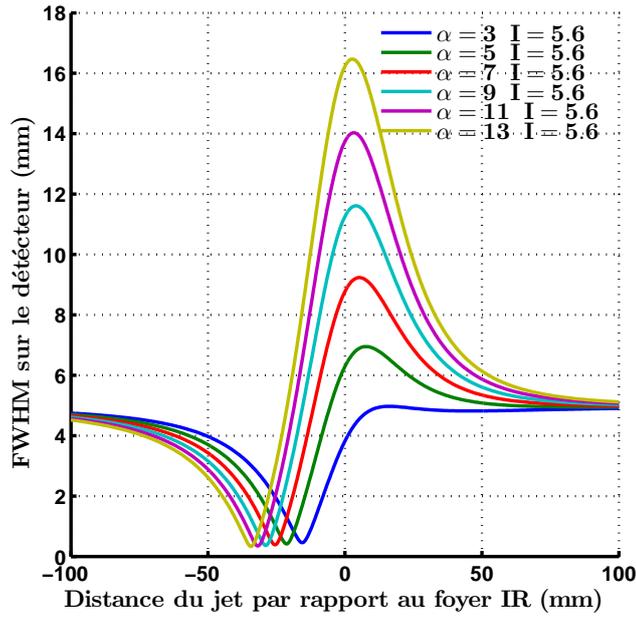


FIGURE 1.14 – Largeur spatiale à mi-hauteur de l'harmonique 45 après 2,9 mètres de propagation pour plusieurs valeurs du paramètre  $\alpha$  exprimé en  $10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W et  $I$  est exprimé en  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

mentation de ce paramètre a pour effet de déplacer le minimum vers des positions où le milieu générateur est plus éloigné du foyer de l'IR.

Une autre étude a été réalisée afin de visualiser l'impact de la taille du foyer IR sur le profil des harmoniques en champ lointain. Les résultats sont représentés sur la FIGURE 1.15. Sur cette figure nous observons que la présence d'un minimum persiste avec un changement de taille du foyer ce qui implique que l'effet observé est robuste. Par ailleurs, on observe qu'une augmentation de la taille du foyer IR entraîne d'une part un changement de la position du minimum en champ lointain et d'autre part un minimum moins marqué.

Pour conclure de manière générale sur les résultats obtenus à l'aide de ces simulations, nous avons montré tout d'abord que le foyer harmonique est rarement superposé au foyer IR. De plus, nous avons montré qu'il est possible de focaliser des harmoniques d'ordres élevés en modifiant uniquement leurs conditions de génération et de changer de manière drastique les caractéristiques du foyer XUV. Le contrôle de la position du milieu générateur par rapport à la position du foyer IR nous permet de jouer sur la phase spatiale des harmoniques générées et ainsi de les générer avec un front d'onde qui peut être soit convergent, soit divergent. Ce contrôle de la focalisation XUV nous permet d'obtenir des foyers XUV réels ou virtuels dont la taille peut varier de 5 à près de 50  $\mu$ m. Ces changements sont des changements très importants qui devraient pouvoir être observés expérimentalement, nous avons donc réalisé des campagnes expérimentales pour étudier les caractéristiques des faisceaux XUV.

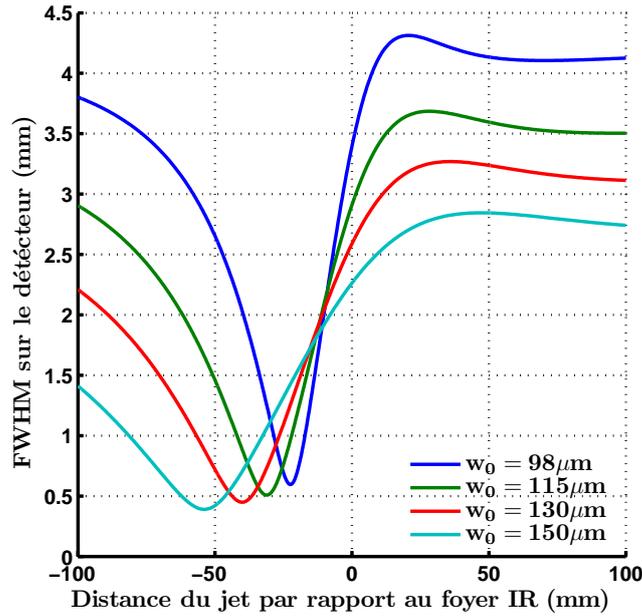


FIGURE 1.15 – Largeur spatiale à mi-hauteur de l'harmonique 29 après 2,9 mètres de propagation pour plusieurs tailles de faisceau au foyer.

## 1.6 Étude expérimentale des propriétés spatiales des faisceaux harmoniques

### 1.6.1 Caractérisation du faisceau IR générateur

Afin de caractériser le faisceau IR utilisé pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés, nous réalisons une image du profil spatial du faisceau IR entre le compresseur et le miroir de focalisation. Cette image est représentée sur la FIGURE 1.16 et montre que le faisceau est bien homogène et présente un profil quasi-Gaussien. La largeur à mi-hauteur du faisceau est de 7,86 mm sur l'axe horizontal et de 8,94 mm sur l'axe vertical, on remarque ainsi une légère asymétrie du faisceau.

Pour améliorer pleinement la qualité du faisceau IR, nous avons corrigé son front de phase en utilisant un miroir déformable. Comme on peut le voir sur la FIGURE 1.17, cette correction nous a permis d'obtenir des erreurs résiduelles sur le front d'onde de l'ordre de 8 nm RMS. Le profil du faisceau focalisé peut être simulé à l'aide des mesures obtenues par l'HASO, ce qui a permis de quantifier le rapport de Strehl à 0,963 (FIGURE 1.18). Malgré la légère asymétrie qui perdure dans cette reconstruction, ces valeurs sont très bonnes et cette approche nous a permis de nous approcher d'un faisceau IR proche d'une Gaussienne quasi-parfaite avant la focalisation.

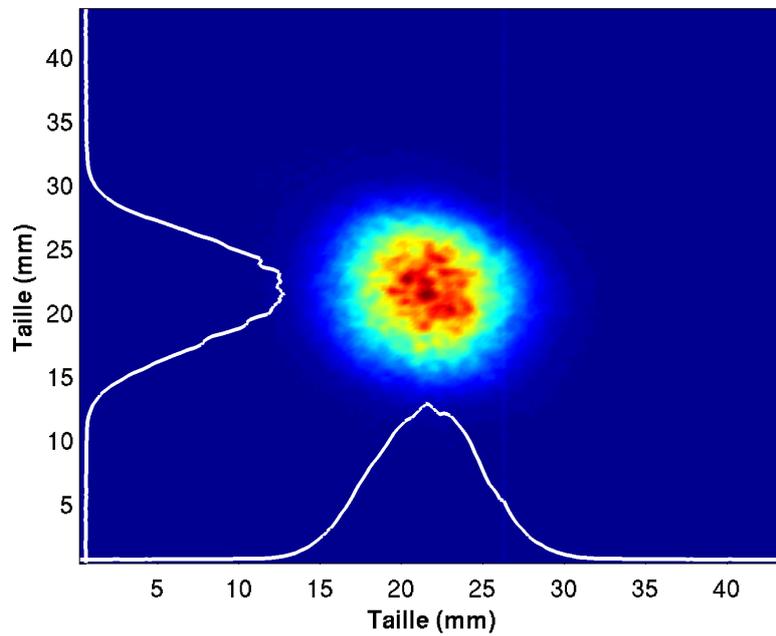


FIGURE 1.16 – Profil spatial après compression.

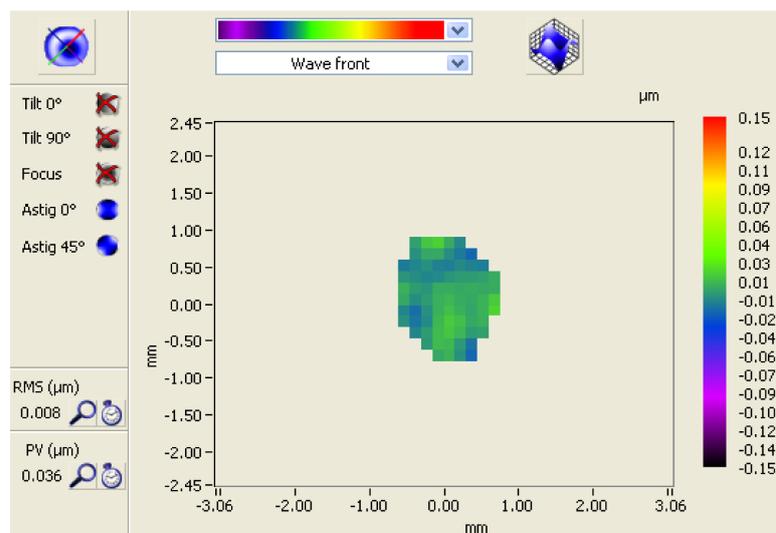


FIGURE 1.17 – Déformation résiduelle du front d'onde du faisceau IR après correction.

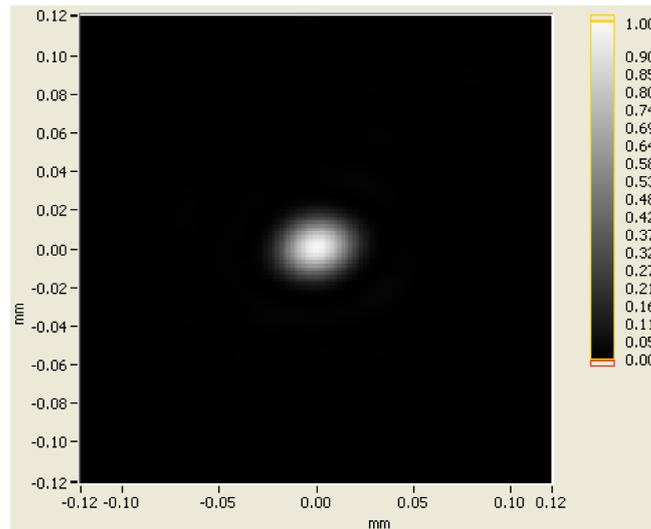


FIGURE 1.18 – Reconstruction du profil spatial du faisceau IR au foyer en utilisant les mesures de l'HASO. Pour cette reconstruction, le rapport de Strehl obtenu est de 0,963.

Nous réalisons ensuite une caractérisation du profil spatial de l'IR à proximité du foyer en utilisant le dispositif d'imagerie de faisceau précédemment décrit. Les profils spatiaux obtenus pour plusieurs positions longitudinales sont représentés sur la FIGURE 1.19.

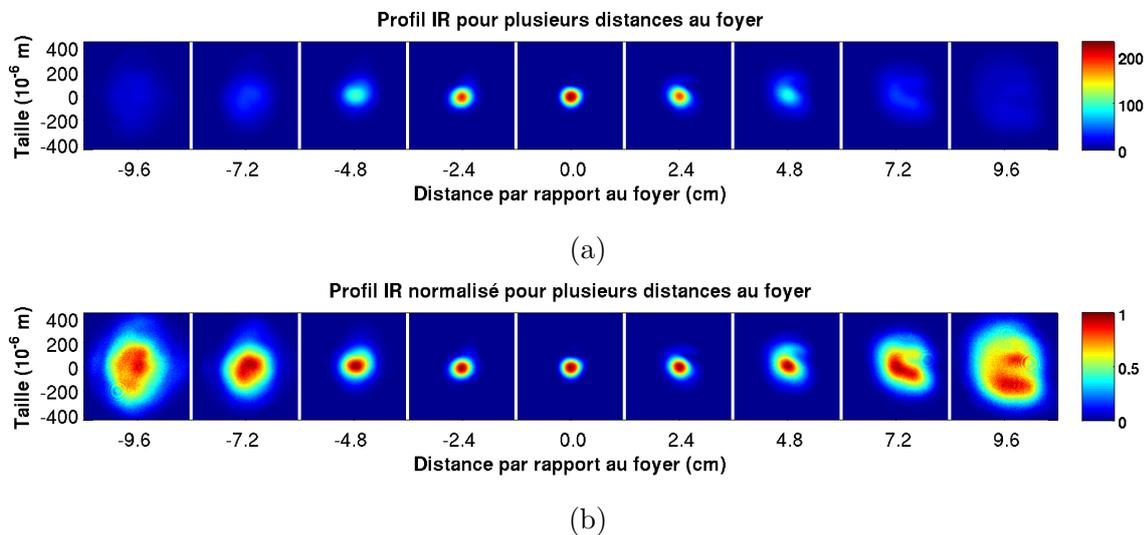


FIGURE 1.19 – Profil spatial du faisceau infrarouge mesuré pour plusieurs distances au foyer IR. Non normalisé (a) et normalisé (b).

Ces profils ont été obtenus lorsque le faisceau incident est tronqué par un iris de 20 mm de diamètre (après correction du front d'onde) et pour une focalisation réalisée par le miroir sphérique de 2 m de focale. Les différents profils spatiaux, avec et sans normalisation, sont représentés sur la FIGURE 1.19. Lorsque les faisceaux sont observés sans normalisation de l'intensité, on observe que les profils sont très réguliers aux

endroits où l'intensité est forte. Lorsque les images sont normalisées, on observe que malgré le filtrage spatial, la qualité du faisceau n'est pas parfaite en dehors du foyer et que des structures persistent dans le faisceau en particulier loin du foyer ou une asymétrie haut-bas reste visible.

Des coupes horizontales et verticales sont réalisées sur le profil IR afin d'en extraire les largeurs à mi-hauteur en fonction de la position longitudinale. L'évolution de ces largeurs est représentée sur la FIGURE 1.20 avec des ajustements Gaussiens. Nous avons dû réaliser un ajustement et les valeurs de  $M^2$  observées sont 1,0863 et 1,0175 ce qui est très proche de l'unité et confirme une bonne qualité de faisceau.

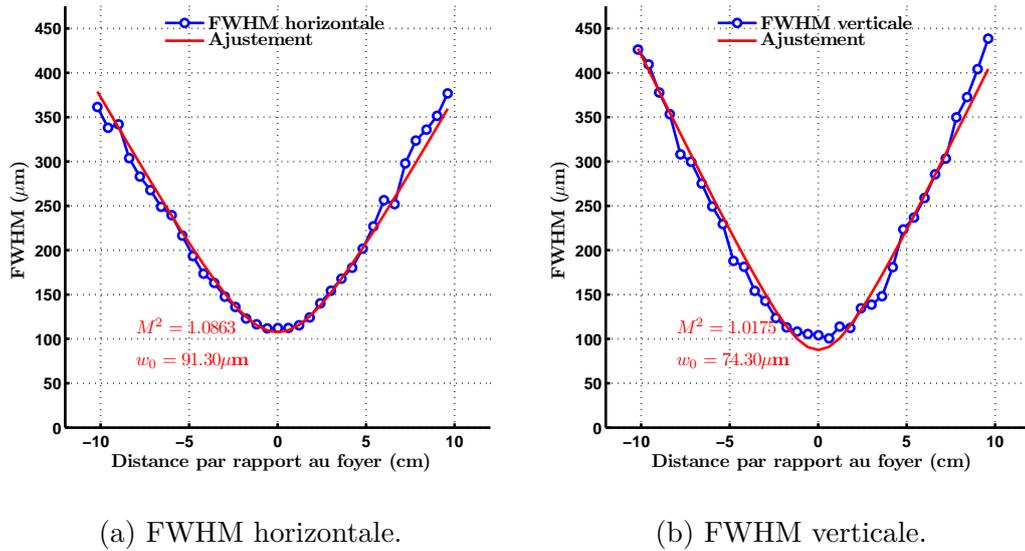


FIGURE 1.20 – Largeur à mi-hauteur verticale et horizontale pour plusieurs positions longitudinales et ajustements par une fonction Gaussienne.

On obtient donc un faisceau de taille moyenne  $\approx 83 \mu\text{m}$  ( $\text{FWHM} \approx 97,5 \mu\text{m}$ ) au foyer, qui est la valeur utilisée dans les simulations. Sur ces mesures, on remarque encore une légère différence entre la composante verticale ( $74,30 \mu\text{m}$ ) et la composante horizontale ( $91,30 \mu\text{m}$ ) du faisceau qui perdure malgré le dispositif de filtrage spatial avec une transmission de 50 %.

### 1.6.2 Rayon de courbure des harmoniques

Nous avons dans un premier temps voulu tester la dépendance de la courbure du front d'onde en fonction de l'ordre harmonique. Pour cela, nous avons mesuré le rayon de courbure de plusieurs harmoniques à 37 cm du foyer IR en plaçant un trou en verre. Ces harmoniques sont générées dans un jet de Néon situé 1 cm puis 2 cm avant le foyer de l'IR. Afin de déterminer le rayon de courbure de chaque harmonique dans ce plan, nous avons tout d'abord mesuré le front d'onde de celles-ci. Le front d'onde est mesurable localement en sélectionnant une petite partie du faisceau et en observant la direction de propagation de la lumière après cette sélection

[Frumker *et al.*, 2009][Lloyd *et al.*, 2013]. Cette sélection est réalisée à l'aide d'un trou en verre de diamètre 40  $\mu\text{m}$  déplaçable en hauteur. La mesure locale de la direction du vecteur d'onde (effectuée point par point en déplaçant le trou en hauteur) permet ensuite de remonter à la valeur du rayon de courbure du faisceau XUV dans le plan de la mesure à l'aide de la formule (1.17), comme illustré sur la FIGURE 1.21.

$$y = y_0 \left( 1 + \frac{L_{obs}}{R} \right). \quad (1.17)$$

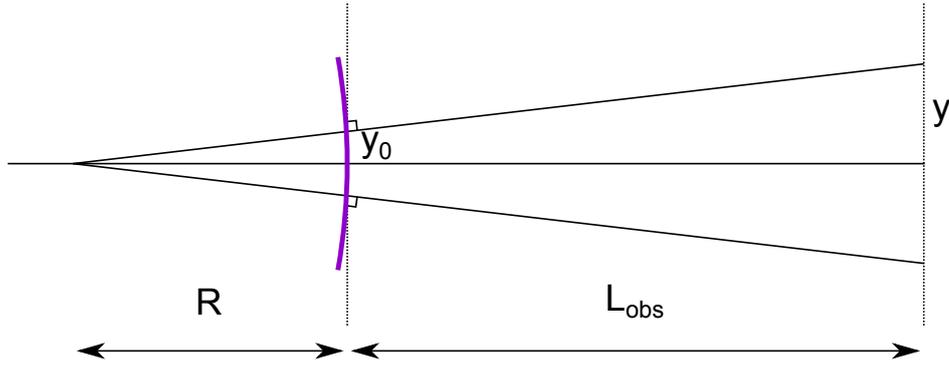


FIGURE 1.21 – Schéma de principe de la mesure du rayon de courbure.

Les rayons de courbures déterminés par cette méthode sont représentés sur la FIGURE 1.22 :

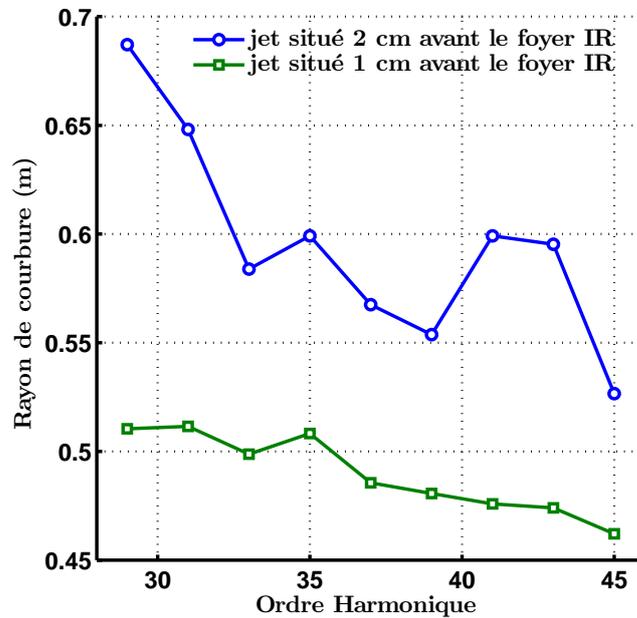


FIGURE 1.22 – Dépendance du rayon de courbure 37 cm après le foyer IR pour deux positions du milieu générateur.

On observe que le rayon de courbure décroît de manière régulière avec l'ordre harmonique. Ces mesures montrent aussi clairement que la position du milieu générateur

a un fort impact sur la courbure du front d'onde des harmoniques et que cela doit impacter les caractéristiques des faisceaux harmoniques. De manière générale, on observe sur cette figure que le rayon de courbure des harmoniques est plus grand (pour une distance d'observation de 37 cm après le foyer de l'IR) lorsque le milieu est 2 cm avant le foyer IR que lorsque le milieu se rapproche du foyer. Cette observation est en accord qualitatif avec nos simulations montrant qu'il existe un foyer XUV large et déplacé après le foyer IR lorsque le milieu générateur est situé notablement avant le foyer. Pour aller plus loin nous allons étudier l'impact de la position du milieu générateur sur la taille des harmoniques en champ lointain.

### 1.6.3 Évolution de la taille des harmoniques en champ lointain

Le but de cette expérience a été de déterminer la taille des harmoniques en champ lointain en fonction de la position du milieu générateur. Pour ce faire, nous avons généré les harmoniques dans un jet de Néon de 250  $\mu\text{m}$  déplaçable selon l'axe  $z$ , axe de propagation du faisceau IR. Nous avons fait varier la position du jet de gaz de -65 mm (65 mm avant le foyer de l'IR) à 40 mm (40 mm après le foyer de l'IR). La taille du faisceau IR est de 83  $\mu\text{m}$  au col du faisceau et l'intensité pic estimée en observant les ordres harmoniques maximaux (via le second ordre) est de  $5,6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Le dispositif de détection a un diamètre utile de 40 mm et se situe 2,90 mètres après le foyer IR.

Les profils spatiaux résolus spectralement<sup>2</sup> sont moyennés sur 100 acquisitions. Sur la FIGURE 1.23 sont représentés deux profils spatiaux harmoniques bruts correspondant chacun à une position du milieu générateur (60 mm avant le foyer et 20 mm après le foyer).

Comme on peut le voir sur la FIGURE 1.23, la taille des faisceaux harmoniques varie fortement en fonction de la position du jet de gaz. Pour l'harmonique 45, la largeur à mi-hauteur spatiale (distribution verticale) varie de 1,3 mm pour la position du jet  $z = -60$  mm à 9,7 mm pour la position du jet  $z = 20$  mm.

Sur ces images on remarque aussi que la largeur spectrale des harmoniques observées est très faible. Ceci est caractéristique des harmoniques émises via le chemin court. C'est celui que nous avons considéré dans nos simulations car, comme dit précédemment, les harmoniques émises par le chemin long sont trop divergentes pour être observées en champ lointain par notre détecteur dans ces conditions.

Pour un ordre harmonique donné, nous avons ensuite extrait la largeur à mi-hauteur (FWHM) sur le détecteur en fonction de la position du milieu générateur par rapport au foyer de l'IR. Le résultat est présenté sur la FIGURE 1.24 où un minimum de la taille des harmoniques est observé pour les harmoniques d'ordres inférieurs à trente-neuf lorsque le milieu générateur est situé avant le foyer du faisceau IR.

La position du minimum change avec l'ordre harmonique considéré. Plus l'ordre

---

2. Que l'on nommera profils spatiaux harmoniques par la suite

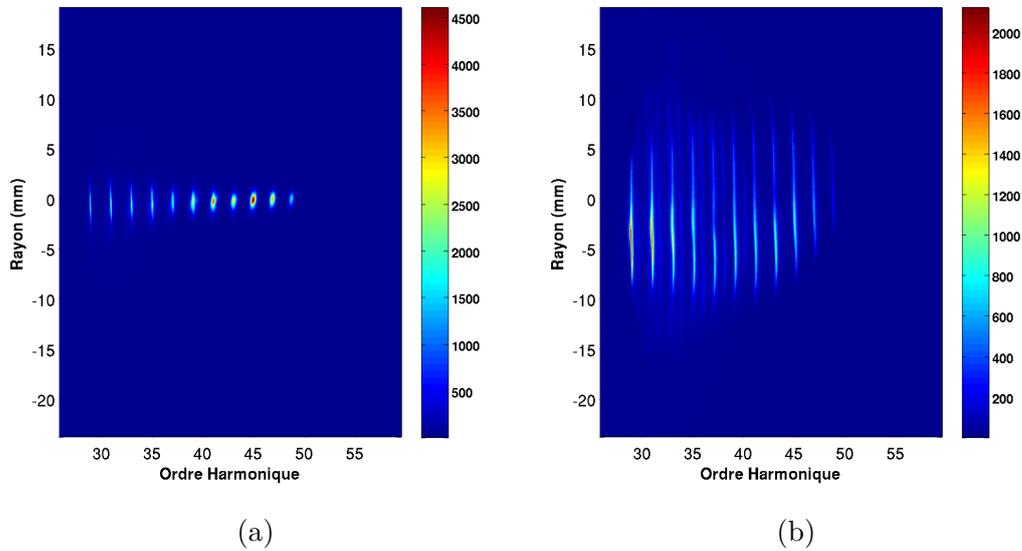


FIGURE 1.23 – Profils spatiaux harmoniques obtenus pour une position du jet de gaz de : (a) 60 mm avant le foyer IR (b) 20 mm après le foyer IR. Le milieu générateur est un jet de Néon de  $250 \mu\text{m}$  et la taille du faisceau IR est de  $84 \mu\text{m}$  à  $z = 0$ . L'intensité estimée est de  $5,6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ .

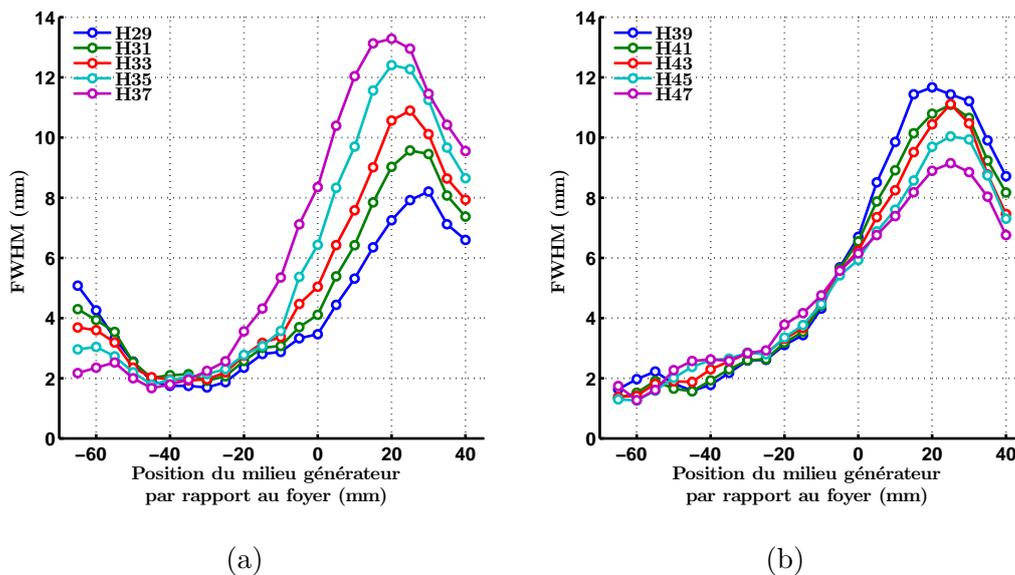


FIGURE 1.24 – Largeur spatiale à mi-hauteur pour les harmoniques sur les galettes de micro-canaux. (a) Pour les harmoniques basses (29 à 37) et (b) pour les harmoniques hautes (39 à 47).

harmonique augmente, plus la taille minimale est obtenue pour une position du jet éloignée du foyer. Pour les harmoniques basses, ce minimum est suivi d'une augmentation pour des  $z$  inférieurs à -40 mm. Pour les harmoniques les plus hautes, cette remontée n'est pas observée. Pour toutes les harmoniques, on observe un maximum prononcé de la largeur des faisceaux lorsque le milieu générateur est situé 20 à 30 mm après le foyer du faisceau IR.

De manière globale les courbes mesurées pour les harmoniques basses reproduisent qualitativement les tendances observées dans les simulations qui montrent un minimum de largeur des harmoniques en champ lointain lorsque le milieu est situé avant le foyer IR et un maximum lorsque le milieu est situé après le foyer IR. Les tailles observées autour du maximum sont assez importantes et correspondent plus aux simulations réalisées avec des  $\alpha$  grands (FIGURE 1.14) qu'à celles réalisées avec  $\alpha = 3 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  (FIGURE 1.13).

Les tailles minimales mesurées (de 1,3 à 2 mm) sont aussi nettement plus grandes que les tailles simulées (environ 0,5 mm). Ceci peut être dû à la présence d'aberrations sur le front d'onde XUV qui n'est pas parfaitement sphérique comme supposé dans nos simulations. Ceci peut aussi être dû au fait que le paramètre  $\alpha$  n'est pas uniquement défini pour chaque harmonique mais varie plutôt autour d'une valeur moyenne [Gaarde et Schafer, 2002].

Nous observons nettement que le minimum de divergence varie avec l'ordre harmonique et que la divergence évolue de manière régulière avec cet ordre. Ce minimum est obtenu pour des courtes distances pour les harmoniques basses ( $z \simeq -30$  mm pour H29) et pour des distances plus grandes pour les harmoniques d'ordres plus élevés ( $z \simeq -40$  mm pour H37). Ceci ne correspond pas aux simulations réalisées avec un  $\alpha$  constant (FIGURE 1.13) pour lesquelles toutes les harmoniques ont approximativement leurs minima à la même position. En revanche, ces observations expérimentales correspondent bien aux résultats obtenus lorsque  $\alpha$  varie (FIGURE 1.14). Pour ces simulations plus l'on augmente  $\alpha$  plus la position du minimum est obtenue pour un jet loin du foyer. Il est maintenant bien établi que  $\alpha$  change avec l'ordre harmonique [Corsi et al., 2006] [Carlström et al., 2016] [He et al., 2009] et qu'il passe graduellement d'une faible valeur pour les harmoniques basses à une valeur plus grande pour les harmoniques plus élevées, pour les harmoniques générées via le chemin court. Cette augmentation de  $\alpha$  avec l'ordre harmonique pourrait expliquer les observations expérimentales pour les harmoniques basses (FIGURE 1.24a). Pour les harmoniques les plus hautes (FIGURE 1.24b), nous observons une diminution de la divergence avec l'ordre harmonique ce qui correspond à l'évolution attendue avec  $\alpha$  constant. Pour rendre compte des observations expérimentales, il faudrait accepter que  $\alpha$  augmente régulièrement de l'harmonique 29 à 37 et reste constant pour les harmoniques d'ordres supérieurs. Cette évolution a été observée dans [Catoire et al., 2016] où il est montré que pour les trajectoires courtes la divergence augmente lorsque  $\alpha$  augmente.

Dans le futur et pour aller au delà du modèle simple que nous avons développé,

il serait intéressant d'implémenter les variations de  $\alpha$  avec l'ordre harmonique et avec l'intensité laser dans le milieu générateur.

Les mesures réalisées nous ont aussi permis d'estimer le flux de photons XUV en fonction de la position du milieu générateur. Cette efficacité est un paramètre que nous n'avons pas considéré dans les simulations. Le signal XUV détecté dans le spectromètre varie fortement avec les conditions de génération et ne représente qu'une partie du signal harmonique émis en raison de la transmission limitée du spectromètre. Pour estimer le signal total harmonique émis, nous avons dû considérer la transmission du spectromètre qui varie en fonction de la taille du faisceau XUV sur la fente d'entrée. Avec des faisceaux Gaussiens de largeur FWHM, la transmission  $T$ , au travers d'une fente de largeur  $L$ , peut être estimée de manière analytique et suit la loi :

$$T = \operatorname{erf} \left( L \times \frac{\sqrt{\ln 2}}{\text{FWHM}} \right). \quad (1.18)$$

Cette loi implique qu'un petit faisceau XUV sera efficacement transmis par le spectromètre alors qu'un faisceau plus large sera plus faiblement transmis par le spectromètre. La FIGURE 1.25 représente le flux XUV émis qui a été estimé en corrigeant le signal détecté par la transmission du spectromètre.

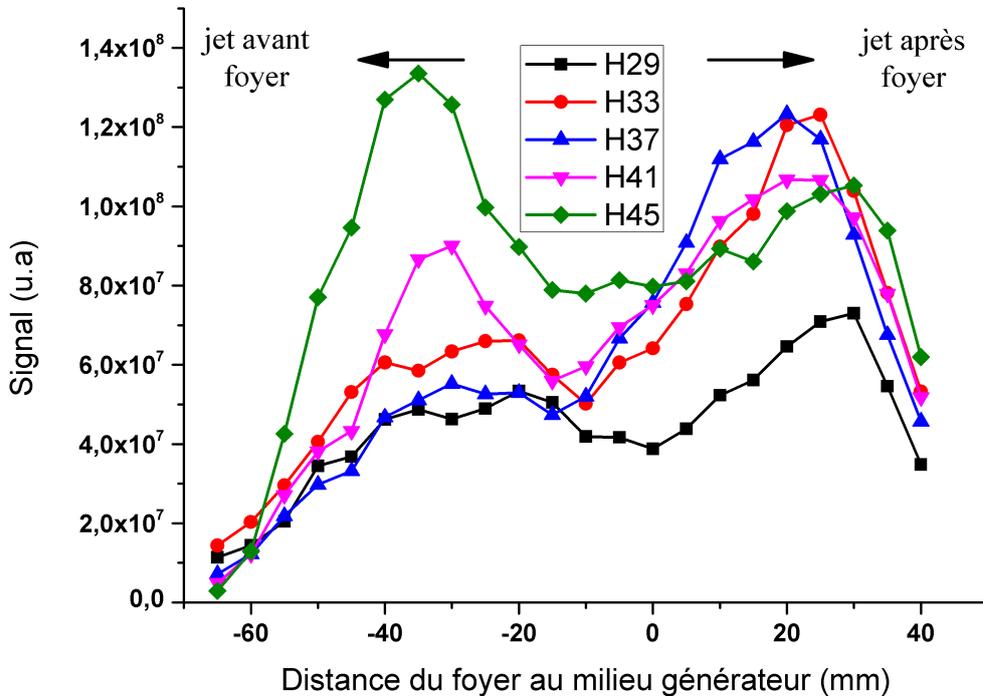


FIGURE 1.25 – Signal XUV émis pour plusieurs harmoniques, estimé avec le signal détecté et corrigé par la transmission par la fente.

Cette correction permet d'avoir des flux de photons en unité arbitraire et reproduit

bien des observations antérieures [Salières *et al.*, 1995]. Nous observons que ce flux varie peu dans la gamme de positions étudiées. En particulier, les flux sont similaires pour les positions -40 mm et +20 mm alors que les divergences des faisceaux XUV varient d'un facteur proche de 5 entre ces deux positions. Ceci implique qu'il est possible de contrôler les caractéristiques spatiales des faisceaux XUV tout en conservant un flux de photons important.

Dans cette série de résultats expérimentaux, nous observons clairement une évolution de la divergence en champ lointain compatible avec l'existence d'un foyer réel des harmoniques situé après le foyer de l'IR pour certaines positions du milieu générateur. Pour tester l'existence de cette focalisation directe des harmoniques, nous avons réalisé une expérience de génération d'harmoniques avec un faisceau présentant une dérive de fréquence spatiale qui permet de rendre le faisceau générateur asymétrique spatialement.

### 1.6.4 Focalisation des harmoniques

Afin d'étudier le minimum de divergence ainsi qu'une possible focalisation des faisceaux XUV après le foyer IR, la même expérience a été réalisée en introduisant une dérive de fréquence spatiale dans le faisceau IR générateur sur le modèle du phare attoseconde [Vincenti et Quéré, 2012]. Cette dérive de fréquence rend le faisceau asymétrique avec des fréquences rouges en bas du faisceau et des bleues en haut. Ainsi, les faisceaux XUV générés présenteront également une dérive de fréquence spatiale qui permet de définir le haut et le bas du faisceau XUV dans le plan du milieu générateur via leur spectre. Si les faisceaux harmoniques divergent après le milieu générateur, cette asymétrie spatiale sera visible dans le plan d'observation avec des harmoniques plus rouges en bas et plus bleues en haut du faisceau XUV. Si les faisceaux sont focalisés après le milieu générateur, le sens de la dérive de fréquence spatiale sera inversé dans le plan d'observation.

Pour réaliser cette dérive de fréquence, un prisme, en silice fondue, de dimensions  $40 \times 30 \times 0,5$  mm pour un angle de  $2,5^\circ$  a été positionné juste avant l'iris comme représenté sur la FIGURE 1.26.

Pour étudier l'asymétrie haut/bas du faisceau IR et vérifier que la dérive de fréquence de l'IR ne change pas de signe dans la gamme de déplacement du jet de gaz, une mesure de la dérive de fréquence spatiale du faisceau IR a été réalisée. Des spectres IR ont été enregistrés pour plusieurs sections horizontales du faisceau afin de déterminer le signe de la dérive de fréquence spatiale, en utilisant le système d'imagerie précédemment décrit pour imager le faisceau autour du foyer à pleine énergie. Cette mesure a été réalisée pour plusieurs positions longitudinales autour du foyer IR.

Comme illustré sur la FIGURE 1.27, le signe de la dérive de fréquence spatiale du faisceau IR ne change pas sur la zone caractérisée ( $z$  variant de 40 mm avant le foyer à

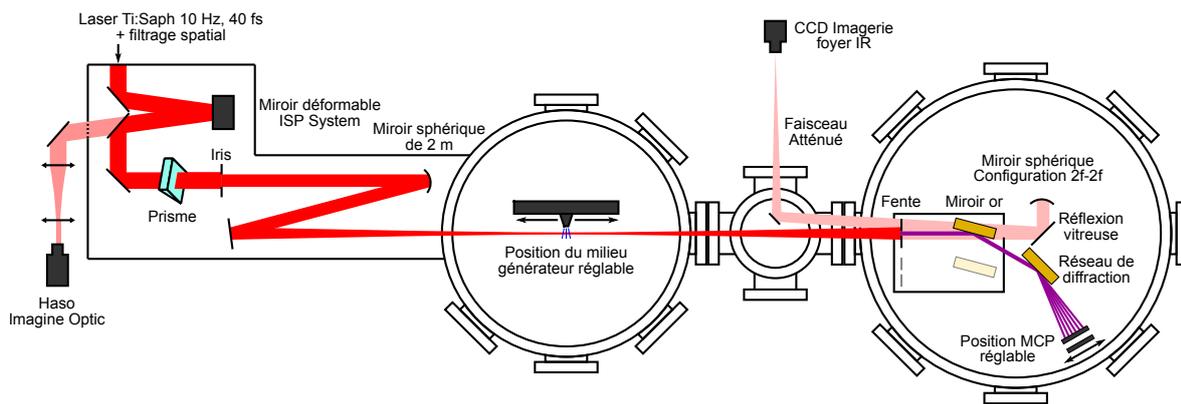


FIGURE 1.26 – Dispositif expérimental utilisé pour l'étude des harmoniques avec un laser présentant une dérive de fréquence spatiale créée par un prisme de petit angle ( $2,5^\circ$ ) situé avant l'iris et le miroir de focalisation de l'IR.

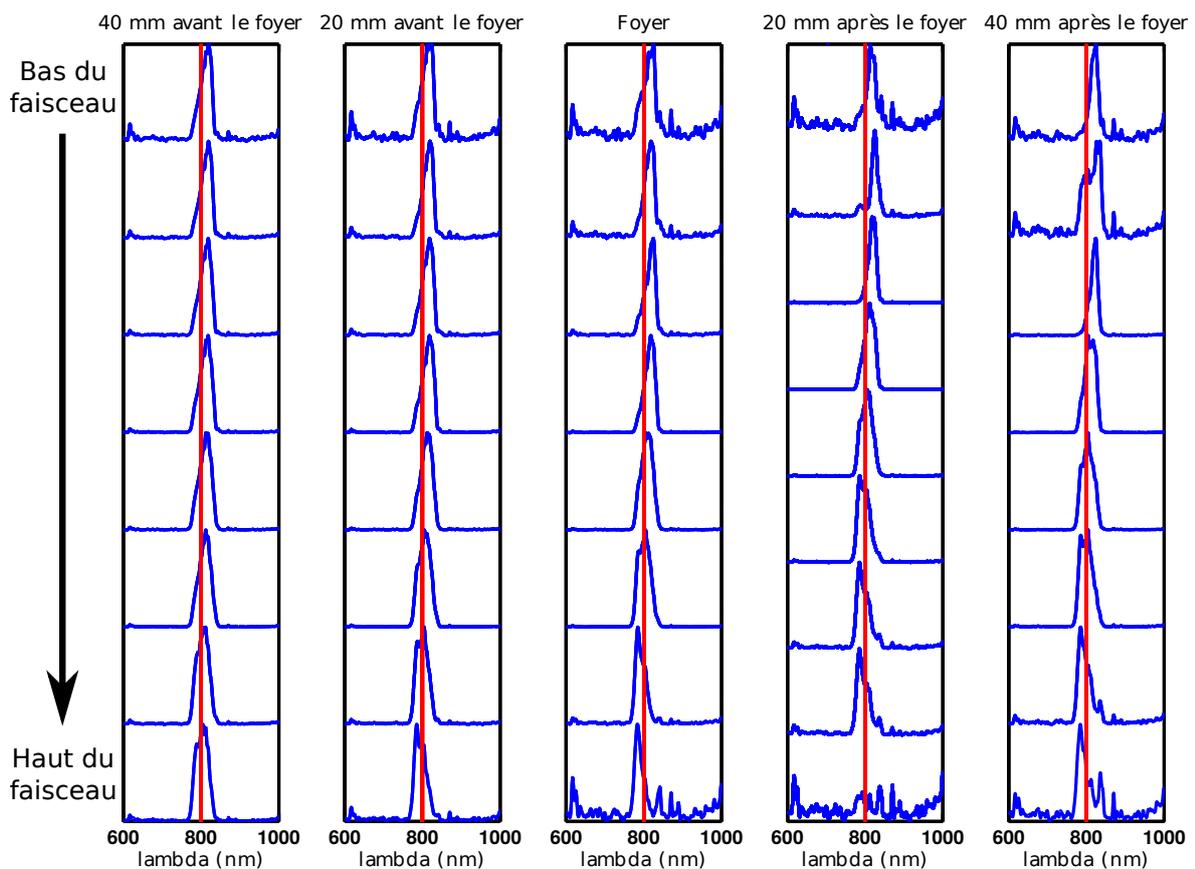


FIGURE 1.27 – Spectres de l'IR pour plusieurs positions par rapport au foyer. Pour chaque position sont représentés huit spectres obtenus pour plusieurs hauteurs de la fente (hauteurs identiques pour chaque valeur de  $z$ ).

40 mm après le foyer). La partie haute du faisceau est toujours plus bleue que la partie basse du faisceau.

Les profils spatiaux des harmoniques ont ensuite été mesurés pour plusieurs positions du jet de gaz. La FIGURE 1.28 représente l'harmonique 29 pour 3 positions du milieu générateur. Sur cette figure on remarque une dérive de fréquence spatiale

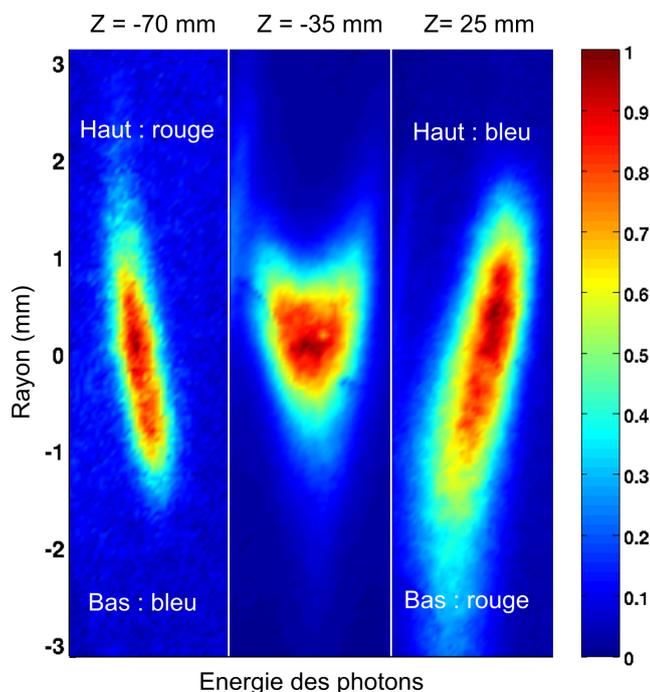


FIGURE 1.28 – Profil spatial de l'harmonique 29 après introduction d'une dérive de fréquence spatiale dans le faisceau IR générateur pour trois positions longitudinales du jet de gaz ( $-70$  mm,  $-35$  mm et  $+25$  mm).

de l'harmonique 29 pour les positions  $-70$  mm et  $+25$  mm qui se manifeste par une inclinaison de l'harmonique dans le plan spatio-spectral. La partie haute du faisceau harmonique n'est pas centrée sur la même fréquence que la partie basse du faisceau harmonique. De plus, il apparaît que la dérive de fréquence spatiale sur cette harmonique change de signe entre ces deux positions du milieu générateur. Nous avons observé que la dérive de fréquence de l'IR ne change pas de signe pour les positions considérées (comme on a pu le voir sur la FIGURE 1.27). En conclusion, ce changement de signe de la dérive de fréquence d'une harmonique en fonction de la position du jet de gaz implique que dans l'un des deux cas, l'harmonique considérée s'est focalisée entre le détecteur et le jet ce qui induit une inversion de sa dérive de fréquence spatiale. Le signe de la dérive de fréquence à la position  $-70$  mm est inversé par rapport à la dérive de fréquence de l'IR. Au vu de cette inversion de signe de la dérive de fréquence, nous pouvons en conclure qu'il y a bien eu une focalisation du faisceau XUV entre le milieu générateur et le détecteur pour cette position. En revanche, pour la position  $25$  mm, le signe de la dérive de fréquence est identique à celui de l'IR ce qui implique que le foyer XUV est virtuel et est situé avant le milieu générateur.

Nous avons aussi observé que cette dérive de fréquence spatiale évolue régulièrement avec la position du milieu générateur comme illustré sur la FIGURE 1.29. Le chan-

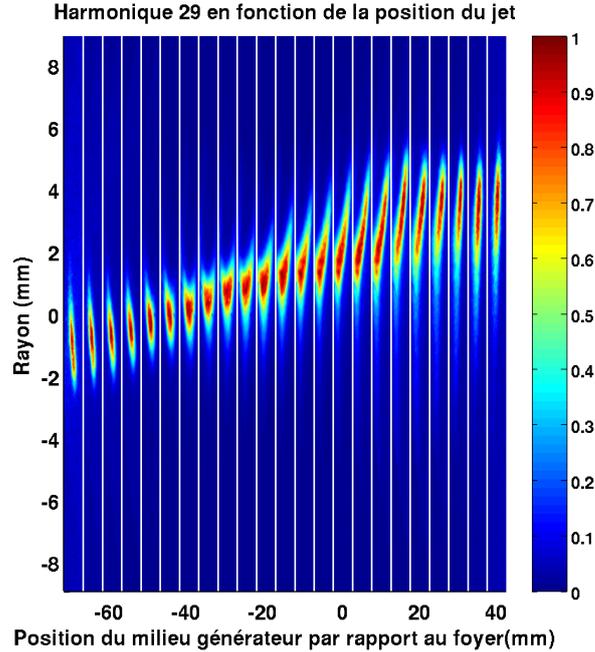


FIGURE 1.29 – Profil spatial de l'harmonique 29 après introduction d'une dérive de fréquence spatiale dans le faisceau IR générateur pour plusieurs positions longitudinales du jet de gaz. Le déplacement spatial des harmoniques est lié à un artefact de mesure.

gement du signe de la dérive de fréquence spatiale n'est pas obtenu pour la position  $z = 0$  alors que cela devrait être le cas si les harmoniques étaient focalisées au même endroit que le faisceau IR. Ceci implique que cette harmonique n'est généralement pas focalisée au même endroit que l'IR comme observé dans nos simulations. Ces simulations montrent aussi que le faisceau XUV présente un foyer réel (focalisation après le milieu générateur) ou virtuel (focalisation avant le milieu générateur) suivant que le milieu générateur est avant ou après la position  $z = -20$  (FIGURE 1.10). Le signe de la dérive de fréquence spatiale est directement représentatif de l'existence d'un foyer réel ou virtuel pour le faisceau XUV. Nous observons que la transition entre ces deux situations est obtenue autour de la position  $z = -35$  pour l'harmonique H29.

Nous observons que l'évolution de la dérive de fréquence spatiale en fonction de la position du milieu générateur dépend aussi fortement de l'harmonique considérée. La FIGURE 1.30 illustre cette dépendance lorsque le jet est situé 50 mm avant le foyer de l'IR. Nous observons également que pour les harmoniques basses, le signe de la dérive de fréquence spatiale est caractéristique d'une focalisation directe des harmoniques. Au contraire pour les harmoniques hautes, la dérive de fréquence spatiale montre qu'il n'y a pas de focalisation après le milieu générateur, quelle que soit la position de ce milieu. Ceci est en désaccord avec nos simulations qui montrent que, avec  $\alpha = 3 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  tous les faisceaux harmoniques sont focalisés sur un foyer réel lorsque le jet est placé loin avant le foyer. En revanche si  $\alpha$  est grand (comme pour les harmoniques du chemin

long ou de la coupure), nous avons observé dans nos simulations que les harmoniques étaient toujours divergentes après le milieu générateur. Observer comme ici que les harmoniques les plus hautes sont toujours divergentes peut s'expliquer si l'on accepte que la valeur de  $\alpha$  est grande pour les harmoniques d'ordres les plus élevés. Ce qui est vrai pour les trajectoires courtes.

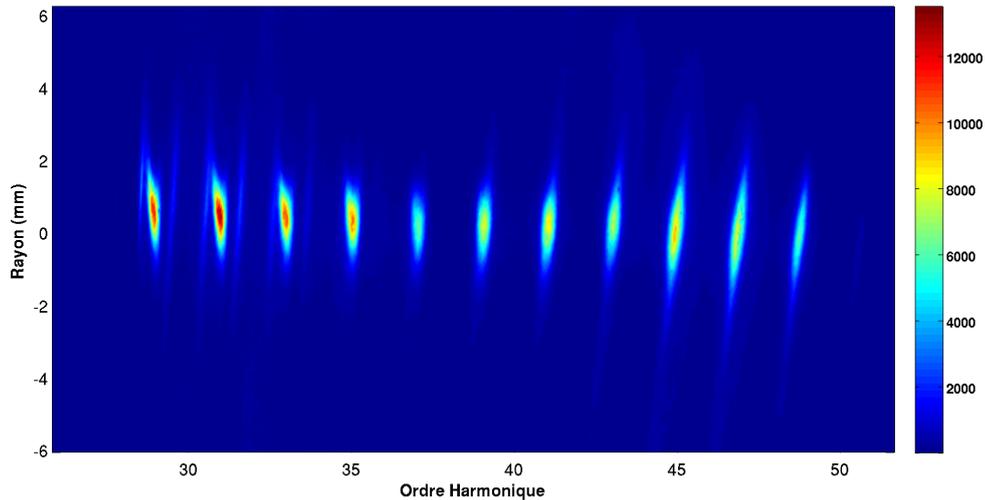


FIGURE 1.30 – Profils spatiaux des harmoniques H29 à H49 (ainsi que les ordres deux des harmoniques H59 à H67) obtenus avec un faisceau générateur IR présentant une dérive de fréquence spatiale et un jet de néon placé 50 mm avant le foyer de l'IR ( $z=-50$ ).

### 1.6.5 Filtrage spectral XUV

Nous avons vu dans la partie précédente qu'il est possible de focaliser les harmoniques à un foyer réel en modifiant les conditions de génération de celles-ci et ainsi les amener à se focaliser directement après le foyer IR à des distances qui dépendent de leur ordre. Il semble donc envisageable d'utiliser cette différence de distance de focalisation pour sélectionner spectralement une harmonique ou un groupe d'harmoniques après la génération. L'insertion d'un trou de filtrage spatial dans le faisceau XUV permet de transmettre les harmoniques qui sont focalisées au niveau de ce trou et d'atténuer les harmoniques qui ne sont pas focalisées ou qui sont focalisées loin du trou. Ce trou de filtrage spatial est aussi une solution pour s'affranchir du laser fondamental qui est peu transmis par un petit trou et diverge fortement après. Afin de tester cette possibilité, nous avons placé un trou de filtrage 37 cm après le foyer de l'IR. Ce trou de filtrage, de diamètre 40  $\mu\text{m}$ , est un trou en verre et nous avons pu observer qu'il n'est pas endommagé par le faisceau IR. Le spectre XUV transmis par le trou a été détecté pour plusieurs positions du milieu générateur et nous avons pu observer que ce spectre changeait avec les positions du jet. Les spectres sont représentés sur la FIGURE 1.31.

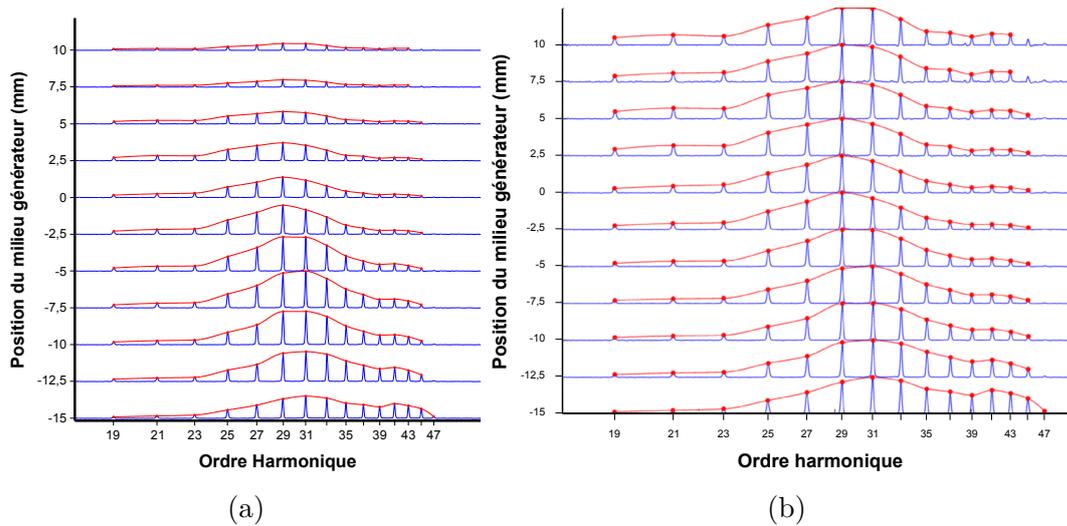


FIGURE 1.31 – Spectre Harmonique avec et sans normalisation pour plusieurs positions du milieu générateur et après transmission par le trou de filtrage XUV.

On observe effectivement qu'il est possible de contrôler le spectre transmis. En effet, les spectres obtenus avec un jet de gaz situé après le foyer de l'IR (jet 5 à 10 cm après le foyer) sont de faible amplitude et ne comportent pas les harmoniques hautes. Lorsque le milieu générateur est déplacé avant le foyer de l'IR (5 à 15 cm avant le foyer), les amplitudes des spectres sont plus importantes et les harmoniques hautes sont présentes. Plus précisément pour un milieu générateur situé 10 mm après le foyer, le spectre observé (estimé via sa largeur à mi-hauteur) va de l'harmonique 27 à l'harmonique 33. Pour un milieu générateur situé 5 mm avant le foyer, le spectre observé va de l'harmonique 25 à l'harmonique 35, il a donc une largeur similaire mais l'amplitude est augmentée d'un facteur 5 environ. Pour un milieu générateur situé 15 mm avant le foyer, le spectre observé s'élargit de l'harmonique 25 à l'harmonique 45 et l'amplitude des harmoniques les plus hautes continue de croître.

L'effet observé pour cette sélection spectrale peut être dû à l'action conjointe du filtrage spatial XUV et de l'influence de la position du milieu générateur sur la largeur du spectre émis. Cependant les changements d'efficacité de la génération seuls ne sont pas suffisants pour expliquer les changements de spectres observés. Par exemple, la FIGURE 1.25 montre que le signal de l'harmonique 29 est quasi-constant de  $z = -40$  à  $z = +20$ . Ici nous observons une augmentation d'un facteur 4 entre  $z = +10$  et  $z = -10$ . Le signal pour les harmoniques 33 et 37 baisse lorsque  $z$  décroît alors que nous observons une augmentation du signal transmis derrière le trou. Ces observations permettent donc de conclure que le filtrage spatial nous permet effectivement de contrôler le spectre transmis tout en s'affranchissant du spectre IR.

## 1.7 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous avons étudié les caractéristiques spatiales de faisceaux harmoniques d'ordres élevés générés dans un milieu gazeux. Nous avons montré que la position du milieu générateur par rapport au plan focal du faisceau IR influe fortement sur les caractéristiques spatiales de ces faisceaux XUV.

Nous avons développé un modèle simple simulant la propagation de faisceaux XUV Gaussiens émis dans des milieux fins et prenant en compte la cohérence spatiale des faisceaux à l'émission. Ce modèle nous montre que les harmoniques peuvent être focalisées sur un foyer réel ou sembler provenir d'un foyer virtuel en fonction de l'ordre harmonique et de la position du milieu générateur. Ce modèle montre également que les harmoniques sont rarement focalisées au même endroit que le faisceau IR et que la taille des foyers harmoniques peut changer d'un facteur 10 en contrôlant la position du milieu générateur.

Dans la partie expérimentale réalisée avec des harmoniques générées via le chemin court dans un jet de Néon, nous avons pu observer une forte évolution de la divergence des harmoniques en fonction des conditions de génération. Cette évolution est en accord qualitatif avec les prévisions de notre modèle. Un accord plus quantitatif implique des contraintes fortes sur la phase atomique apparaissant lors de la génération d'harmonique et en particulier sur les valeurs du paramètre  $\alpha$ . Nous avons aussi observé que le contrôle spatial des faisceaux harmoniques est compatible avec une bonne efficacité du processus de génération d'harmoniques.

Nous avons aussi étudié la focalisation directe des harmoniques sur un foyer réel situé après le milieu générateur et avons pu visualiser cette focalisation en utilisant un faisceau IR générateur présentant une dérive de fréquence spatiale. Ces études ont confirmé que la focalisation directe existe et qu'elle dépend de l'ordre harmonique et des conditions de génération. Nous avons aussi observé que si  $\alpha$  est important les harmoniques divergent après le milieu générateur.

Cet effet de focalisation directe des harmoniques a été utilisé pour réaliser une sélection spectrale des faisceaux XUV en les transmettant au travers d'un trou de filtrage spatial. Nous avons observé que la largeur spectrale des spectres transmis pouvait changer significativement et que la transmission des harmoniques élevées était très sensible à la position du milieu générateur.

De manière globale ces expériences nous montrent que le contrôle du front d'onde du laser générateur combiné à la modification de la position du milieu générateur permet de façonner les propriétés spatiales d'un faisceau XUV cohérent ultra-bref directement lors du processus de génération. En retour, cette phase spatiale définit les propriétés et la propagation des faisceaux XUV ultra-brefs.

Ces possibilités de contrôle sont basées sur des principes robustes et sont donc adaptables à d'autres conditions de génération. En particulier des lasers de plus forte

énergie peuvent être utilisés ainsi que d'autres gaz permettant d'accéder à des gammes spectrales XUV différentes. De même des lasers générateurs avec des profils spatiaux non Gaussien pourraient être utilisés. Contrôler simultanément le profil d'intensité du laser générateur et son front d'onde permettrait de contrôler encore plus finement les caractéristiques des radiations XUV émises et peut être de toutes les focaliser sur un même foyer réel. Dans ces conditions une focalisation directe des faisceaux XUV doit permettre d'obtenir des intensités XUV très importantes au foyer. Cette approche est particulièrement prometteuse pour les nouveaux lasers de forte énergie comme Apollon ou ELI. En effet, les hautes énergies et les grandes dimensions de ces faisceaux lasers permettent un contrôle plus important de la génération d'harmoniques hors foyer et ainsi de mieux contrôler la phase spatiale des harmoniques générées.

Les effets observés sont liés à la phase atomique accumulée lors de la génération d'harmoniques. Cette phase est d'autant plus grande que le laser générateur a une grande longueur d'onde et les effets observés seront encore plus importants avec les nouvelles générations de lasers fs qui sont développées dans l'IR proche ou l'IR lointain.

Enfin, le fait que les harmoniques se propagent différemment les une des autres est une observation très générale. Cette observation devrait être prise en compte lors de l'utilisation d'impulsions attosecondes de grande largeur spectrale qui présuppose souvent que toutes les harmoniques ont les mêmes caractéristiques spatiales de propagation.

# Chapitre 2

## Étude et contrôle de faisceaux harmoniques structurés spatialement

*« Alors une, je ne m'en souviens pas, deux je ne suis pas resté longtemps, et enfin cinq ... il y a pas de cinq. »*

---

Frédéric

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>45</b>
<b>2.2</b>	<b>Génération d'harmoniques à haute énergie dans des milieux courts et longs</b>	<b>45</b>
2.2.1	Optimisation de l'efficacité de la génération d'harmoniques par contrôle de la taille du faisceau IR	45
2.2.2	Impact de l'iris sur les profils spatiaux des faisceaux XUV	52
<b>2.3</b>	<b>Étude paramétrique de la génération de faisceaux harmoniques structurés spatialement dans des milieux fins</b>	<b>56</b>
2.3.1	Faisceau annulaire	56
2.3.1.1	Étude en fonction de l'ordre harmonique	56
2.3.1.2	Impact de la longueur et de la pression du milieu générateur	57
2.3.1.3	Influence de l'intensité du laser sur le profil annulaire	59
2.3.1.4	Conclusion pour l'étude du faisceau annulaire	62
2.3.2	Faisceau annulaire centré	62
2.3.2.1	Conclusion pour l'étude du faisceau annulaire centré	64
<b>2.4</b>	<b>Simulation de l'émission d'harmoniques hors foyer</b>	<b>64</b>
2.4.1	Présentation du modèle	64

2.4.2	Résultats . . . . .	65
2.4.3	Comparaison des résultats expérimentaux et théoriques . . .	67
<b>2.5</b>	<b>Conclusion et perspectives . . . . .</b>	<b>69</b>

---

## 2.1 Introduction

Les lasers femtosecondes de haute énergie se développent de plus en plus et sont utilisés pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz. L'un des buts de ces développements est d'obtenir des impulsions XUV de forte énergie permettant d'initier des transitions non-linéaires dans l'XUV. Dans ce chapitre nous allons étudier la génération d'harmoniques d'ordres élevés à forte énergie ainsi que les caractéristiques des faisceaux XUV émis en utilisant des lasers femtosecondes térawatts à des énergies approchant la centaine de millijoules.

Nous avons de plus réalisé des études sur les conditions d'optimisation de l'efficacité de la génération d'harmoniques pour plusieurs énergies d'impulsions (jusqu'à 75 mJ comprimées à 40 fs) et pour plusieurs géométries d'interaction (cellule et jet). Ces études nous ont permis de montrer qu'augmenter l'énergie des impulsions génératrices permet d'augmenter l'énergie des impulsions XUV émises de manière quasi-linéaire. Quelles que soient les conditions de génération utilisées, le paramètre principal d'optimisation du flux de photons XUV était le diamètre de l'iris positionné avant le miroir de focalisation permettant de contrôler le diamètre du faisceau incident. Ce paramètre change les conditions d'interaction dans le milieu générateur.

Dans un second temps, nous avons observé que l'iris n'influence pas seulement l'efficacité de l'émission mais qu'il a également un impact fort sur les profils spatiaux des faisceaux XUV émis. Dans certains cas nous avons observé des faisceaux XUV très structurés spatialement et nous avons cherché à comprendre l'origine physique de ces structures.

## 2.2 Génération d'harmoniques à haute énergie dans des milieux courts et longs

### 2.2.1 Optimisation de l'efficacité de la génération d'harmoniques par contrôle de la taille du faisceau IR

Le système expérimental présenté dans ce chapitre est celui mentionné au chapitre 1. Il comporte un miroir de focalisation de focale deux mètres et un faisceau tronqué par un iris réglable, sous vide, situé un mètre avant le miroir. Le milieu gazeux est mobile dans les trois directions. Pour étudier l'efficacité de la génération d'harmoniques à haute énergie nous avons utilisé une photodiode XUV calibrée pour mesurer le nombre de photons XUV émis.

La photodiode utilisée (UDT XUV-100) est circulaire avec un diamètre utile de 10 mm. Elle est placée à 2,5 mètres de la source XUV et peut détecter le rayonnement XUV dans un angle de 2 milliradians. Cette photodiode est protégée de la lumière IR grâce à un film d'aluminium de 150 nm d'épaisseur qui coupe aussi les harmoniques basses (sous l'harmonique 11). Pour éviter que les impulsions lasers de forte énergies n'endommagent

ce filtre en aluminium, nous atténuons l'IR grâce à une lame séparatrice qui transmet le faisceau IR tout en réfléchissant les harmoniques [Falcone et Bokor, 1983]. Nous avons mesuré que pour un angle d'incidence proche de  $70^\circ$  et en polarisation S, cette lame transmet plus de 90 % du faisceau infrarouge ce qui l'atténue donc de manière notable. Pour les harmoniques la réflectivité reste importante. Cette réflectivité théorique est représentée dans la FIGURE 2.1 (site CXRO). Nous avons expérimentalement vérifié que cette réflectivité est de l'ordre de 25 % en mesurant le signal après une puis deux réflexions. Pour des harmoniques émises dans l'Argon ( $13 < q < 35$ ) la transmission du filtre aluminium pour les harmoniques de cette gamme a elle aussi été mesurée et est de 30 % (mesure réalisée avec un ou deux filtres). Le nombre de photons incidents sur la photodiode est donc égal à 7,5 % du nombre de photons émis par la source harmonique dans l'angle de 2 milliradians.

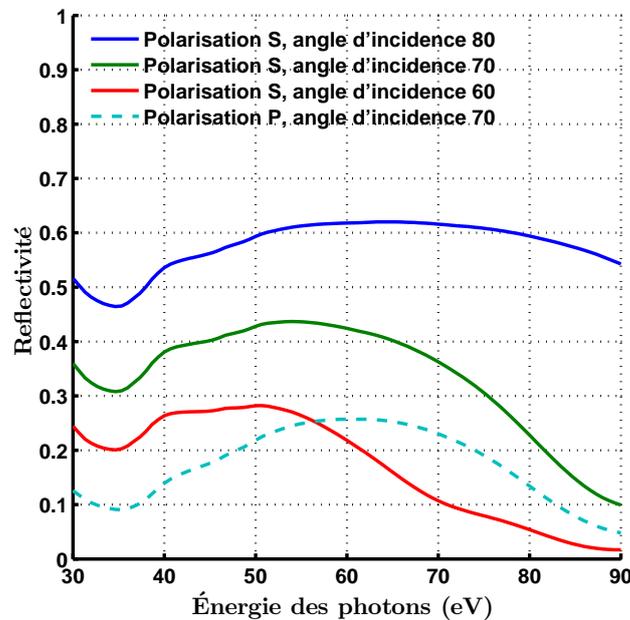


FIGURE 2.1 – Réflectivité théorique d'une lame de silice présentant un revêtement en  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ . Courbes extraites de CXRO.

Le nombre de photons détecté par la photodiode pour chaque impulsion laser peut être estimé en mesurant le courant délivré par la photodiode hors saturation en connaissant l'efficacité quantique de ce détecteur ( $QE = 0,7$ ) et en sachant qu'il faut une énergie de 3,63 eV pour créer une paire électron-trou (données constructeur). La charge  $Q$ , émise par le détecteur, peut être déduite du flux de photons incidents en utilisant la relation :

$$Q [\text{C}] = E [\text{J}] \times \frac{QE}{3,63}. \quad (2.1)$$

Dans cette équation,  $E$  représente l'énergie totale des photons XUV incidents sur la photodiode.

Cette charge  $Q$  peut être mesurée directement en utilisant un oscilloscope qui mesure la tension  $U$  aux bornes d'une résistance de 50 Ohm et l'on a :

$$Q = \int i dt = \frac{1}{50} \times \int U dt. \quad (2.2)$$

L'efficacité de la génération d'harmoniques a été étudiée pour plusieurs énergies des impulsions IR (25, 50 et 75 mJ), pour une génération dans une cellule et dans un jet de gaz qui peuvent être déplacés autour du foyer avec une course de  $\pm 75$  mm. Les milieux utilisés sont une cellule de 20 mm de longueur et un jet pulsé de 500  $\mu\text{m}$  de diamètre.

La FIGURE 2.2 montre l'évolution du nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris qui tronque le faisceau avant la focalisation lorsque le milieu gazeux est localisé au foyer. Le nombre de photons varie nettement avec le diamètre de l'iris utilisé et nous observons que le flux de photons augmente avec l'énergie des impulsions femtosecondes utilisées. Néanmoins cette augmentation est relativement faible au foyer car augmenter l'énergie incidente d'un facteur trois (de 25 à 75 mJ) augmente le flux de photons seulement d'un facteur 1,5. Dans les conditions optimales, le nombre de photons détectés est de  $7 \times 10^8$  ce qui correspond à environ  $10^{10}$  photons émis par tir laser dans un angle de 2 milliradians.

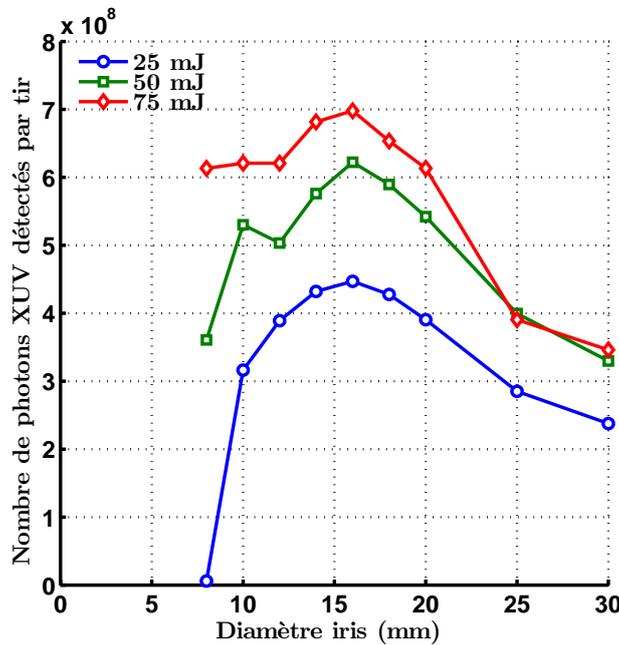


FIGURE 2.2 – Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris et pour des impulsions génératrices ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ avant l'iris. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'Argon de 20 mm située au foyer de l'IR avec une pression de 10 mbar.

Le flux de photons augmente plus nettement avec l'énergie de l'impulsion incidente lorsqu'on génère les harmoniques loin du foyer de l'IR. La FIGURE 2.3 représente le

nombre de photons pour un milieu générateur situé 75 mm après ou avant le foyer. On observe que pour ces positions les valeurs de l'iris qui optimisent le signal sont assez précisément définies et changent avec l'énergie incidente. Après optimisation, le nombre de photons mesurés est supérieur à celui obtenu avec un milieu générateur au foyer, ce qui est donc compatible avec [Heyl *et al.*, 2017] [Rudawski *et al.*, 2013]. Après optimisation, l'énergie de l'impulsion XUV émis dans l'angle de 3 milliradians est d'environ 100 nJ.

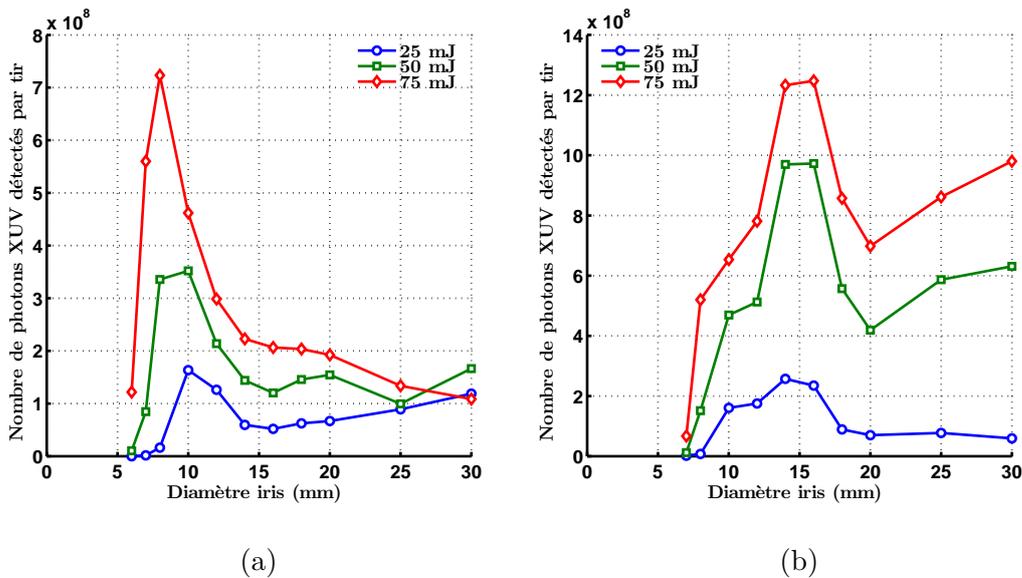


FIGURE 2.3 – Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris et pour des impulsions incidentes ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'Argon de 20 mm située : 75 mm après le foyer de l'IR (a) ou 75 mm avant le foyer de l'IR (b).

Nous avons aussi vérifié qu'il existe un optimum de pression qui maximise le flux XUV. La FIGURE 2.4 montre que la valeur optimale de la pression change avec l'énergie de l'impulsion incidente.

Des études similaires ont été réalisées en utilisant un milieu plus fin (jet de  $500 \mu\text{m}$  de diamètre) et les résultats sont représentés sur la FIGURE 2.5. On observe encore que le flux de photons maximal augmente avec les énergies incidentes et, après optimisation, le nombre de photons obtenu est équivalent au nombre de photons maximum obtenu avec la cellule de gaz [Brichta *et al.*, 2009]. De plus on remarque que lorsque l'on génère les harmoniques hors foyer, il est possible d'obtenir de forts flux de photons XUV qui sont similaires, voir supérieurs aux flux de photons XUV obtenus lors d'une génération au foyer de l'IR.

Cette étude nous confirme que l'iris a un impact fort sur le nombre de photons émis dans le cas d'une génération dans une cellule ou dans un jet de gaz (milieu fin). Nous observons que les deux géométries donnent approximativement le même nombre de photons après optimisation.

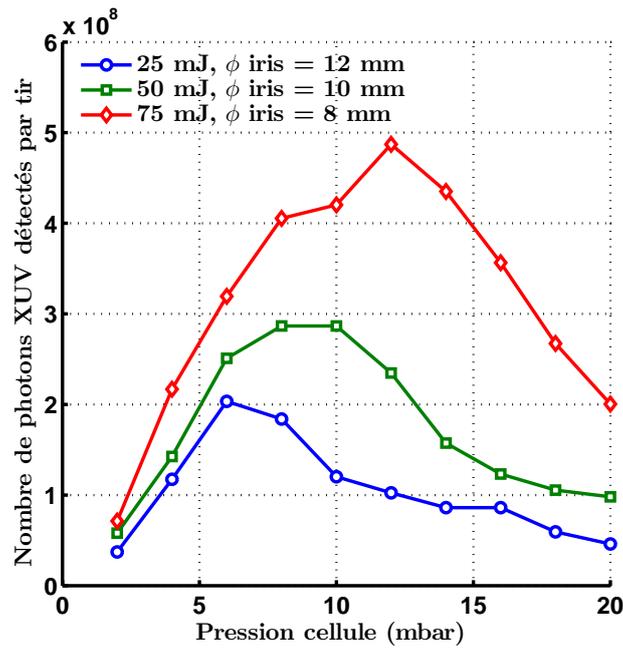


FIGURE 2.4 – Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction de la pression dans la cellule de gaz et pour des impulsions fondamentales ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'Argon de 20 mm située 75 mm après le foyer de l'IR.

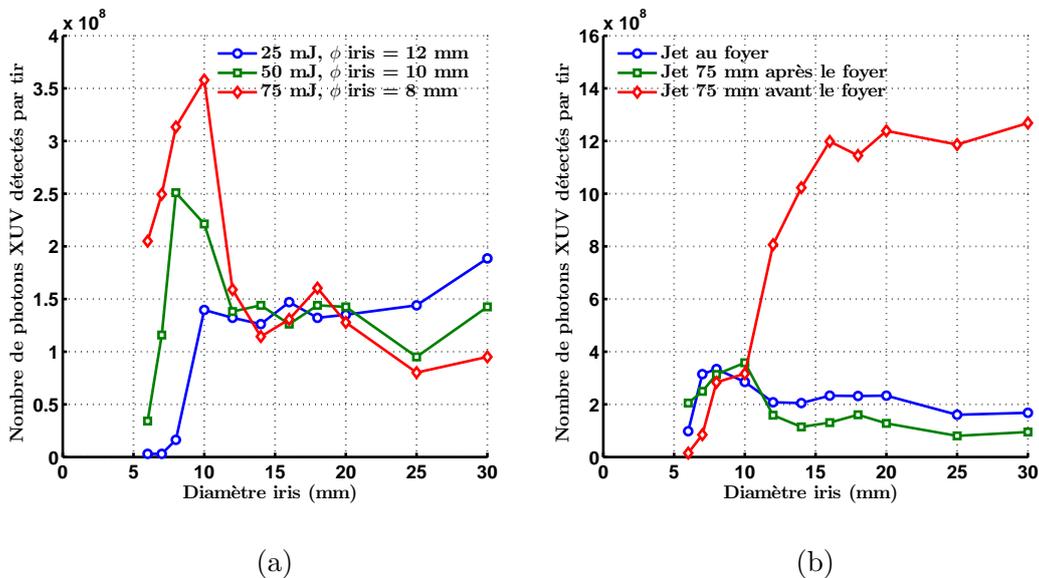


FIGURE 2.5 – Nombre de photons XUV détectés par la photodiode en fonction du diamètre de l'iris. Pour des impulsions génératrices ayant des énergies de 25, 50 et 75 mJ et pour un jet pulsé d'Argon situé 75 mm après le foyer de l'IR (a). Pour plusieurs positions du milieu générateur et pour une énergie incidente de 75 mJ (b).

Pour aller au delà de l'étude sur le nombre de photons, nous avons voulu voir comment se comportaient les profils spatiaux des harmoniques pour les différentes configurations. Les résultats sont représentés sur la FIGURE 2.6. Les pressions notées sur cette figure correspondent à la pression dans la cellule et à la pression en amont du jet de gaz. Sur cette figure sont tracés les profils spatiaux des harmoniques 25 à 39 générées dans l'Argon pour différentes conditions avec cellule ou avec un jet de gaz pulsé. On remarque que les faisceaux harmoniques sont généralement très structurés. Avec des structures spatiales et spectrales bien marquées pour le cas de la cellule et des structures spatiales contrastées pour le cas du jet.

Dans ce travail nous avons obtenu un nombre de photons équivalent dans le cas d'une génération dans une cellule ou d'un jet après optimisation. À l'aide d'un iris réglable avant la focalisation nous avons fréquemment observé que l'optimisation du nombre de photons XUV est associée à la formation de structures spatiales marquées. Dans cette étude le front d'onde des harmoniques n'était pas corrigé. Pour étudier ces structures plus précisément, nous avons implémenté la correction du front d'onde du faisceau fondamental par un miroir déformable et nous avons simplifié les conditions de génération en considérant un milieu fin.

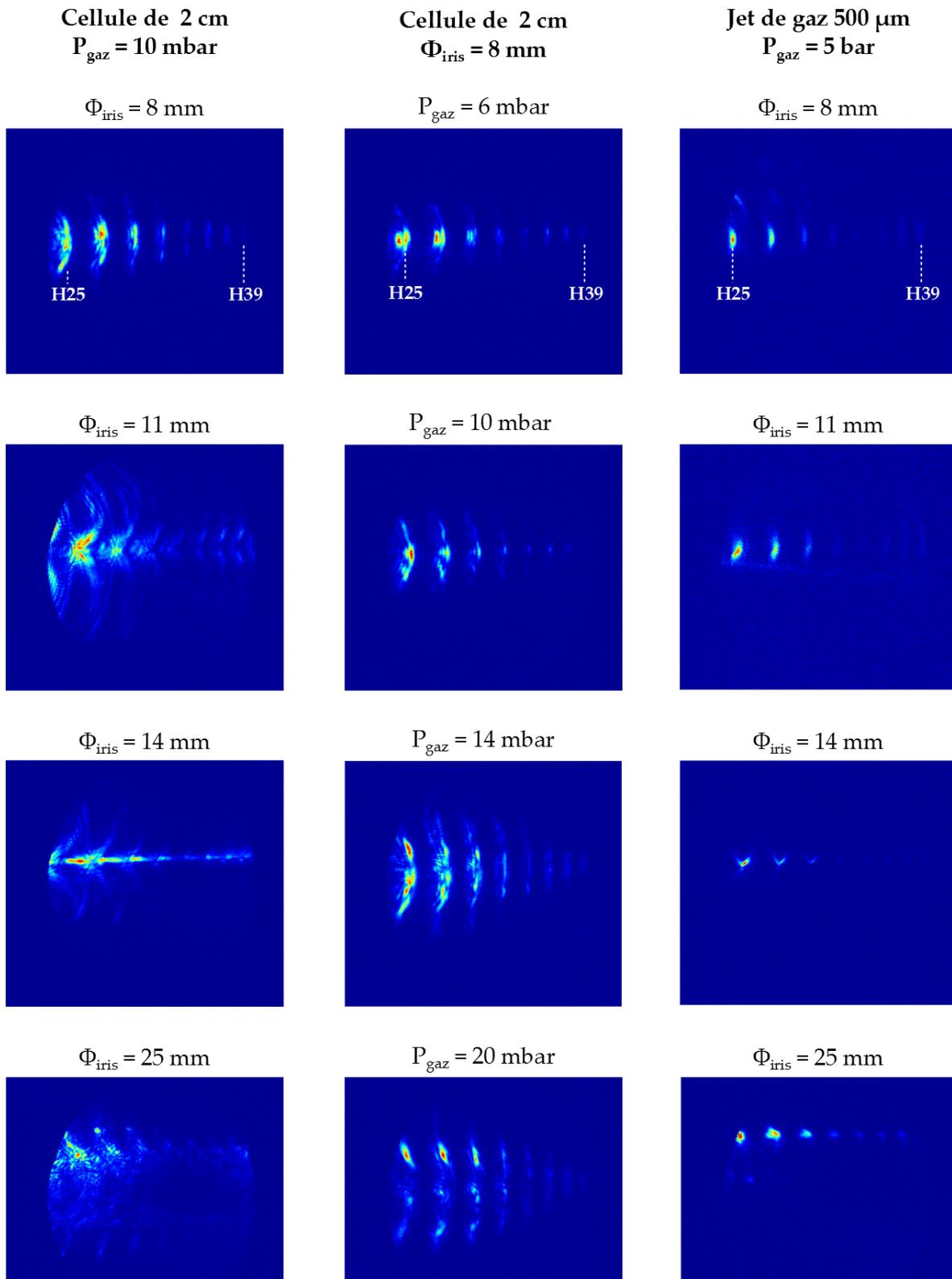


FIGURE 2.6 – Profils spatiaux harmoniques obtenus pour les harmoniques 25 à 39 générées dans l'Argon pour plusieurs conditions.

## 2.2.2 Impact de l'iris sur les profils spatiaux des faisceaux XUV

Dans cette étude nous avons cherché à étudier les profils spatiaux XUV avec des faisceaux IR les plus proches de faisceaux Gaussiens parfaits. Nous avons ainsi réalisé un filtrage spatial sur le faisceau IR pour utiliser un faisceau IR très homogène. Nous avons aussi corrigé le front d'onde du faisceau générateur afin de limiter les aberrations et réaliser les mesures à plus faible énergie pour limiter l'impact de l'ionisation. Nous avons généré des harmoniques dans un jet de gaz pour plusieurs positions du milieu générateur et pour plusieurs diamètres d'iris.

Nous avons tout d'abord étudié le signal harmonique en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu générateur situé au foyer. Les résultats ont été réalisés en intégrant le signal de chaque harmonique sur les MCP (l'intégration est réalisée sur la largeur spectrale de chaque harmonique car il n'y a pas de recouvrement spectral entre celles-ci) et sont représentés sur la FIGURE 2.7

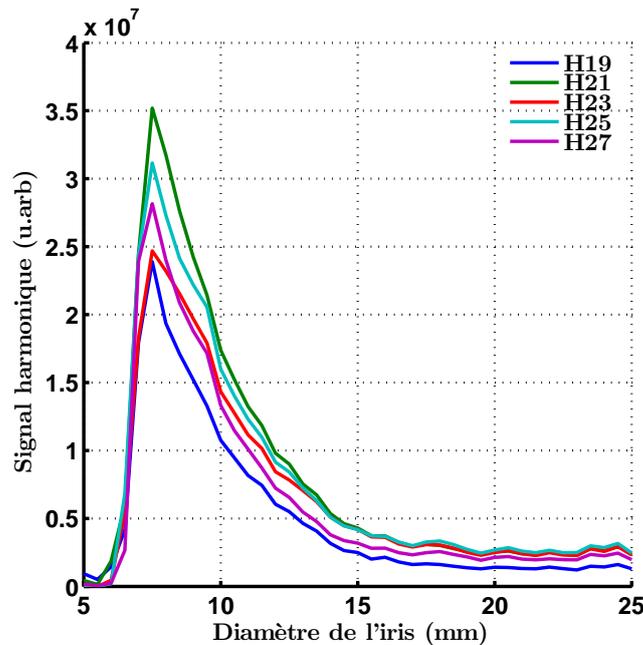


FIGURE 2.7 – Évolution du signal XUV détecté en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu gazeux (jet d'Argon de  $250 \mu\text{m}$ ) situé au foyer de l'IR. Les ordres harmoniques représentés vont de 19 à 27 et l'énergie des impulsions avant l'iris est de 14 mJ.

Sur cette figure on remarque une évolution usuelle du signal en fonction du diamètre de l'iris [Kazamias, S. *et al.*, 2002] pour une position du foyer IR et du milieu générateur confondue. Cette évolution est tout d'abord croissante, avec une croissance abrupte qui est liée à l'augmentation très importante de l'intensité lorsque l'on augmente le diamètre (pour des faibles diamètres d'iris par rapport à la taille du faisceau). Il vient ensuite un optimum puis une décroissance lorsque l'on augmente encore le diamètre de l'iris. Cette évolution est similaire quelle que soit l'harmonique considérée.

La même étude est réalisée pour un milieu générateur situé loin du foyer. Les résultats sont présentés sur la FIGURE 2.8.

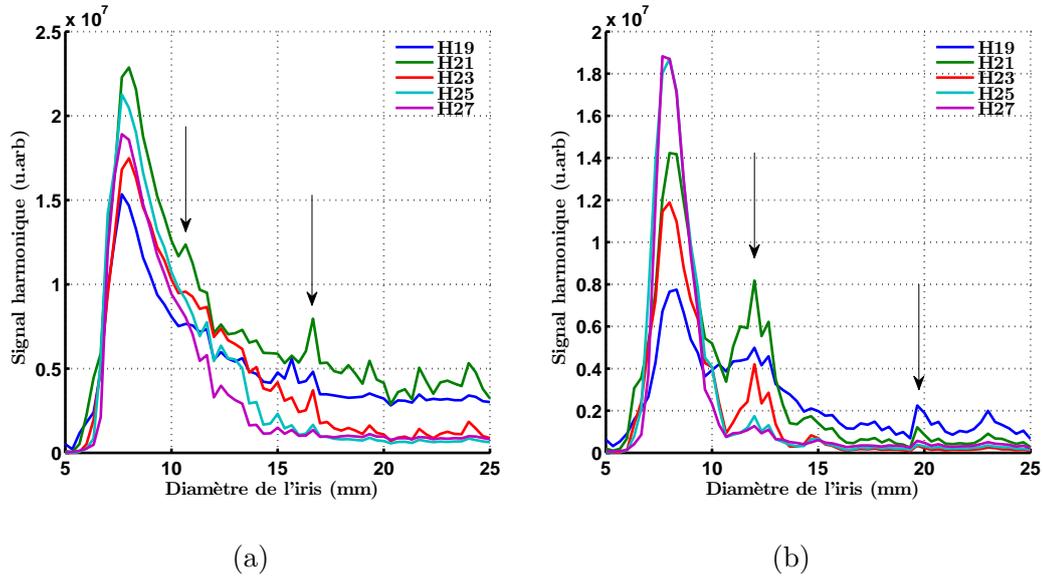


FIGURE 2.8 – Évolution du signal détecté en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu gazeux (jet d'Argon de  $250\ \mu\text{m}$ ) situé  $13,5\ \text{cm}$  après le foyer de l'IR (a) et situé  $19\ \text{cm}$  avant le foyer de l'IR (b). Les ordres harmoniques représentés vont de 19 à 27 et l'énergie des impulsions avant l'iris est de  $14\ \text{mJ}$ .

Sur ces figures on remarque une évolution différente de celle observée sur les mesures précédentes. Il existe un pic principal et des maxima secondaires qui semblent se démarquer pour certaines valeurs de diamètre d'iris. On observe par exemple pour une position du milieu générateur situé  $19\ \text{cm}$  avant le foyer des maxima locaux pour des valeurs d'iris de  $8$  et  $12\ \text{mm}$ . Ces changements rapides du signal harmonique avec le diamètre de l'iris sont inhabituels et peuvent être liés à des changements du profil spatial des harmoniques. Nous avons donc étudié pour les mêmes positions les structures spatiales de ces harmoniques avec le spectromètre en champ plan. Ces résultats ont été mesurés en prenant une moyenne sur 100 tirs laser.

Sur la FIGURE 2.9 est représenté le profil spatial de l'harmonique 19 intégré sur toute la largeur de l'harmonique pour plusieurs diamètres d'iris et pour un milieu générateur situé au foyer du laser IR générateur. On remarque dans ce cas un faisceau harmonique peu structuré.

Lorsque l'on place le milieu générateur avant ou après le foyer, on observe que le profil de l'harmonique est très structuré et que la structure évolue de manière très régulière avec le diamètre de l'iris comme on peut le voir sur les FIGURE 2.10 et FIGURE 2.11.

Sur les données brutes, on observe souvent une asymétrie des profils qui dépend beaucoup du profil de l'IR. Pour aider à la visualisation nous avons symétrisé ces figures. Sur ces figures on observe que le profil spatial de l'harmonique peut passer

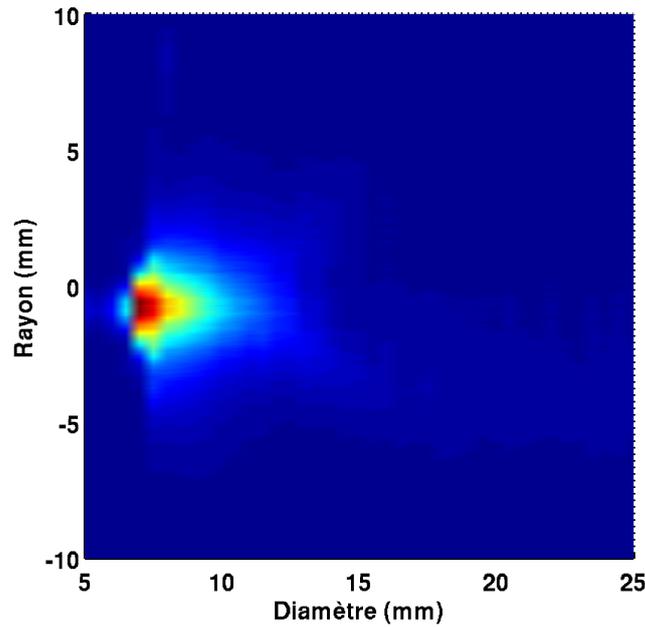


FIGURE 2.9 – Coupe du faisceau harmonique d’ordre 19 en fonction du diamètre de l’iris pour un milieu générateur situé au foyer de l’IR. L’énergie des impulsions est de 14 mJ avant l’iris et les harmoniques sont générées dans un jet d’Argon de 250  $\mu\text{m}$ .

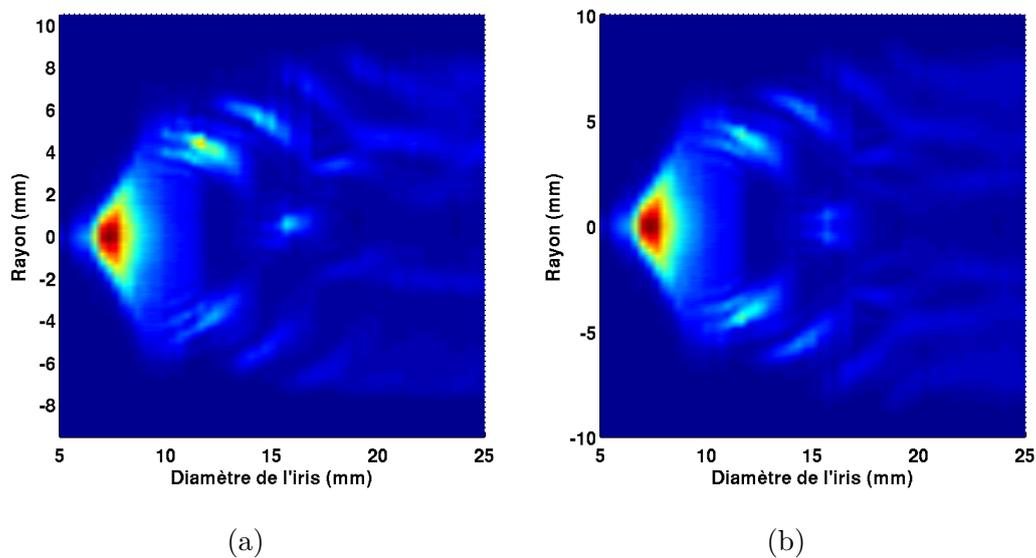


FIGURE 2.10 – Coupe du faisceau harmonique d’ordre 19 en fonction du diamètre de l’iris pour un milieu générateur situé 13,5 cm après le foyer de l’IR. Résultats directs (a) et après Symétrisation (b). L’énergie des impulsions est de 14 mJ avant l’iris et les harmoniques sont générées dans un jet d’Argon de 250  $\mu\text{m}$ .

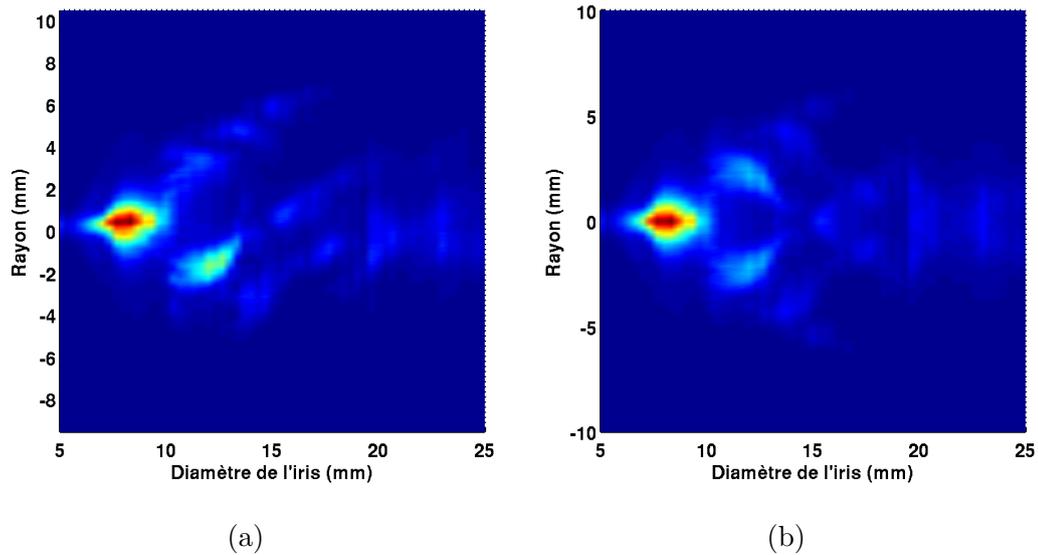


FIGURE 2.11 – Coupe du faisceau harmonique d'ordre 19 en fonction du diamètre de l'iris pour un milieu générateur situé 19 cm avant le foyer de l'IR. Résultats directs (a) et après symétrisation (b). L'énergie des impulsions est de 14 mJ avant l'iris et les harmoniques sont générées dans un jet d'Zrgon de 250  $\mu\text{m}$ .

d'un profil spatial centré (la coupe présente un seul pic central) à un profil spatial annulaire (la coupe ne présente pas de signal au centre mais deux pics symétriques) ou à des configurations annulaires centrées (un pic central et un anneau) ou même à deux anneaux. Ces structures sont représentées sur la FIGURE 2.12.

Le diamètre de l'iris influe donc de manière très importante sur le profil spatial des harmoniques générées. Il est ainsi possible d'obtenir différents types de profils (annulaire, annulaire centré etc...) de manière très reproductible avec des structures qui sont similaires pour toutes les harmoniques. La compréhension de ce phénomène est importante car des faisceaux XUV non homogènes en champ lointain peuvent détériorer les profils temporels de l'XUV [Gaarde et Schafer, 2006]. Afin de mieux comprendre l'origine de ses structures et d'étudier les paramètres importants dans leur formation, nous avons réalisé une étude sur l'impact des paramètres usuels de génération.

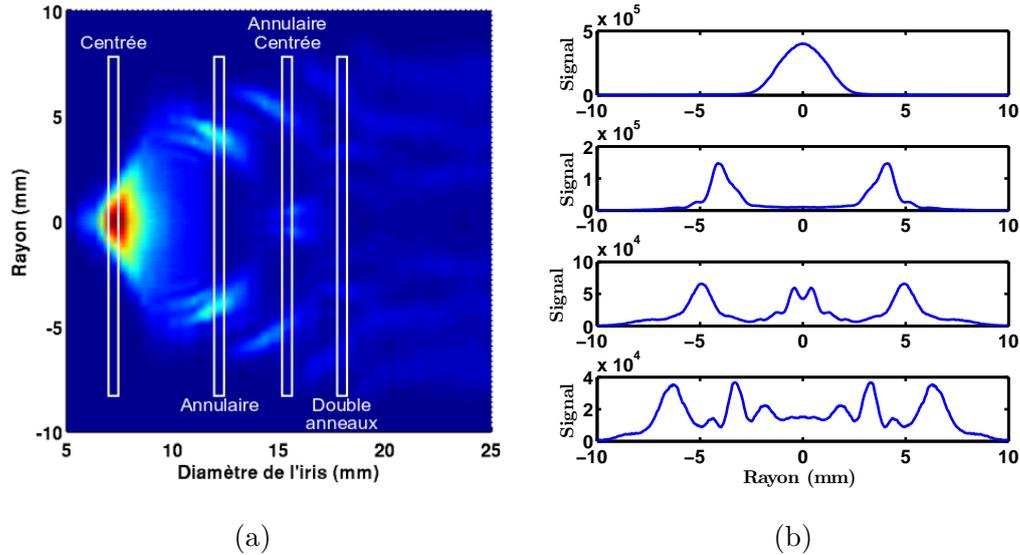


FIGURE 2.12 – Structures typiques observables sur les données de la FIGURE 2.10b (a) après symétrisation. Coupe de ces différentes structures (b).

## 2.3 Étude paramétrique de la génération de faisceaux harmoniques structurés spatialement dans des milieux fins

### 2.3.1 Faisceau annulaire

La première étude a été réalisée en se plaçant dans des conditions permettant de produire des harmoniques présentant un profil spatial annulaire. Pour cette étude, le diamètre de l'iris est de 12 mm et les harmoniques sont générées dans un jet d'Argon de  $250 \mu\text{m}$  situé 13,5 cm avant le foyer de l'IR.

Dans cette étude, l'impact de l'ordre harmonique, de la position du milieu générateur (distance du jet par rapport au faisceau) et de l'énergie incidente utilisée pour la génération seront précisés.

#### 2.3.1.1 Étude en fonction de l'ordre harmonique

Dans cette première série de données nous avons voulu observer l'impact de l'ordre harmonique sur la structure spatiale annulaire. Nous avons générées les harmoniques dans deux cas, pour une énergie incidente du laser IR générateur de 14 mJ et 24 mJ. Les profils spatiaux résolus spectralement des harmoniques pour les deux énergies considérées sont représentés sur la FIGURE 2.13.

Nous observons sur ces figures que les harmoniques présentent toutes des profils spatiaux similaires.

Afin d'étudier plus en détail les profils spatiaux des harmoniques générées, des coupes des harmoniques intégrées sur la largeur spectrale de l'harmonique sont repré-

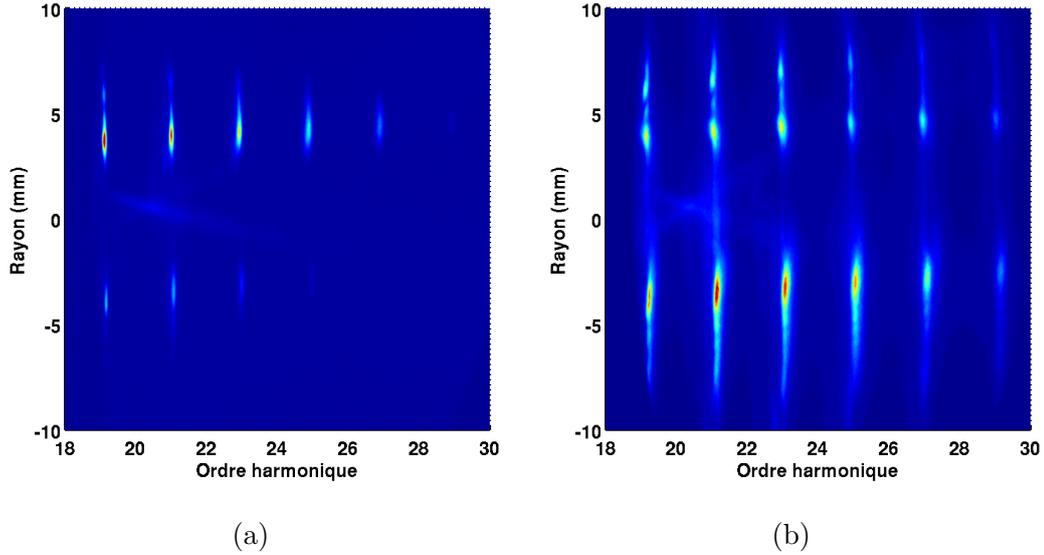


FIGURE 2.13 – Profils spatiaux des harmoniques 19 à 29 générées dans un jet d’Argon situé 13,5 cm avant le foyer IR pour un diamètre d’iris de 12 mm et une énergie laser de 14 mJ avant l’iris (a) et 24 mJ (b). Le jet est centré sur l’axe du laser ( $x = 0$ ) et le faisceau passe juste dessous le tube de  $250 \mu\text{m}$  ( $h = 0$ ). La structure centrale de l’harmonique 21 est un artefact dû à la lumière diffusée.

sentées sur la (FIGURE 2.14).

Sur ces figures nous remarquons tout d’abord que l’allure générale de la structure change peu avec l’ordre harmonique étudié. Le profil annulaire est conservé quel que soit l’ordre considéré et pour les deux énergies utilisées. Le diamètre des anneaux du faisceau XUV après une propagation de 2,90 m varie de 7 à 8 mm. On remarque aussi l’apparition de structures supplémentaires qui dépendent de  $q$  au centre et dans des anneaux supplémentaires lorsque l’on augmente l’énergie.

### 2.3.1.2 Impact de la longueur et de la pression du milieu générateur

Dans cette partie nous étudions l’impact de la position du milieu générateur sur les structures spatiales harmoniques. Nous utilisons un jet de gaz d’Argon de  $250 \mu\text{m}$  déplaçable en hauteur et transversalement par rapport au faisceau IR comme illustré sur la FIGURE 2.15.

Lorsque le jet de gaz est déplacé en hauteur, la longueur du milieu ainsi que la pression de gaz dans le milieu générateur sont modifiées (nous estimons que  $P$  varie comme l’inverse du carré de la longueur d’interaction). Le déplacement transverse modifie uniquement la pression.

Dans un premier temps nous avons étudié l’impact de la position en hauteur du jet sur la structure annulaire harmonique. Les résultats de cette analyse réalisée sur l’harmonique 19 sont représentés sur la FIGURE 2.16.

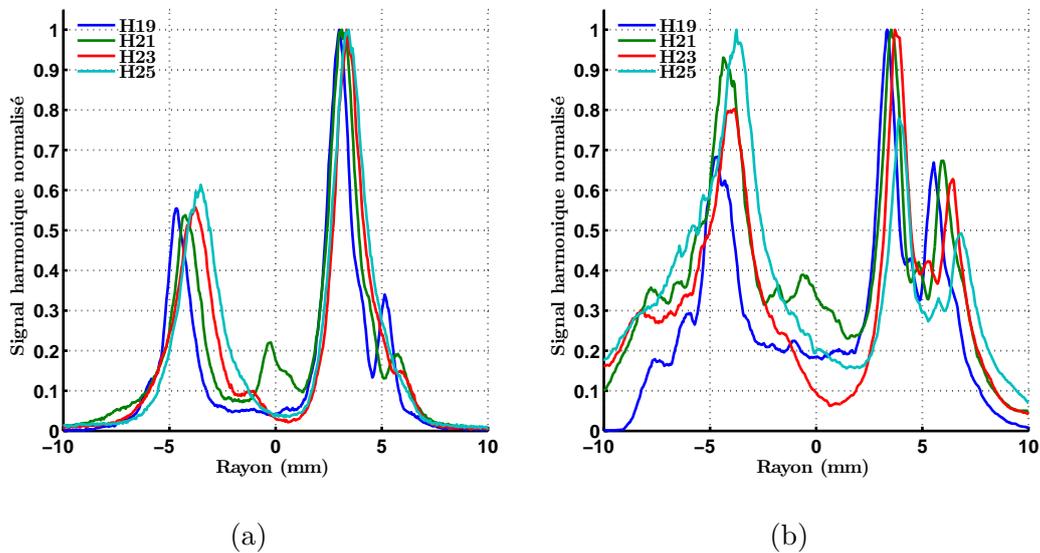


FIGURE 2.14 – Coupe des profils spatiaux des harmonique 19 à 25 générées dans un jet d’Argon situé 13,5 cm avant le foyer IR pour un diamètre d’iris de 12 mm et des énergie laser de 14 mJ (a) et 24 mJ (b) avant l’iris. Le jet est centré ( $x = 0$ ) et le faisceau passe juste dessous le tube de 250  $\mu\text{m}$  ( $h = 0$ ). La structure centrale de l’harmonique 21 est un artefact dû à la lumière diffusée.

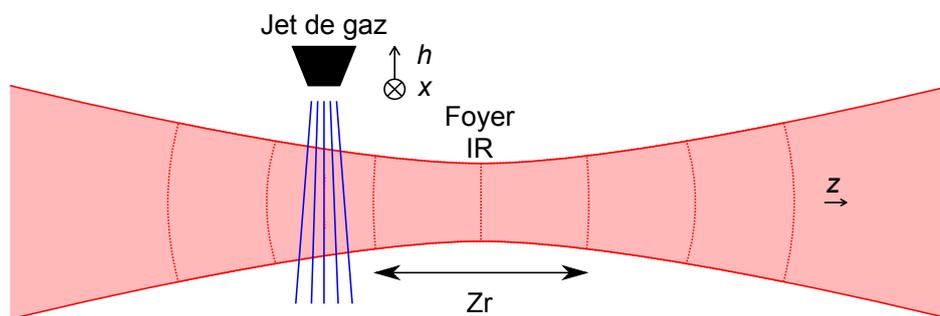


FIGURE 2.15 – Schéma de principe de la position du jet de gaz par rapport au laser. Le jet est situé loin du foyer si la distance  $z$  est supérieure à la longueur de Rayleigh  $Z_r$ .

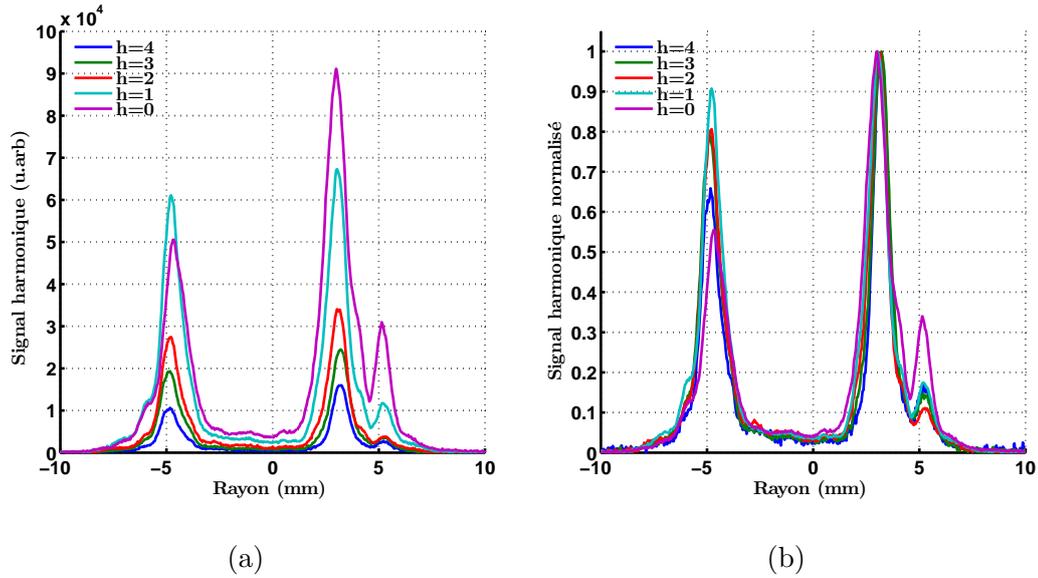


FIGURE 2.16 – Coupes des profils spatiaux de l’harmonique 19 intégrés sur la largeur spectrale de l’harmonique sans normalisation (a) et avec (b). Ces coupes sont obtenues pour des hauteurs de jet variant de  $h = 0$  mm (au plus près du faisceau IR) à  $h = 4$  mm par pas de 1 mm. L’iris a un diamètre de 12 mm, l’énergie avant l’iris est de 14 mJ et le jet est pratiquement centré transversalement ( $x = -0,1$  mm).

Sur cette figure on remarque que la structure globale n’est pas affectée par la position en hauteur du jet de gaz. Cette structure globale du profil spatial n’est pas affectée par la modification de la longueur du milieu générateur et de la pression induite par ce déplacement alors que le niveau de signal change d’un facteur proche de dix. On peut remarquer cependant certaines fluctuations dans les mesures influant sur l’asymétrie entre les deux pics et il est généralement difficile d’obtenir des structures parfaitement symétriques.

Une autre étude a été réalisée cette fois-ci en modifiant la position du milieu générateur transversalement. Ce qui permet de changer la pression du gaz sans changer la longueur du milieu. Les résultats sont présentés sur la FIGURE 2.17.

La encore on remarque qu’il n’y a pas de modification de l’allure globale de la structure spatiale harmonique.

Pour conclure sur cette étude, la modification de la pression et de la longueur du milieu n’affecte pas la structure spatiale annulaire de l’harmonique même lorsque le signal change d’un facteur six. Cette structure annulaire semble donc indépendante de la pression du gaz et de la longueur du milieu. Nous avons ensuite testé la robustesse de la structure annulaire avec la modification de l’énergie du faisceau IR générateur.

### 2.3.1.3 Influence de l’intensité du laser sur le profil annulaire

Dans cette étude nous avons fait varier l’énergie incidente des impulsions laser IR génératrices (en utilisant une lame demi-onde suivie d’un polariseur avant compression)

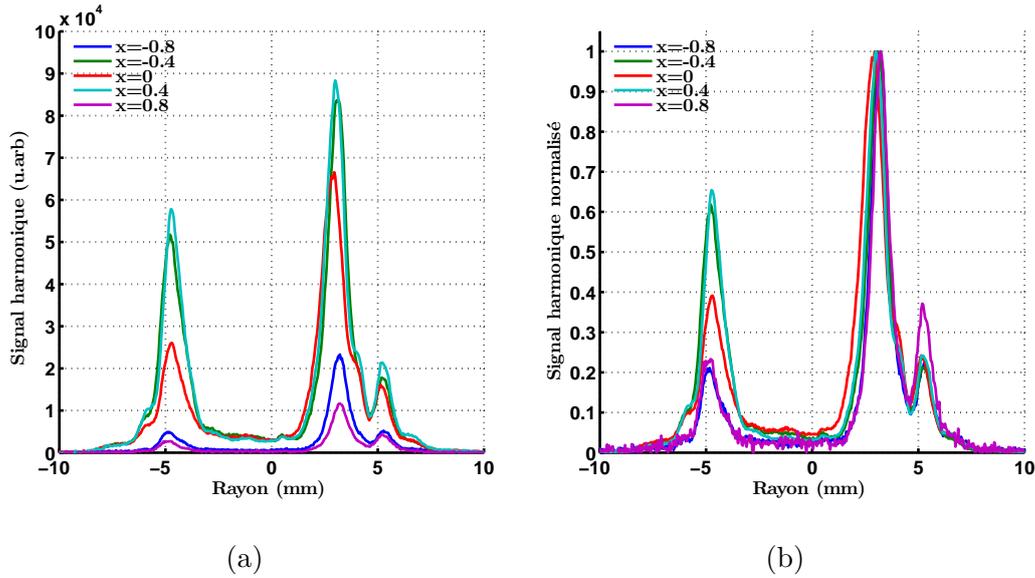


FIGURE 2.17 – Coupes des profils spatiaux de l’harmonique 19 intégrés sur la largeur spectrale de l’harmonique sans normalisation (a) et avec (b). Ces coupes sont obtenues pour des positions transverses du jet variant de  $x = -0,8$  à  $x = 0,8$  mm par pas de  $0,4$  mm. L’iris a un diamètre de  $12$  mm, l’énergie avant l’iris est de  $14$  mJ et le jet est à la hauteur minimale ( $h = 0$  mm).

afin de voir l’influence de celle-ci sur les profils spatiaux harmoniques. Les résultats de cette étude sont représentés sur la FIGURE 2.18 pour l’harmonique 19 après normalisation.

On remarque une structure annulaire quelle que soit l’énergie du faisceau générateur. Cependant, contrairement au cas des faibles énergies où l’on obtient un faisceau annulaire faiblement structuré, lorsque l’on augmente l’énergie du faisceau IR des structures supplémentaires apparaissent sur cet anneau et on remarque la création d’un anneau supplémentaire.

Lorsque l’on regarde plus en détail ce profil, on remarque un léger changement du diamètre des anneaux avec l’énergie. Ce diamètre est représenté sur la FIGURE 2.19 pour plusieurs énergies de génération et pour plusieurs harmoniques.

Sur cette figure on remarque que le diamètre des harmoniques hautes est un peu plus faible que celui des harmoniques basses. De plus quelle que soit l’harmonique considérée on observe une légère augmentation du diamètre de l’ordre de  $10\%$  pour une énergie allant de  $14$  mJ à  $24$  mJ. Le diamètre change peu pour les harmoniques basses et change de manière plus nette pour les harmoniques élevées. Cette modification peut être liée à l’augmentation du volume émetteur quand l’énergie augmente. Le faisceau XUV est émis sur une partie plus externe du faisceau IR à haute énergie et cela se traduit pas une augmentation de la divergence des harmoniques.

Pour conclure, l’énergie de génération affecte peu le profil spatial des harmoniques générées qui reste annulaire dans une large gamme d’éclairement. On remarque une

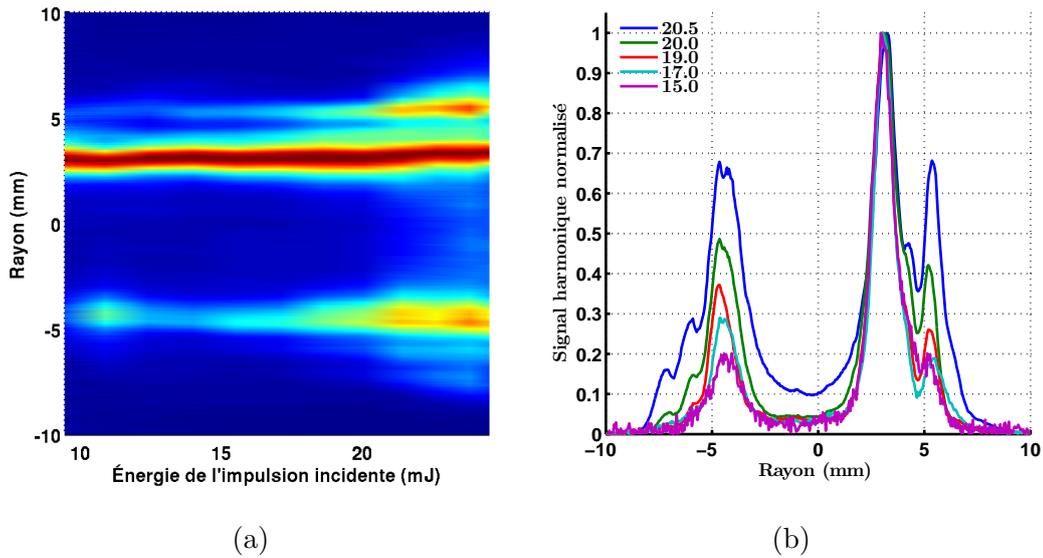


FIGURE 2.18 – Évolution des profils spatiaux de l’harmonique 19 intégrés sur la largeur spectrale de l’harmonique avec normalisation. Ces profils sont obtenus en faisant varier l’énergie de l’impulsion incidente. L’iris a un diamètre de 12 mm, le jet est situé 13,5 cm après le foyer et le jet est à la hauteur minimale ( $h = 0$ ) et centré transversalement ( $x = 0$ ).

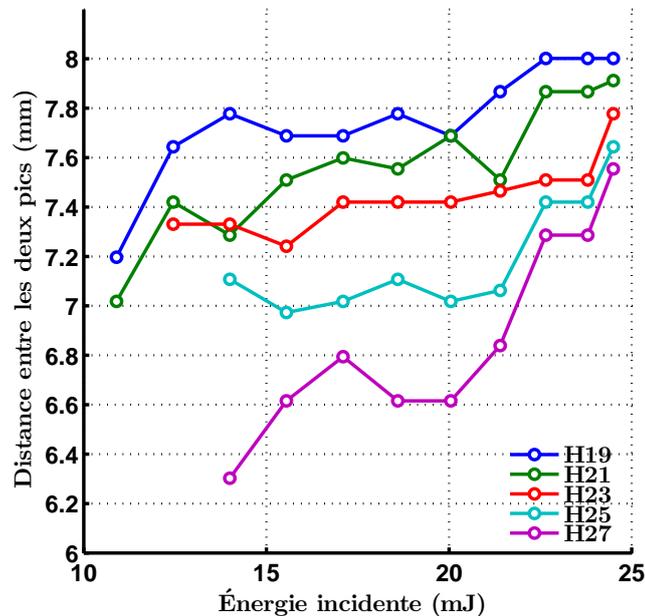


FIGURE 2.19 – Évolution du diamètre du profil annulaire XUV observé pour plusieurs énergies et pour plusieurs harmoniques. Les harmoniques sont générées dans un jet d’Argon de 250  $\mu\text{m}$  situé 13,5 cm après le foyer de l’IR et pour un diamètre d’iris de 12 mm.

légère augmentation du diamètre de l'anneau des harmoniques avec l'augmentation de l'énergie et des anneaux plus structurés.

#### 2.3.1.4 Conclusion pour l'étude du faisceau annulaire

Dans cette étude nous avons étudié la robustesse du profil spatial annulaire observé sur des faisceaux harmoniques générés loin du foyer. Nous avons testé l'influence de l'ordre harmonique considéré, l'impact de la longueur du milieu et de la pression de gaz générateur ainsi que l'impact de l'énergie des impulsions génératrices. Dans tous ces cas, nous avons observé une très grande robustesse du profil annulaire qui ne semble pas être influencé par ces paramètres et donc peu affecté par la propagation. Cette structure peut venir de paramètres qui n'ont pas été modifiés comme par exemple le profil spatial de l'IR lors de la génération.

Une seconde étude avec une géométrie différente permettant de générer des profils spatiaux harmoniques de forme annulaire centrée a été réalisée. Les principaux résultats sont représentés dans la partie suivante et les conclusions apportées sont globalement similaires à celles liées au profil annulaire.

### 2.3.2 Faisceau annulaire centré

Dans cette étude nous nous sommes placés dans des conditions permettant de produire des harmoniques ayant un profil spatial annulaire centré. Le diamètre de l'iris est de 16,5 mm et les harmoniques sont générées dans un jet d'Argon de 250  $\mu\text{m}$  situé 9 cm avant le foyer de l'IR. Les profils spatiaux des harmoniques sont représentés sur la FIGURE 2.20 pour deux énergies du faisceau IR.

Dans un premier temps nous avons étudié l'impact de l'ordre harmonique. Le profil harmonique est semblable pour toutes les harmoniques dont nous avons étudié l'impact de l'énergie de l'impulsion incidente sur la structure analysée. Les résultats sont présentés sur la FIGURE 2.21 où sont tracés les coupes du profil annulaire centré présentant un pic central plus deux pics légèrement asymétriques situés à  $r = \pm 6$  mm.

Comme on peut le voir la structure n'est ni affectée par l'ordre harmonique considéré ni par l'énergie incidente.

On remarque cependant que dans certains cas l'un des côtés de l'anneau disparaît. Nous estimons que cette asymétrie est fortuite et essentiellement due à l'asymétrie du faisceau IR.

Une autre étude a été réalisée pour observer l'influence de la longueur du milieu générateur et de la pression sur le profil spatial XUV. Les résultats sont représentés sur la FIGURE 2.22.

Là encore on observe que le profil reste inchangé même lorsque le signal est réduit d'un ordre de grandeur.

### 2.3. Étude paramétrique de la génération de faisceaux harmoniques structurés spatialement dans des milieux fins

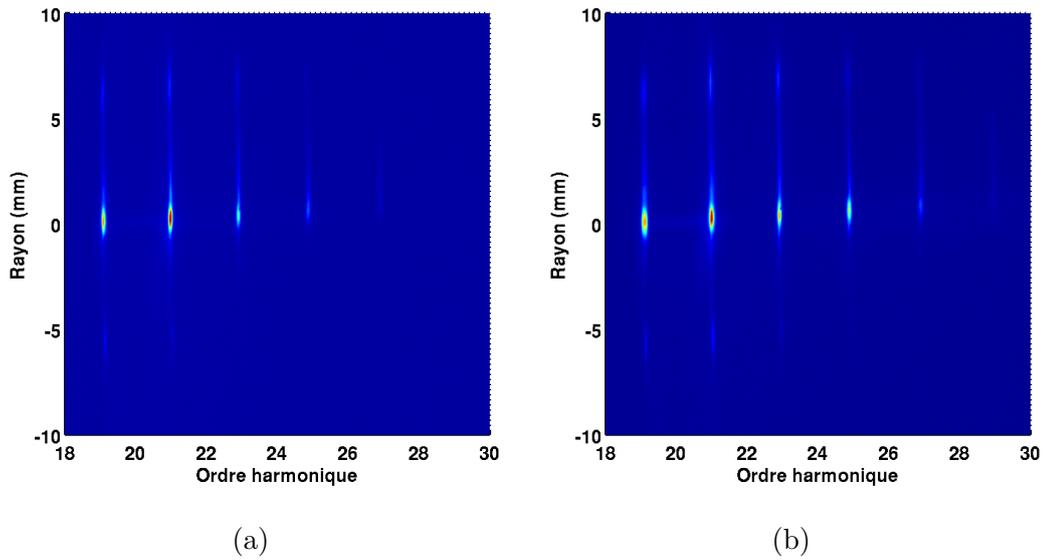


FIGURE 2.20 – Profils spatiaux des harmoniques 19 à 29 générées dans un jet d’Argon situé 9 cm avant le foyer IR pour un diamètre d’iris de 16,5 mm et des énergie laser de 17 mJ (a) et 20,5 mJ (b) avant l’iris. Le jet est centré ( $x = 0$ ) et le faisceau passe juste dessous le tube de 250  $\mu\text{m}$  ( $h = 0$ ).

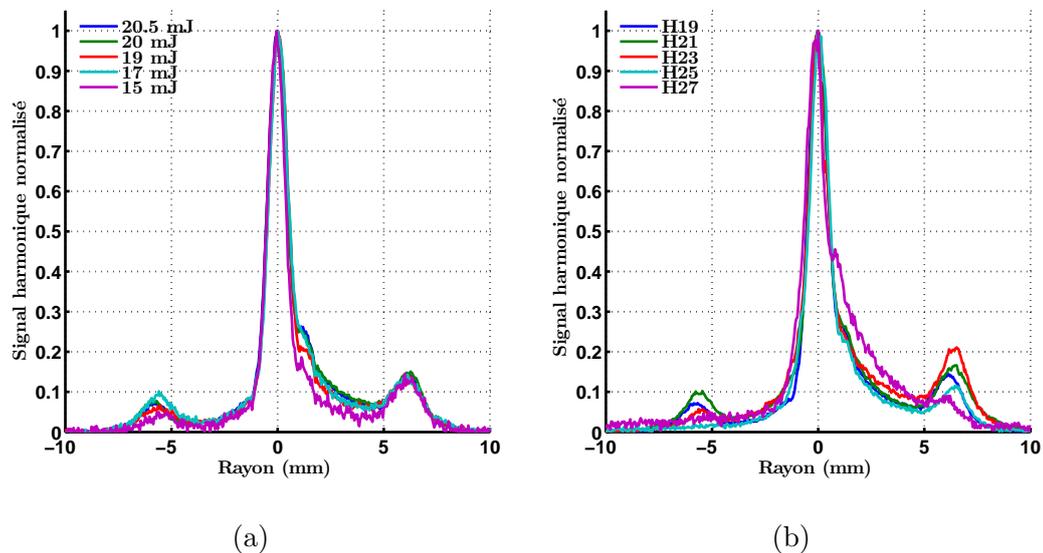


FIGURE 2.21 – Profils spatiaux annulaires centrés normalisés. Les harmoniques sont générées dans un jet d’Argon situé 9 cm avant le foyer IR pour un diamètre d’iris de 16,5 mm. Les coupes sont représentées pour plusieurs énergies de génération pour l’harmonique 19 (a) et pour plusieurs harmoniques (b) pour une énergie de 20,5 mJ avant l’iris.

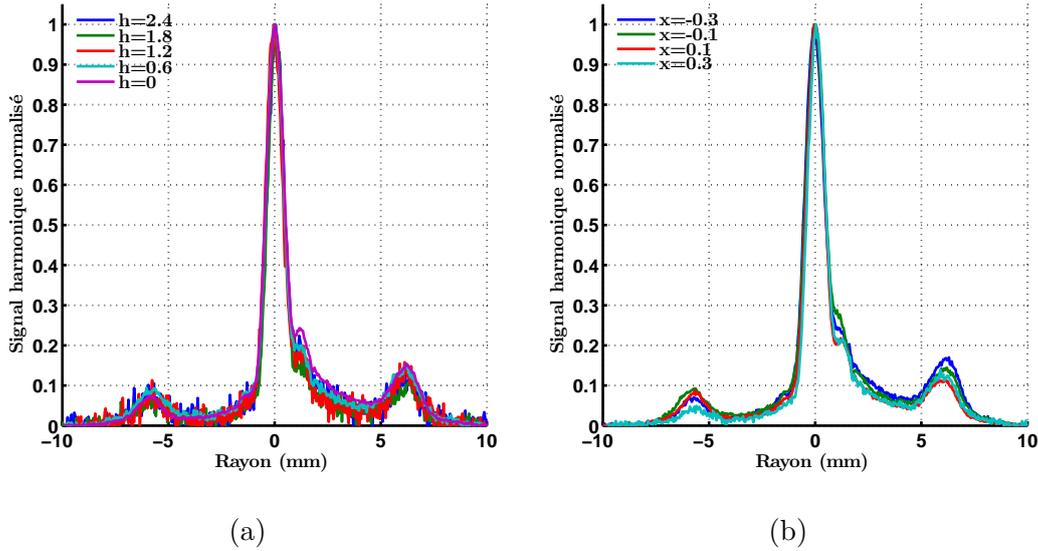


FIGURE 2.22 – Profils spatiaux XUV normalisés et générés dans un jet d’Argon situé 9 cm avant le foyer IR pour un diamètre d’iris de 16,5 mm. Ces coupes sont obtenues pour plusieurs hauteurs du jet de gaz qui changent la pression et la longueur du milieu (a) et pour plusieurs positions transverses du jet de gaz qui changent la pression dans le milieu générateur (b).

### 2.3.2.1 Conclusion pour l’étude du faisceau annulaire centré

Dans cette partie nous avons étudié l’impact de l’ordre harmonique considéré, de l’énergie de génération, de la pression et de la longueur du milieu générateur sur le profil spatial harmonique. On remarque que pour toutes les conditions étudiées, le profil spatial des harmoniques est resté le même. Cela nous confirme donc une seconde fois que ce profil n’est pas dû à des effets de propagation dans le milieu générateur. Nous avons ensuite étudié plus en détail le profil du faisceau IR générateur.

## 2.4 Simulation de l’émission d’harmoniques hors foyer

Pour comprendre l’origine de ces structures spatiales nous nous sommes intéressés au profil spatial du faisceau IR.

### 2.4.1 Présentation du modèle

Des structures spatiales de faisceau XUV ont déjà été observées [Tamaki *et al.*, 2000], [Brunetti *et al.*, 2008], [Jiang *et al.*, 2014], [He *et al.*, 2015] et [Wang *et al.*, 2015] et ont été expliquées en utilisant la propagation. Afin de comprendre l’origine physique des observations obtenues lors de l’étude expérimentale qui ne dépendaient pas de la propagation, nous avons réalisé des simulations permettant d’obtenir le profil spatial des harmoniques en champ lointain sans considérer la propagation dans le milieu généra-

teur.

Dans ce modèle nous considérons un faisceau IR incident de longueur d'onde 800 nm. Le profil spatial du faisceau incident est un profil Gaussien de taille au col 7,6 mm coupé par un iris de diamètre variable et focalisé par un miroir sphérique avec  $f = 2$  m. Le calcul du profil spatial au foyer de ce faisceau est réalisé à l'aide de la transformée de Hankel [Peatross et Meyerhofer, 1995] [Roos *et al.*, 1999]. Le champ IR s'exprime de la forme suivante :

$$u(r, z) = \frac{2\pi i}{(f+z)\lambda} \int_0^a r_0 u_0(r_0) \exp\left(-i \frac{\pi}{(f+z)\lambda} \times (r^2 + r_0^2)\right) J_0\left(\frac{2\pi r r_0}{(f+z)\lambda}\right) dr_0, \quad (2.3)$$

où  $r$  et  $z$  représentent les coordonnées transverses et longitudinales au niveau du foyer,  $J_0$  représente la fonction de Bessel d'ordre 0 et où  $f$  est la focale du dispositif de focalisation et  $r_0$  la coordonnée transverse juste après le dispositif de focalisation. La modélisation de l'émetteur XUV est réalisée à l'aide du profil spatial du faisceau IR dans le milieu générateur et en considérant un dipôle modèle avec  $q_{eff} = 5$  (voir avec l'émission via le chemin court). Le faisceau XUV ainsi généré est ensuite diffracté et calculé par la transformée de Hankel dans le plan d'observation situé à 2,9 m. Nous observons que le profil spatial XUV varie beaucoup en fonction de la position du milieu générateur.

## 2.4.2 Résultats

Nous avons calculé les profils spatiaux de l'harmonique 19 en champ lointain pour plusieurs diamètres d'iris. Ces résultats sont calculés pour une position du milieu générateur situé au foyer de l'IR et sont représentés sur la FIGURE 2.23.

Sur cette figure on voit bien que l'harmonique considérée n'est pas structurée pour une génération des harmoniques au foyer de l'IR.

Nous avons ensuite réalisé des simulations en déplaçant le milieu générateur 13,5 cm avant le foyer de l'IR. Les profils spatiaux de l'IR au niveau du milieu générateur ainsi que les profils de l'harmonique 19 en champ lointain sont représentés sur la FIGURE 2.24.

Sur cette figure on remarque un faisceau IR très structuré au niveau du milieu générateur. Des structures sont bien présentes dans les profils XUV générés et il apparaît nettement qu'il est possible d'obtenir des structures différentes en modifiant le diamètre de l'iris. Cette étude a été réalisée en modifiant la position du milieu générateur en le plaçant cette fois ci 13,5 cm après le foyer de l'IR. Les profils spatiaux de l'IR au niveau du milieu générateur ainsi que les profils de l'harmonique 19 en champ lointain sont représentés sur la FIGURE 2.25.

Comme pour l'étude précédente on voit un faisceau IR très structuré au niveau de la génération et un faisceau XUV très structuré en champ lointain. On remarque aussi une grande ressemblance entre les résultats obtenus dans la FIGURE 2.24 et la FIGURE 2.25. Dans ces simulations on remarque ainsi qu'il est possible de simuler des

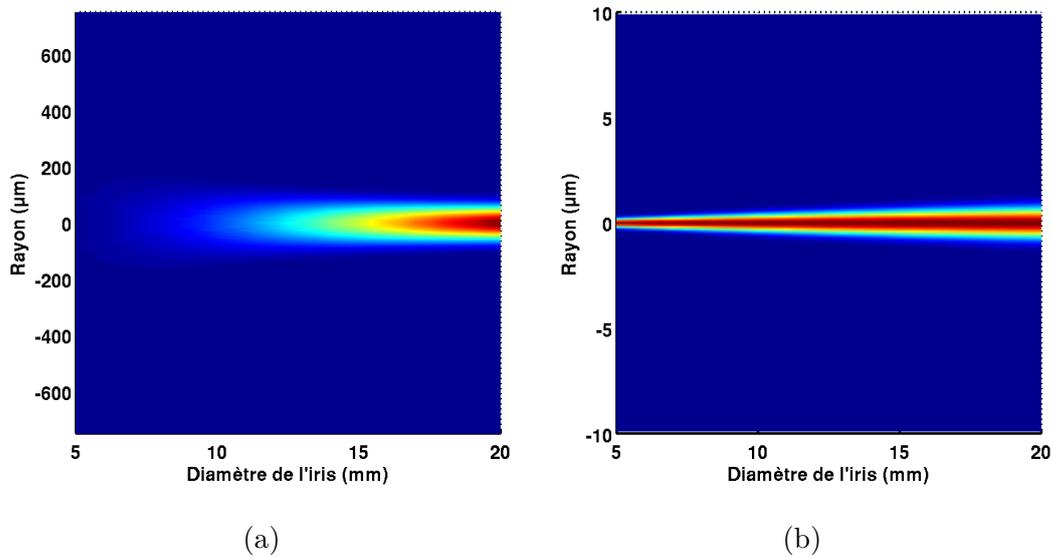


FIGURE 2.23 – Profil spatial de l’harmonique 19 sans normalisation (a) et avec normalisation (b) pour plusieurs diamètres d’iris. Dans cette étude le milieu générateur est situé au foyer et le plan d’observation est situé 2,9 m après le foyer.

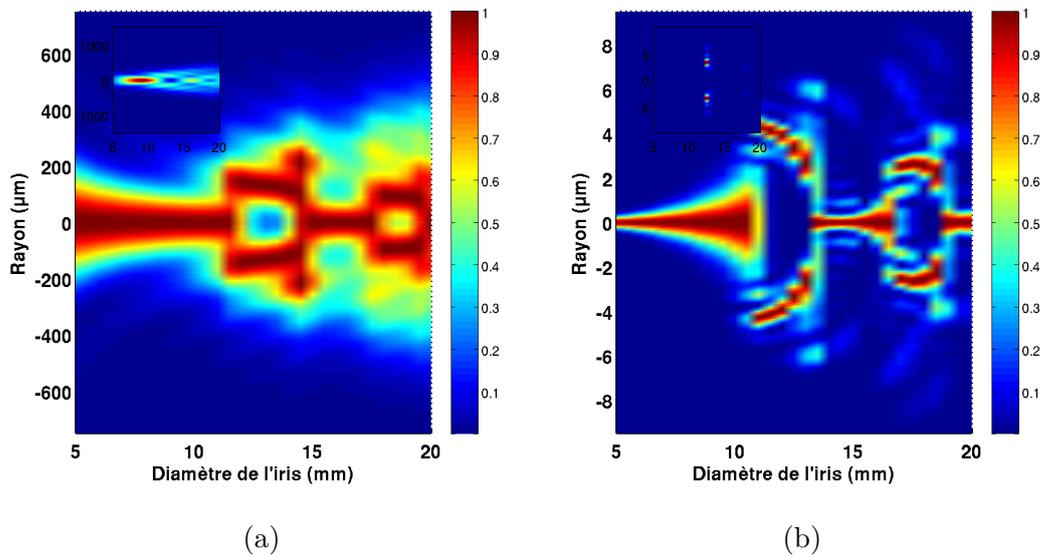


FIGURE 2.24 – Profil IR normalisé, simulé au niveau du milieu générateur (insert sans normalisation) (a). Profil spatial XUV simulé en champ lointain normalisé (insert sans normalisation) (b). Pour l’harmonique 19 et un milieu générateur situé 13,5 cm avant le foyer.

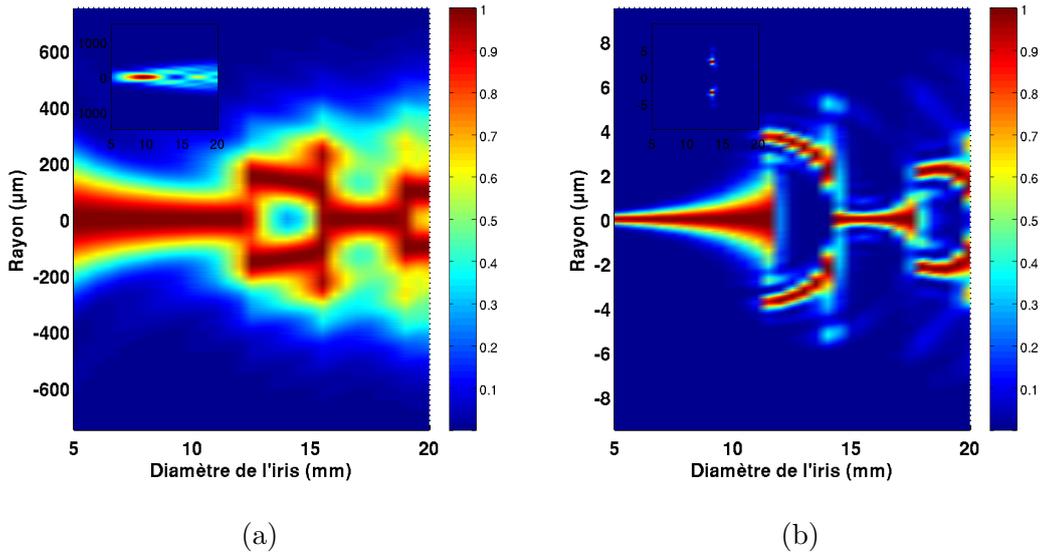


FIGURE 2.25 – Profil IR normalisé simulé au niveau du milieu générateur (insert sans normalisation) (a). Profil spatial XUV simulé en champ lointain normalisé (insert sans normalisation) (b). Pour l'harmonique 19 et un milieu générateur situé 13,5 cm après le foyer.

profils spatiaux harmoniques de différentes formes (annulaire, annulaire centré, etc...) en modifiant uniquement le diamètre de l'iris de génération. De plus ces simulations sont réalisées sans prendre en compte la propagation dans le milieu générateur. Un paramètre qui est modifié dans cette simulation est le profil de l'IR lors de la génération qui semble prépondérant dans la génération de ces profils structurés.

### 2.4.3 Comparaison des résultats expérimentaux et théoriques

Dans un premier temps nous avons voulu observer s'il est possible d'obtenir des faisceaux IR avec des structures très marquées comme obtenues par les simulations. La FIGURE 2.26 montre le profil spatial expérimental de l'IR 13,5 cm après le foyer de l'IR pour un iris de 12 et 14 mm de diamètre.

Sur cette figure on observe des faisceaux IR structurés lorsque le faisceau est tronqué par un iris et que l'on observe hors foyer. Nous observons une légère asymétrie malgré le filtrage spatial en amont. Il est donc possible expérimentalement d'obtenir une structuration du faisceau générateur annulaire ou annulaire centrée hors foyer et de contrôler cette structure avec l'iris.

Dans un second temps nous avons comparé nos simulations pour l'XUV avec les résultats expérimentaux pour le cas de l'émission d'un profil annulaire. Les conditions expérimentales reproduites dans la simulation sont une génération pour un diamètre de l'iris de 12,5 cm et un milieu situé 13,5 cm après le foyer de l'XUV. Les profils spatiaux harmoniques calculés et mesurés pour l'harmonique 19 et 25 sont représentés sur la FIGURE 2.27.

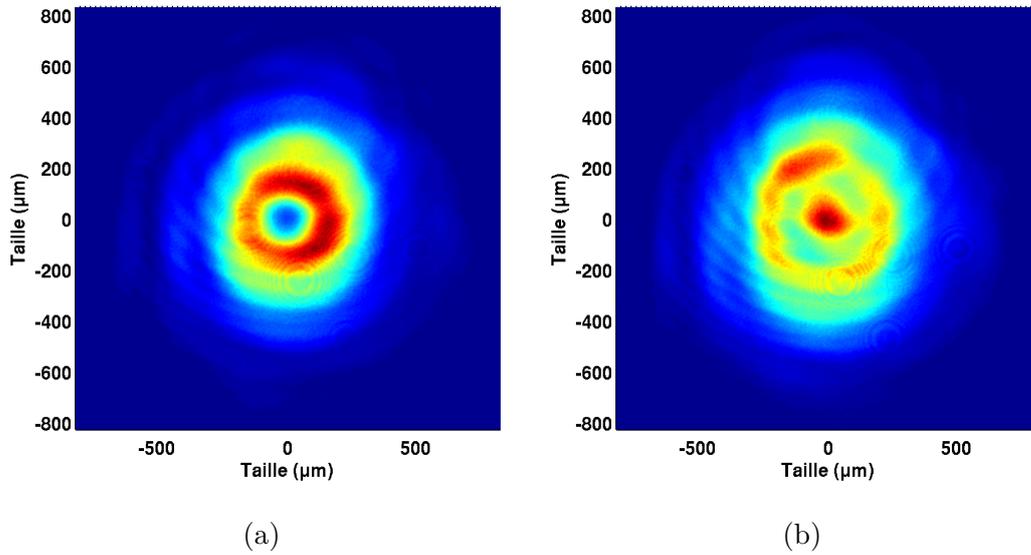


FIGURE 2.26 – Profil spatial expérimental de l'IR 13,5 cm après le foyer. Pour un diamètre d'iris de 12 mm (a) et pour un diamètre d'iris de 14 mm (b).

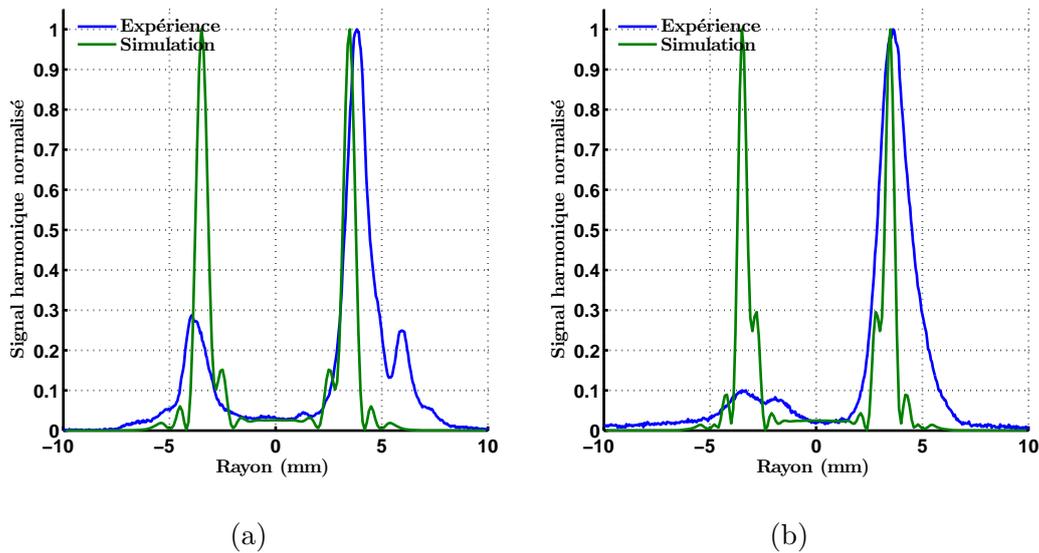


FIGURE 2.27 – Profil spatial harmonique expérimental et simulé observé en champ lointain généré pour un milieu générateur situé 13,5 cm après le foyer et pour un diamètre de l'iris de génération de 12,5 cm. Pour l'harmonique 19 (a) et pour l'harmonique 25 (b).

Sur cette figure on observe que le profil annulaire XUV est bien représenté dans les simulations. On remarque une dissymétrie dans les données expérimentales qui n'apparaît pas dans les simulations. Ceci peut être dû au profil IR qui n'est pas parfait malgré le filtrage spatial et il est difficile d'obtenir expérimentalement des profils spatiaux parfaitement symétriques. Nous observons que le diamètre de l'anneau simulé est en bon accord avec nos mesures. En effet on obtient 7 mm dans la simulation comparé à 7,7 mm pour l'expérience. On remarque cependant une différence concernant la largeur des pics, en effet on obtient des pic de largeur à mi-hauteur de 0,6 mm pour la simulation contre 1,1 mm pour l'expérience.

Nous avons ensuite, de la même façon que pour l'expérience (FIGURE 2.19), étudié le diamètre du profil annulaire XUV observé en champ lointain pour plusieurs intensités et pour plusieurs harmoniques.

Dans cette étude on remarque que quel que soit l'ordre ou l'intensité considéré, le diamètre de l'anneau généré est de 7 mm. Cette valeur est bien en accord avec les valeurs expérimentales cependant nous n'observons aucune évolution de celle-ci dans les simulations. Alors qu'expérimentalement (FIGURE 2.19) on observe une évolution de ce diamètre avec l'ordre harmonique considéré et l'énergie. Le fait que le diamètre ne change pas avec  $q$  en champ lointain implique que les structures ne sont pas dues à la diffraction (qui dépend de  $\lambda$ ). La diffraction de l'émission est donc imposée par un paramètre commun (qui ne dépend pas de l'ordre harmonique) qui peut être la direction du vecteur d'onde IR dans la zone où l'intensité IR est suffisante pour générer les harmoniques. Cela implique que la géométrie des anneaux ne change pas avec l'ordre et que la largeur des anneaux va augmenter quand on augmente l'énergie. Pour un volume émetteur plus grand on obtient une distribution plus importante de direction de vecteurs d'onde IR.

Nous pouvons donc en conclure que notre modèle n'est pas complet mais qu'il permet cependant de simuler la structure globale des harmoniques générées en prenant en compte uniquement le profil spatial du faisceau générateur et un dipôle modèle. Les variations de diamètres sont dues aux limitations de notre modèle comme la non prise en compte de la propagation, et des valeurs de  $\alpha$  et  $q_{eff}$  fixes.

## 2.5 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous avons généré un faisceau harmonique hors du foyer laser en utilisant un laser IR générateur de forte énergie tronqué par un iris avant la focalisation. Cette approche permet de contrôler le profil spatial du faisceau laser dans le milieu générateur qui a un très fort impact sur le profil spatial harmonique. Nous avons généré des faisceaux harmoniques avec des profils spatiaux annulaires et annulaires centrés et nous avons montré que les effets de la propagation sur les caractéristiques du profil spatial du faisceau XUV sont faibles. Nous avons observé des profils spatiaux XUV complexes et nous avons remarqué que ces profils sont essentiellement contrôlés par la

position du milieu générateur par rapport au foyer du laser IR et par le diamètre de l'iris de génération.

Ces études nous ont permis de conclure que les structures spatiales du profil XUV sont principalement déterminées par le profil spatial de l'IR dans le milieu générateur. Cette étude nous montre donc une méthode simple permettant de contrôler le profil spatial des harmoniques émises et de mettre en évidence l'impact fort de l'iris sur les profils harmoniques quand la génération d'harmoniques a lieu hors foyer. Notons que les iris sont communément utilisés pour optimiser la génération d'harmoniques. Ils seront difficilement utilisables avec des faisceaux IR de forte énergie si la génération d'harmoniques a lieu loin du foyer et si l'on cherche à obtenir des faisceaux XUV Gaussiens.

# Chapitre 3

## Contrôle spectral

« Uuuuuuuuur Ahhhrrrrrr Uhrrrrr  
Ahhhhrrrrrrr Aaaarhg... »

---

Chewbacca

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Introduction</b>	<b>73</b>
<b>3.2</b>	<b>Contrôle spectral d'une harmonique</b>	<b>73</b>
3.2.1	Introduction	73
3.2.2	Dispositif expérimental	73
3.2.2.1	Calibration de la paire de prisme	74
3.2.2.2	Effet de la phase relative entre les répliques sur le profil temporel	75
3.2.3	Résultats pour le faisceau IR	76
3.2.3.1	Simulations du spectre IR	76
3.2.3.2	Résultats expérimentaux sur le spectre IR	78
3.2.3.3	Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux	78
3.2.4	Résultats pour le faisceaux XUV	81
3.2.5	Conclusion	85
<b>3.3</b>	<b>Contrôle du spectre harmonique</b>	<b>86</b>
3.3.1	Introduction	86
3.3.2	Utilisation des effets macroscopiques pour le contrôle spectral des harmoniques	86
3.3.3	Dispositif expérimental	87
3.3.3.1	Laser utilisé	87
3.3.3.2	Génération et détection d'harmoniques d'ordres élevés	89
3.3.4	Résultats expérimentaux	90
3.3.5	Contrôle du spectre harmonique	96

3.3.6 Conclusion et perspectives . . . . .	98
<b>3.4 Conclusion</b> . . . . .	<b>99</b>

---

## 3.1 Introduction

Dans ce chapitre nous allons étudier différentes approches pour contrôler un spectre harmonique. Dans un premier temps nous allons utiliser le contrôle des propriétés spectrales du faisceau IR générateur pour contrôler finement la longueur d'onde et la largeur des harmoniques. Dans un second temps nous allons utiliser les effets collectifs afin de sélectionner une partie du spectre. Ces deux approches permettent d'avoir un contrôle global sur le spectre harmonique.

## 3.2 Contrôle spectral d'une harmonique

### 3.2.1 Introduction

Le contrôle fin de la longueur d'onde des harmoniques est très utile dans divers domaines comme par exemple pour les lasers X où la cohérence spatiale et temporelle des harmoniques est très intéressante pour l'injection des lasers X [He *et al.*, 2009]. Le contrôle fin de la longueur d'onde des harmoniques est aussi très utile pour l'injection de FEL (Free Electron Laser) [Lambert *et al.*, 2008] ou en métrologie pour l'étude de résonances [Jones *et al.*, 2005]. Dans cette partie nous allons étudier une méthode permettant un contrôle fin du contenu spectral spécifique des harmoniques émises. Cette méthode est basée sur un contrôle du spectre IR à l'aide de cristaux biréfringents d'épaisseur variable [Bates *et al.*, 1979] [Radzewicz *et al.*, 1996].

### 3.2.2 Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé ici est le même que celui décrit dans le chapitre 1 et permet de générer des impulsions IR de 35 fs de haute énergie. Dans cette expérience, un dispositif de mise en forme temporelle et de contrôle spectral est ajouté avant le compresseur et est schématisé sur la FIGURE 3.1. Dans ce dispositif, une impulsion polarisée linéairement traverse un cristal biréfringent d'épaisseur contrôlable (à l'aide d'une paire de prisme biréfringent) dont les axes ordinaires et extraordinaires sont orientés à 45° de la polarisation de l'impulsion incidente. Cette traversée a pour effet de séparer l'impulsion initiale en deux impulsions de même intensité séparées d'un délai  $\Delta\tau$  dont les polarisations sont orientées chacune selon un des axes du cristal. Le délai  $\Delta\tau$  séparant les deux impulsions est relié à l'épaisseur du cristal biréfringent utilisé et s'écrit de la manière suivante :

$$\Delta\tau = \frac{L |n_{go} - n_{ge}|}{c}. \quad (3.1)$$

Dans le cas étudié lors de cette expérience, les cristaux utilisés sont des cristaux de quartz dont les indices de groupe de l'axe ordinaire et extraordinaire sont respectivement  $n_{go} = 1,5383$  et  $n_{ge} = 1,5472$  autour de 800 nm (site [RefractiveIndex](#)). Ces

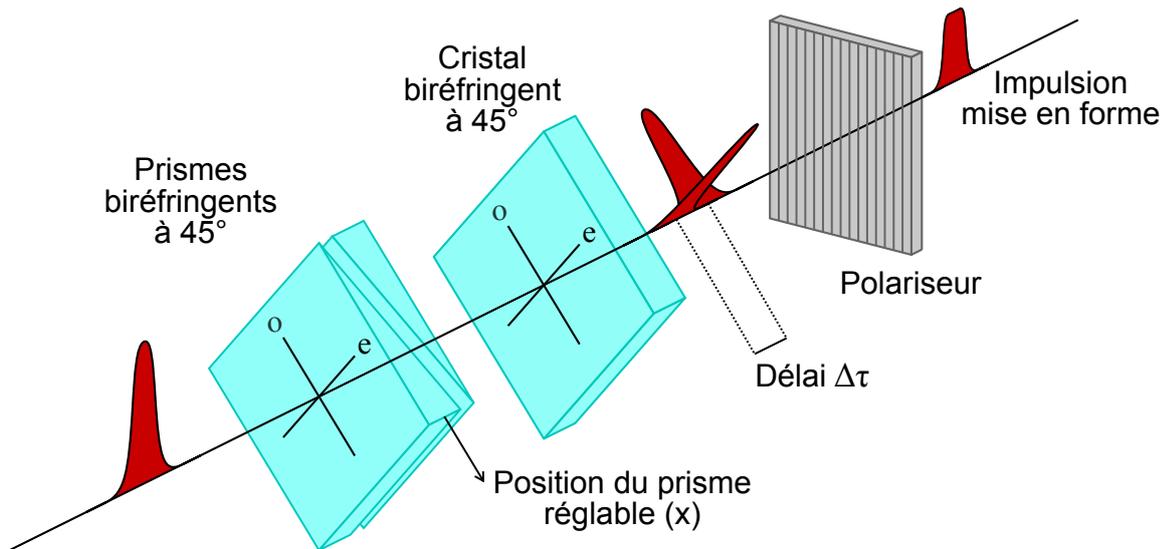


FIGURE 3.1 – Dispositif de mise en forme temporelle d'impulsion.

valeurs d'indice permettent, par exemple, d'obtenir un délai entre les deux impulsions de  $\Delta\tau_{1\text{ mm}} = 29,69$  fs pour une épaisseur de cristal de 1 mm.

Les deux impulsions sont ensuite projetées sur un polariseur orienté à  $45^\circ$  des axes de polarisation des impulsions incidentes. Nous obtenons donc deux impulsions de même polarisation, séparées d'un délai  $\Delta\tau$ .

Ces deux impulsions vont ensuite interférer entre elles lorsqu'elles se recouvrent de manière constructive si elles sont en phase l'une avec l'autre  $\Delta\varphi \equiv 0[2\pi]$  ou de manière destructive si elles sont en opposition de phase  $\Delta\varphi \equiv \pi[2\pi]$ . Afin de contrôler au mieux cet effet, une paire de prismes biréfringents, dont les axes sont orientés parallèlement à ceux du cristal, a été installée. Un des deux prismes peut translater afin de changer précisément l'épaisseur de cristal biréfringent traversée dans le système. De plus il est possible de modifier cette épaisseur de manière plus importante en ajoutant un autre cristal dont les axes sont orientés comme ceux des prismes. Si l'axe ordinaire des prismes est perpendiculaire à l'axe extraordinaire du cristal, le délai total sera une différence du délai induit par ces deux éléments mais s'ils sont parallèles alors le délai total sera égal à la somme des délais induits par chaque élément.

### 3.2.2.1 Calibration de la paire de prisme

Les prismes utilisés sont des prismes, de petit angle en quartz, de 50 mm de longueur et d'épaisseur variable allant de 0,5 mm à 1,5 mm pour chaque prisme. Un des deux prismes est installé sur une platine de translation. Cette translation permet de contrôler très finement l'épaisseur de quartz traversée. Afin de calibrer notre dispositif, nous avons utilisé un faisceau de grande largeur spectrale que nous avons fait traverser au travers de notre paire de prisme. Le spectre en sortie après un polariseur s'écrit de la

manière suivante :

$$I_{out} = 2I_{in} \left( 1 + \cos \left( \underbrace{\frac{2\pi}{\lambda} L (n_o - n_e)}_{\Delta\varphi} \right) \right), \quad (3.2)$$

où  $\Delta\varphi$  est la phase entre les deux répliques et où  $I_{in}$  est l'intensité d'une impulsion. Nous avons donc réalisé un ajustement sur le spectre expérimental afin d'obtenir la longueur  $L$  de matériaux pour une position de la platine de translation déplaçant le prisme. Cet ajustement est représenté sur la FIGURE 3.2 pour deux positions des prismes  $P$  (16 et 40 mm sur la platine de translation).

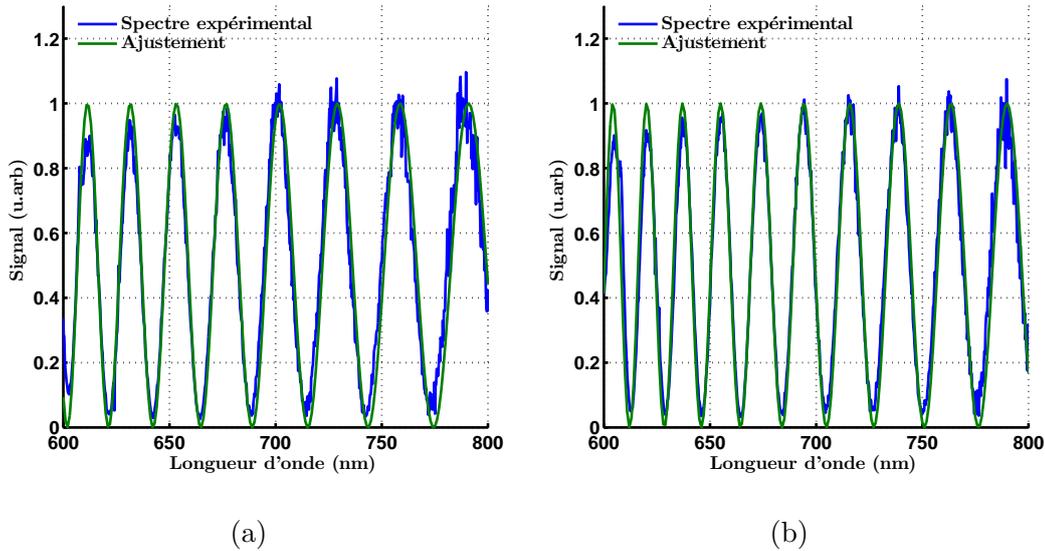


FIGURE 3.2 – Détermination de l'épaisseur de cristal pour une position du prisme de : 16 mm sur la platine de translation (a) ou 40 mm sur la platine de translation (b).

Les épaisseurs de cristaux correspondant à une position de 16 mm (respectivement 40 mm) sont  $1,950 \pm 0,005$  mm (respectivement  $2,390 \pm 0,005$  mm). Cet ajustement associé à une interpolation nous permet de connaître l'épaisseur de cristal  $L$  pour chaque position de la platine de translation.

$$L = 0,0183P + 1,656. \quad (3.3)$$

Ainsi si l'on déplace notre platine de translation de 100 microns, ceci équivaut environ à une variation de l'épaisseur effective de 2 microns et donc un délai d'environ 54 as. Il nous est donc possible, à l'aide des prismes et d'un cristal de quartz de 1 mm, de faire varier l'épaisseur effective de 2,95 à 3,39 mm (87,6 à 100,6 fs) lorsque les axes ordinaires sont parallèles ou de 0,95 à 1,39 mm (28,2 à 41,3 fs) lorsque les axes ordinaires sont perpendiculaires.

### 3.2.2.2 Effet de la phase relative entre les répliques sur le profil temporel

Ce dispositif permet, en contrôlant finement l'épaisseur effective de cristal traversé de contrôler finement le délai entre ces deux impulsions et ainsi de contrôler le dé-

phasage relatif entre les deux répliques. Les interférences constructives ou destructives induites par ce changement de déphasage entraînent un changement drastique du profil temporel de l'impulsion totale. Par exemple si le délai entre les deux répliques est de l'ordre de la durée de l'impulsion, il est possible de passer d'une situation où l'on obtient deux impulsions en sortie (impulsions en opposition de phase) ou une impulsion de profil super-Gaussien (impulsions en phase). Ce cas de figure est représenté sur la FIGURE 3.3.

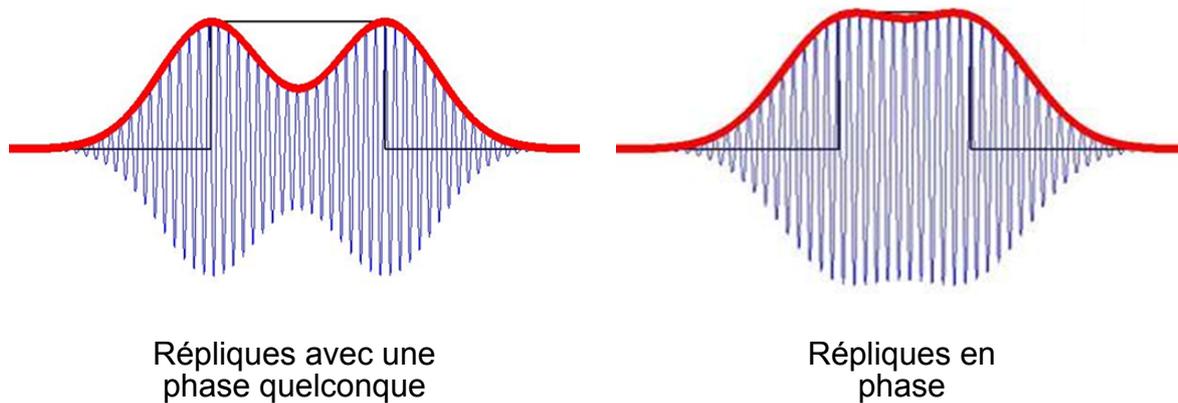


FIGURE 3.3 – Effets de la phase relative entre deux impulsions de même amplitude séparées de leur largeur à mi-hauteur.

### 3.2.3 Résultats pour le faisceau IR

#### 3.2.3.1 Simulations du spectre IR

Afin d'analyser le comportement de notre dispositif sur l'évolution temporelle du faisceau IR, nous avons réalisé des simulations sur le spectre de l'IR en sortie de dispositif. Pour ces simulations nous avons utilisé la formule 3.2 pour calculer le spectre IR en fonction de l'épaisseur de quartz traversée. Les résultats de cette simulation sont représentés sur la FIGURE 3.4 pour plusieurs épaisseurs de quartz allant de 0 à 3 mm.

Sur cette figure sont aussi représentées des coupes où l'on observe une modification du spectre IR en fonction de la position des prismes. On observe des franges sombres dans les spectres dont la position évolue régulièrement avec le délai fin entre les impulsions. De plus on remarque que plus le délai entre les impulsions augmente, plus le nombre de franges est important. Cet effet est visible sur la FIGURE 3.4a où l'on observe un changement d'inclinaison avec l'augmentation du délai.

Afin de compléter l'étude sur le faisceau IR, un calcul de la longueur d'onde centrale du spectre IR a été réalisé. Les résultats sont représentés sur la FIGURE 3.5.

Sur cette figure on observe tout d'abord une oscillation de la position de la longueur d'onde centrale avec l'épaisseur de cristal. La longueur d'onde centrale peut varier d'environ 25 nm pour des faibles délais (25 nm est environ égale à la largeur spectrale de

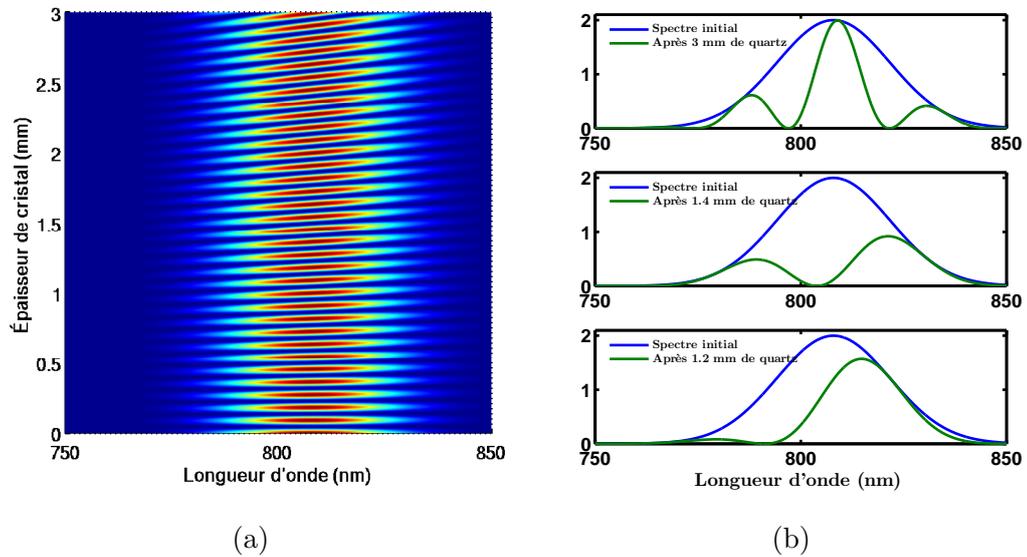


FIGURE 3.4 – Spectres IR pour des épaisseurs de quartz allant de 0 à 3 mm (a). Spectre IR pour des épaisseurs de quartz de 1,2 1,4 et 3 mm (b).

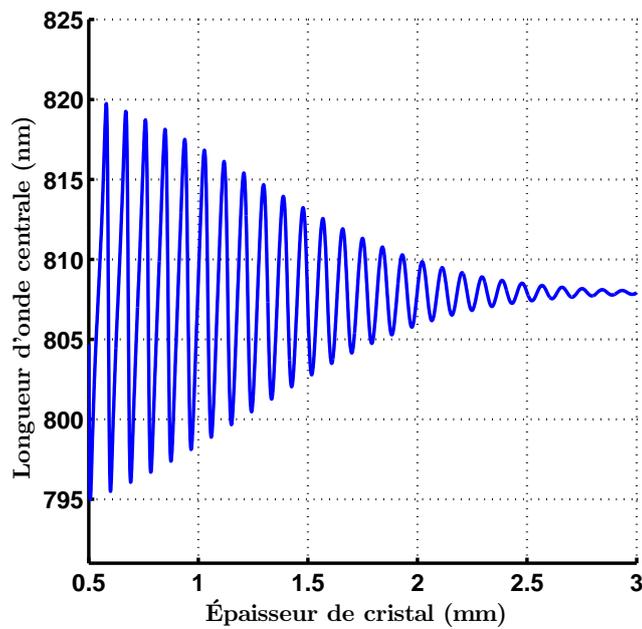


FIGURE 3.5 – Longueur d'onde centrale en fonction de l'épaisseur de quartz traversée.

l'impulsion). De plus on remarque que cette oscillation est centrée autour de la longueur d'onde du spectre IR initial et que plus l'épaisseur de matériau traversé augmente, plus l'amplitude des oscillations diminue.

Ce dispositif permet ainsi de contrôler finement la longueur d'onde centrale du faisceau fondamental.

### 3.2.3.2 Résultats expérimentaux sur le spectre IR

La même étude a été réalisée sur le spectre IR obtenu expérimentalement. Pour obtenir ces données nous avons utilisé le dispositif comportant les deux prismes décrits dans la partie 3.2.2.1 ainsi qu'un cristal de quartz de 1 mm ayant ses axes inversées par rapport à ceux des prismes (ce dispositif permet de faire varier l'épaisseur apparente de 0,95 à 1,39 mm). Sur la FIGURE 3.6 est représenté le spectre IR pour plusieurs épaisseurs de cristaux biréfringents.

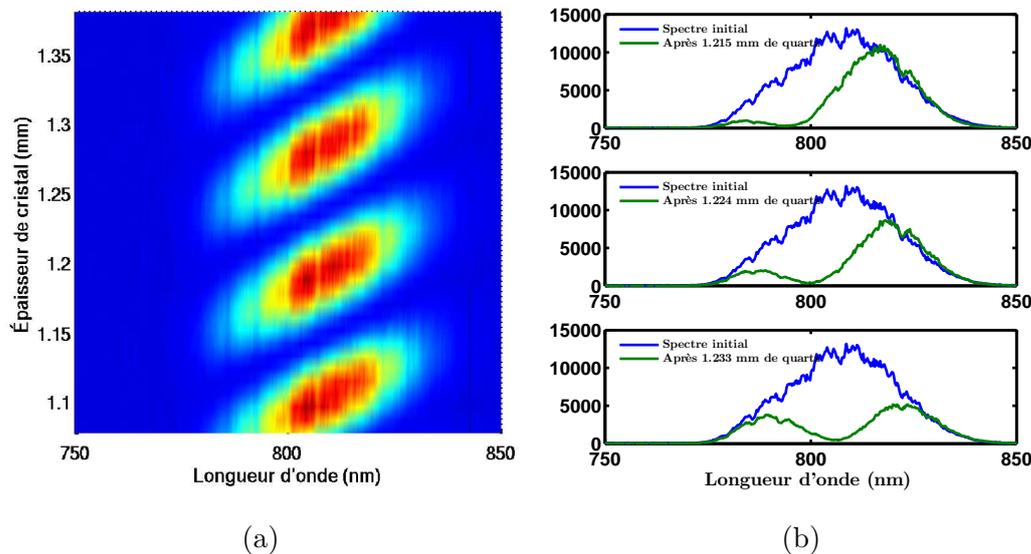


FIGURE 3.6 – Spectres IR expérimentaux pour plusieurs épaisseur de quartz (a). Spectre IR expérimentaux pour des épaisseurs de quartz de 1,215 1,224 et 1,233 mm (b).

Sur cette figure on remarque, comme pour les simulations, des franges sombres dont la position change lorsque l'on modifie l'épaisseur effective du cristal. La longueur d'onde centrale a été mesurée et est représentée sur la FIGURE 3.7.

Là encore les résultats sont très similaires aux simulations et on observe bien des oscillations d'amplitude décroissante en fonction de l'épaisseur de matériau traversée.

### 3.2.3.3 Comparaison des résultats théoriques et expérimentaux

Afin de comparer les études précédentes, les simulations ont été réalisées dans la gamme étudiée expérimentalement et présentées ci-dessous. Les spectres IR en fonction de l'épaisseur de matériau traversée sont représentés sur la FIGURE 3.8. La comparaison

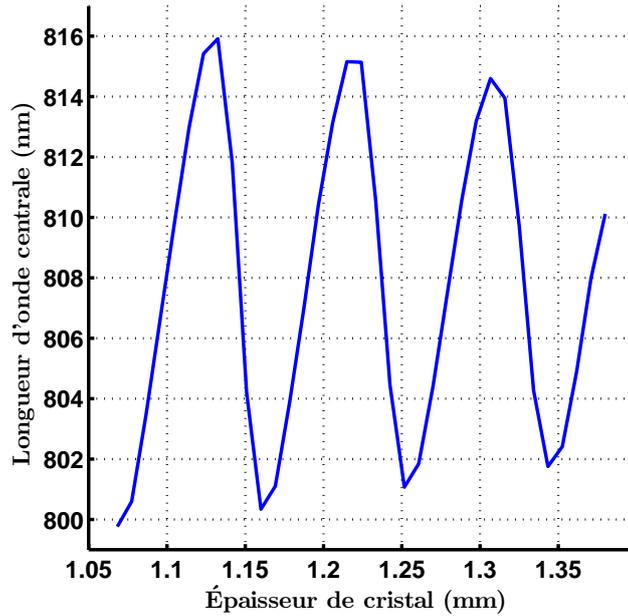


FIGURE 3.7 – Longueur d’onde centrale mesurée expérimentalement en fonction de l’épaisseur de quartz traversée.

pour la longueur d’onde centrale en fonction de l’épaisseur est quant à elle représentée sur la FIGURE 3.9.

Sur ces figures on remarque un très bon accord entre les données issues des simulations et les données expérimentales. On peut cependant remarquer un léger décalage sur l’épaisseur de milieu traversée entre la théorie et l’expérience. Cet écart, de l’ordre de la dizaine de microns, peut être dû à une légère incertitude sur l’épaisseur de cristal. En effet, il peut se produire une légère inclinaison des cristaux par rapport à l’axe du faisceau, ce qui peut changer l’épaisseur apparente.

Ces résultats sur l’influence du dispositif sur le faisceau IR nous montrent plusieurs choses. Tout d’abord une modification du spectre avec l’épaisseur de matériau traversée (et donc le délai entre les deux répliques). Cette modification implique l’apparition de franges sombres dans le spectre qui ont pour effet de modifier la longueur d’onde centrale du spectre IR. Pour les épaisseurs étudiées on remarque qu’il est possible de faire varier la longueur d’onde centrale sur une plage de  $\pm 10$  nm. On peut noter qu’il a été observé dans les simulations la possibilité d’obtenir des profils super-Gaussiens à l’aide de ce dispositif pour des délais de l’ordre de la durée de l’impulsion. Nous avons ainsi voulu étudier l’impact de cette modification du profil spectral et donc temporel du faisceau IR sur la génération d’harmoniques. En effet la longueur d’onde des harmoniques  $\omega_q$  dépend de la longueur d’onde de l’IR ainsi que de  $I(t)$

$$\omega_q = q\omega_0 + \alpha \frac{dI}{dt}. \quad (3.4)$$

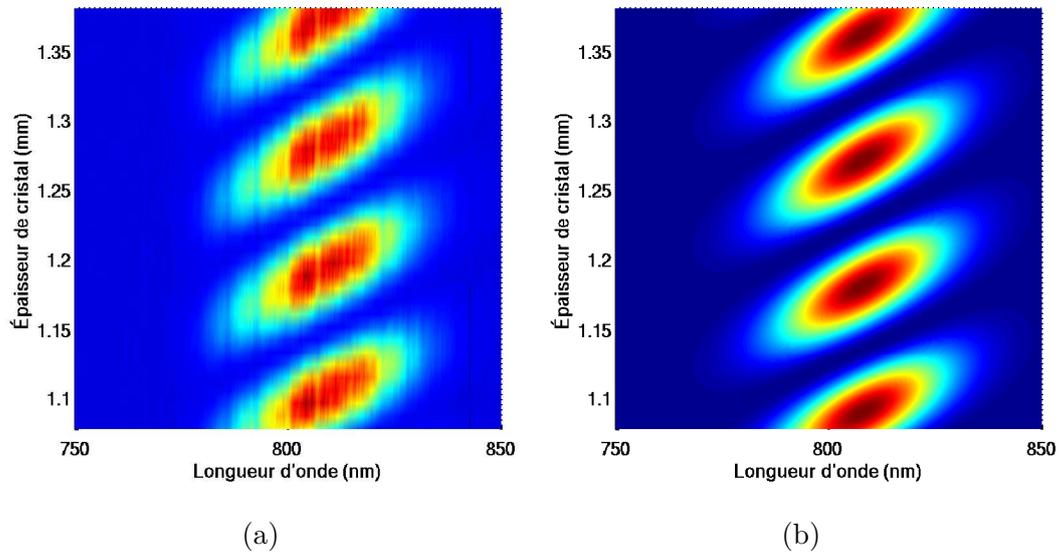


FIGURE 3.8 – Spectres IR expérimentaux pour plusieurs épaisseurs de quartz (a). Spectre IR simulé pour plusieurs épaisseurs de quartz (a).

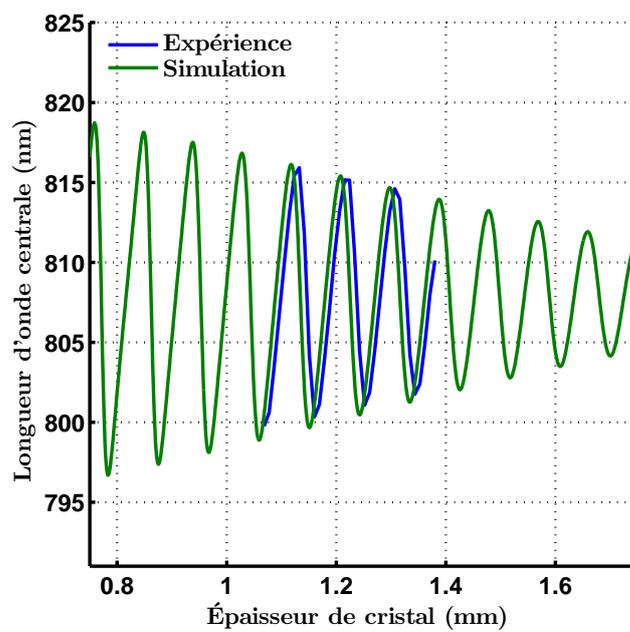


FIGURE 3.9 – Longueur d'onde centrale en fonction de l'épaisseur de quartz traversée.

### 3.2.4 Résultats pour le faisceaux XUV

La génération d'harmoniques a été réalisée dans un jet de Néon, pour un iris de diamètre 10,5 mm. Les spectres harmoniques obtenus pour plusieurs délais entre les répliques sont représentés sur la FIGURE 3.10.

Sur cette figure on remarque tout d'abord un impact de l'épaisseur de matériau traversée sur la largeur spectrale des harmoniques. De plus on peut remarquer un changement rapide de l'efficacité de génération lié directement aux interférences entre les deux répliques. On peut aussi remarquer un décalage de la longueur centrale de chaque harmonique. Afin de mettre en avant ce phénomène, le spectre harmonique est mesuré pour plusieurs positions des prismes et est représenté sur la FIGURE 3.11.

Sur cette figure on remarque une modification nette de la longueur d'onde des harmoniques générées lorsque le spectre IR est modifié. Le graphique central de la figure représente la largeur spectrale de chaque harmonique en fonction de l'épaisseur de matériau traversée. On remarque que lorsque l'on change la position des prismes, la largeur des harmoniques passe par un maximum.

De plus lorsqu'on regarde le graphique c) de la FIGURE 3.11 représentant la longueur d'onde centrale du faisceau IR, on remarque le lien direct entre celle-ci et les longueurs d'onde des différentes harmoniques.

La modification de la position des prismes, et donc du délai entre les deux répliques entraîne une modification de la longueur d'onde de l'XUV de l'ordre de 1 eV. Cette méthode permet donc de régler finement la longueur d'onde centrale des harmoniques ainsi que la largeur spectrale de celles-ci. Afin de mieux observer cette modification de la longueur d'onde centrale IR ainsi que la modification de celle de l'harmonique 21 nous avons représenté leurs évolution sur la FIGURE 3.12.

Afin de vérifier que ces effets sont uniquement dus aux propriétés du faisceau IR et non aux effets de propagation, des spectres ont été générés pour plusieurs positions en hauteur du milieu générateur et sont représentés sur la FIGURE 3.13.

On ne remarque ici aucun effet sur la largeur spectrale des harmoniques ou sur la longueur d'onde centrale de celle-ci. Les effets de propagation sont donc faibles pour le cas étudié et les effets observés sont principalement liés aux propriétés de l'IR.

Une étude similaire sur la longueur d'onde centrale des harmoniques a été réalisée en utilisant de l'Argon comme milieu générateur et est représentée sur la FIGURE 3.14.

Dans cette figure on remarque, comme pour la génération dans le Néon, une modification de la longueur centrale des harmoniques avec la modification de matériau biréfringent traversé. Nous pouvons donc en conclure que cet effet n'est pas dépendant du milieu générateur.

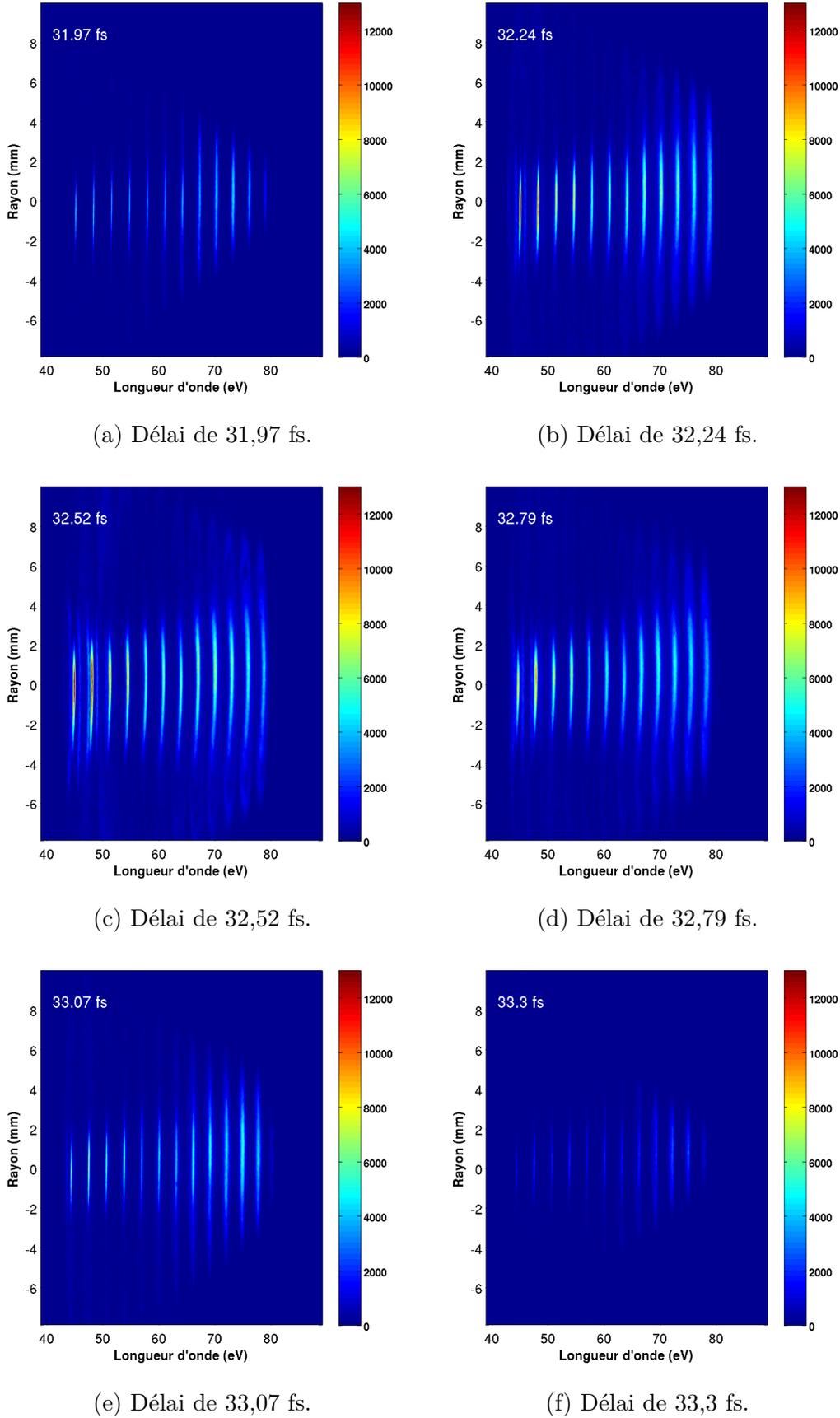


FIGURE 3.10 – Spectres harmoniques expérimentaux bruts obtenus avec un jet de 4 bar de Néon. Le délai entre les répliques varie de 31,97 fs pour le spectre (a) à 33,3 fs pour le spectre (f) par pas de 272 as.

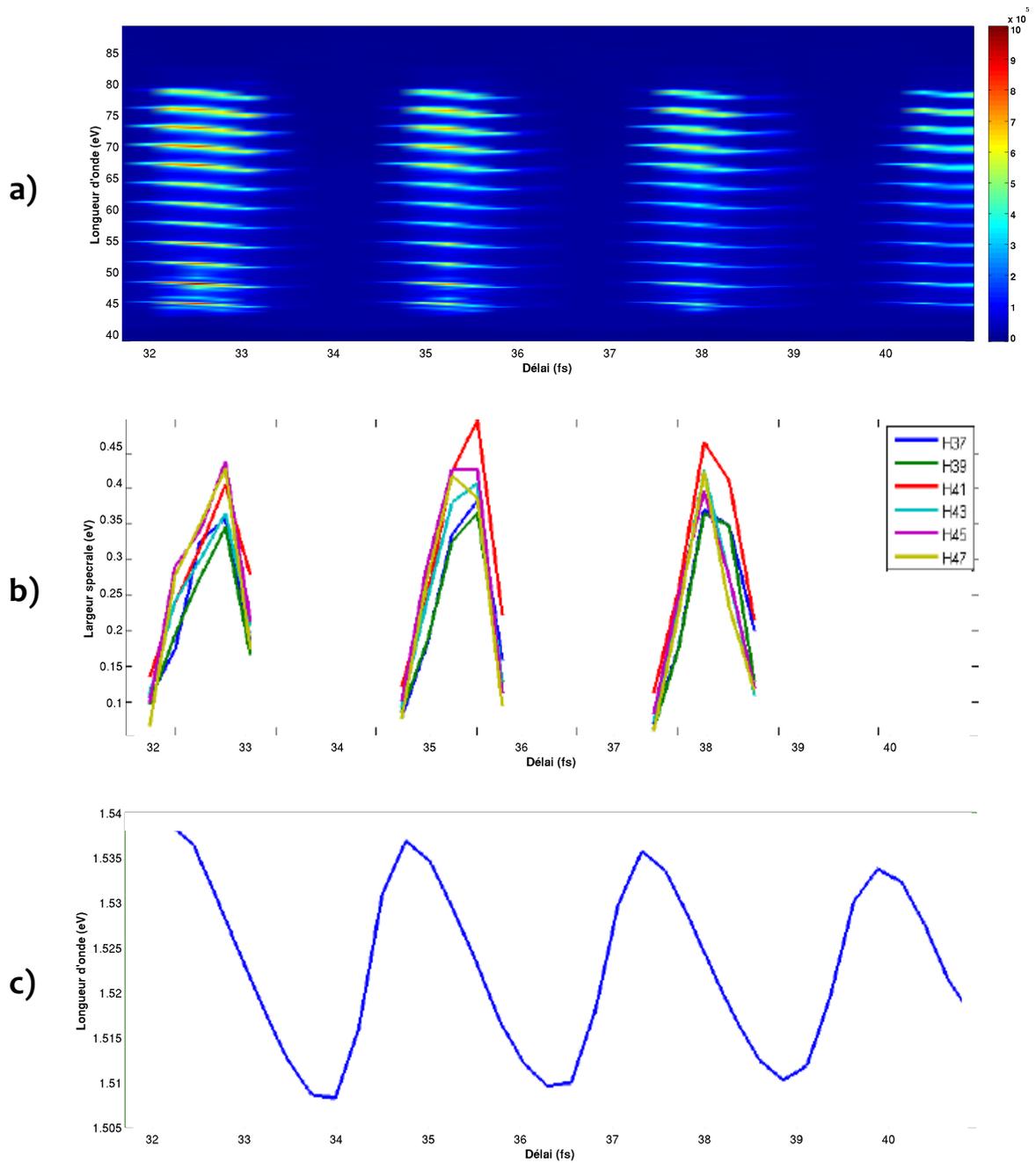


FIGURE 3.11 – a) : Spectre XUV généré dans le Néon en fonction du délai entre les deux impulsions. b) : Largeur des harmoniques générées par le chemin court en fonction du délai entre les deux impulsions. c) : Longueur d'onde centrale du spectre IR en fonction du délai entre les impulsions.

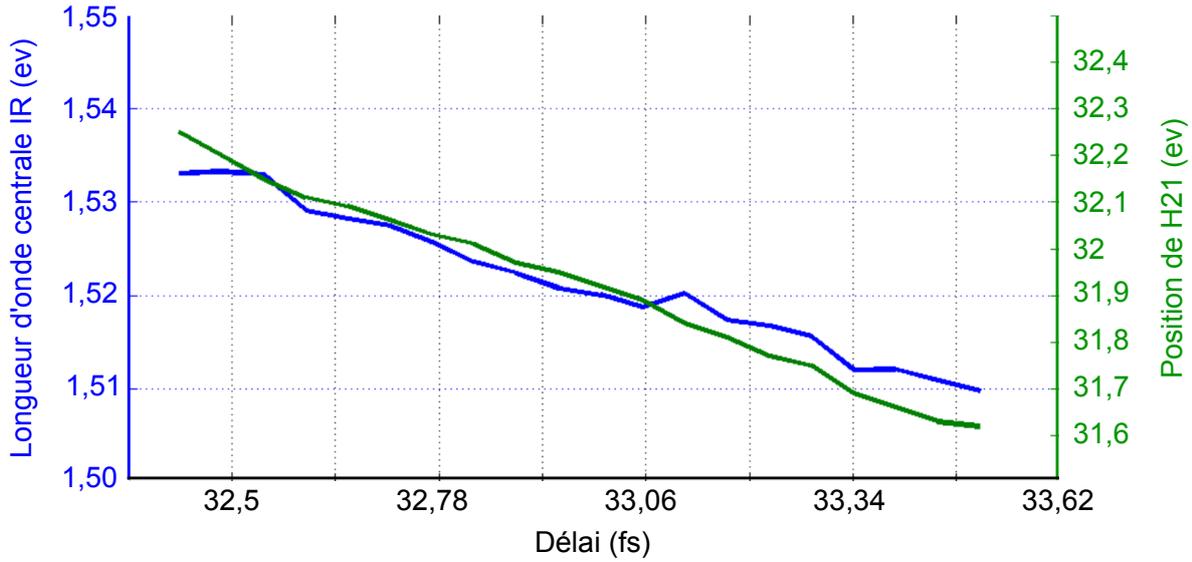
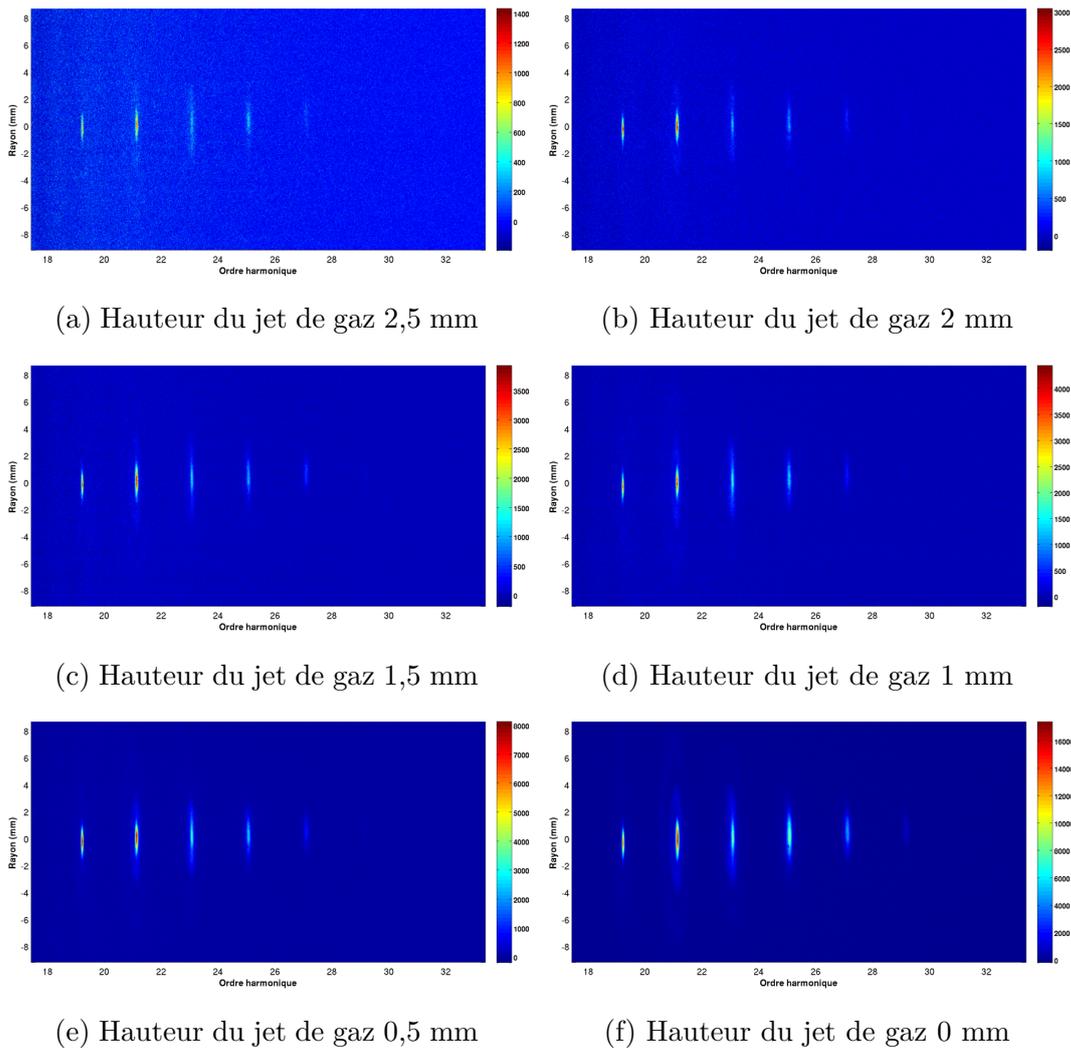


FIGURE 3.12 – Évolution de la longueur d’onde centrale du faisceau IR ainsi que de l’harmonique 21 pour plusieurs délais.



(a) Hauteur du jet de gaz 2,5 mm

(b) Hauteur du jet de gaz 2 mm

(c) Hauteur du jet de gaz 1,5 mm

(d) Hauteur du jet de gaz 1 mm

(e) Hauteur du jet de gaz 0,5 mm

(f) Hauteur du jet de gaz 0 mm

FIGURE 3.13 – Spectre XUV pour plusieurs positions du jet de gaz.

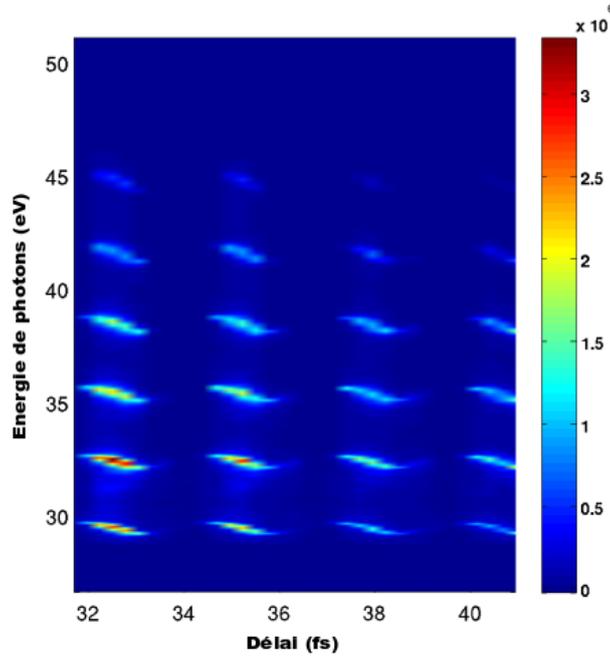


FIGURE 3.14 – Spectre XUV généré dans l'Argon en fonction du délai entre les deux impulsions.

### 3.2.5 Conclusion

Dans cette partie nous avons présenté un dispositif compact de mise en forme temporelle d'impulsion et n'ayant pas d'influence sur le profil spatial des harmoniques. Ce dispositif permet de contrôler finement la longueur d'onde centrale des harmoniques et leur largeur spectrale tout en préservant une efficacité correcte. De plus, ce dispositif permet de générer des impulsions de profil temporel super-Gaussien. Comme la largeur spectrale évolue proportionnellement à l'inverse de la durée de l'impulsion, il est possible de générer des harmoniques très fines si l'on dispose d'une impulsion de profil super-Gaussien longue.

Une des perspectives serait de générer un profil super-Gaussien spatialement et temporellement afin d'avoir une intensité constante sur toute la génération et ainsi d'obtenir la réponse de l'atome unique tout en limitant les effets macroscopiques.

Le contrôle fin de la largeur spectrale des harmoniques est ainsi accessible via la réponse de l'atome unique et les effets observés sont très similaires sur toutes les harmoniques. Il est aussi parfois important de sélectionner uniquement quelques harmoniques et pour ce faire, nous avons étudié l'impact des effets collectifs sur la largeur spectrale du plateau harmonique.

## 3.3 Contrôle du spectre harmonique

### 3.3.1 Introduction

Dans cette partie nous allons utiliser les effets collectifs lors de la génération d'harmoniques afin de privilégier une harmonique spécifique ou un groupe d'harmoniques. Les effets collectifs ne sont cependant pas toujours faciles à contrôler. En effet, l'ionisation du milieu est un phénomène qui change avec le temps et qui modifie les conditions macroscopiques. Au cours de l'ionisation, les harmoniques sont générées avec des conditions macroscopiques changeantes peu propices au contrôle spectral. Il existe deux options pour s'affranchir de l'ionisation. L'une est l'utilisation d'impulsions très brèves (de l'ordre de 4 à 5 fs) l'autre est l'utilisation d'impulsions de longueur d'onde plus grande. Dans notre travail nous nous sommes intéressés à la seconde méthode en utilisant un rayonnement centré à 1030 nm afin de contrôler au mieux les effets collectifs.

### 3.3.2 Utilisation des effets macroscopiques pour le contrôle spectral des harmoniques

Le signal étudié lors de la génération d'harmoniques est un signal macroscopique qui correspond à la réponse du milieu macroscopique à l'impulsion IR génératrice. Ce signal correspond à la somme des champs émis par chacun des émetteurs qui peuvent interférer constructivement ou destructivement. Ainsi le champ macroscopique émis dans une direction donnée sera généré efficacement pour des conditions qui minimisent la différence de phase entre les émetteurs. On parle alors d'accord de phase qui dépend des conditions macroscopiques de génération.

En négligeant la dispersion et la réabsorption des photons XUV par le milieu de génération, le champ macroscopique d'une harmonique  $q$ ,  $E_q$  peut s'écrire comme la somme cohérente des rayonnements produits par chaque émetteur du milieu  $A_q e^{(i\varphi_{at,q})}$  :

$$E_q \propto \int_{\Sigma} A_q(r, z) e^{(i\varphi_{at,q}(r,z))} e^{(-i(\mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_1)\mathbf{r})} d\mathbf{r}, \quad (3.5)$$

avec  $\mathbf{k}_q$  le vecteur d'onde du champ harmonique d'ordre  $q$ ,  $\mathbf{k}_1$  celui du champ fondamental et  $\varphi_{at,q}$  la phase atomique. La conversion énergétique entre le rayonnement générateur et le rayonnement harmonique est maximale lorsque l'accord de phase est réalisé [Balcou *et al.*, 1997]. Si l'on note  $\mathbf{K}(r, z) = \nabla\varphi_{at,q} = -\alpha_{at,q}\nabla I(r, z)$ , la condition d'accord de phase s'écrit :

$$\mathbf{k}_q = q\mathbf{k}_1 + \mathbf{K}. \quad (3.6)$$

Le vecteur d'onde du champ fondamental  $\mathbf{k}_1$  contient un terme associé à la propagation dans le milieu et un terme d'avance de phase lié à la focalisation du faisceau. Ce terme de phase géométrique est appelé, dans le cas d'un faisceau Gaussien, phase de Gouy et s'écrit :

$$\varphi_{Gouy}(r, z) = \arg \left[ \frac{1}{b + 2iz} \exp \left( -\frac{k_1^0 r^2}{b + 2iz} \right) \right], \quad (3.7)$$

où  $b$  est le paramètre confocal et  $k_1^0 = \frac{n_0 \omega_0}{c}$ . Le vecteur d'onde  $\mathbf{k}_1$  peut donc s'écrire :

$$\mathbf{k}_1(r, z) = \mathbf{k}_1^0 + \mathbf{k}_{géo}(r, z). \quad (3.8)$$

La FIGURE 3.15 présente plusieurs diagrammes d'accord de phase en fonction de la position dans la zone d'interaction. Les conditions d'accord de phase permettent

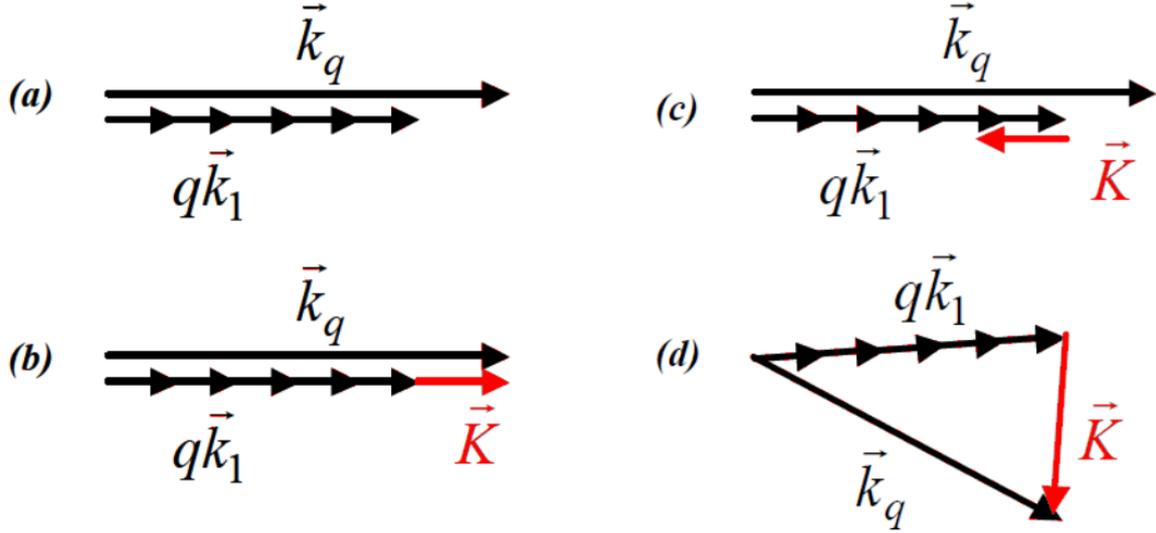


FIGURE 3.15 – Diagramme d'accord de phase pour différents lieux du milieu d'interaction. (a) Sur l'axe ( $r=0$ ), au niveau du foyer ( $z=0$ ). (b) Sur l'axe, après le foyer ( $z>0$ ). (c) Sur l'axe, avant le foyer ( $z<0$ ). (d) Hors axe, avant le foyer. Figures extraites de [Balcou *et al.*, 1997].

une conversion maximale entre le signal fondamental et le signal harmonique dans une direction donnée. Tant que cette condition est respectée, plus le milieu générateur est long et plus le signal harmonique sera important. Cependant cette longueur est limitée par la longueur de cohérence et la longueur d'absorption. La longueur de cohérence du milieu, définie par  $L_{coh} = \left| \frac{\pi}{\Delta \mathbf{k}} \right|$  correspond à la distance entre deux atomes émettant des rayonnements en opposition de phase. La longueur d'absorption quant à elle correspond à la longueur avant réabsorption des harmoniques. L'amplitude du signal augmente donc tant que la longueur du milieu est inférieure à la longueur de cohérence et à la longueur d'absorption.

### 3.3.3 Dispositif expérimental

#### 3.3.3.1 Laser utilisé

Le laser utilisé dans cette expérience a été développé au laboratoire dans l'équipe de Éric CORMIER et Stéphane PETIT et est basé sur la méthode FCPA (Fiber Chirped Pulse Amplification) [Nillon *et al.*, 2009] [Cabasse, A. *et al.*, 2013].

Le laser utilisé débute par un oscillateur femtoseconde très large bande à CEP stabilisée (Oscillateur Ti : Sa Rainbow de marque Femtolaser) générant des impulsions

de 7 fs à une cadence de 77 MHz et ayant un spectre centré autour de 800 nm et de largeur 300 nm à -10 dB. Une partie de son spectre ( $\lambda = 1030$  nm et  $\Delta\lambda = 27$  nm) est prélevé et est amplifiée dans l'étage FCPA. Dans cette étage, l'impulsion est amplifiée à l'aide de fibres dopées Ytterbium (40  $\mu\text{m}$  de cœur), étirée à l'aide d'un étireur de type Offner, puis ré-amplifiée à l'aide d'une fibre de type barreau dopée Ytterbium (80  $\mu\text{m}$  de cœur).

Après recompressions des impulsions, le laser délivre des impulsions d'environ 570 fs centrées à 1030 nm. Le taux de répétition de ce laser est de 100 kHz pour une puissance moyenne de 50 W, ce qui implique une énergie par impulsion de 500  $\mu\text{J}$ . Sur la FIGURE 3.16 sont représentés la trace d'autocorrélation ainsi que le profil spatial des impulsions amplifiées. On peut remarquer un piédestal important sur cette figure

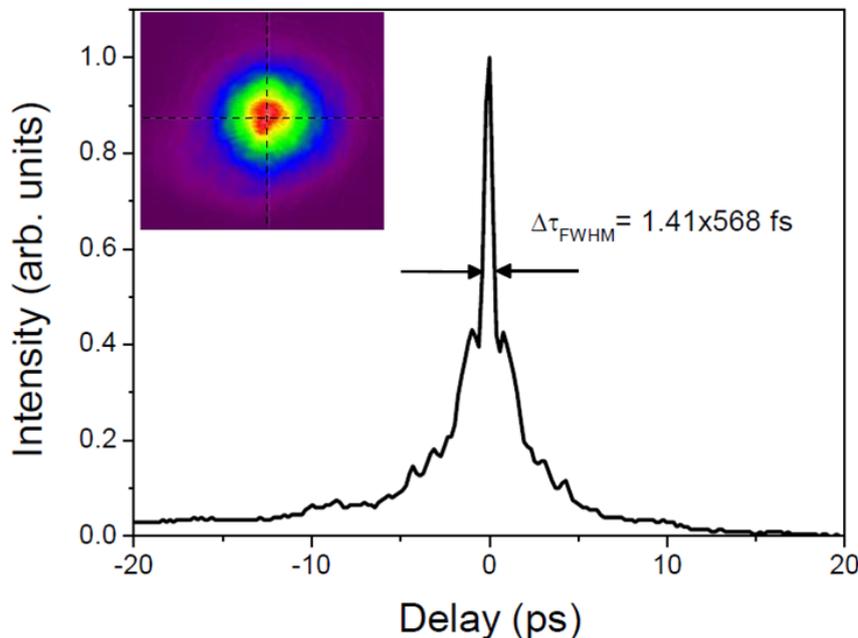


FIGURE 3.16 – Trace d'autocorrélation des impulsions amplifiées. L'encart représente le profil spatial des impulsions laser amplifiées.

qui est lié à un terme de phase non compensé, lui-même lié à une accumulation de l'intégrale B lors de l'amplification dans la fibre amplificatrice de type barreau (rod type fiber) [Hazera, 2014]. Cependant, malgré ce profil temporel dégradé, nous observons que la grande puissance moyenne du laser implique un fort flux de photons XUV via la génération d'harmoniques.

Les 50 W en sortie du laser sont ensuite dirigés vers un polariseur, élargi et collimaté pour obtenir un faisceau de  $W = 8$  mm de largeur au col. Il est ensuite transmis à travers une lame demi-onde suivie d'un polariseur afin de contrôler l'énergie des impulsions et régler la polarisation verticale.

Le faisceau laser ( $M^2 = 1,5$ ) est ensuite focalisé à l'aide d'une lentille de 230 mm de focale afin de générer des harmoniques dans une chambre à vide. La largeur estimée du faisceau au foyer est de  $W_0 = 14$   $\mu\text{m}$  et le paramètre confocal correspondant est de 1,2

mm (longueur de Rayleigh  $600 \mu\text{m}$ ). Avec une puissance moyenne de 50 W, l'intensité pic est estimée à  $2,8 \times 10^{14} \text{W/cm}^2$ , ce qui permet de générer des harmoniques d'ordres élevés dans les gaz.

### 3.3.3.2 Génération et détection d'harmoniques d'ordres élevés

Deux géométries d'interaction sont utilisées pour la génération d'harmoniques : un jet de gaz continu de diamètre  $200 \mu\text{m}$ , situé au niveau du foyer de l'IR ou une cellule de gaz semi-infinie de longueur 40 mm dont la sortie est située au niveau du foyer IR. La cellule de gaz est fermée à l'aide d'une fenêtre en entrée et à l'aide d'une fine feuille d'acier de  $200 \mu\text{m}$  en sortie. Un trou est réalisé dans cette feuille directement à l'aide du laser. Le faisceau XUV ainsi produit est ensuite caractérisé à l'aide du spectromètre XUV qui est capable de collecter les harmoniques sur un angle solide large. Le spectromètre permet de plus, de séparer le faisceau fondamental des harmoniques et de résister aux 50 W du faisceau fondamental.

Un schéma du dispositif de génération d'harmoniques et du spectromètre permettant leurs détections est représenté sur la FIGURE 3.17.

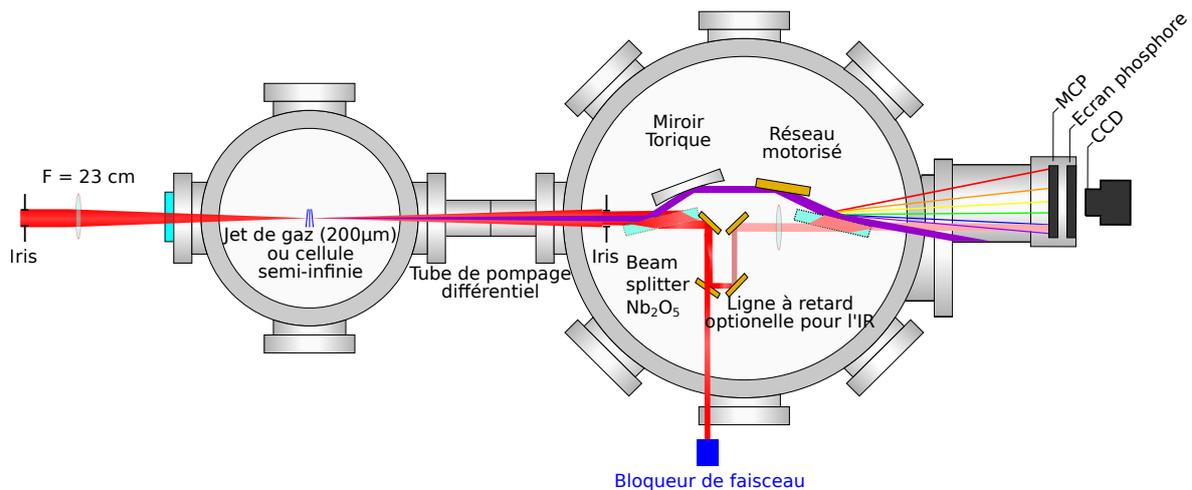


FIGURE 3.17 – Représentation schématique de la chambre de génération XUV et du spectromètre XUV.

Le spectromètre XUV est un spectromètre imageur composé de quatre optiques en réflexion utilisées à un angle de rasance de  $\sim 22,5^\circ$ . À l'entrée du spectromètre, le faisceau XUV, de polarisation S, est réfléchi à l'aide d'un miroir semi-réfléchissant [Falcone et Bokor, 1983] [Loch *et al.*, 2011] utilisé à un grand angle d'incidence  $i = 70^\circ$  pour permettre une bonne réflectivité de l'XUV. Le miroir semi-réfléchissant transmet la majorité du faisceau IR et en réfléchit seulement quelques pourcents. Le miroir semi-réfléchissant est composé d'une lame de  $\text{SiO}_2$  de 10 mm d'épaisseur présentant un revêtement anti-réflexion IR. De plus une couche en  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  est apposée à la surface du miroir afin de réfléchir l'XUV sur une large gamme spectrale. Cette réflectivité est supérieure à 40 % sur la gamme 30 à 80 eV comme on peut le voir sur la FIGURE 3.18.

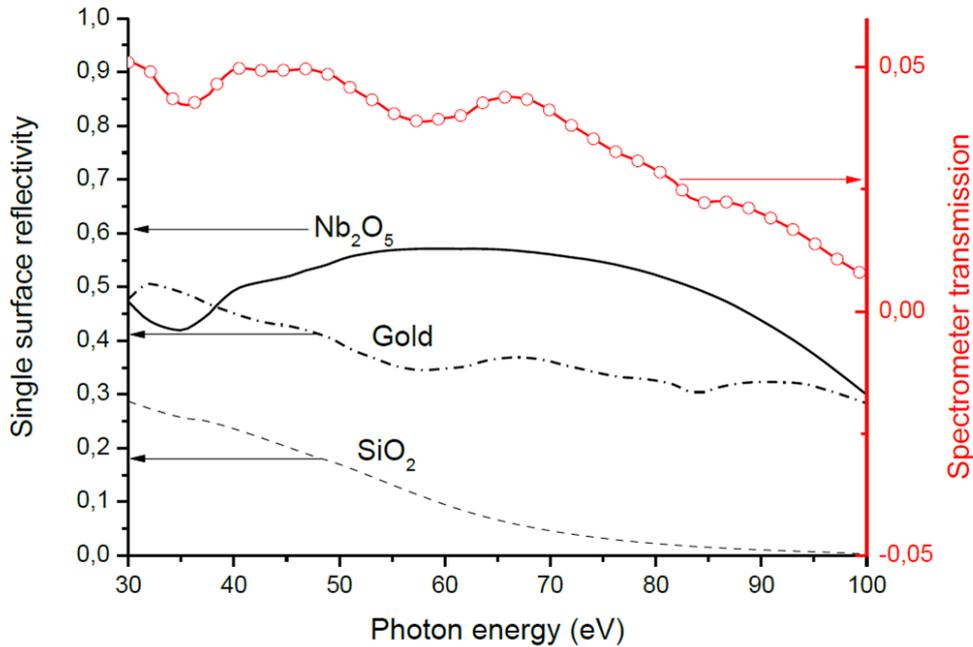


FIGURE 3.18 – Réflectivité théorique des différents éléments du spectromètre : Miroir semi-réfléchissant présentant un revêtement en  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  (ligne) et miroirs présentant un revêtement en Or (ligne pointillée) à un angle de rasance de  $22,5^\circ$ . La transmission totale du spectromètre (cercle et échelle de droite) est représentée pour une largeur spectrale allant de 30 à 100 eV.

Le faisceau XUV est ensuite réfléchi par un miroir torique ayant un revêtement en Or ( $f = 30$  cm,  $i = 67,5^\circ$ ) situé 45 cm après la source XUV, vers un réseau plat motorisé et ayant un revêtement en Or (600 traits/mm utilisé à un angle d'incidence proche de  $i = 68,2^\circ$ ). Le réseau est situé 21 cm après le miroir torique. On utilise le premier ordre du réseau pour disperser le faisceau XUV à caractériser ou pour utiliser le faisceau XUV pour une expérience nécessitant une résolution spectrale. Il peut aussi être utilisé comme un simple miroir en utilisant l'ordre zéro pour observer le profil spatial du faisceau XUV ou pour réaliser des expériences pompe-sonde nécessitant une grande résolution temporelle.

Ce dispositif expérimental est conçu pour couvrir une large bande spectrale. Sur la FIGURE 3.18 est représentée la réflectivité totale du spectromètre de la gamme 30 à 100 eV lorsque le réseau de diffraction est utilisé dans l'ordre 0. La réflectivité varie de 6 % à 30 eV à 3 % à 80 eV et est inférieure à 2 % à 100 eV.

### 3.3.4 Résultats expérimentaux

Malgré les quatre réflexions dans le spectromètre XUV, le détecteur est facilement saturé lorsqu'il est placé sur le plan image. Nous avons donc observé le faisceau XUV hors du plan image en déplaçant les MCP 5 cm après le plan image afin d'élargir le faisceau XUV et d'éviter leur saturation. De plus pour éviter la saturation, la tension

aux bornes des MCP est abaissée à 1200 V (au lieu de la valeur nominale de 2000 V). Ce déplacement a pour effet de diminuer la résolution spectrale mais permet encore de discriminer les différentes harmoniques.

Nous avons observé plusieurs harmoniques et avons enregistré des spectres pour plusieurs gaz (Xénon, Argon et Krypton) et pour une génération dans un jet et dans une cellule de gaz semi-infinie. Les résultats sont présentés sur la FIGURE 3.19

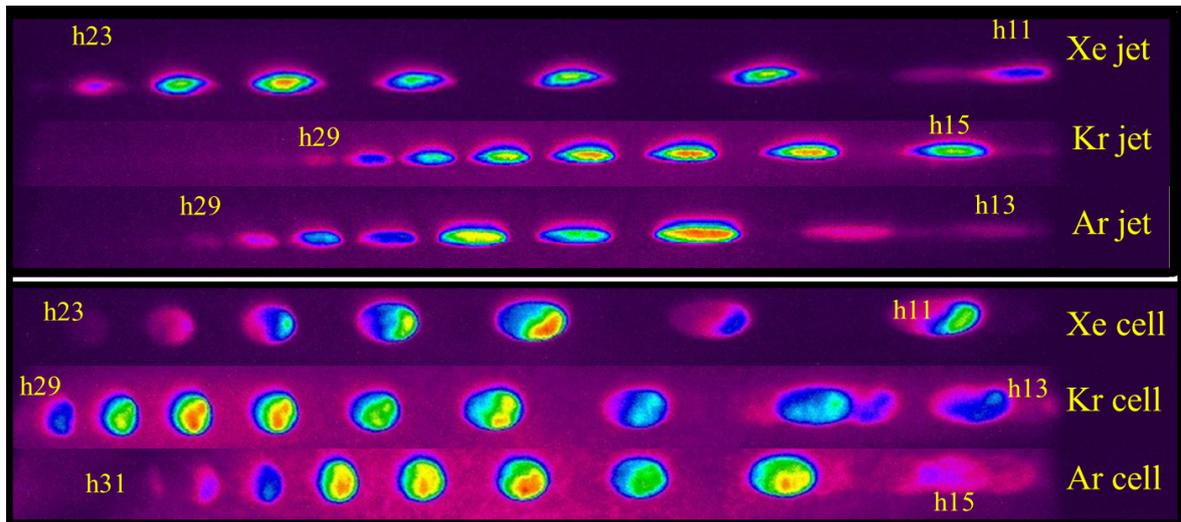


FIGURE 3.19 – Spectres harmoniques observés après génération dans un jet de gaz (les trois premières figures) à l’aide de MCP situées au plan image ou après émission dans une cellule de gaz semi-infinie (les trois figures inférieures) à l’aide de MCP situées 5 cm après le plan image. Les ordres harmoniques maximum observés sont 23 pour la génération d’harmoniques dans le Xénon et 31 pour la génération dans l’Argon et le Krypton.

Dans un jet de gaz l’ordre maximum observé dans l’Argon et le Krypton est l’ordre 31. Nous avons aussi produit des harmoniques jusqu’à l’ordre 23 dans le Xénon. L’harmonique la plus faible observée est la septième mais pour ces faibles ordres les harmoniques sont peu résolues et leur observation nécessite de réduire la divergence du faisceau XUV sur le réseau.

Avec la cellule semi-infinie, les harmoniques impaires ont été produites dans l’Argon (jusqu’à l’ordre 31), dans le Krypton (jusqu’à l’ordre 31) et dans le Xénon (jusqu’à l’ordre 25). Les ordres maximum observés dans cette étude sont similaires dans le jet et dans la cellule semi-infinie. Cette observation implique que la position de la coupure est principalement imposée par la réponse de l’atome unique ou par la réponse en transmission du spectromètre mais pas par les effets de propagation dans le milieu générateur.

Dans ce cas, la position de la coupure permet de donner une estimation de l’intensité à laquelle les harmoniques sont produites. La loi de coupure [Corkum, 1993] [Lewenstein *et al.*, 1994],

$$h\nu_{max} = I_p + 3,2 U_p, \quad (3.9)$$

avec  $U_p = 10$  eV pour  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> à 1030 nm (l'énergie des photons est de 1,2 eV) donne un maximum d'intensité de  $5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> pour la génération d'harmoniques dans le Xénon et de  $7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> pour la génération d'harmoniques dans l'Argon et le Krypton. Ces valeurs sont plus faibles que celle de l'intensité pic estimée ce qui indique que la valeur de l'intensité pic a été surestimée. Ceci peut aussi indiquer que la génération d'harmoniques se produit avant le maximum de l'impulsion avant que l'ionisation ne réduise leur productions. L'ionisation se produit à faible intensité pour les impulsions longues et peut avoir un impact pour la génération dans le Xénon. Si l'ionisation était le facteur limitant, une différence nette serait observée entre la génération dans l'Argon et dans le Krypton, ce qui n'est pas le cas pour cette expérience. Il est aussi possible que la transmission du spectromètre XUV décroisse rapidement après 37 eV. Les calculs de la FIGURE 3.18 ne corroborent pas cette possibilité mais la rugosité de l'optique n'est pas prise en compte et peut être responsable de cette perte en transmission particulièrement pour les faibles longueurs d'ondes. Nous avons essayé de générer des harmoniques dans le Néon afin d'observer la réponse spectrale de notre spectromètre sur une large gamme spectrale mais nous n'avons pas pu observer d'harmoniques. Il est possible que l'intensité pic soit trop faible pour générer dans le Néon.

Afin de tester ces différentes hypothèses, nous avons étudié le signal harmonique généré dans l'Argon en fonction du diamètre de l'iris placé avant la lentille de focalisation. La fermeture de l'iris augmente la taille au col du faisceau au foyer et réduit l'intensité pic dans le milieu générateur. Les spectres obtenus sont représentés sur la FIGURE 3.20.

Sur cette figure, on remarque que la position de la coupure est fortement dépendante du diamètre de l'iris et que cette position décroît régulièrement lorsque l'on diminue le diamètre de l'iris. Cette position ne devrait pas changer si elle était imposée par l'ionisation à l'intensité de saturation et resterait à une valeur constante tant que l'intensité pic est plus faible que l'intensité de saturation. Nous observons aussi que les amplitudes des harmoniques de la coupure diminuent régulièrement lorsque l'on réduit le diamètre de l'iris comme on peut le voir dans l'encart de la FIGURE 3.20. Si l'intensité dans le milieu générateur était trop importante lorsque l'iris est complètement ouvert, l'amplitude des harmoniques de la coupure devrait augmenter lorsque l'on ferme l'iris. En effet, la fermeture de l'iris entraînerait une diminution de l'intensité et une augmentation du volume générateur. Ces observations impliquent que l'intensité n'est pas limitée par l'ionisation des atomes. Nous concluons ainsi que l'intensité pic dans le milieu d'Argon est correctement estimée avec la loi de la coupure et qu'elle est de l'ordre de  $7 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> (faible ionisation à cette intensité). Ceci devrait aussi être le cas dans le Krypton où le même maximum d'ordre est observé mais pas dans le

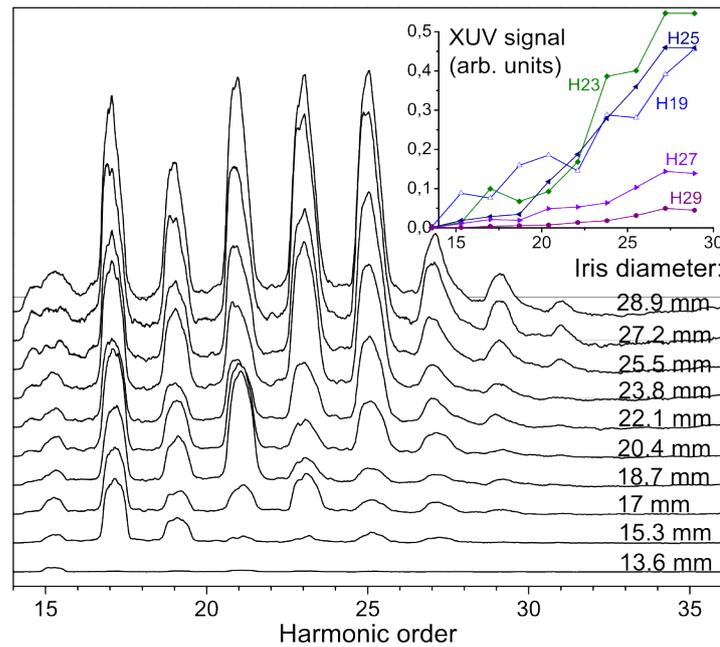


FIGURE 3.20 – Spectres harmoniques observés pour la génération dans une cellule semi-infinie pour plusieurs valeurs du diamètre de l’iris. Encart : Évolution du signal intégré en fonction du diamètre de l’iris.

Xénon où l’ionisation doit limiter la génération d’harmoniques avant la valeur pic de l’impulsion.

Après optimisation, les flux de photons observés avec un jet de gaz et une cellule semi-infinie sont similaires. Les flux de photons sont cependant légèrement supérieurs lorsque le jet est utilisé, ce qui est en accord avec [Heyl *et al.*, 2012] mais la différence est inférieure à un facteur deux. Avec la cellule de gaz, la saturation est facilement atteignable à faible pression et un maximum du signal XUV est atteint pour une pression de quelques 100 mbar. Avec le jet de gaz, le signal augmente avec la pression de gaz et la saturation est obtenue seulement pour les plus faibles harmoniques à la plus forte pression que nous pouvons utiliser ( $\sim 1$  bar). Pour les ordres importants, la saturation n’a pas pu être atteinte pour la gamme de pression utilisable. Pour aller plus loin dans la caractérisation de cette ligne XUV, nous avons mesuré le flux de photons après le spectromètre pour toutes les harmoniques supérieures à l’harmonique 15. Pour cette mesure, le réseau XUV est utilisé dans son ordre zéro pour rediriger le faisceau XUV directement dans le détecteur. Le flux de photons est mesuré en insérant une photodiode XUV (Photodiode XUV-100 par UDT sensor) protégée à l’aide de deux filtres XUV après le second miroir semi-réfléchissant XUV. Le signal mesuré par la photodiode couplée à un pico-ampèremètre est représenté sur la FIGURE 3.21 en fonction de la pression de Xénon. Sur cette figure, on observe que le nombre de photons XUV détecté est similaire quand les harmoniques sont générées dans un jet ou dans une cellule de gaz semi-infinie.

Comme le nombre de photons peut être mesuré sur une large gamme de pression,

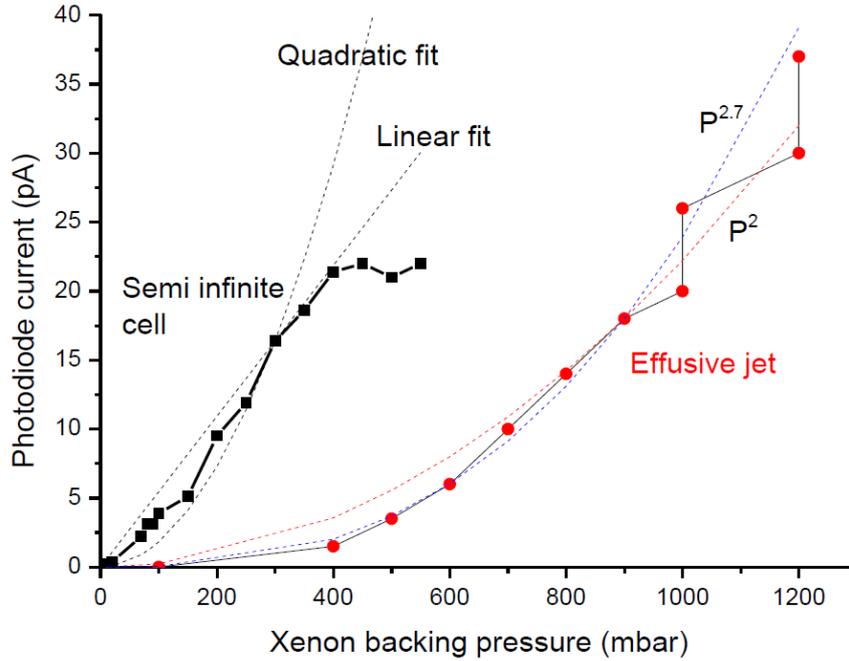


FIGURE 3.21 – Courant émis par la photodiode XUV protégée par deux filtres aluminium en fonction de la pression de Xénon.

nous pouvons ajuster nos données par une loi de puissance. Dans les deux cas, la loi de puissance en  $P^2$  permet une faible approximation des données expérimentales. Ceci est attendu car la loi de puissance en  $P^2$  est uniquement valide si l'on considère une géométrie d'interaction constante où seul le nombre d'émetteurs change avec la pression [Kazamias *et al.*, 2011] [Heyl *et al.*, 2012]. La pression de gaz peut affecter le signal d'autres façons, comme par exemple avec la modification de la longueur de cohérence qui impacte l'accord de phase [Rundquist *et al.*, 1998] ou en modifiant le volume émetteur induit par la réabsorption des harmoniques [Constant *et al.*, 1999] [Mével *et al.*, 2000].

Pour le cas du jet de gaz, nous obtenons un meilleur ajustement en utilisant une loi de puissance avec un facteur de non-linéarité de 2,7 pour une pression de moins de 1 bar. Ceci implique que le signal de sortie n'est pas seulement affecté par le nombre d'émetteurs mais aussi par la propagation dans le milieu. Un facteur de non-linéarité plus grand que deux implique que les conditions d'accord de phase s'améliorent lorsque la pression augmente. Ce qui est en accord avec les explications données par [Kazamias *et al.*, 2011]. Pour des hautes pressions, l'ordre de non-linéarité semble décroître et ceci indique qu'une saturation se produit. Cette saturation se produit souvent dans les cas où l'absorption devient importante [Constant *et al.*, 1999] [Mével *et al.*, 2000].

Pour la cellule de gaz semi-infinie, nous observons que l'évolution du signal se situe entre une évolution linéaire et une évolution quadratique en fonction de la pression. La saturation est atteinte rapidement et on remarque des petites oscillations du si-

gnal avec la pression. Le comportement complexe entraînant des oscillations dans le signal a été prévu dans les papiers de [Steingrube *et al.*, 2009] [Cabasse *et al.*, 2012] [Rothhardt *et al.*, 2014]. Steingrube et Cabasse ont mis en avant l'impact de la propagation et de l'absorption dans le milieu générateur et ont aussi noté que la position du foyer a un impact très important sur le signal harmonique. L'accord de phase est attendu pour moduler l'efficacité de génération [Heyl *et al.*, 2012] [Rothhardt *et al.*, 2014] mais il montre habituellement un maximum prédominant quand l'accord de phase est atteint dans une configuration 1D. Des oscillations multiples ont aussi été observées et attribuées aux franges de Maker [Kazamias *et al.*, 2003] [Heyl *et al.*, 2012].

Le signal de photodiode est analysé afin d'estimer le nombre de photons XUV après le spectromètre. Le signal enregistré à l'aide d'un pico-ampèremètre a une valeur maximale de 30 pA quand les deux filtres en aluminium sont utilisés.

La transmission mesurée d'un filtre d'aluminium est 3 % pour H19, 5 % pour H21 et 8 % pour H23. La transmission est estimée à l'aide du spectromètre (spectre mesuré sans et avec le filtre d'aluminium) mais n'a pas été mesurée. Pour les harmoniques basses (H15 et H17) la transmission du filtre n'a pas été mesurée à cause d'un recoupement entre le premier et le second ordre de diffraction dans cette gamme.

Les 30 pA de courant mesuré ( $I = 30 \times 10^{-12}$  Cb/s) émis par la photodiode correspondent à un courant de  $1,88 \times 10^8$  électrons/sec.

Un photon de la 15<sup>ème</sup> harmonique (respectivement 21<sup>ème</sup>) a une énergie de 18 eV (respectivement 25,2 eV). En considérant qu'une énergie de 3,63 eV est nécessaire pour créer un électron dans la photodiode, nous déduisons qu'un photon de la 15<sup>ème</sup> harmonique génère cinq (respectivement six pour l'harmonique 21) électrons. Pour les harmoniques mesurées (ordres 15, 17, 19 et 21), nous considérons que l'absorption d'un photon XUV crée en moyenne six photo-électrons. Ainsi nous estimons que  $3,1 \times 10^7$  photons/sec sont détectés après le spectromètre et les deux filtres d'aluminium. En calibrant la réponse de notre photodiode avec celle d'une photodiode calibrée au laboratoire LaserIX (S. Kazamias, K. Cassou et leurs collaborateurs), nous avons observé que la sensibilité de notre photodiode XUV était trois fois plus faible que la valeur prévue. Nous estimons ainsi que  $9 \times 10^7$  photons sont détectés par la photodiode chaque seconde. En considérant une transmission de 3 % pour chaque filtre d'aluminium, nous en déduisons que  $10^{11}$  photons par seconde sont transmis par le spectromètre. Ceci équivaut à environ  $2,5 \times 10^{10}$  photons par harmonique par seconde en considérant que les photons sont généralement contenus dans quatre harmoniques (H15, H17, H19, H21) lorsque la génération se fait dans le Xénon. Cette estimation donne un nombre de photons transmis par le spectromètre qui est suffisamment élevé pour beaucoup d'applications. En considérant que la transmission du spectromètre est de l'ordre du pourcent, on obtient  $10^{12}$  photons générées par harmonique et par seconde. Cette valeur est en accord avec les valeurs publiées par [Hädrich *et al.*, 2011] [Cabasse *et al.*, 2012].

### 3.3.5 Contrôle du spectre harmonique

Nous avons aussi observé que la propagation dans la cellule semi-infinie de gaz entraîne une mise en forme spectrale significative et que le contenu spectral du faisceau XUV peut être modifié de manière importante. Les FIGURE 3.19 et FIGURE 3.22 montrent que certaines harmoniques générées dans une cellule peuvent être beaucoup plus intenses que les harmoniques voisines pour des conditions spécifiques de pression et de géométrie d'interaction contrôlées par le diamètre de l'iris et la position du foyer. Le signal harmonique change de manière importante avec l'ordre harmonique pour la cellule semi-infinie. Le signal peut changer de plus d'un facteur trois entre une harmonique et ses voisines.

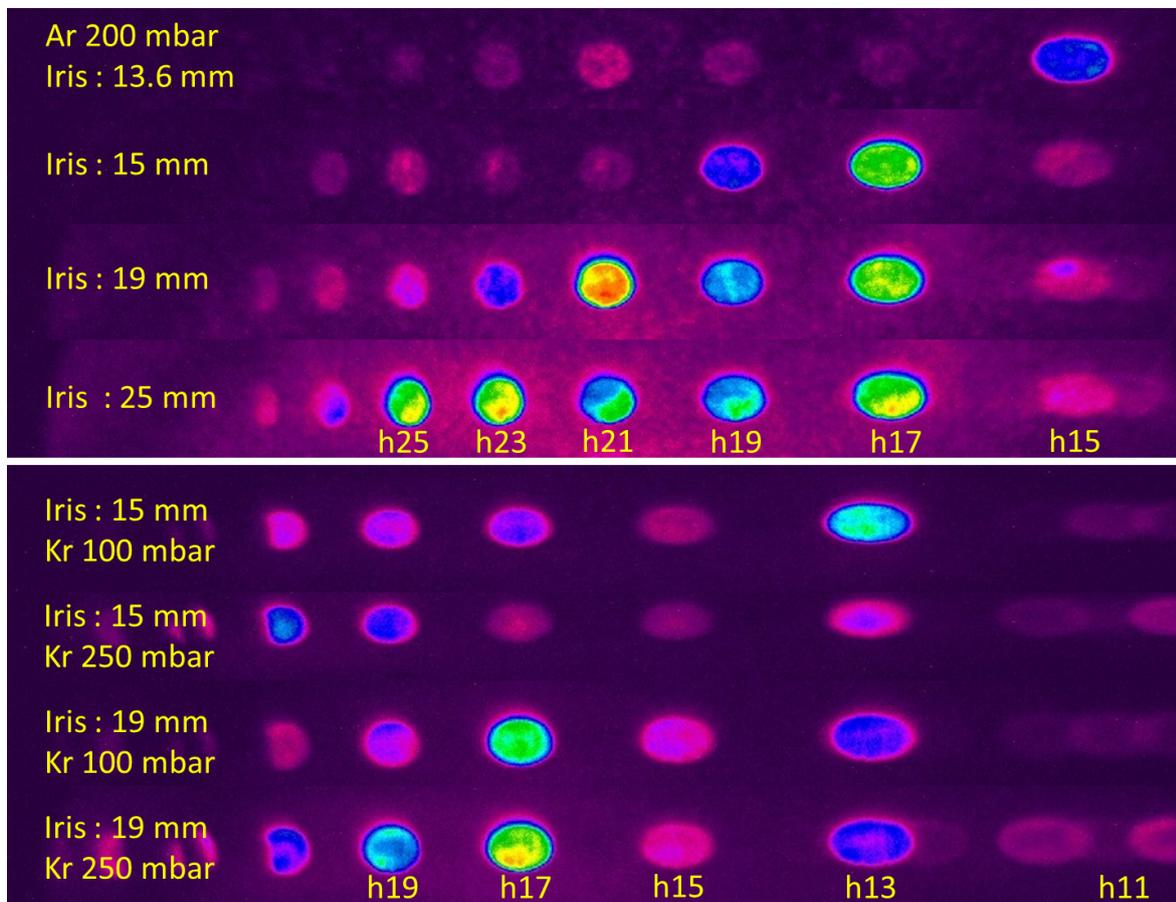


FIGURE 3.22 – Évolution du spectre XUV pour plusieurs diamètres d'iris après génération d'harmoniques dans une cellule semi-infinie remplie d'Argon à une pression de 200 mbar (les quatre figures supérieures) ou de Krypton (les quatre figures inférieures) pour plusieurs pressions (100 et 250 mbar) et diamètre d'iris (15 et 19 mm). On observe une sélection spectrale permettant la sélection de quelques harmoniques prédominantes.

Ce comportement est intéressant dans la sélection spectrale "automatique" d'harmoniques [Winterfeldt *et al.*, 2008] mais aussi dans la sélection d'harmonique isolée. Cette sélection d'harmoniques est importante et reproductible quand la cellule semi-infinie est utilisée. Elle est moins nette lorsque l'on génère dans un jet de gaz où l'on observe

que toutes les harmoniques ont, généralement, une amplitude similaire. Ces observations impliquent que la propagation joue un rôle majeur dans cette sélection spectrale. Cet effet est principalement dû à l'accord de phase qui dépend de l'ordre considéré. Une harmonique peut se trouver dans des conditions de bon accord de phase ( $\Delta k \sim 0$ ) et l'harmonique voisine avec un faible accord de phase ( $\Delta k \neq 0$ ). Le seul paramètre qui change entre le jet de gaz et la cellule semi-infinie est la longueur effective,  $L$ , du milieu générateur et le signal observé est similaire dans les deux cas. Ceci implique qu'un grand désaccord de phase,  $\Delta k \neq 0$ , est compatible avec un fort flux harmonique lorsqu'un milieu générateur court (jet de gaz) est utilisé ( $\Delta k \times L$  devient le paramètre important et détermine les effets macroscopiques dans une approche 1D). Au contraire, un milieu long (comme une cellule de gaz semi-infinie où la longueur du milieu est de l'ordre de grandeur du paramètre confocal) requiert un désaccord de phase plus faible permettant une émission sur l'axe. Pour un milieu plus long, une faible modification de  $\Delta k$  d'une harmonique à l'autre entraîne une forte modulation du signal harmonique.

La sélection spectrale semble plus prononcée que celle observée à l'aide d'une cellule semi-infinie et des harmoniques hautes générées à l'aide d'un laser dont la fréquence centrale est centrée à 800 nm [Sutherland *et al.*, 2004] [Brichta *et al.*, 2009] ou à plus grande longueur d'onde pour lequel un groupe d'harmoniques peut être renforcé [Rundquist *et al.*, 1998] [Popmintchev *et al.*, 2008]. Cette sélectivité renforcée peut être liée à la longueur d'onde centrale (1030 nm) et aux ordres harmoniques modérés considérés ici. En effet, pour une intensité donnée, l'énergie pondéromotrice est plus importante à 1030 nm qu'à 800 nm. Cette plus grande énergie pondéromotrice permet la génération d'harmoniques à 1030 nm à faible intensité ce qui réduit l'ionisation. La génération de fréquences XUV identiques à l'aide d'une impulsion fondamentale à 800 nm requiert quant à elle une plus grande intensité, ce qui entraîne une plus forte ionisation. Ainsi l'ionisation est plus importante à 800 nm qu'à 1030 nm et il est connu que l'ionisation détruit les effets d'accord de phase en induisant un accord de phase dépendant du temps et de l'espace [Constant *et al.*, 1999]. Cette sélectivité spectrale peut aussi être observée à une longueur d'onde du fondamental plus importante que 1030 nm comme le montre [Popmintchev *et al.*, 2008]. Cependant, quand la longueur d'onde du fondamental augmente trop, les harmoniques se rapprochent spectralement et les changements d'indice deviennent faibles entre deux harmoniques voisines ce qui entraîne la sélection d'un groupe d'harmoniques au lieu d'harmonique individuelle. Une longueur d'onde du fondamental proche d'1  $\mu\text{m}$  semble un bon compromis pour la sélection d'harmonique individuelle. On peut noter que malgré la faible différence d'énergie pondéromotrice entre 800 nm et 1030 nm ( $\sim 1,6$  pour une intensité donnée), la génération d'une fréquence XUV donnée requiert des intensités très différentes entre ces longueurs d'ondes. La génération de photons à 30 eV à l'aide de génération d'harmoniques dans du Krypton requiert des intensités de  $8 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> pour une impulsion centrée à 800 nm et seulement  $5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> pour une impulsion centrée à 1030 nm. Les taux d'ionisation dans le Krypton à ces intensités sont très différents et

les estimations à l'aide du taux ADK donnent des valeurs de  $4 \times 10^{11} \text{ s}^{-1}$  et  $10^{10} \text{ s}^{-1}$ . Pour une impulsion de 500 fs, ceci entraîne un taux d'ionisation de 20 % pour une impulsion centrée à 800 nm et seulement 0,5 % pour une impulsion centrée à 1030 nm. Il est connu que les électrons sont très dispersifs et il est accepté que des taux d'ionisation de quelques pourcents peuvent changer de manière significative les conditions d'accord de phase. Ainsi l'ionisation empêche d'observer des conditions d'accord de phase contrôlables lorsque l'on génère avec des impulsions centrées à 800 nm, alors que l'on peut négliger l'ionisation lorsque l'on génère à l'aide d'impulsions à 1030 nm.

En d'autres termes, l'intensité apparente nécessaire pour générer des photons XUV d'une énergie de 30 eV à l'aide de génération d'harmoniques dans le Krypton, d'une impulsion de 500 fs centrée à 1030 nm implique le même taux d'ionisation qu'une impulsion de 12 fs centrée à 800 nm. Ceci implique que les impulsions longues centrées à 1030 nm sont compatibles avec la génération d'harmoniques d'ordres modérés avec peu d'ionisation, ce qui n'est pas le cas pour des impulsions à 800 nm.

Pour être plus quantitatif sur l'impact de l'accord de phase, nous pouvons considérer une longueur d'émission de 1,3 mm (deux fois la longueur de Rayleigh) quand la cellule semi-infinie est utilisée. Avec cette longueur, il est suffisant d'avoir un indice changeant de  $2 \times 10^{-5}$  d'une harmonique à l'autre pour passer d'une situation d'accord de phase à une situation de non-accord de phase. L'indice du gaz rare n'est pas connu en dessous de 30 eV mais une si faible différence d'indice entre deux harmoniques semble réaliste car elle correspond à la valeur obtenue pour 100-200 mbar autour d'une énergie de 30 eV (CXRO) dans l'Argon ou le Krypton.

On peut noter que la mise en forme spectrale évolue fortement avec le diamètre de l'iris qui définit l'avance de phase géométrique et peut permettre un bon accord de phase pour une harmonique donnée. Nous observons qu'il change très peu avec la pression de gaz comme on peut le voir sur la FIGURE 3.22. La sélection devient aussi plus faible à forte intensité où l'ionisation peut commencer à avoir un impact sur l'accord de phase à forte pression et où la longueur d'absorption du milieu peut être réduite par l'absorption.

### 3.3.6 Conclusion et perspectives

Dans cette partie nous avons étudié l'impact de paramètres macroscopiques comme la pression de gaz et la taille du faisceau dans le milieu générateur. Afin de limiter l'ionisation du milieu générateur, une longueur d'onde centrale plus importante du faisceau fondamental a été utilisée dans ces expériences. Cette étude nous a montré qu'il est possible d'obtenir une sélectivité spectrale d'harmonique ou d'un groupe d'harmoniques en contrôlant la pression de gaz et le diamètre de l'iris.

## 3.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons montré qu'il est possible de contrôler finement la longueur d'onde centrale des harmoniques ainsi que leur largeur en utilisant un dispositif passif basé sur des cristaux biréfringents. Dans une seconde partie nous avons montré qu'il est possible d'utiliser les effets collectifs afin d'obtenir une sélectivité spectrale d'une harmonique ou d'un groupe d'harmoniques.

Pour conclure, ces deux parties nous ont permis de contrôler les spectres harmoniques de manière fine et reproductible en utilisant les effets collectifs et la réponse de l'atome unique.



# Chapitre 4

## Une méthode alternative pour la caractérisation temporelle d'impulsions XUV ultrabrèves : l'ionisation par paliers assistée par XUV

« Je connais cette théorie »

---

Hubert Bonisseur de La Bath

### Sommaire

---

<b>4.1 Ionisation par paliers assistée par XUV</b> . . . . .	<b>103</b>
4.1.1 Méthode alternative pour la caractérisation temporelle d'impulsions attosecondes : l'ionisation par paliers . . . . .	103
4.1.2 Ionisation par paliers . . . . .	104
<b>4.2 Résultats expérimentaux</b> . . . . .	<b>106</b>
4.2.1 Présentation du dispositif expérimental . . . . .	106
4.2.2 Analyse des résultats expérimentaux . . . . .	108
<b>4.3 Modélisation de l'expérience à l'aide d'équations de taux</b> . . . . .	<b>111</b>
4.3.1 Description du modèle . . . . .	111
4.3.2 Modélisation des champs IR et XUV . . . . .	113
4.3.3 Détermination des taux . . . . .	114
4.3.3.1 Détermination de $\Gamma_{3s-1}^{XUV}$ et $\Gamma_{3p-1}^{XUV}$ . . . . .	116
4.3.3.2 Détermination de $\Gamma_{Ar^*}^{XUV}$ . . . . .	117
4.3.3.3 Détermination de $\Gamma_{Ar^*}^{IR}$ . . . . .	117
4.3.4 Résultats . . . . .	117
<b>4.4 Caractérisation des impulsions XUV</b> . . . . .	<b>119</b>

4.4.1	Présentation du modèle à trois niveaux . . . . .	119
4.4.2	Conclusion sur le modèle simplifié . . . . .	125
<b>4.5</b>	<b>Système à cinq niveaux : Étude paramétrique . . . . .</b>	<b>125</b>
4.5.1	Influence de l'intensité IR . . . . .	125
4.5.2	Influence de la durée des impulsions XUV attosecondes . . . . .	127
4.5.3	Influence du nombre de photons XUV . . . . .	129
4.5.4	Influence de la durée de l'impulsion IR . . . . .	129
4.5.5	Caractérisation d'un train d'impulsion attoseconde . . . . .	130
<b>4.6</b>	<b>Conclusion et perspectives . . . . .</b>	<b>132</b>

---

## 4.1 Ionisation par paliers assistée par XUV

### 4.1.1 Méthode alternative pour la caractérisation temporelle d'impulsions attosecondes : l'ionisation par paliers

Il existe de nombreuses techniques pour mesurer les impulsions attosecondes et les plus utilisées sont les suivantes. La méthode d'autocorrélation [Takahashi *et al.*, 2013], où un signal non-linéaire obtenu par la corrélation entre une impulsion et sa réplique est analysé en fonction d'un délai les séparant. La méthode RABBITT [Paul *et al.*, 2001] est une méthode de cross-corrélation entre l'impulsion XUV à analyser et un laser IR femtoseconde bloqué en phase. Dans cette méthode, la photo-ionisation à deux couleurs est mesurée en fonction du délai entre l'IR et l'XUV. En plus des pics de photo-électrons induits par les harmoniques, il apparaît des pics intermédiaires (sidebands) caractéristiques de l'absorption d'un photon XUV et d'un photon IR. Ces pics intermédiaires sont modulés avec le délai XUV-IR et donnent des informations sur la différence de phase entre deux harmoniques adjacentes. Cette technique permet d'accéder à des données temporelles moyennées sur les impulsions composant le train d'impulsion attoseconde étudié. La méthode FROG-CRAB (Frequency Resolved Optical Gating for Complete Reconstruction of Attosecond Burst) [Mairesse et Quéré, 2005], basée sur la méthode FROG (Frequency Resolved Optical Gating) [Kane et Trebino, 1993] utilisée en optique femtoseconde permet de reconstruire des impulsions ou trains d'impulsion attoseconde quelconques. Dans cette méthode, le signal analysé est un signal de photo-électrons obtenu par ionisation simple dû à la focalisation des harmoniques dans un gaz en présence d'un champ IR. Ce signal est directement lié au spectre harmonique et est modulé par une porte de phase de basse fréquence qui usuellement est le faisceau IR qui a servi à la génération des harmoniques. Le champ IR de faible intensité habille le champ XUV et permet de nouvelles transitions et donc ouvre la voie à de nouvelles énergies (sidebands) comme pour le cas de la méthode RABBITT. L'étude de ces structures à l'aide d'un algorithme de reconstruction (PCGPA, PROOF, Ptychographie [Lucchini *et al.*, 2015], etc...) nous permet de reconstruire les impulsions sous plusieurs hypothèses. D'une part, la section efficace de photo-ionisation est considérée constante sur la largeur spectrale de l'impulsion attoseconde. D'autre part, on considère que la modulation de phase est indépendante de l'énergie des photo-électrons et on considère une homogénéité spatiale du faisceau XUV au foyer.

On distingue deux catégories de mesures de durées, les méthodes réalisées directement dans le domaine temporel comme le Streaking [Constant *et al.*, 1997] ou l'autocorrélation et les méthodes réalisées dans le domaine spectral permettant ensuite de reconstruire le profil temporel comme les techniques FROG-CRAB, ou PROOF [Chini *et al.*, 2010]. Il reste difficile de caractériser des impulsions attosecondes dans le domaine temporel. En effet le processus de génération d'harmoniques d'ordres élevés a une efficacité de l'ordre de  $10^{-5}$  à  $10^{-6}$ , ce qui implique des énergies pour les

impulsions attosecondes de l'ordre du picojoule au nanojoule. Les méthodes de détermination de durées d'impulsions développées pour les lasers femtosecondes utilisent des processus non-linéaires difficiles à mettre en place pour les faibles énergies disponibles dans le cas d'impulsions attosecondes. Actuellement les mesures dans le domaine temporel ont permis de mesurer des durées d'impulsions de l'ordre de 500 as à 1 fs (Autocorrélation [Takahashi *et al.*, 2013] [Tzallas *et al.*, 2005]) et les méthodes spectrales ont permis de mesurer des impulsions en dessous de la centaines d'attosecondes (FROG-CRAB [Zhao *et al.*, 2012]). Les rares mesures comparatives ont par ailleurs donné des valeurs différentes [Kruse *et al.*, 2010] et il a été prouvé que les mesures spectrales sont insensibles à certains artefacts (aberrations, couplage spatio-spectraux) [Bourassin-Bouchet *et al.*, 2010] [Bourassin-Bouchet *et al.*, 2011] qui peuvent cependant modifier sensiblement la durée des impulsions. Il est donc nécessaire de développer des méthodes de mesure de durées d'impulsions as dans le domaine temporel permettant de mesurer des impulsions ultra-brèves pour des énergies XUV plus faibles que celles nécessaires pour les mesures d'autocorrélations.

### 4.1.2 Ionisation par paliers

C'est dans ce contexte que nous avons cherché à développer une méthode de caractérisation d'impulsions attosecondes dans le domaine temporel. Cette méthode, appelée ionisation par paliers assistée par XUV, utilise l'ionisation en champ intense comme sonde sub-femtoseconde pour mesurer la durée d'impulsions attosecondes. Dans cette méthode, une impulsion IR (respectivement XUV) ionise un gaz puis une seconde impulsion XUV (respectivement IR) ionise à nouveau la cible après un délai contrôlé entre les deux impulsions. Nous avons choisi d'étudier les ions et non les photo-électrons. Le schéma de principe de l'ionisation par paliers est représenté sur la FIGURE 4.1. L'étude du nombre d'ions doublement chargés en fonction du délai entre les deux impulsions nous permet de mesurer la durée des impulsions XUV.

L'évolution du nombre d'ions doublement chargés est liée d'une part au phénomène d'ionisation multi-photonique initié par l'IR et d'autre part à la durée de l'impulsion XUV. Ce schéma à deux couleurs permet dans un premier temps d'obtenir une cross-corrélation entre le champ IR et l'impulsion XUV et dans un second temps de mesurer la durée de l'impulsion XUV. Une explication détaillée de la méthode sera donnée dans la partie 4.4 où le taux d'ionisation simple de l'état fondamental est calculé à l'aide de la formule ADK auquel s'ajoute un terme correctif [Tong et Lin, 2005] :

$$W_{ADK_{mod}}(E) = C_l^2 \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!2(l-|m|)!} \frac{1}{\kappa^{\frac{2Z}{\kappa}-1}} \left(\frac{2\kappa^3}{E}\right)^{\frac{2Z}{\kappa}-1} \exp\left(\frac{-2\kappa^3}{3E}\right) \exp\left(\frac{-\alpha Z^2}{I_p \kappa^3}\right). \quad (4.1)$$

Dans cette formule  $l$  et  $m$  représentent les nombres quantiques secondaire et tertiaire,  $C_l$  représente l'amplitude de la fonction d'onde dans la région tunnel,  $\kappa = \sqrt{2I_p}$  avec  $I_p$  l'énergie d'ionisation et  $\alpha$  est un paramètre empirique obtenu par un ajustement de

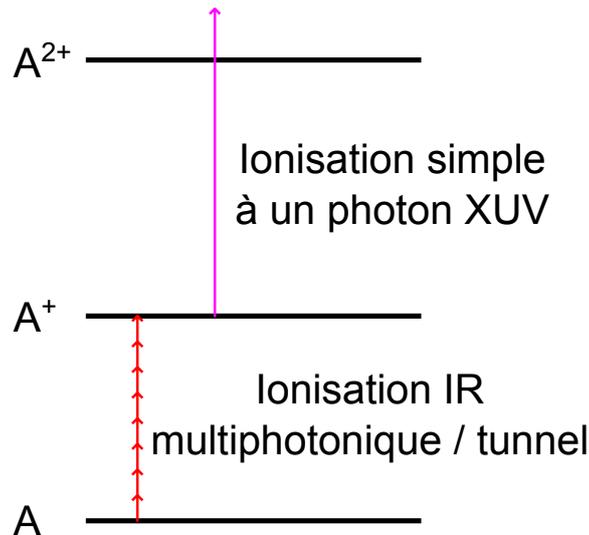


FIGURE 4.1 – Schéma de principe de l'ionisation par paliers dans un schéma où la première ionisation est réalisée par le faisceau IR (ionisation multi-photonique) et la seconde ionisation est réalisée par le faisceau XUV (ionisation simple à un photon).

taux théoriques obtenus par la TDSE dans l'approximation à un l'électron actif unique.

La FIGURE 4.2 représente l'évolution du nombre d'ions doublements chargés en fonction du délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR (Impulsion IR de 9,6 fs de largeur à mi-hauteur et pour plusieurs durées d'impulsions XUV attosecondes) pour un système comportant trois niveaux. On y observe une croissance régulière du nombre d'ions Ar<sup>2+</sup> modulée par des paliers que nous avons baptisés "marches d'ionisation". Les marches ont été observées expérimentalement pour la première fois dans [Uiberacker *et al.*, 2007]). Nous observons que la pente de ces marches change avec la durée de l'impulsion XUV considérée. La durée de l'impulsion XUV est aussi inscrite dans cette pente et il semble possible de déterminer la durée de l'impulsion XUV sub-femtoseconde à l'aide de l'enregistrement de l'évolution de la population de Ar<sup>2+</sup> en fonction du délai IR-XUV.

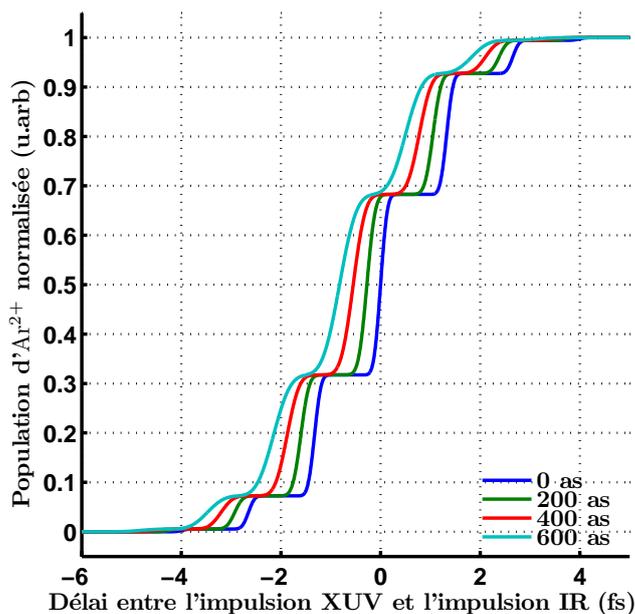


FIGURE 4.2 – Évolution de la population d'ions  $\text{Ar}^{2+}$  en fonction du délai entre l'XUV et l'IR pour plusieurs durées d'impulsions XUV. Ces simulations sont réalisées pour l'Argon et commentées en détail dans la section 4.4.

## 4.2 Résultats expérimentaux

### 4.2.1 Présentation du dispositif expérimental

Dans la littérature, il existe plusieurs types de dispositifs permettant de générer des faisceaux dans la gamme des XUV et de les recombiner afin de réaliser des expériences de type pompe-sonde ([Frank *et al.*, 2012], [Locher *et al.*, 2014], [Wernet *et al.*, 2011]). Dans cette expérience, réalisée à l'ILM (Institut Lumière Matière) à Villeurbanne, nous utilisons un système de génération d'harmoniques à haute cadence et à forte focalisation qui a comme avantage d'être très compact. Ce système présenté dans [Cabasse, A. *et al.*, 2013] et [Driever *et al.*, 2014] a été adapté pour les impulsions ultrabrèves. Il a été développé et monté à Bordeaux et transporté à l'ILM afin de l'utiliser avec un système ultrastable à 5 kHz. Il est composé de trois parties : un laser de génération IR, une partie génération d'harmoniques d'ordres élevés couplée à un interféromètre IR / XUV et une partie détection de fragments ioniques composée d'un spectromètre d'imagerie de vecteur vitesse (VMI). Les parties génération, interféromètre et détection sont représentées sur la FIGURE 4.3.

Le laser de génération utilisé est un laser commercial (Coherent elite duo USX), délivrant des impulsions de 30 fs centrées sur 807 nm pour des énergies de 2 mJ et à une cadence de 5 kHz. Tout d'abord le laser est séparé en deux parties.

L'une d'entre elles est focalisée à l'aide d'une lentille de focale 30 cm dans une cellule de gaz (Krypton, Argon ou Xénon) de 5 mm de longueur (3 mm avec deux

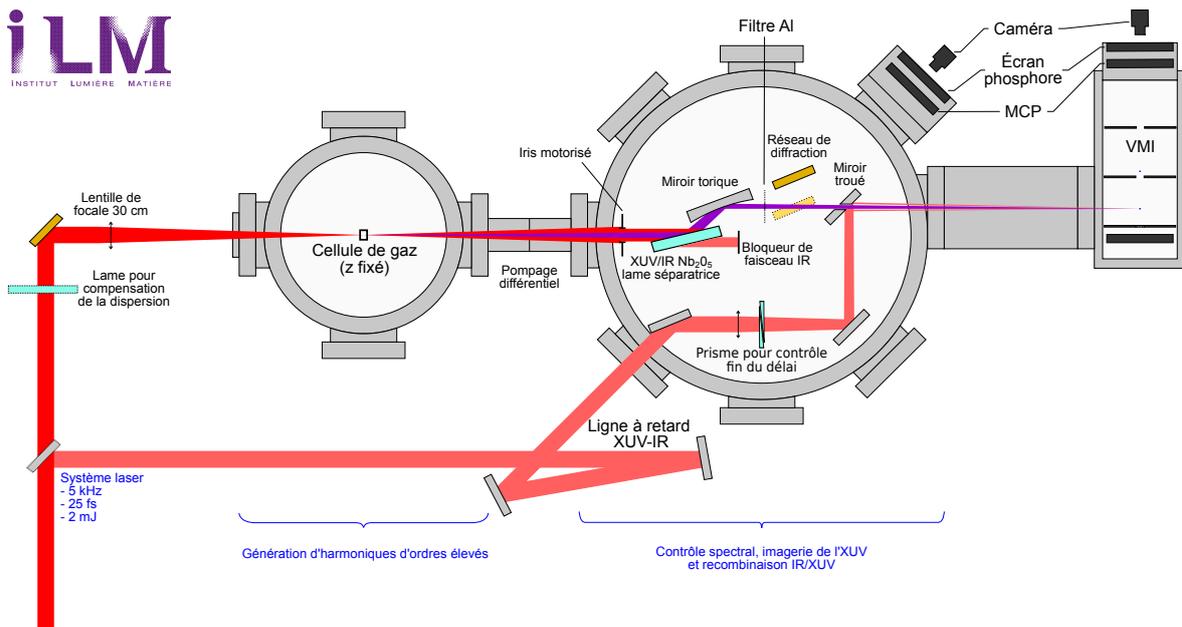


FIGURE 4.3 – Dispositif expérimental utilisé pour la génération des harmoniques et leur caractérisation par marche d’ionisation.

fenêtres en téflon de 1 mm chacune). Cette interaction entre le laser générateur et le gaz dans la cellule produit un rayonnement colinéaire au faisceau fondamental et composé d’harmoniques d’ordres élevés de la fréquence du fondamental. Dans la chambre de recombinaison, le faisceau passe par un séparateur de faisceau doté d’un revêtement en Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> permettant une bonne réflectivité dans la gamme XUV (45 % pour un angle rasant de 68° et une polarisation S) et une transmission du faisceau IR. La divergence du faisceau XUV est ensuite contrôlée par un miroir torique en Or de focale 30 cm qui permet de focaliser les harmoniques générées dans la région d’interaction du détecteur (VMI). Il est possible d’insérer un réseau de diffraction en Or afin de détecter, à l’aide de MCP, les harmoniques générées.

L’autre partie du faisceau IR est focalisée dans la région d’interaction du VMI à l’aide d’une lentille de 75 cm de focale. Le délai entre l’IR et l’XUV est contrôlé avec une résolution sub-femtoseconde [Loriot *et al.*, 2015] à l’aide d’une ligne à retard sur le bras IR composé d’une paire de prisme d’angle 4°. La position d’un des prismes est contrôlée par un moteur pas à pas ce qui permet de changer le délai avec une résolution sub-femtoseconde. Afin de recombiner le faisceau IR et le faisceau XUV, un miroir troué est utilisé dans ce dispositif pour ne pas perdre d’intensité sur le bras XUV.

La dernière partie de ce dispositif est la partie détection des fragments ioniques, qui est composée d’un spectromètre d’imagerie de vecteur vitesse (VMI) [Bordas *et al.*, 1996]. Ce dispositif de détection est composé de trois électrodes parallèles et soumises à des tensions différentes ainsi que d’un détecteur composé de galettes de micro-canaux, d’un écran phosphore et d’une caméra. Un schéma de principe de ce dispositif est représenté sur la FIGURE 4.4. Ce dispositif est sensible à la direction des espèces chargées et à leur énergie. La différence de tension entre la première électrode (répulsor) et la seconde

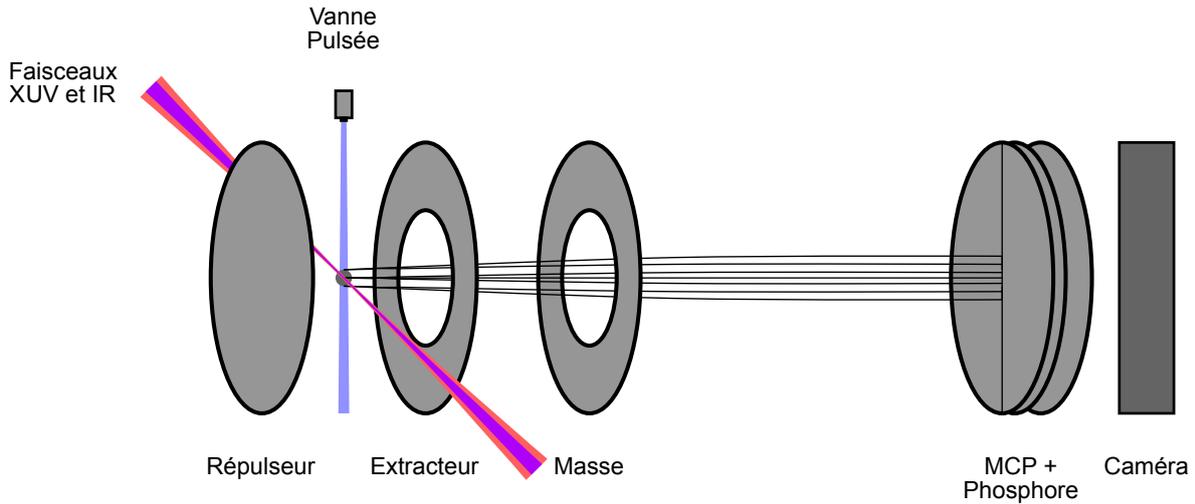


FIGURE 4.4 – Schéma de principe d'un spectromètre d'imagerie de vecteur vitesse (VMI).

électrode (extracteur) permet d'accélérer les espèces vers les galettes de micro-canaux. La troisième électrode est à la masse afin d'obtenir un mouvement libre pour les éléments chargés entre la troisième électrode et le détecteur. En fonction de la polarité des électrodes, il est possible de détecter soit des ions soit des électrons qui seront projetés sur le détecteur. Dans notre expérience nous détectons les ions et nous utilisons le VMI comme un spectromètre à temps de vol.

## 4.2.2 Analyse des résultats expérimentaux

Dans cette expérience, nous faisons varier le délai entre l'impulsion IR et l'impulsion XUV et nous enregistrons le nombre d'ions d' $\text{Ar}^{2+}$  en fonction de ce délai. Pour cette mesure le VMI est utilisé comme un spectromètre à temps de vol.

Les harmoniques sont générées dans une cellule emplies d'Argon (30 mbar). Le spectre XUV mesuré par les MCP est représenté sur la FIGURE 4.5. Le spectre XUV injecté dans le VMI correspond au spectre mesuré multiplié par la transmission du filtre Al de 200 nm utilisé pour s'affranchir de l'IR. La pression dans la chambre du VMI est de  $3 \times 10^{-6}$  mbar d'Argon et la puissance IR utilisée est de 840 mW. Pour ces conditions, quatre mesures ont été réalisées et sont représentées sur la FIGURE 4.6.

On observe une évolution globale similaire pour les quatre mesures présentées. Cette évolution est composée d'une montée du signal autour du délai zéro suivie d'une décroissance qui débute pour des délais d'environ 20 fs et qui tend vers une valeur asymptotique non nulle. Pour quantifier l'évolution globale de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  en fonction du délai nous utilisons un ajustement donné par :

$$y = Z + A \times 0,5 \times \operatorname{erfc} \left( \frac{\mu - x}{\sqrt{2}\sigma} \right) * \left( B + y_0 \exp \left( \frac{-x}{t_2} \right) \right), \quad (4.2)$$

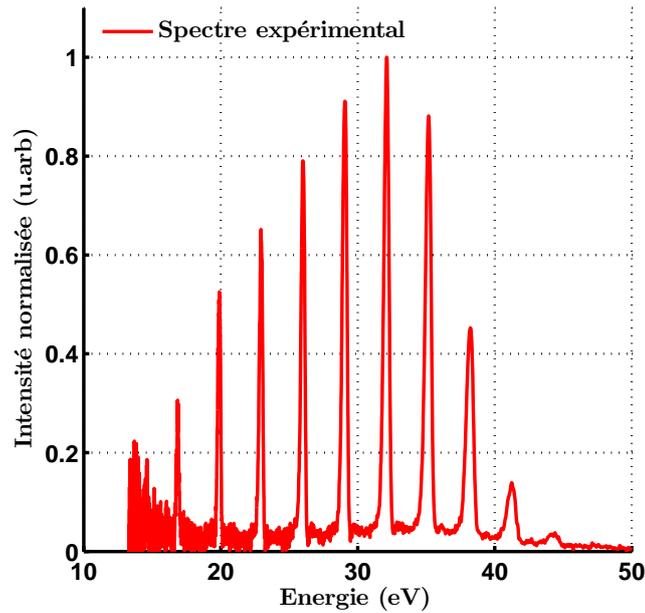


FIGURE 4.5 – Spectre XUV généré dans l’Argon et détecté à l’aide de galettes de micro-canaux montrant les harmoniques 11 à 29.

où  $\text{erfc}$  est la fonction d’erreur centrée en  $\mu$  d’amplitude  $A$  et de largeur  $\sigma$  et où  $t_2$  est le temps caractéristique d’une décroissance exponentielle. Cette fonction nous permet d’extraire deux temps caractéristiques. Un correspondant à la montée, représentée par une fonction erreur liée à la cross-corrélation entre l’XUV et l’IR (multi-photonique) et que l’on notera  $t_1$  ( $t_1 = 2\sqrt{2 \ln 2} \sigma$ ). Le second correspondant à la décroissance expérimentale noté  $t_2$ .

Dans toutes les mesures réalisées, le temps de montée  $t_1$  lié à la cross-corrélation entre l’XUV et l’IR est de 33,3 fs, 36,2 fs, 31,6 fs et 32,7 fs soit une moyenne de 33,3 fs. Si l’on considère une durée de l’impulsion IR d’environ 30 fs, ceci implique une durée du train d’impulsion attoseconde de l’ordre de la dizaine de femtosecondes. Le temps  $t_2$  lié à la décroissance varie d’une mesure à l’autre de 21 à 37 fs. Ce temps nous permet d’observer qu’il existe une décroissance rapide avec un temps caractéristique de l’ordre de quelques dizaines de femtosecondes qui intervient dans le processus permettant d’obtenir de l’ $\text{Ar}^{2+}$ . De plus, sur les différentes mesures, on observe une asymptote dont la valeur est d’environ la moitié à deux tiers de la valeur maximale. La décroissance et l’asymptote nous montrent qu’il existe plusieurs chemins possibles permettant d’obtenir l’ion  $\text{Ar}^{2+}$ , et que l’un de ces chemins subit une décroissance en fonction du temps qui l’emmène vers un niveau ne contribuant pas à la population d’ $\text{Ar}^{2+}$ .

Les données présentées sur la FIGURE 4.6 ont été réalisées avec un pas temporel entre les deux impulsions de 5 fs pour la partie centrale. Cette mesure ne permet pas de voir les marches d’ionisation définies précédemment qui sont très difficiles à observer pour des impulsions IR de 30 fs. Cependant l’évolution de la population d’ $\text{Ar}^{2+}$  nous permet de mieux comprendre les mécanismes impliqués dans cette expérience.

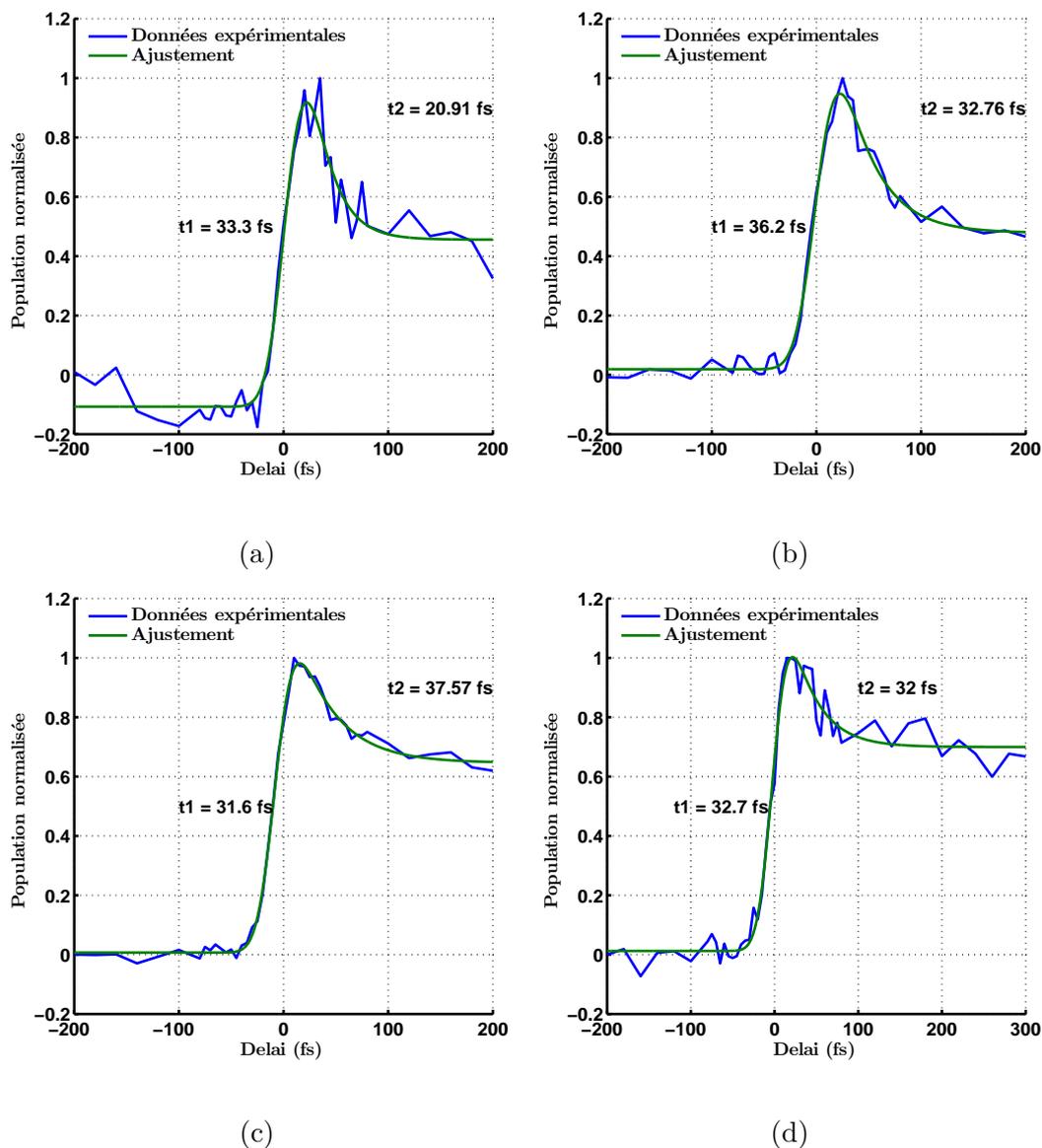


FIGURE 4.6 – Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  en fonction du délai entre l'IR et l'XUV. La puissance IR utilisée est de 840 mW et sa durée à mi-hauteur est de 30 fs.

La section suivante traite de la modélisation numérique de cette expérience afin de distinguer les différents niveaux mis en jeux.

## 4.3 Modélisation de l'expérience à l'aide d'équations de taux

### 4.3.1 Description du modèle

Afin de modéliser l'évolution de la population d'Argon doublement ionisé en fonction du délai entre le faisceau IR et le faisceau XUV, un modèle basé sur des équations de taux a été développé. Cette simulation inclut cinq états de l'Argon qui sont représentés sur la FIGURE 4.7.

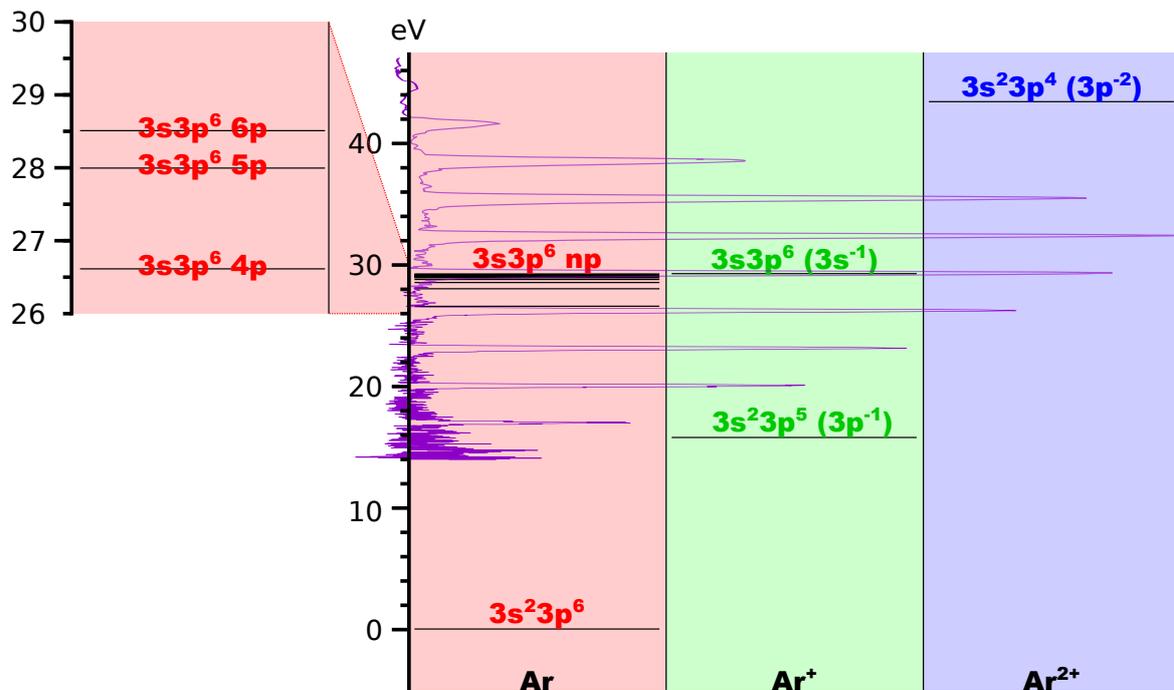


FIGURE 4.7 – Niveaux d'énergie considérés dans ce modèle pour les ions  $\text{Ar}^+$  et  $\text{Ar}^{2+}$ . Ces niveaux sont comparés au spectre expérimental représenté en violet. Dans ce schéma de principe les atomes, ions ionisés une fois et ions ionisés deux fois sont représentés respectivement sur fond rouge, vert et bleu.

Les niveaux considérés sont le niveau fondamental de l'Argon ( $3s^23p^6$ ), le niveau d'Argon excité ( $3s3p^66p$ ) issu de l'excitation d'un électron de couche 3s, l'Argon ionisé une fois en couche p ( $3s^23p^5$ ), l'Argon ionisé une fois en couche s ( $3s3p^6$ ) et l'ion Argon ionisé deux fois ( $3s^23p^4$ ). Pour ce modèle, nous avons considéré six transitions entre les différents niveaux. Ces transitions sont soit induites par l'XUV (label XUV), soit

induites par l'IR (label IR) ou par auto-ionisation (relaxations).

$$\Gamma_{3s^{-1}}^{XUV} \Rightarrow 3s^2 3p^6 \xrightarrow{XUV} 3s 3p^6, \quad (4.3)$$

$$\Gamma_{3p^{-1}}^{XUV} \Rightarrow 3s^2 3p^6 \xrightarrow{XUV} 3s^2 3p^5, \quad (4.4)$$

$$\Gamma_{Ar^*}^{XUV} \Rightarrow 3s^2 3p^6 \xrightarrow{XUV} 3s 3p^6 6p, \quad (4.5)$$

$$\Gamma_{Ar^*}^{relax} \Rightarrow 3s 3p^6 6p \xrightarrow{relax} 3s^2 3p^5, \quad (4.6)$$

$$\Gamma_{Ar^*}^{IR} \Rightarrow 3s 3p^6 6p \xrightarrow{IR} 3s 3p^6, \quad (4.7)$$

$$\Gamma_{3s^{-1}}^{IR} \Rightarrow 3s 3p^6 \xrightarrow{IR} 3s^2 3p^4. \quad (4.8)$$

Ces différentes transitions (représentées sur la FIGURE 4.8) ont été choisies pour expliquer l'évolution de la population d' $Ar^{2+}$  en fonction du délai entre l'IR et l'XUV. Les autres niveaux d' $Ar^{2+}$   $3s 3p^5$  et  $3p^6$  sont situés à des énergies très élevées et ne contribuent pas. Le niveau fondamental ( $3s^2 3p^6$ ), le niveau ionisé une fois en couche

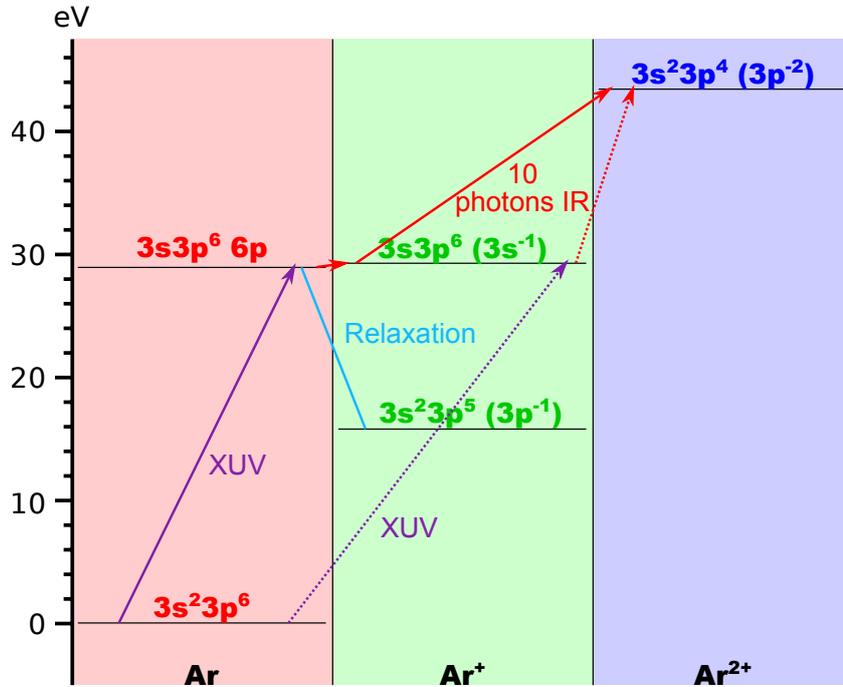


FIGURE 4.8 – Niveaux d'énergie et transitions considérés dans ce modèle pour les ions  $Ar^+$  et  $Ar^{2+}$ . Les flèches violettes correspondent aux transitions à un photon XUV et les flèches rouges correspondent aux transitions IR. La flèche bleue correspond à une relaxation.

"interne" ( $3s 3p^6$ ) et le niveau ionisé deux fois ( $3s^2 3p^4$ ) permettent de décrire la montée de la population d' $Ar^{2+}$ . La transition entre ces deux niveaux correspond au premier chemin permettant d'obtenir des ions  $Ar^{2+}$  et est représentée en rouge (pointillés) sur la FIGURE 4.8.

Le niveau excité du fondamental ( $3s 3p^6 6p$ ) et le niveau ionisé en couche p ( $3s^2 3p^5$ ) permettent quant à eux d'expliquer la décroissance observée (transition représentée en bleu clair sur la FIGURE 4.8).

Le second chemin pris en compte sera donc constitué d'une excitation de l'Argon neutre, puis d'une ionisation en couche s et pour finir d'une ionisation double. Ce chemin est représenté en trait plein sur la FIGURE 4.8. L'état excité de l'Argon s'auto-ionise vers l'état ionisé en couche p avec un temp caractéristique de l'ordre de la femtosecondes [Madden *et al.*, 1969]. La compétition entre l'auto-ionisation et l'excitation explique la décroissance observée car l'état  $3s^23p^5$  ne peut pas être ionisé pour donner des ions  $Ar^{2+}$  à basse intensité. L'état ionisé ( $3s^23p^5$ ) peut lui aussi être peuplé directement depuis le niveau fondamental mais ne contribuera pas à la population d'ions doublement chargés.

Les équations de taux à résoudre représentant les différents taux sont données par :

$$\frac{\partial N^0(Ar, t)}{\partial t} = - \left( \Gamma_{3s^{-1}}^{XUV}(t) + \Gamma_{3p^{-1}}^{XUV}(t) + \Gamma_{Ar^*}^{XUV}(t) \right) N^0(Ar, t), \quad (4.9)$$

$$\frac{\partial N^0(Ar^*, t)}{\partial t} = - \left( \Gamma_{Ar^*}^{relax} + \Gamma_{Ar^*}^{IR}(t) \right) N^0(Ar^*, t) + \Gamma_{Ar^*}^{XUV}(t) N^0(Ar, t), \quad (4.10)$$

$$\frac{\partial N^+(3p^{-1}, t)}{\partial t} = \Gamma_{Ar^*}^{relax} N^0(Ar^*, t) + \Gamma_{3p^{-1}}^{XUV}(t) N^0(Ar, t), \quad (4.11)$$

$$\frac{\partial N^+(3s^{-1}, t)}{\partial t} = -\Gamma_{3s^{-1}}^{IR}(t) N^{2+}(Ar^{2+}, t) + \Gamma_{3s^{-1}}^{XUV}(t) N^0(Ar, t) + \Gamma_{Ar^*}^{IR}(t) N^0(Ar^*, t), \quad (4.12)$$

$$\frac{\partial N^{2+}(Ar^{2+}, t)}{\partial t} = \Gamma_{3s^{-1}}^{IR}(t) N^+(3s^{-1}, t). \quad (4.13)$$

Où  $N^0(Ar, t)$  est la population de l'Argon neutre,  $N^0(Ar^*, t)$  est la population de l'Argon excité,  $N^+(3p^{-1}, t)$  et  $N^+(3s^{-1}, t)$  sont les populations d'Argon ionisé une fois respectivement en couche p et s et où  $N^{2+}$  est la population de l'Argon ionisé deux fois.

### 4.3.2 Modélisation des champs IR et XUV

Le champ IR est modélisé par une enveloppe Gaussienne de largeur à mi-hauteur de 25 fs et par une porteuse correspondant à un spectre centré sur 807 nm.

$$E_{IR} = E_0 \exp\left(\frac{-t^2}{2\sigma^2}\right) \times \cos(\omega_{IR}t), \quad (4.14)$$

où  $\sigma = \frac{FWHM}{2 \times \sqrt{2 \ln 2}}$  et où  $\omega_{IR} = \frac{2\pi c}{\lambda_{IR}}$ .

Pour modéliser le champ XUV, nous avons tout d'abord considéré le spectre XUV obtenu expérimentalement et le spectre composé par des Gaussiennes dont les rapports d'amplitudes et les positions correspondent au spectre expérimental. On peut noter que dans le modèle utilisé toutes les Gaussiennes ont la même largeur spectrale. Le spectre expérimental et le spectre reconstruit sont représentés sur la FIGURE 4.9

Le profil temporel du faisceau XUV est estimé analytiquement en utilisant la transformée de Fourier inverse du spectre XUV simulé en supposant une phase nulle. Le

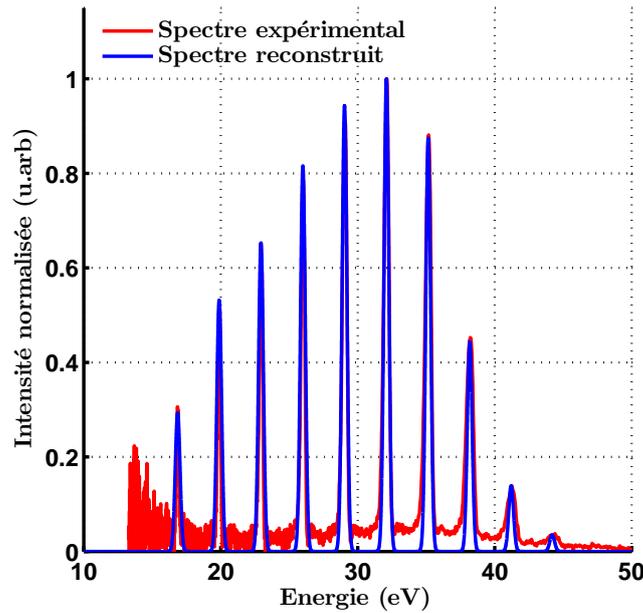


FIGURE 4.9 – Spectre XUV normalisé ajusté utilisé pour les calculs.

profil temporel de l’XUV est représenté sur la FIGURE 4.10 et il correspond à un train d’impulsion attoseconde ayant une enveloppe de largeur de 7,4 fs.

### 4.3.3 Détermination des taux

Le taux  $\Gamma_{Ar^*}^{relax}$  est un taux de relaxation lié à l’autoionisation de l’Argon excité  $Ar^*$  en couche interne vers  $Ar^+$  ionisé en couche p. Ce taux est différent selon le niveau np d’Argon excité considéré et est déterminé à l’aide de la référence [Madden *et al.*, 1969] en effectuant des mesures dans le domaine spectral avec un synchrotron. Les temps de relaxation pour les niveaux 4p, 5p et 6p sont respectivement 8,16 fs, 23,15 fs et 51,81 fs. Cette relaxation induit des dynamiques avec des temps caractéristiques de l’ordre de la femtoseconde dans l’évolution de la population d’Argon ionisé deux fois. Pour cette modélisation, le niveau considéré est le niveau  $3s3p^66p$  car c’est le seul dont la section efficace coïncide avec le spectre expérimental utilisé comme on peut le voir sur la FIGURE 4.11.

Le taux  $\Gamma_{3s-1}^{IR}$  qui permet d’atteindre l’ $Ar^{2+}$  depuis l’ $Ar^+$  ionisé en couche s est déterminé à l’aide de la référence [Ranitovic *et al.*, 2011]. Après le passage dans l’état ionique  $3s3p^6$  par le faisceau XUV, il n’est pas possible d’atteindre l’état  $3s^23p^4$  par ionisation Auger car la transition est interdite énergétiquement (écart de 13,48 eV entre  $3s^23p^5$  et  $3s3p^6$  et écart de 14,15 eV entre  $3s3p^6$  et  $3s^23p^4$ ). Cependant en présence d’un faisceau IR suffisamment intense, il est possible d’atteindre l’état doublement ionisé par le processus LEAD (Laser Enabled Auger Decay). Le taux utilisé dans ces calculs est un taux dépendant de l’intensité IR et ajusté sur les données calculées dans [Ranitovic *et al.*, 2011]. Pour une intensité IR de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, on obtient un taux de

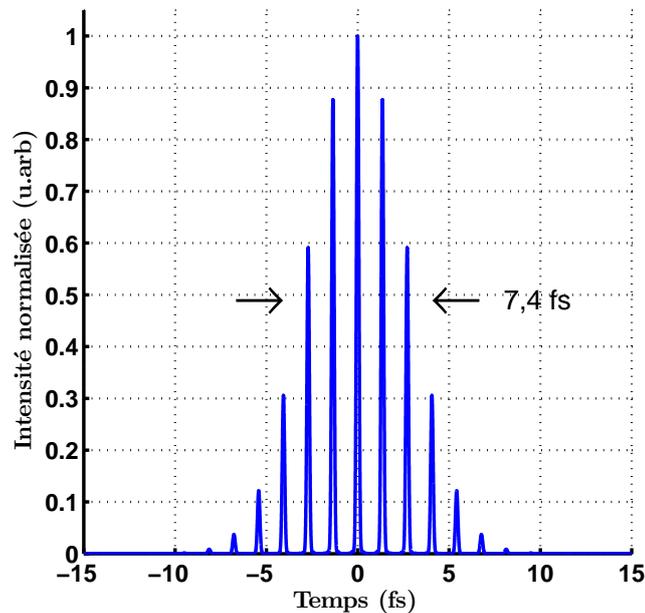


FIGURE 4.10 – Profil temporel normalisé de l'XUV obtenu après avoir utilisé la transformée de Fourier inverse sur le spectre XUV reconstruit et en considérant une dérive de fréquence nulle.

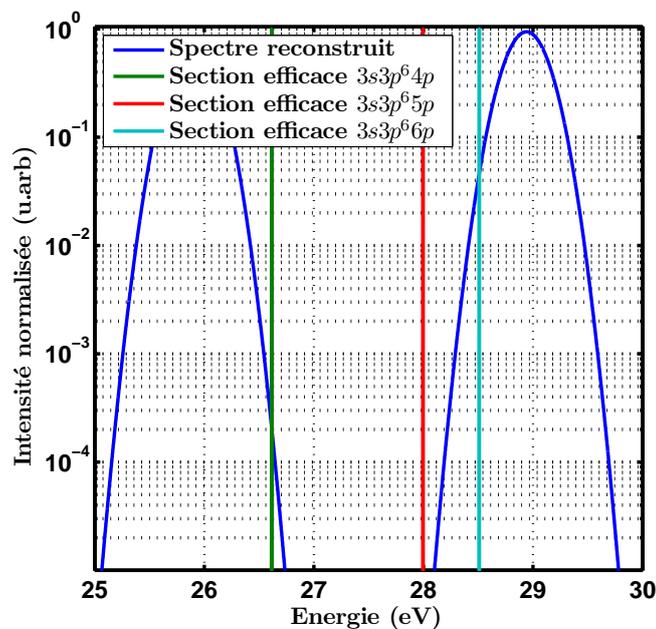


FIGURE 4.11 – Sections efficaces pour les différents niveaux  $3s3p^6 4p$ ,  $3s3p^6 5p$  et  $3s3p^6 6p$  depuis le niveau fondamental.

l'ordre de  $10^{-2} \text{ fs}^{-1}$ .

#### 4.3.3.1 Détermination de $\Gamma_{3s^{-1}}^{XUV}$ et $\Gamma_{3p^{-1}}^{XUV}$

Le calcul des taux de photo-ionisation  $\Gamma_{3s^{-1}}^{XUV}$  et  $\Gamma_{3p^{-1}}^{XUV}$  est obtenu par la relation.

$$\Gamma = \int_{\nu_0}^{\infty} \frac{4\pi J_{\nu} \sigma(\nu)}{h\nu} d\nu. \quad (4.15)$$

$J_{\nu}$  est l'énergie moyenne par unité de surface, de temps, d'intervalle de fréquence et d'angle solide de l'XUV ( $[\text{J m}^{-2} \text{ s}^{-1} \text{ Hz}^{-1} \text{ sr}^{-1}]$ ), où  $\sigma(\nu)$  est la section efficace de photo-ionisation à un photon  $h\nu$ , où  $\nu_0$  est l'énergie minimale pour ioniser l'atome et où  $h$  est la constante de Planck. Les sections efficaces des orbitales 3s et 3p de l'Argon permettant le calcul de  $\Gamma_{3s^{-1}}^{XUV}$  et  $\Gamma_{3p^{-1}}^{XUV}$  sont issues de la référence [Yeh et Lindau, 1985] et sont représentées sur la FIGURE 4.12.

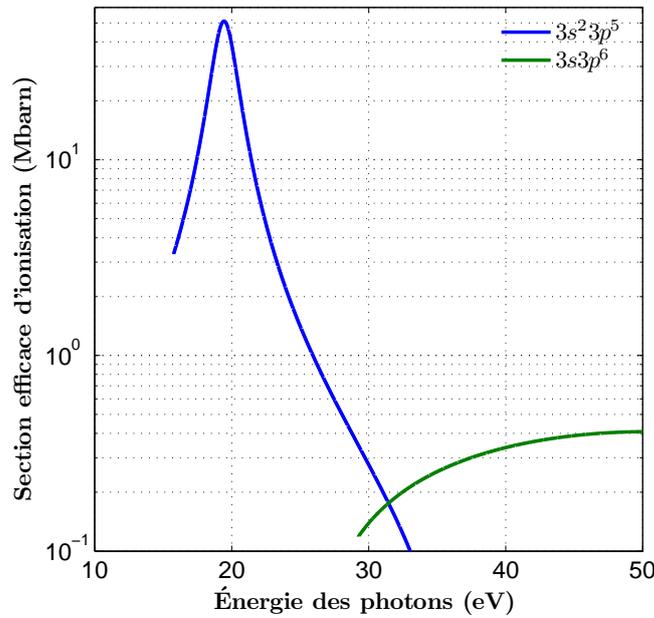


FIGURE 4.12 – Sections efficaces de photo-ionisation de l'Argon pour les niveaux  $3s^2 3p^5$  et  $3s 3p^6$  depuis le niveau fondamental.

#### Détermination de $J_{\nu}$

Afin de déterminer  $J_{\nu}$ , nous avons considéré un nombre de photons focalisés dans le VMI. Cette valeur est ensuite convertie en énergie en prenant en compte la fréquence centrale du spectre XUV et est divisée par l'angle solide sur lequel est focalisée l'impulsion, par la surface au foyer et par la durée de l'impulsion XUV déterminée en faisant une transformée de Fourier du spectre XUV. Les taux obtenus pour une intensité XUV de  $8,45 \times 10^7 \text{ W/cm}^2$  sont de  $1,309 \text{ fs}^{-1}$  pour  $\Gamma_{3p^{-1}}^{XUV}$  et de  $7,673 \times 10^{-3} \text{ fs}^{-1}$  pour  $\Gamma_{3s^{-1}}^{XUV}$ .

#### 4.3.3.2 Détermination de $\Gamma_{Ar^*}^{XUV}$

Pour déterminer le taux de photoexcitation  $\Gamma_{Ar^*}^{XUV}$ , nous utilisons la même formule que pour les taux  $\Gamma_{3s-1}^{XUV}$  et  $\Gamma_{3p-1}^{XUV}$  (équation 4.15) mais la section efficace est cette fois-ci calculée analytiquement. La section efficace d'absorption de l'Argon permettant de passer dans l'état  $3s3p^6np$  est déterminée par un oscillateur classique et stationnaire [Corney, 1977].

$$\sigma(\omega) = \frac{\gamma_{cl}/(2\pi)}{(\omega - \omega_0)^2 + (\gamma_{cl}/2)^2} \frac{\pi e^2}{2\varepsilon_0 mc^2}, \quad (4.16)$$

avec  $\gamma_{cl} = \frac{e^2 \omega_{21}^2}{6\pi \varepsilon_0 mc^3}$ .

Dans le cas du calcul du taux  $\Gamma_{Ar^*}^{XUV}$ , la résonance est très fine et peut être assimilée à un Dirac. Afin de calculer le taux d'excitation pour ce cas précis, l'intégrale de la section efficace est déterminée analytiquement et est ensuite multipliée par la valeur de  $J_\nu$  pour l'énergie correspondante au niveau  $3s3p^66p$ . Dans notre cas une intensité XUV maximale de  $8,45 \times 10^7$  W/cm<sup>2</sup> est utilisée. Ce qui correspond à un taux de  $2,04 \times 10^{-2}$  fs<sup>-1</sup> pour  $\Gamma_{Ar^*}^{XUV}$ .

#### 4.3.3.3 Détermination de $\Gamma_{Ar^*}^{IR}$

Le taux  $\Gamma_{Ar^*}^{IR}$  permet le passage de l'Argon neutre excité en couche interne à l'Argon ionisé une fois en couche s à l'aide d'un photon IR. Ce taux est en cours de calcul et pour les simulations obtenus dans ce travail un taux de  $5 \times 10^{-2}$  fs<sup>-1</sup> a été utilisé.

### 4.3.4 Résultats

Afin de tester le modèle présenté dans la section précédente, des calculs d'évolution de la population d'Ar<sup>2+</sup> ont été réalisés puis confrontés à l'expérience. Dans ces calculs, nous avons considéré une impulsion Gaussienne IR de durée 25 fs pour une intensité pic de  $1 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Le train d'impulsion XUV est présenté sur la FIGURE 4.10 pour une durée de 7,4 fs à mi-hauteur. Le nombre de photons XUV considéré par impulsion est de  $10^6$  ([Constant *et al.*, 1999]). Les différents taux sont calculés pour ces paramètres et la population d'Ar<sup>2+</sup> est calculée à l'aide des formules 4.9 à 4.13 pour plusieurs délais entre l'impulsion IR et l'impulsion XUV, le résultat est représenté sur la FIGURE 4.13.

Sur cette figure, on remarque tout d'abord un bon accord qualitatif de l'évolution de la population entre les résultats expérimentaux et les résultats théoriques. En particulier la décroissance liée au temps d'auto-ionisation de l'Argon excité est bien reproduite. Le temps de montée, relié à la cross-corrélation entre l'XUV et l'IR semble cependant plus long expérimentalement. On obtient un temps de montée de 16,4 fs sur la courbe théorique et de 31,6 fs sur la courbe expérimentale. On peut expliquer cette différence par une sous-estimation de la durée totale du train d'impulsion XUV lors des calculs (Voir partie 4.5.5). En effet le train d'impulsion XUV a été calculé en utilisant

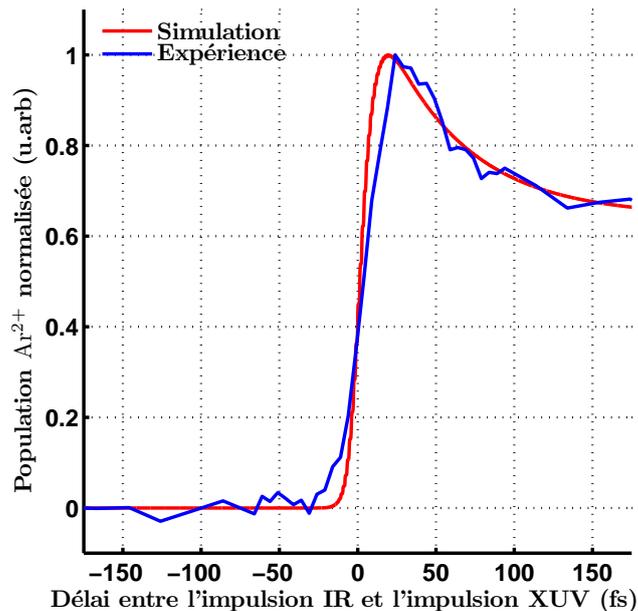


FIGURE 4.13 – Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  simulée et expérimentale en fonction du délai entre l'impulsion IR et l'impulsion XUV. Simulation réalisée pour une durée à mi-hauteur de l'IR de 25 fs, pour un train d'impulsion de 7,4 fs et pour  $10^6$  photons par impulsion XUV.

la transformée de Fourier du spectre XUV et en considérant une phase nulle pour toute les harmoniques. Cette hypothèse est cependant un cas extrême qui minimise la durée du train d'impulsion XUV.

La FIGURE 4.14 est un agrandissement des résultats simulés pour des délais allant de -20 fs à 20 fs. On observe que l'évolution de la population présente des marches d'ionisations même avec des impulsions de 25 fs. Ceci nous montre bien que ce modèle nous permet d'une part de reproduire l'allure globale observée dans les expériences mais aussi de mettre en évidence les marches d'ionisation évoquées précédemment pour caractériser l'impulsion XUV.

Afin de caractériser la résolution attoseconde accessible par cette méthode de mesure, nous réalisons un modèle simplifié composé de trois niveaux (illustré sur la FIGURE 4.15). Cette simplification permet d'estimer la résolution attoseconde accessible avec des impulsions ultra-brèves sans prendre en compte les effets de la décroissance femtoseconde.

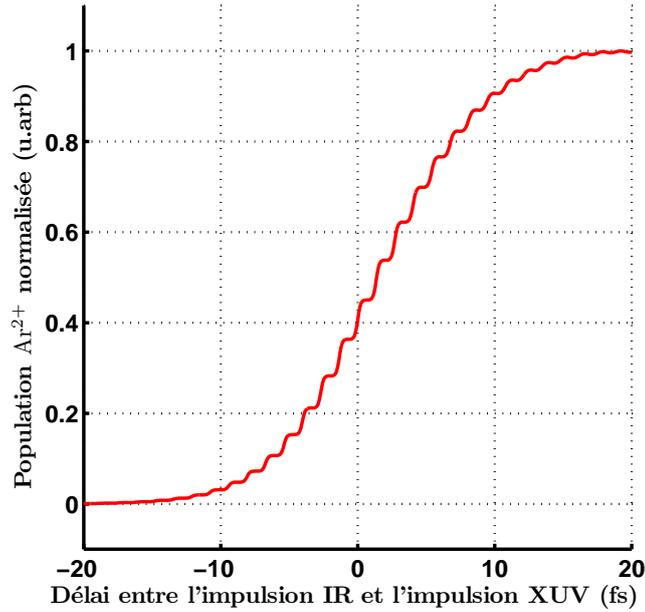


FIGURE 4.14 – Zoom de la FIGURE 4.13 sur l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  simulée en fonction du délai entre l'impulsion IR et l'impulsion XUV.

## 4.4 Caractérisation des impulsions XUV

### 4.4.1 Présentation du modèle à trois niveaux

Les niveaux pris en compte pour ce modèle sont le niveau fondamental ( $3s^23p^6$ ), l'Argon ionisé une fois ( $3s^23p^5$ ) et l'Argon ionisé deux fois ( $3s^23p^4$ ). Ces niveaux sont représentés sur la FIGURE 4.15 avec leurs énergies (15,76 eV et 43,39 eV). Les niveaux pris en compte dans ce modèle simplifié impliquent un écart énergétique entre l'Argon ionisé une fois et l'Argon ionisé deux fois d'environ 27,6 eV. Dans ce modèle, la transition entre ces deux niveaux se fera donc à l'aide de l'XUV (la transition non-linéaire avec l'infrarouge entraînerait une transition à 19 photons). La transition entre l'état fondamental et l'état ionisé se fera à l'aide de l'IR. L'ionisation avec l'IR privilégie en effet les transitions à faible potentiel d'ionisation. Avec les niveaux d'énergie considérés ici, l'évolution de la population d'Argon ionisé deux fois évoluera de manière inversée par rapport à la situation précédente.

Ce modèle est composé de deux étapes : la première étape consiste en l'ionisation simple multi-photonique des atomes par l'impulsion IR et la seconde étape consiste à ioniser une deuxième fois les ions créés lors de la première étape à l'aide d'une impulsion XUV.

Dans ce modèle à trois niveaux, la probabilité d'avoir un atome dans l'état fondamental est donnée par :

$$\frac{\partial N^0}{\partial t} = -\Gamma N^0 \Rightarrow P(t) = \frac{N^0(t)}{N^0(t=0)} = e^{-\int_0^t \Gamma(x) dx}. \quad (4.17)$$

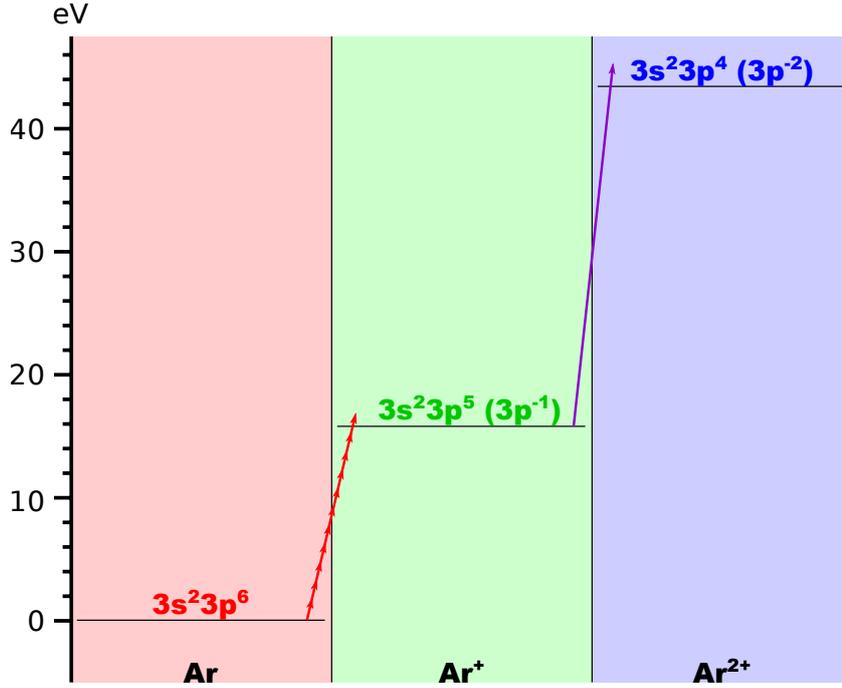


FIGURE 4.15 – Niveaux d'énergie et transitions utilisés dans le modèle simplifié.

Où  $N^0$  est la population de l'état fondamental et  $\Gamma$  est le taux permettant de passer de l'état fondamental à l'état ionisé une fois. Dans ce calcul, seuls deux niveaux sont pris en compte pour l'ionisation par l'IR car le processus étant fortement non-linéaire, la probabilité de passer de l'état fondamental à l'état ionisé deux fois peut être considérée nulle (environ 28 photons à 800 nm). Ainsi la probabilité d'avoir un ion simplement chargé s'écrit :

$$P^+(t) = 1 - P(t) \Rightarrow N^+(t) \propto 1 - \exp\left(-\int_0^t \Gamma(x)dx\right). \quad (4.18)$$

Si l'on considère un délai  $\delta$  entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR (l'impulsion XUV précède l'impulsion IR pour des  $\delta$  négatifs) alors la probabilité d'avoir un ion simplement chargé s'écrit :

$$P^+(t + \delta) = 1 - \exp\left(-\int_\delta^{t+\delta} \Gamma(x)dx\right). \quad (4.19)$$

Et le taux permettant la seconde ionisation est proportionnel à l'intensité de l'XUV. La population d'ions doublement chargés suit donc la loi :

$$N^{2+}(\delta) \propto \int_{-\infty}^{\infty} P^+(t) I_{UVX}(t + \delta) dt. \quad (4.20)$$

On remarque ainsi que la population dans l'état ionisé deux fois est proportionnelle à la cross-corrélation entre l'évolution du taux d'ionisation IR et le profil temporel de l'impulsion XUV.

Le taux permettant le passage de l'état fondamental à l'état ionisé une fois est calculé à l'aide de la formule ADK à laquelle s'ajoute un terme correctif [Tong et Lin, 2005].

Ce terme correctif (voir équation 4.1) provient d'un ajustement permettant de se rapprocher des résultats obtenus par TDSE. La première étape est l'ionisation simple des atomes par le champ IR. La FIGURE 4.16a représente l'évolution du champ IR ainsi que l'évolution de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps. On remarque que la population d'ions ionisés une fois évolue par paliers. Lorsque le champ est assez important, on observe une marche d'ionisation dont la raideur dépend de l'amplitude du champ IR et lorsque le champ IR ne permet pas l'ionisation, la population reste constante. Afin de quantifier la raideur des marches, nous traçons la dérivée de la population d'ions en fonction du temps (voir FIGURE 4.16b). Cette dérivée nous permet d'obtenir le temps caractéristique de l'ionisation qui est la largeur à mi-hauteur de la dérivée. On note ce temps caractéristique  $\tau_{IR}$  qui est obtenu à l'aide d'un ajustement en considérant un profil Gaussien. Ce temps caractéristique de la durée d'ionisation IR est de l'ordre de la centaine d'attosecondes, ce qui fait de l'ionisation une sonde compatible pour la mesure d'impulsions attosecondes.

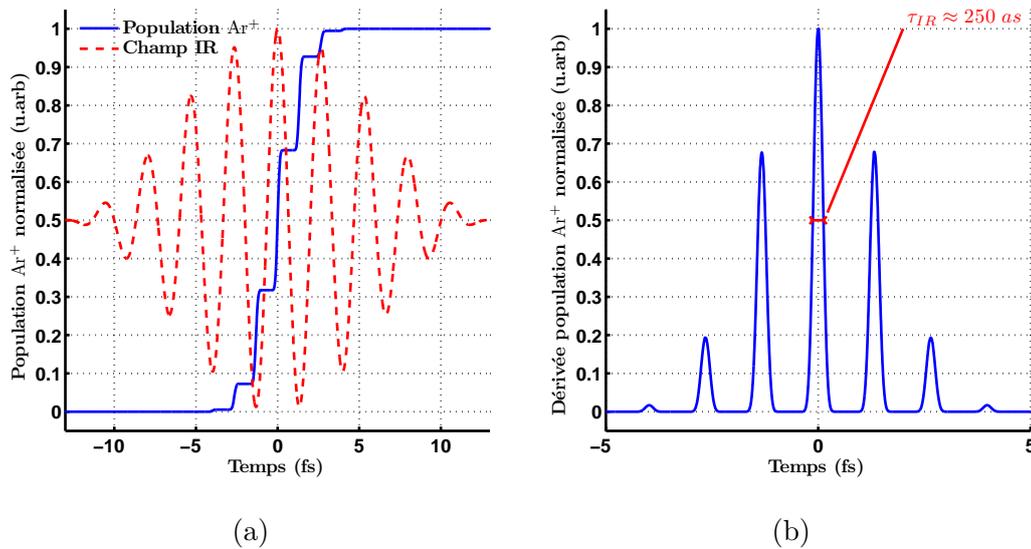


FIGURE 4.16 – (a) Évolution de la population d'ions ionisés une fois et du champ IR en fonction du temps pour une impulsion IR de durée 9,6 fs à mi-hauteur. (b) Évolution de la dérivée de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps.

Afin de déterminer la durée minimale de notre sonde, nous avons effectué différents calculs pour plusieurs gaz et pour plusieurs intensités IR. Cette étude est représentée sur la FIGURE 4.17. Il apparaît ainsi que pour améliorer la résolution, il faut diminuer l'intensité de l'IR ou augmenter le potentiel d'ionisation (en changeant de gaz). Dans les deux cas, ceci se fait au détriment du signal et donc du rapport signal sur bruit.

La seconde étape qui consiste en l'ionisation simple à un photon XUV des ions ionisés une fois permet de créer des ions doublement chargés. La FIGURE 4.18a représente l'évolution de la population d'Argon ionisée deux fois en fonction du délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR pour différentes durées d'impulsion XUV.

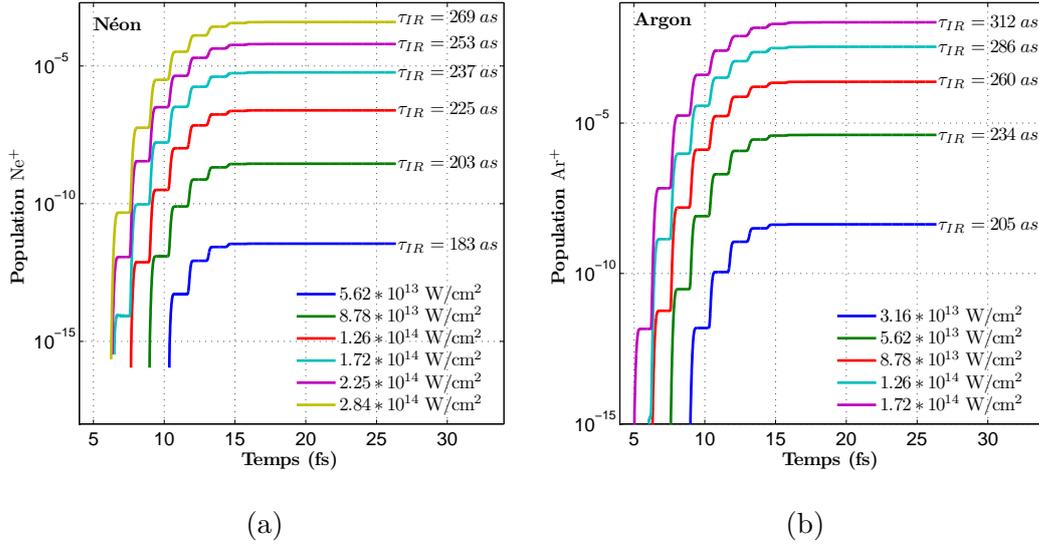


FIGURE 4.17 – Évolution de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps pour plusieurs intensités représenté en échelle logarithmique sur l'axe des ordonnées. (a) Dans le Néon. (b) Dans l'Argon.

Pour une durée d'impulsion XUV infiniment brève, la population d'ions ionisés deux fois suit la même évolution que la population d'ions simplement ionisés. Pour des impulsions attosecondes plus longues, l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  est différente de celle d' $\text{Ar}^+$ . On remarque que plus la durée de l'impulsion XUV est grande, plus la pente des marches diminue. La durée de l'impulsion XUV est donc inscrite dans la pente des marches d'ionisation. Afin de quantifier cette pente, on trace la dérivée de la population d'ions doublement ionisés qui est représentée sur la FIGURE 4.18b. Ce calcul nous permet d'extraire la largeur à mi-hauteur des pics pour chaque durée d'impulsion XUV. On obtient ainsi une durée  $\tau$  correspondant à cette largeur à mi-hauteur en considérant un profil Gaussien. Sur la FIGURE 4.18b, on remarque un décalage temporel des dérivées en fonction des durées d'impulsion XUV. Ce phénomène est dû au recouvrement entre l'impulsion IR et XUV qui intervient à des plus grands délais lorsque l'impulsion attoseconde est plus longue. La durée attoseconde intervient donc dans la largeur et dans le décalage de ces pics.

La durée  $\tau$  est ensuite tracée en fonction de la durée de l'impulsion XUV pour plusieurs intensités du champ IR. Cette durée est liée à la cross-corrélation entre l'évolution de la probabilité d'ionisation par l'IR et le profil temporel de l'impulsion XUV. On peut exprimer la durée  $\tau$  mesurée à la durée  $\tau_{IR}$  et  $\tau_{XUV}$  par une formule simple donnée à partir de la cross-corrélation entre deux Gaussiennes.

$$\tau = \sqrt{\tau_{IR}^2 + \tau_{XUV}^2}. \quad (4.21)$$

Afin de valider cette formule, nous avons tracé sur la FIGURE 4.19 l'évolution du carré de la largeur à mi-hauteur obtenue en fonction du carré de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion attoseconde considérée. On remarque une évolution linéaire de

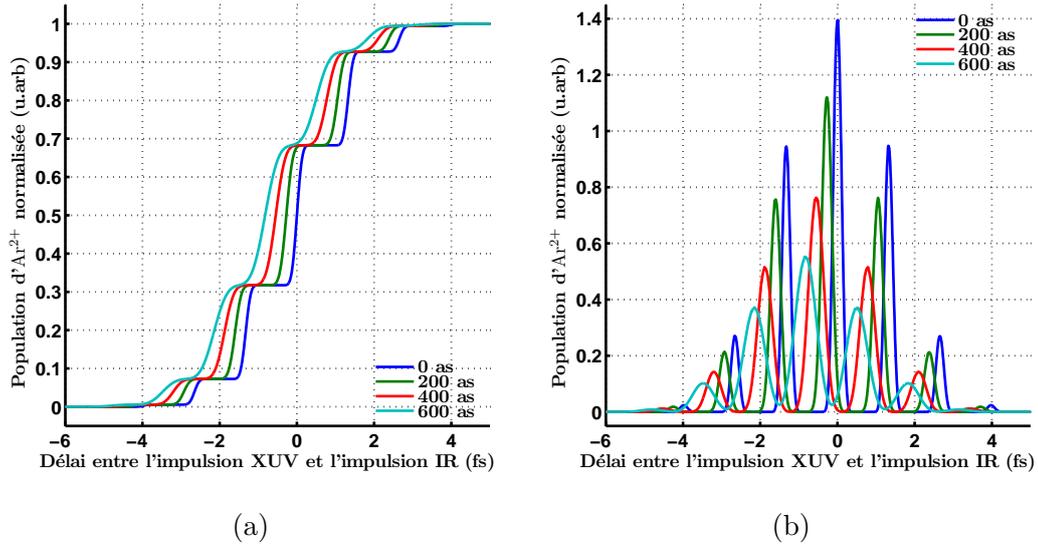
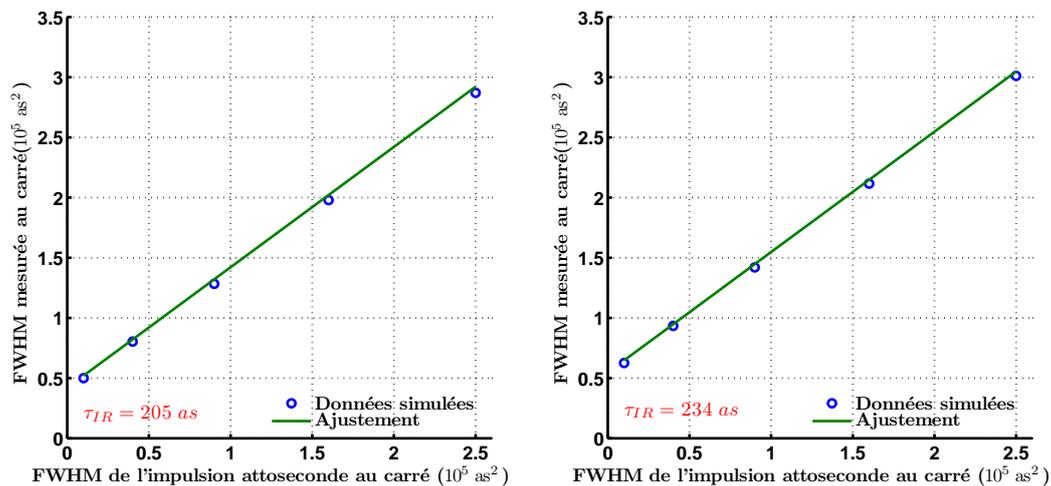


FIGURE 4.18 – (a) Évolution de la population d’ions ionisés deux fois en fonction du délai entre l’impulsion XUV et l’impulsion IR. (b) Évolution de la dérivée de la population d’ions ionisés deux fois en fonction du délai entre l’impulsion XUV et l’impulsion IR.

penne un qui valide notre modèle. De plus, sur cette figure nous pouvons aussi observer l’évolution de la résolution accessible en fonction de l’intensité IR.

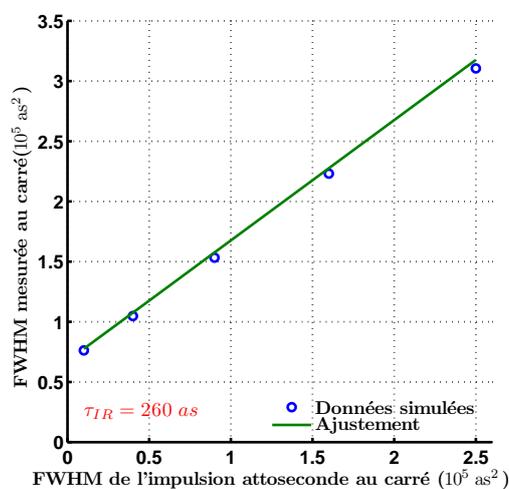
La résolution étant une fraction de la période optique du laser IR, une seconde étude a été réalisée en utilisant un faisceau pompe de 400 nm au lieu des 800 nm utilisés précédemment (à 800 nm, la résolution minimale est d’environ 200 as). Cette simulation nous permet d’étudier l’impact de la longueur d’onde sur la résolution minimale accessible. Les résultats de cette étude en intensité sont représentés sur la FIGURE 4.20. Sur cette figure, on observe que pour un même signal émis, il est possible d’accéder à de bien meilleures résolutions (environ un facteur deux) en utilisant une longueur d’onde de 400 nm. Ce résultat montre que l’impact de la réduction de la période optique (facteur 2 en passant de 800 nm à 400 nm) est plus importante que la réduction de la non-linéarité du processus d’ionisation (deux fois moins de photons nécessaires à 400 nm qu’à 800 nm).

La résolution accessible est alors de 150 as environ. Cette résolution est suffisante pour caractériser les impulsions attosecondes émises par génération d’harmoniques d’ordres élevés, et doit permettre de confirmer/infirmier des mesures réalisées par d’autres méthodes. La mise en œuvre expérimentale nécessite néanmoins des impulsions comportant peu de cycles optiques et à CEP contrôlée qui n’étaient pas disponibles à l’époque.



(a)

(b)



(c)

FIGURE 4.19 – Largeur de la dérivée de la population d'ions  $\text{Ar}^{2+}$  en fonction de la durée de l'impulsion XUV pour une intensité IR de (a)  $3,16 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , (b)  $5,62 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , (c)  $8,78 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .

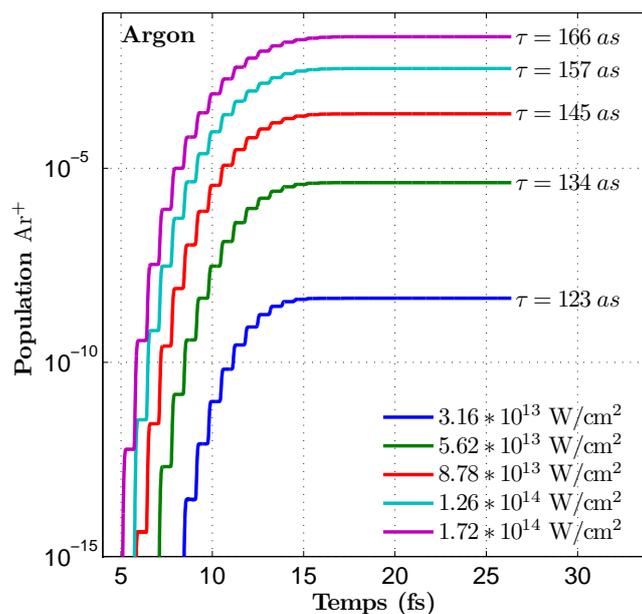


FIGURE 4.20 – Évolution de la population d'ions ionisés une fois en fonction du temps pour différentes intensités dans l'Argon pour une impulsion pompe de 400 nm.

#### 4.4.2 Conclusion sur le modèle simplifié

La réalisation de ce modèle simplifié nous a permis d'observer les marches d'ionisation et de déterminer une loi permettant de relier la durée de l'impulsion attoseconde considérée à la raideur de ces marches. De plus, cette étude nous a permis de montrer que la résolution minimale de cette méthode était liée à l'intensité IR utilisée dans cette expérience pompe-sonde et était comparable aux durées attosecondes mesurables. Des résolutions de 300 as à 800 nm avec l'Argon et 250 as à 800 nm avec le Néon sont accessibles par cette approche. Il est également possible d'améliorer cette résolution en diminuant la longueur d'onde du faisceau d'ionisation multi-photonique, et nos simulations montrent qu'une résolution de 150 as est alors accessible.

Une des limitations de ce modèle peut être la section efficace d'absorption du gaz utilisé. En effet, si elle varie rapidement avec la longueur d'onde XUV, il peut y avoir une sélection spectrale des photons XUV et cela peut réduire la largeur spectrale effective de l'impulsion XUV. En retour, cela doit allonger la durée de l'ionisation (mesure) par rapport à la durée de l'impulsion initiale (objet de la mesure).

## 4.5 Système à cinq niveaux : Étude paramétrique

### 4.5.1 Influence de l'intensité IR

Dans le modèle simple à trois niveaux, nous avons remarqué une augmentation de la résolution lorsque l'intensité du faisceau IR augmentait. Afin de valider cette

conclusion dans le système complet, la même étude a été réalisée à l'aide du modèle à 5 niveaux. Dans cette étude nous avons pris en compte une impulsion XUV isolée de 208 as contenant  $10^6$  photons et nous avons utilisé une impulsion IR de 25 fs pour plusieurs intensités IR. L'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour plusieurs intensités IR ainsi que sa dérivée sont représentées sur la FIGURE 4.21.

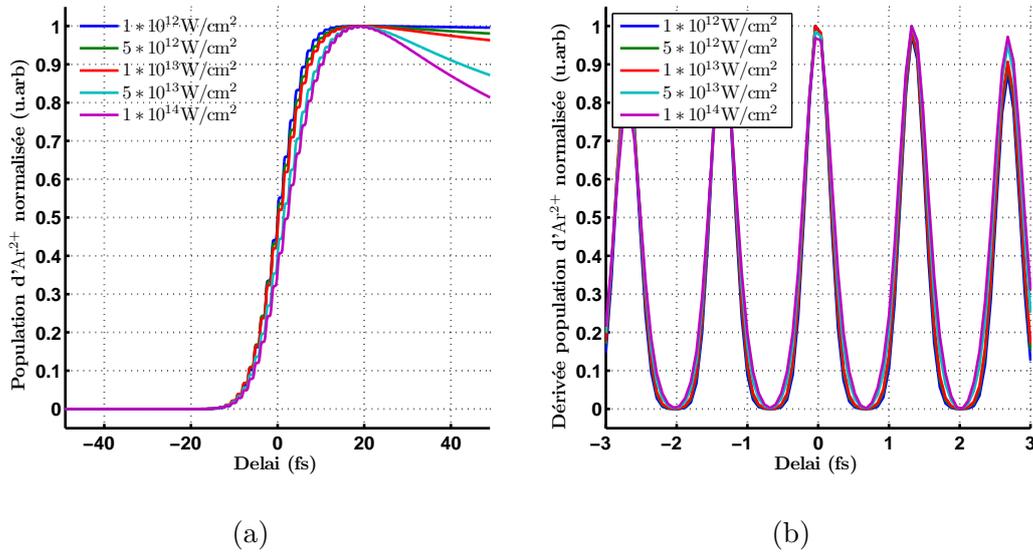


FIGURE 4.21 – (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  normalisée pour plusieurs intensités IR. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour plusieurs intensités IR. Dans ce calcul, l'impulsion IR est de durée 25 fs à mi-hauteur et l'impulsion XUV est de durée 208 as à mi-hauteur.

Sur la FIGURE 4.21a, on observe tout d'abord un changement de l'allure de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  lorsque l'intensité IR est augmentée. En effet dans ce modèle, deux chemins permettent d'accéder à l'état ionisé deux fois. Cependant un de ces chemins comporte une transition à un photon IR en plus de la transition multiphotonique entre l'Argon ionisé en couche interne et l'Argon ionisé deux fois. Il apparaît ainsi que l'augmentation de l'intensité IR permet d'obtenir proportionnellement plus d' $\text{Ar}^{2+}$  issu du chemin prenant en compte l'Argon excité.

En regardant en détail la dérivée de l'évolution d' $\text{Ar}^{2+}$  sur la FIGURE 4.21b, on remarque que le temps caractéristique de l'évolution des marches augmente lorsque l'intensité est augmentée. Nous pouvons donc en conclure que comme dans le modèle simplifié, l'augmentation de l'intensité du faisceau IR a pour effet d'augmenter la durée de l'ionisation IR. Il apparaît ainsi que dans ce modèle, la résolution minimale liée à l'IR est elle aussi affectée par l'intensité de l'IR et évolue dans le même sens que pour le modèle précédent. Sur la FIGURE 4.22 est représentée l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour différentes intensités IR sans normalisation. Il apparaît donc, comme dans l'étude précédente, que la diminution de l'intensité IR permet une amélioration de la résolution mais réduit également le signal.

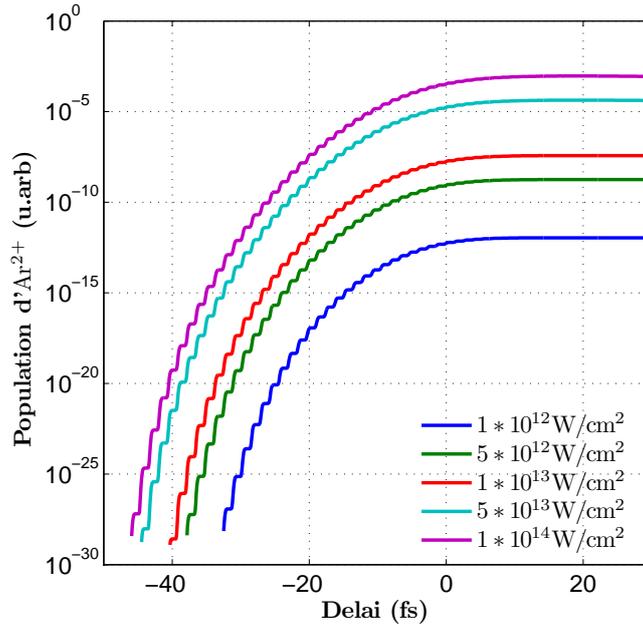


FIGURE 4.22 – Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  en fonction du délai pour différentes intensités IR. Dans ce calcul, l'impulsion IR est de durée 25 fs à mi-hauteur et l'impulsion XUV est de durée 208 as à mi-hauteur.

#### 4.5.2 Influence de la durée des impulsions XUV attosecondes

L'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  a été simulée pour plusieurs durées d'impulsion attoseconde isolée et est représentée sur la FIGURE 4.23. Dans cette étude l'impulsion IR utilisée est une impulsion de 25 fs et d'intensité pic  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>.

Comme on peut le voir sur la FIGURE 4.23a et la FIGURE 4.23b, l'augmentation de la durée de l'impulsion attoseconde entraîne bien une augmentation de la durée mesurée. Afin de vérifier si cette évolution suit bien la loi déterminée dans le modèle précédent, nous avons tracé le carré de la largeur à mi-hauteur mesurée en fonction du carré de la largeur à mi-hauteur de la durée de l'impulsion attoseconde. Cette évolution est représentée pour plusieurs intensités IR sur la FIGURE 4.24. Tout d'abord, cette étude nous montre bien un comportement correspondant à une fonction affine de pente un pour toutes les intensités étudiées. De plus, la pente reste la même quelle que soit l'intensité IR considérée. Il apparaît clairement une augmentation de la résolution (qui correspond à la racine carrée de l'ordonnée à l'origine de la droite) lorsque l'on augmente l'intensité IR. Les résolutions obtenues ici sont de 311 as pour une intensité de  $10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> et de 469 as pour une intensité de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> et ces valeurs sont un peu plus grandes que celles obtenues avec le modèle simplifié.

La FIGURE 4.24 nous montre que même en utilisant un modèle comportant plus de niveaux, il est possible de retrouver la loi simple déterminée lors du modèle simplifié et que l'ordre d'interaction des impulsions avec les systèmes ne change pas la loi de l'équation 4.21.

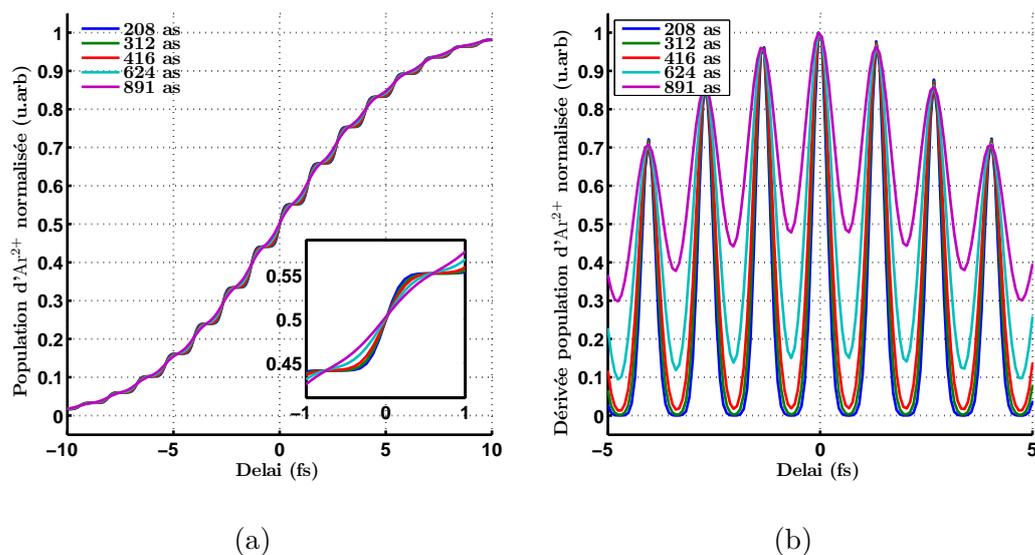


FIGURE 4.23 – (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour différentes durées d'impulsion attoseconde. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour plusieurs durées d'impulsion attoseconde.

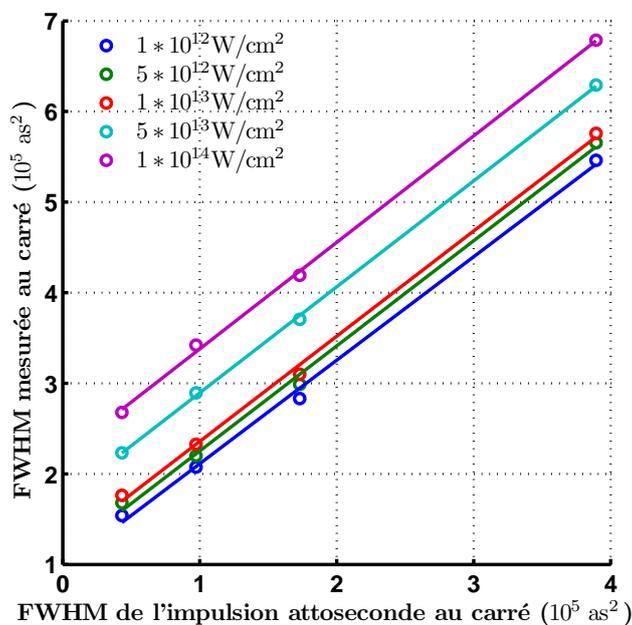


FIGURE 4.24 – Largeur à mi-hauteur au carré de la dérivée de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  en fonction du carré de la largeur à mi hauteur de l'impulsion XUV pour différentes intensités IR.

### 4.5.3 Influence du nombre de photons XUV

L'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  a été simulée pour plusieurs intensités XUV afin d'étudier l'influence du nombre de photons XUV sur la mesure. Lorsque l'on observe la FIGURE 4.25, il apparaît que pour  $10^4$  et  $10^5$  photons, les courbes sont confondues et le temps caractéristique mesuré à l'aide de la dérivée est de 557 as pour une impulsion incidente ayant une durée de 416 as à mi-hauteur. Dans le cas où la mesure est réalisée avec  $10^8$  photons, on remarque un écart très important, en effet le temps caractéristique lié à la dérivée est dans ce cas égal à 417 as.

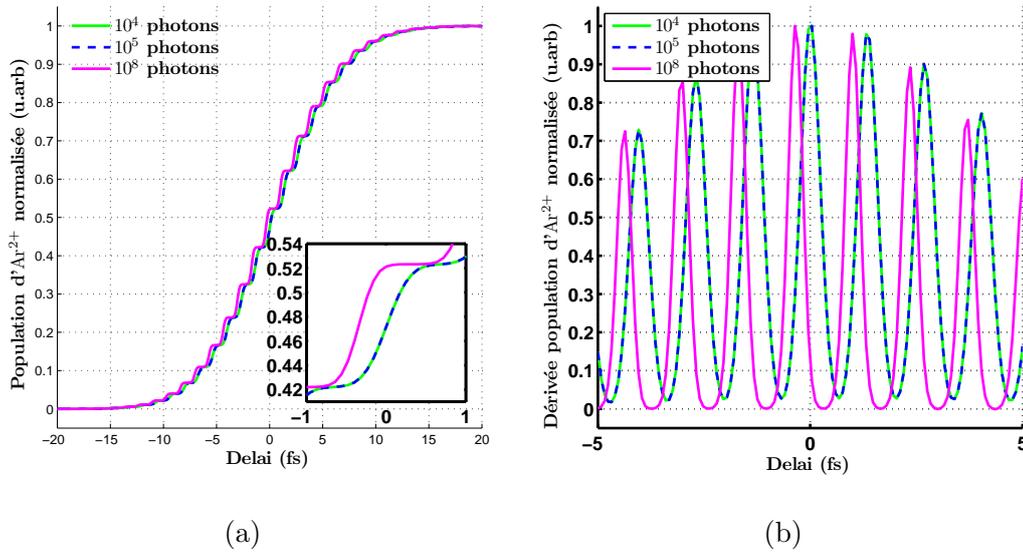


FIGURE 4.25 – (a) Évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour plusieurs nombres de photons XUV. (b) Dérivée de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour plusieurs nombres de photons XUV.

Cependant la résolution ne diminue pas lorsque l'intensité XUV augmente, cet effet est lié à la dépopulation totale d'un niveau, ici le niveau fondamental. L'interaction entre l'impulsion XUV et le système apparaît plus brève qu'elle ne l'est réellement car elle est stoppée quand le niveau est vidé. On peut donc conclure que le nombre de photons XUV n'a aucune influence sur la forme globale de l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  tant qu'il n'y a pas de dépeuplement de niveau. Dans ce cas, toutes les interactions impliquant l'XUV dans ce schéma ne sont qu'à un photon, donc linéaires et ainsi le seul impact que va avoir l'XUV sera d'augmenter le signal total tant que l'on ne dépeuple pas les niveaux.

### 4.5.4 Influence de la durée de l'impulsion IR

Dans cette étude nous calculons l'évolution de la population d' $\text{Ar}^{2+}$  pour plusieurs durées d'impulsion IR. Les résultats sont représentés sur la FIGURE 4.26. On remarque en regardant la FIGURE 4.26a que l'augmentation de la durée de l'impulsion IR a pour

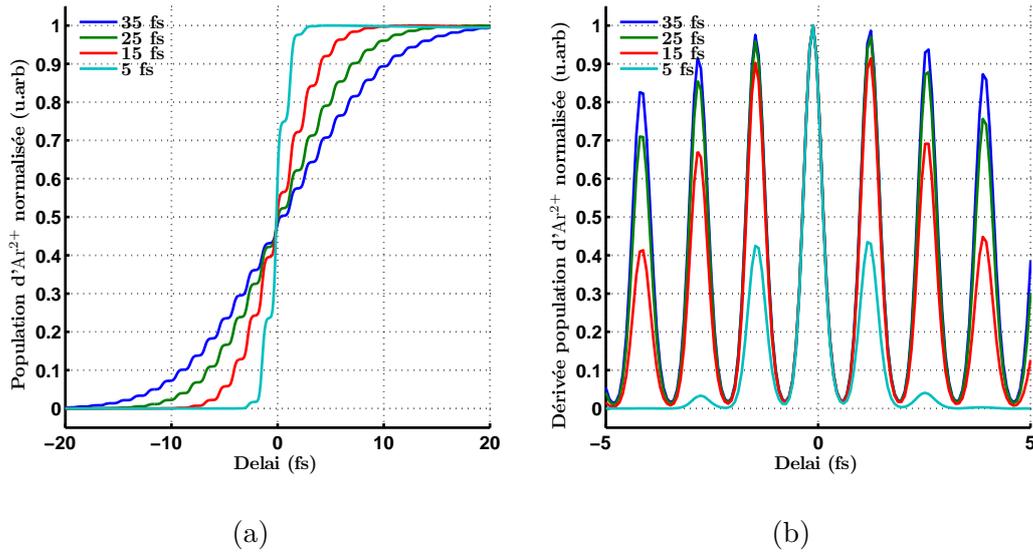


FIGURE 4.26 – (a) Évolution de la population d'Ar<sup>2+</sup> pour plusieurs durées d'impulsion IR. (b) Dérivée de l'évolution de la population d'Ar<sup>2+</sup> pour plusieurs durées d'impulsions IR.

effet de réduire la pente moyenne de la population d'Ar<sup>2+</sup>. On vérifie ainsi que plus la durée de l'impulsion IR est grande, plus la durée de cross-corrélation entre les deux impulsions est grande.

Sur la FIGURE 4.26 est représentée la dérivée de l'évolution de la population d'Ar<sup>2+</sup> par rapport au temps. Sur cette figure, on remarque que le temps caractéristique de montée des marches, qui est mesuré à l'aide de la largeur des pics, n'évolue pas en fonction de la durée de l'impulsion IR considérée. Le seul impact est une augmentation du nombre de marches lorsque la durée IR augmente. Cette augmentation est liée uniquement à l'augmentation de cycles optiques dans l'impulsion IR. On observe néanmoins que pour des impulsions IR très brèves (ici 5 fs), le nombre de pics mesurés (ici 3) est proche du nombre d'impulsions attosecondes à caractériser. L'utilisation d'impulsions IR très brèves permet ainsi de diminuer le nombre de marches observables sans pour autant affecter la mesure temporelle.

#### 4.5.5 Caractérisation d'un train d'impulsion attoseconde

Le but de cette section est d'étudier l'impact d'un train d'impulsion attoseconde sur l'évolution de la population d'Ar<sup>2+</sup> en fonction du délai IR/XUV. Pour ces simulations, nous avons utilisé une impulsion IR de durée 5 fs et d'intensité pic 10<sup>12</sup> W/cm<sup>2</sup>. Nous avons étudié trois profils temporels pour l'XUV, un train de neuf impulsions, un train de deux impulsions et une impulsion unique. Sur la FIGURE 4.27 sont représentés les profils temporels des impulsions utilisées ainsi que l'évolution de la population d'Ar<sup>2+</sup> pour ces trois profils temporels. On remarque tout d'abord une différence sur le nombre de marches entre l'impulsion isolée et le train d'impulsion. On observe ainsi une

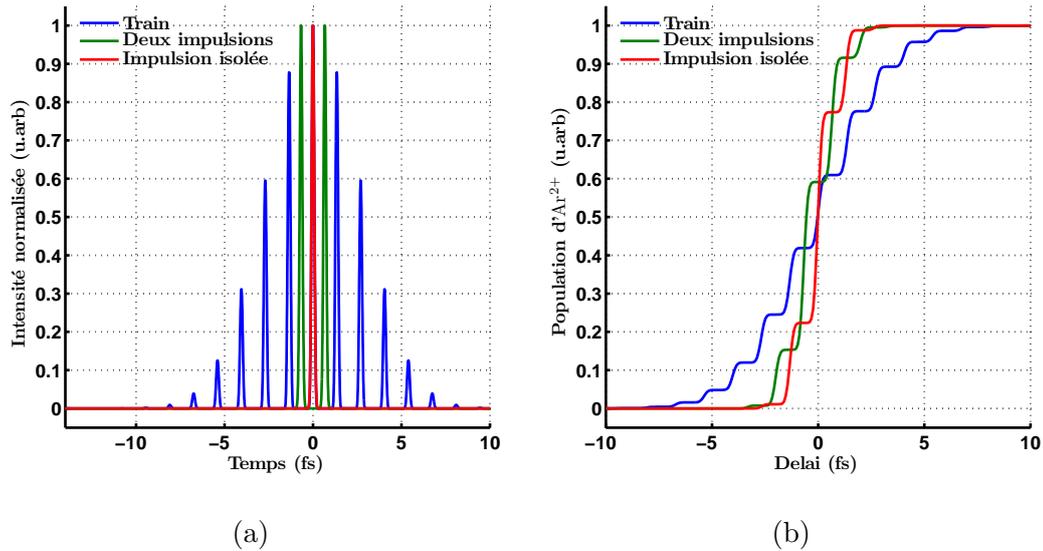


FIGURE 4.27 – (a) Profils temporels considérés pour une impulsion XUV isolée, pour deux impulsions XUV et pour un train d’impulsion XUV. (b) Évolution de la population d’ $\text{Ar}^{2+}$  pour une impulsion XUV isolée, pour deux impulsions XUV et pour un train d’impulsion XUV.

augmentation du nombre de marche lorsque la durée du train attoseconde augmente. Cette augmentation commence déjà à être visible lorsque l’on passe d’une impulsion isolée à un train comportant deux impulsions. La suite de cette étude consiste à vérifier que la loi déterminée dans les sections précédentes l’est encore pour un train d’impulsion au lieu d’une impulsion isolée. Les résultats de la simulation sont représentés sur la FIGURE 4.28 où l’on observe l’évolution de la largeur à mi-hauteur mesurée au carré en fonction de la durée de l’impulsion XUV au carré pour une impulsion isolée ou pour un train d’impulsion.

Sur la FIGURE 4.28 on remarque tout d’abord que dans les deux cas l’évolution est affine de pente un, même dans le cas d’un train d’impulsion attoseconde. On peut donc conclure qu’il n’y a pas d’influence de la présence d’un train d’impulsion sur la mesure de la durée des impulsions attosecondes (obtenue ici via la largeur de la dérivée de la population d’ions ionisés deux fois) même dans le cas présenté comportant un train long de neuf impulsions. Cependant la durée pourrait être sur-estimée si la séparation entre impulsion est différente de  $\frac{T_0}{2}$ . De plus, pour un train d’impulsion présentant des impulsions de durées différentes, la mesure représenterait une moyenne de ces durées. Cette méthode peut donc sur-estimer les durées d’impulsions et non les sous-estimer comme certaines mesures spectrales.

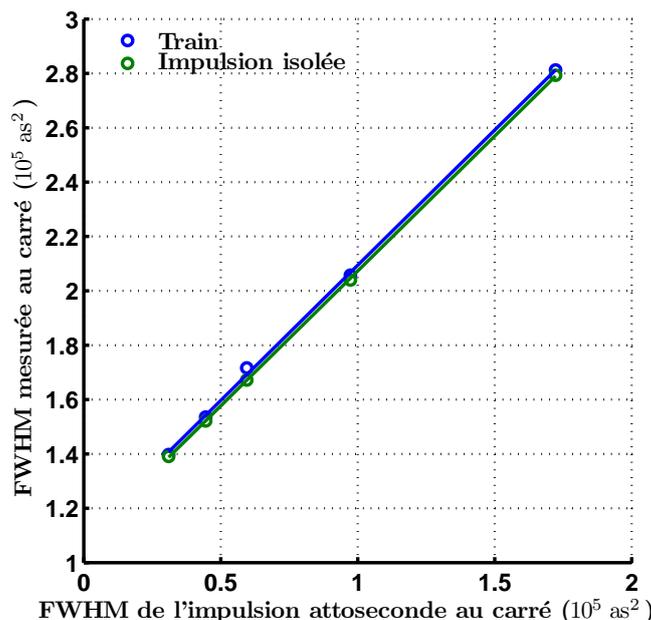


FIGURE 4.28 – Largeur à mi-hauteur au carré de la dérivée de la population d'Ar<sup>2+</sup> en fonction du carré de la largeur à mi-hauteur de l'impulsion XUV pour une impulsion isolée ou pour un train d'impulsion.

## 4.6 Conclusion et perspectives

Dans ce chapitre nous avons mis en avant une méthode permettant de mesurer des impulsions attosecondes dans le domaine temporel. Nous avons montré que cette méthode permettait de mesurer aussi bien des impulsions attosecondes isolées que des trains d'impulsion attoseconde en obtenant des résolutions minimales de l'ordre de 300 attosecondes (pour des impulsion IR à 800 nm). Nous avons vu que le choix du système utilisé (ici l'Argon) était très important car il permettait de modifier les transitions mises en jeu et pouvait affecter la résolution. De plus, nous avons vu que la résolution accessible était très sensible à l'intensité IR utilisée mais que l'amélioration de cette résolution accessible en baissant  $I$  s'effectuait au détriment du signal. Nous avons observé qu'il est possible d'améliorer la résolution en utilisant une longueur d'onde plus faible et que des résolutions de 170 as sont accessibles en utilisant un laser centré à 400 nm. De plus, cette méthode permet d'utiliser une mesure d'ions qui est plus simple à mettre en place qu'une mesure d'électrons. Pour finir, cette étude nous a montré que l'évolution étudiée est accessible expérimentalement et est en accord qualitatif avec les études théoriques.

Cependant pour pouvoir utiliser cette méthode pour la mesure d'impulsions attosecondes, il est nécessaire d'avoir des impulsions IR comportant peu de cycles optiques à CEP stabilisée. Il faut alors observer les marches d'ionisation et connaître parfaitement le profil temporel du faisceau IR utilisé. Il faut de plus connaître parfaitement la réponse du système utilisé vis à vis de l'ionisation. Dans ce cas précis, il est possible

d'ajuster les résultats expérimentaux en utilisant une table de paramètres.



# Conclusion générale

*« What if a man from the Upper Paleolithic had survived until the present day? »*

---

John Oldman

Dans ce travail nous avons présenté les différents progrès que nous avons réalisés sur la caractérisation et le contrôle des profils spatiaux, spectraux et temporels de faisceaux XUV obtenus par génération d'harmoniques d'ordres élevés dans des gaz.

Tout d'abord nous avons étudié les caractéristiques spatiales des faisceaux harmoniques générés dans des milieux gazeux. Nous avons montré que la position du milieu générateur par rapport au plan focal du faisceau IR influe fortement sur les caractéristiques spatiales de ces faisceaux. À l'aide d'un modèle, nous avons étudié la propagation de faisceaux XUV Gaussiens montrant que la cohérence spatiale des faisceaux à l'émission permet de définir les caractéristiques spatiales des faisceaux. Ce modèle montre qu'il est possible de contrôler la divergence des harmoniques générées en modifiant la position du milieu générateur par rapport au foyer. Ce modèle montre que les harmoniques sont rarement focalisées au niveau du foyer de l'IR et qu'il est possible de changer la distance de focalisation des harmoniques ainsi que la taille de leur foyer en modifiant la position du milieu générateur par rapport au foyer de l'IR. La partie expérimentale a été réalisée sur des harmoniques générées dans le Néon en observant les harmoniques émises correspondant au chemin court. Sur ces expériences, nous avons remarqué un bon accord qualitatif avec les simulations. Afin d'obtenir un accord plus quantitatif avec l'expérience, il faudrait agir plus précisément sur les valeurs du paramètre  $\alpha$  lors de la génération qui agit de manière importante sur la phase atomique de l'harmonique et sur les caractéristiques spatiales des faisceaux. Une étude a été menée sur la focalisation directe des harmoniques en utilisant une impulsion génératrice présentant une dérive de fréquence spatiale. Sur cette étude nous avons remarqué que la focalisation directe des harmoniques dépend tout d'abord de l'ordre harmonique mais aussi du paramètre  $\alpha$ . En effet, dans des conditions où le paramètre  $\alpha$  est trop important, il n'est pas possible de focaliser les harmoniques. De plus nous avons utilisé cette différence de distance de focalisation des harmoniques pour sélectionner spectralement une partie des harmoniques à l'aide d'un trou de filtrage. Ce contrôle de la focalisation

est basé sur des principes robustes qui ne sont pas dépendant du milieu générateur utilisé. De plus, il est important de noter que la différence de divergence des différents ordres harmoniques peut avoir une grande importance sur les évaluations de durées d'impulsions attosecondes.

Nous avons ensuite étudié le profil spatial de faisceaux XUV générés hors foyer par des faisceaux IR tronqués par un iris. Cette étude nous a montré que la modification importante du profil IR dans le milieu générateur avait un très fort impact sur le profil des harmoniques générées. Nous avons montré qu'il était possible de générer des harmoniques avec des profils annulaires et annulaires centrés dans des conditions où l'accord de phase n'avait pas ou peu d'effet. Les effets sur les profils spatiaux des harmoniques sont complexes et sont principalement dus à la position du milieu générateur par rapport au foyer ainsi qu'au diamètre de l'iris avant focalisation du laser générateur. Ces études ont montré que les structures sont dues aux propriétés spatiales du faisceau IR dans le milieu générateur et qu'il est possible de les utiliser pour générer des faisceaux harmoniques structurés de manière contrôlée.

Notons que les iris sont communément utilisés pour optimiser la génération d'harmoniques. Ils seront difficilement utilisables avec des faisceaux IR de forte énergie si la génération d'harmoniques a lieu loin du foyer et si l'on cherche à obtenir des faisceaux XUV Gaussiens.

Une étude sur le contrôle des profils spectraux des rayonnements XUV obtenus par génération d'harmoniques d'ordres élevés a ensuite été réalisée.

Dans un premier temps, une étude sur le contrôle fin de la longueur d'onde des harmoniques a été réalisée. Dans cette étude, un dispositif permettant de contrôler finement la longueur d'onde centrale du faisceau harmonique et la largeur spectrale des harmoniques a été présenté. Ce dispositif, compact, utilisant un jeu de cristaux biréfringents, permet de contrôler finement le délai entre deux répliques du faisceaux IR. Il est ainsi possible de générer une impulsion résiduelle dont la longueur d'onde centrale est contrôlable finement mais aussi de modifier le profil temporel de cette impulsion. De plus, la possibilité de ce dispositif de générer des impulsions de profil super-Gaussien longues permettrait de générer des harmoniques très fines spectralement. Le contrôle précis de la largeur spectrale d'une harmonique ainsi que de sa longueur d'onde est très intéressant pour les applications de métrologie, ou pour l'injection de FEL ou de laser X.

Dans un second temps, une étude sur le contrôle global du spectre harmonique a été réalisée. Dans cette étude nous avons utilisé les effets collectifs de la génération d'harmoniques en phase gaz afin de favoriser une harmonique spécifiquement ou un groupe d'harmoniques. Ce contrôle a été réalisé en modifiant le diamètre de l'iris de génération situé sur le trajet du faisceau ainsi que la pression dans le milieu générateur pour contrôler les effets collectifs comme l'accord de phase. Ces effets ont été réalisés

pour une longueur d'onde centrale de 1030 nm afin de limiter l'ionisation du milieu générateur.

Pour finir, nous avons présenté une nouvelle méthode de mesure permettant de mesurer des durées d'impulsions attosecondes dans le domaine temporel. Dans ce chapitre nous avons montré qu'il était possible avec cette méthode de mesurer des durées d'impulsions attosecondes ou des durées de train d'impulsion attoseconde avec des résolutions pouvant atteindre 300 as. Nous avons montré que cette méthode était très dépendante du système utilisé et que les transitions mises en jeu pouvaient modifier les résolutions accessibles. En retour, cette approche permet d'étudier des phénomènes physique ultra-rapides comme les couplages et transferts entre états ioniques. Nous avons montré qu'il est possible d'améliorer la résolution en diminuant l'intensité IR mais cet effet s'effectue au détriment du signal mesuré. Nous avons aussi montré qu'il est possible d'améliorer cette résolution en utilisant une longueur d'onde plus faible. Une longueur d'onde de 400 nm nous a permis d'atteindre des résolutions de 170 as. Nous avons enfin montré que l'évolution étudiée expérimentalement est en accord qualitatif avec les simulations. Cependant pour pouvoir utiliser cette méthode pour la mesure d'impulsions attosecondes isolées il est nécessaire d'observer les marches d'ionisation et de connaître parfaitement le profil temporel du faisceau IR de quelques cycles optiques utilisé. Il faut de plus, connaître parfaitement la réponse du système utilisé vis à vis de l'ionisation. Dans ce cas précis, il est possible d'ajuster les résultats expérimentaux en utilisant une table de paramètres.

Dans ce travail nous avons étudié la caractérisation et le contrôle des profils spatiaux, spectraux et temporels de faisceaux XUV. Ces études ont permis d'étudier en détail les conditions de génération afin de mieux comprendre l'origine des caractéristiques des faisceaux XUV générés. Il nous a été ainsi possible de développer des dispositifs permettant de contrôler et de mesurer les caractéristiques des faisceaux XUV émis. Ce travail permet donc aux utilisateurs de faisceaux XUV d'avoir des outils permettant de mieux contrôler les caractéristiques de ceux-ci.



# Bibliographie

- [Balcou *et al.*, 1997] BALCOU, P., SALI'ERES, P., L'HUILLIER, A. et LEWENSTEIN, M. (1997). Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Phys. Rev. A*, 55:3204–3210. [xv](#), [5](#), [86](#), [87](#)
- [Bates *et al.*, 1979] BATES, H. E., ALFANO, R. R. et SCHILLER, N. (1979). Picosecond pulse stacking in calcite. *Appl. Opt.*, 18(7):947–949. [73](#)
- [Bordas *et al.*, 1996] BORDAS, C., PAULIG, F., HELM, H. et HUESTIS, D. L. (1996). Photoelectron imaging spectrometry : Principle and inversion method. *Review of Scientific Instruments*, 67(6):2257–2268. [107](#)
- [Bourassin-Bouchet *et al.*, 2010] BOURASSIN-BOUCHET, C., de ROSSI, S., DELMOTTE, F. et CHAVEL, P. (2010). Spatiotemporal distortions of attosecond pulses. *J. Opt. Soc. Am. A*, 27(6):1395–1403. [104](#)
- [Bourassin-Bouchet *et al.*, 2011] BOURASSIN-BOUCHET, C., STEPHENS, M., de ROSSI, S., DELMOTTE, F. et CHAVEL, P. (2011). Duration of ultrashort pulses in the presence of spatio-temporal coupling. *Opt. Express*, 19(18):17357–17371. [104](#)
- [Brichta *et al.*, 2009] BRICHTA, J.-P., WONG, M. C. H., BERTRAND, J. B., BANDULET, H.-C., RAYNER, D. M. et BHARDWAJ, V. R. (2009). Comparison and real-time monitoring of high-order harmonic generation in different sources. *Phys. Rev. A*, 79:033404. [48](#), [97](#)
- [Brunetti *et al.*, 2008] BRUNETTI, E., ISSAC, R. et JAROSZYNSKI, D. A. (2008). Quantum path contribution to high-order harmonic spectra. *Phys. Rev. A*, 77:023422. [64](#)
- [Cabasse *et al.*, 2012] CABASSE, A., MACHINET, G., DUBROUIL, A., CORMIER, E. et CONSTANT, E. (2012). Optimization and phase matching of fiber-laser-driven high-order harmonic generation at high repetition rate. *Opt. Lett.*, 37(22):4618–4620. [95](#)
- [Cabasse, A. *et al.*, 2013] CABASSE, A., MACHINET, G., HAZERA, C., PETIT, S., CORMIER, E. et CONSTANT, E. (2013). Optimized xuv source at 100 khz repetition rate. *EPJ Web of Conferences*, 41:01015. [87](#), [106](#)
- [Canova *et al.*, 2007] CANOVA, F., CANOVA, L., CHAMBARET, J.-P., LEVECQ, X., LAVERGNE, E., DOVILLAIRE, G. et PLANCHON, T. (2007). Wavefront correction and aberrations pre-compensation in the middle of petawatt-class cpa laser chains. *In Conference on Lasers and Electro-Optics/Quantum Electronics and Laser Science*

- Conference and Photonic Applications Systems Technologies*, page JThD125. Optical Society of America. [13](#)
- [Carlström *et al.*, 2016] CARLSTRÖM, S., PRECLÍKOVÁ, J., LOREK, E., LARSEN, E. W., HEYL, C. M., PALEČEK, D., ZIGMANTAS, D., SCHAFER, K. J., GAARDE, M. B. et MAURITSSON, J. (2016). Spatially and spectrally resolved quantum path interference with chirped driving pulses. *New Journal of Physics*, 18(12):123032. [10](#), [33](#)
- [Catoire *et al.*, 2014] CATOIRE, QUINTARD, LUDOVIC, HORT, ONDREJ, DUBROUIL, ANTOINE et CONSTANT, ERIC (2014). Les sources attosecondes. *Photoniques*, (70):28–33. [ix](#), [3](#)
- [Catoire *et al.*, 2016] CATOIRE, F., FERRÉ, A., HORT, O., DUBROUIL, A., QUINTARD, L., DESCAMPS, D., PETIT, S., BURGY, F., MÉVEL, E., MAIRESSE, Y. et CONSTANT, E. (2016). Complex structure of spatially resolved high-order-harmonic spectra. *Phys. Rev. A*, 94:063401. [33](#)
- [Chini *et al.*, 2010] CHINI, M., GILBERTSON, S., KHAN, S. D. et CHANG, Z. (2010). Characterizing ultrabroadband attosecond lasers. *Opt. Express*, 18(12):13006–13016. [103](#)
- [Constant *et al.*, 1999] CONSTANT, E., GARZELLA, D., BREGER, P., MÉVEL, E., DORRER, C., LE BLANC, C., SALIN, F. et AGOSTINI, P. (1999). Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : Model and experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 82:1668–1671. [5](#), [94](#), [97](#), [117](#)
- [Constant *et al.*, 1997] CONSTANT, E., TARANUKHIN, V. D., STOLOW, A. et CORKUM, P. B. (1997). Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses. *Phys. Rev. A*, 56:3870–3878. [5](#), [103](#)
- [Corkum, 1993] CORKUM, P. B. (1993). Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71:1994–1997. [3](#), [91](#)
- [Corney, 1977] CORNEY, A. (1977). *Atomic and Laser Spectroscopy*. Oxford University Press. [117](#)
- [Corsi *et al.*, 2006] CORSI, C., PIRRI, A., SALI, E., TORTORA, A. et BELLINI, M. (2006). Direct interferometric measurement of the atomic dipole phase in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 97:023901. [33](#)
- [Driever *et al.*, 2014] DRIEVER, S., HOLZNER, K. B., DELAGNES, J.-C., FEDOROV, N., ARNOLD, M., BIGOURD, D., BURGY, F., DESCAMPS, D., CORMIER, E., GUICHARD, R., CONSTANT, E. et ZAÏR, A. (2014). Near infrared few-cycle pulses for high harmonic generation. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 47(20):204013. [106](#)
- [Falcone et Bokor, 1983] FALCONE, R. W. et BOKOR, J. (1983). Dichroic beam splitter for extreme-ultraviolet and visible radiation. *Opt. Lett.*, 8(1):21–23. [46](#), [89](#)

- [Ferry *et al.*, 1988] FERRY, M., L'HUILLIER, A., LI, X. F., LOMPRES, L. A., MAINFRAY, G. et MANUS, C. (1988). Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3):L31. [2](#)
- [Fork *et al.*, 1981] FORK, R. L., GREENE, B. I. et SHANK, C. V. (1981). Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Applied Physics Letters*, 38(9):671–672. [1](#)
- [Frank *et al.*, 2012] FRANK, F., ARRELL, C., WITTING, T., OKELL, W. A., MCKENNA, J., ROBINSON, J. S., HAWORTH, C. A., AUSTIN, D., TENG, H., WALMSLEY, I. A., MARANGOS, J. P. et TISCH, J. W. G. (2012). Invited review article : Technology for attosecond science. *Review of Scientific Instruments*, 83(7). [106](#)
- [Frumker *et al.*, 2012] FRUMKER, E., PAULUS, G. G., NIKURA, H., NAUMOV, A., VILLENEUVE, D. M. et CORKUM, P. B. (2012). Order-dependent structure of high harmonic wavefronts. *Opt. Express*, 20(13):13870–13877. [11](#)
- [Frumker *et al.*, 2009] FRUMKER, E., PAULUS, G. G., NIKURA, H., VILLENEUVE, D. M. et CORKUM, P. B. (2009). Frequency-resolved high-harmonic wavefront characterization. *Opt. Lett.*, 34(19):3026–3028. [30](#)
- [Gaarde et Schafer, 2002] GAARDE, M. B. et SCHAFFER, K. J. (2002). Quantum path distributions for high-order harmonics in rare gas atoms. *Phys. Rev. A*, 65:031406. [10](#), [33](#)
- [Gaarde et Schafer, 2006] GAARDE, M. B. et SCHAFFER, K. J. (2006). Generating single attosecond pulses via spatial filtering. *Opt. Lett.*, 31(21):3188–3190. [55](#)
- [Hädrich *et al.*, 2011] HÄDRICH, S., KREBS, M., ROTHHARDT, J., CARSTENS, H., DEMMLER, S., LIMPET, J. et TÜNNERMANN, A. (2011). Generation of  $\mu$ w level plateau harmonics at high repetition rate. *Opt. Express*, 19(20):19374–19383. [95](#)
- [Hazera, 2014] HAZERA, C. (2014). *NOPCPA ultracourt pompé par CPA fibré haute cadence*. Thèse de doctorat. Thèse de doctorat dirigée par Constant, Eric et Petit, Stéphane Lasers, matière et nanosciences Bordeaux 2014. [88](#)
- [He *et al.*, 2015] HE, L., LAN, P., ZHANG, Q., ZHAI, C., WANG, F., SHI, W. et LU, P. (2015). Spectrally resolved spatiotemporal features of quantum paths in high-order-harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 92:043403. [64](#)
- [He *et al.*, 2009] HE, X., MIRANDA, M., SCHWENKE, J., GUILBAUD, O., RUCHON, T., HEYL, C., GEORGADIOU, E., RAKOWSKI, R., PERSSON, A., GAARDE, M. B. et L'HUILLIER, A. (2009). Spatial and spectral properties of the high-order harmonic emission in argon for seeding applications. *Phys. Rev. A*, 79:063829. [33](#), [73](#)
- [Hentschel *et al.*, 2001] HENTSCHEL, M., KIENBERGER, R., SPIELMANN, C., REIDER, G. A., MILOSEVIC, N., BRABEC, T., CORKUM, P., HEINZMANN, U., DRESCHER, M. et KRAUSZ, F. (2001). Attosecond metrology. *Nature*, 414(6863):509–513. [5](#)

- [Hercher, 1964] HERCHER, M. (1964). Laser-induced damage in transparent media. *Journal of the Optical Society of America*, 54:563+. [1](#)
- [Heyl *et al.*, 2017] HEYL, C. M., ARNOLD, C. L., COUAIRON, A. et L'HUILLIER, A. (2017). Introduction to macroscopic power scaling principles for high-order harmonic generation. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 50(1):013001. [48](#)
- [Heyl *et al.*, 2012] HEYL, C. M., GÜDDE, J., L'HUILLIER, A. et HÖFER, U. (2012). High-order harmonic generation with  $\mu\text{j}$  laser pulses at high repetition rates. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(7):074020. [93](#), [94](#), [95](#)
- [Higuet, 2010] HIGUET, J. (2010). *Etudes structurelles et dynamiques de systèmes atomiques ou moléculaires par génération d'harmoniques d'ordre élevé*. Thèse de doctorat. Thèse de doctorat dirigée par Mevel, Eric Laser, matière et nanoscience Bordeaux 1 2010. [ix](#), [4](#)
- [Jiang *et al.*, 2014] JIANG, J., WEI, P., ZENG, Z., MIAO, J., ZHENG, Y., GE, X., LI, C., LI, R. et XU, Z. (2014). Spatially and spectrally resolved quantum-path tracing in high-order harmonic generation. *Opt. Express*, 22(13):15975–15981. [64](#)
- [Jones *et al.*, 2005] JONES, R. J., MOLL, K. D., THORPE, M. J. et YE, J. (2005). Phase-coherent frequency combs in the vacuum ultraviolet via high-harmonic generation inside a femtosecond enhancement cavity. *Phys. Rev. Lett.*, 94:193201. [73](#)
- [Kane et Trebino, 1993] KANE, D. J. et TREBINO, R. (1993). Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 29(2):571–579. [103](#)
- [Kazamias *et al.*, 2011] KAZAMIAS, S., DABOUSSI, S., GUILBAUD, O., CASSOU, K., ROS, D., CROS, B. et MAYNARD, G. (2011). Pressure-induced phase matching in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 83:063405. [94](#)
- [Kazamias *et al.*, 2003] KAZAMIAS, S., DOUILLET, D., WEIHE, F., VALENTIN, C., ROUSSE, A., SEBBAN, S., GRILLON, G., AUGÉ, F., HULIN, D. et BALCOU, P. (2003). Global optimization of high harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.*, 90:193901. [5](#), [95](#)
- [Kazamias, S. *et al.*, 2002] KAZAMIAS, S., WEIHE, F., DOUILLET, D., VALENTIN, C., PLANCHON, T., SEBBAN, S., GRILLON, G., AUGÉ, F., HULIN, D. et BALCOU, PH. (2002). High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam. *Eur. Phys. J. D*, 21(3):353–359. [52](#)
- [Kruse *et al.*, 2010] KRUSE, J. E., TZALLAS, P., SKANTZAKIS, E., KALPOUZOS, C., TSAKIRIS, G. D. et CHARALAMBIDIS, D. (2010). Inconsistencies between two attosecond pulse metrology methods : A comparative study. *Phys. Rev. A*, 82:021402. [5](#), [104](#)
- [Lambert *et al.*, 2008] LAMBERT, G., HARA, T., GARZELLA, D., TANIKAWA, T., LABAT, M., CARRE, B., KITAMURA, H., SHINTAKE, T., BOUGEARD, M., INOUE, S., TANAKA, Y., SALIERES, P., MERDJI, H., CHUBAR, O., GOBERT, O., TAHARA, K. et

- COUPRIE, M.-E. (2008). Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light. *Nat Phys*, 4(4):296–300. [73](#)
- [Lefaudeux *et al.*, 2012] LEFAUDEUX, N., LEVECQ, X., DOVILLAIRE, G., THEIS, S. et ESCOLANO, L. (2012). New deformable mirror technology and associated control strategies for ultrahigh intensity laser beam corrections and optimizations. [13](#)
- [Lewenstein *et al.*, 1994] LEWENSTEIN, M., BALCOU, P., IVANOV, M. Y., L’HUILIER, A. et CORKUM, P. B. (1994). Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49:2117–2132. [91](#)
- [Lloyd *et al.*, 2013] LLOYD, D. T., O’KEEFFE, K. et HOOKER, S. M. (2013). Complete spatial characterization of an optical wavefront using a variable-separation pinhole pair. *Opt. Lett.*, 38(7):1173–1175. [30](#)
- [Loch *et al.*, 2011] 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. et MAIRESSE, Y. (2011). Phase characterization of the reflection on an extreme uv multilayer : comparison between attosecond metrology and standing wave measurements. *Opt. Lett.*, 36(17):3386–3388. [89](#)
- [Locher *et al.*, 2014] LOCHER, R., LUCCHINI, M., HERRMANN, J., SABBAR, M., WEGGER, M., LUDWIG, A., CASTIGLIONI, L., GREIF, M., HENGESBERGER, M., GALLMANN, L. et KELLER, U. (2014). Versatile attosecond beamline in a two-foci configuration for simultaneous time-resolved measurements. *Review of Scientific Instruments*, 85(1). [106](#)
- [Loriot *et al.*, 2015] LORIOT, V., MARCINIAK, A., QUINTARD, L., DESPRÉ, V., SCHINDLER, B., COMPAGNON, I., CONCINA, B., CELEP, G., BORDAS, C., CATOIRE, F., CONSTANT, E. et LÉPINE, F. (2015). Resolving xuv induced femtosecond and attosecond dynamics in polyatomic molecules with a compact attosecond beamline. *Journal of Physics : Conference Series*, 635(1):012006. [107](#)
- [Lucchini *et al.*, 2015] LUCCHINI, M., BRÜGMANN, M., LUDWIG, A., GALLMANN, L., KELLER, U. et FEURER, T. (2015). Ptychographic reconstruction of attosecond pulses. *Opt. Express*, 23(23):29502–29513. [103](#)
- [Madden *et al.*, 1969] MADDEN, R. P., EDERER, D. L. et CODLING, K. (1969). Resonances in the photo-ionization continuum of ar i (20-150 ev). *Phys. Rev.*, 177:136–151. [113](#), [114](#)
- [Maiman, 1960] MAIMAN, T. H. (1960). Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736):493–494. [1](#)
- [Mairesse et Quéré, 2005] MAIRESSE, Y. et QUÉRÉ, F. (2005). Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys. Rev. A*, 71: 011401. [5](#), [103](#)

- [Marburger, 1975] MARBURGER, J. (1975). Self-focusing : Theory. *Progress in Quantum Electronics*, 4:35 – 110. [1](#)
- [Mével *et al.*, 2000] MÉVEL, E., CONSTANT, E., GARZELLA, D., BREGER, P., DORRER, C., BLANC, C. L., SALIN, F. et AGOSTINI, P. (2000). Optimizing high order harmonic generation in absorbing gases. *AIP Conference Proceedings*, 525(1):373–384. [5](#), [94](#)
- [McPherson *et al.*, 1987] MCPHERSON, A., GIBSON, G., JARA, H., JOHANN, U., LUK, T. S., MCINTYRE, I. A., BOYER, K. et RHODES, C. K. (1987). Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(4):595–601. [2](#)
- [Nillon *et al.*, 2009] NILLO, J., MONTANT, S., BOULLET, J., DESMARCHELIER, R., ZAOUTER, Y., CORMIER, E. et PETIT, S. (2009). 15fs-1  $\mu$ j-100khz by direct seeding of a nopa and its fiber pump by a cep-stabilized oscillator. In *CLEO/Europe - EQEC 2009 - European Conference on Lasers and Electro-Optics and the European Quantum Electronics Conference*, pages 1–1. [87](#)
- [Paul *et al.*, 2001] PAUL, P. M., TOMA, E. S., BREGER, P., MULLOT, G., AUGÉ, F., BALCOU, P., MULLER, H. G. et AGOSTINI, P. (2001). Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(5522):1689–1692. [5](#), [103](#)
- [Peatross et Meyerhofer, 1995] PEATROSS, J. et MEYERHOFER, D. D. (1995). Intensity-dependent atomic-phase effects in high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 52:3976–3987. [65](#)
- [Popmintchev *et al.*, 2008] POPMINTCHEV, T., CHEN, M.-C., COHEN, O., GRISHAM, M. E., ROCCA, J. J., MURNANE, M. M. et KAPTEYN, H. C. (2008). Extended phase matching of high harmonics driven by mid-infrared light. *Opt. Lett.*, 33(18):2128–2130. [97](#)
- [Radzewicz *et al.*, 1996] RADZEWICZ, C., la GRONE, M. J. et KRASINSKI, J. S. (1996). Passive pulse shaping of femtosecond pulses using birefringent dispersive media. *Applied Physics Letters*, 69(2):272–274. [73](#)
- [Ranitovic *et al.*, 2011] RANITOVIC, P., TONG, X. M., HOGLE, C. W., ZHOU, X., LIU, Y., TOSHIMA, N., MURNANE, M. M. et KAPTEYN, H. C. (2011). Laser-enabled auger decay in rare-gas atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 106:053002. [114](#)
- [Roos *et al.*, 1999] ROOS, L., CONSTANT, E., MÉVEL, E., BALCOU, P., DESCAMPS, D., GAARDE, M. B., VALETTE, A., HAROUTUNIAN, R. et L’HULLIER, A. (1999). Controlling phase matching of high-order harmonic generation by manipulating the fundamental field. *Phys. Rev. A*, 60:5010–5018. [65](#)
- [Rothhardt *et al.*, 2014] ROTHHARDT, J., KREBS, M., HÄDRICH, S., DEMMLER, S., LIMPET, J. et TÜNNERMANN, A. (2014). Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime. *New Journal of Physics*, 16(3):033022. [95](#)

- [Rudawski *et al.*, 2013] RUDAWSKI, P., HEYL, C. M., BRIZUELA, F., SCHWENKE, J., PERSSON, A., MANSTEN, E., RAKOWSKI, R., RADING, L., CAMPI, F., KIM, B., JOHNSON, P. et L'HUILLIER, A. (2013). A high-flux high-order harmonic source. *Review of Scientific Instruments*, 84(7):073103. [48](#)
- [Rundquist *et al.*, 1998] RUNDQUIST, A., DURFEE, C. G., CHANG, Z., HERNE, C., BACKUS, S., MURNANE, M. M. et KAPTEYN, H. C. (1998). Phase-matched generation of coherent soft x-rays. *Science*, 280(5368):1412–1415. [5](#), [94](#), [97](#)
- [Salières *et al.*, 1995] SALIÈRES, P., L'HUILLIER, A. et LEWENSTEIN, M. (1995). Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 74:3776–3779. [10](#), [35](#)
- [Schafer *et al.*, 1993] SCHAFFER, K. J., YANG, B., DIMAURO, L. F. et KULANDER, K. C. (1993). Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 70:1599–1602. [3](#)
- [Shimizu, 1967] SHIMIZU, F. (1967). Frequency broadening in liquids by a short light pulse. *Phys. Rev. Lett.*, 19:1097–1100. [1](#)
- [Steingrube *et al.*, 2009] STEINGRUBE, D. S., VOCKERODT, T., SCHULZ, E., MORGNER, U. et KovačEV, M. (2009). Phase matching of high-order harmonics in a semi-infinite gas cell. *Phys. Rev. A*, 80:043819. [95](#)
- [Strickland et Mourou, 1985] STRICKLAND, D. et MOUROU, G. (1985). Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3):219 – 221. [2](#)
- [Sutherland *et al.*, 2004] SUTHERLAND, J. R., CHRISTENSEN, E. L., POWERS, N. D., RHYNARD, S. E., PAINTER, J. C. et PEATROSS, J. (2004). High harmonic generation in a semi-infinite gas cell. *Opt. Express*, 12(19):4430–4436. [97](#)
- [Takahashi *et al.*, 2013] TAKAHASHI, E. J., LAN, P., MÜCKE, O. D., NABEKAWA, Y. et MIDORIKAWA, K. (2013). Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses. *Nature Communications*, 4:2691–. [5](#), [9](#), [103](#), [104](#)
- [Tamaki *et al.*, 2000] TAMAKI, Y., ITATANI, J., OBARA, M. et MIDORIKAWA, K. (2000). Optimization of conversion efficiency and spatial quality of high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 62:063802. [64](#)
- [Tong et Lin, 2005] TONG, X. M. et LIN, C. D. (2005). Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 38(15):2593. [104](#), [120](#)
- [Tzallas *et al.*, 2005] TZALLAS, P., CHARALAMBIDIS, D., PAPADOGIANNIS, N. A., WITTE, K. et TSAKIRIS, G. D. (2005). Second-order autocorrelation measurements of attosecond xuv pulse trains. *Journal of Modern Optics*, 52(2-3):321–338. [5](#), [104](#)
- [Uiberacker *et al.*, 2007] UIBERACKER, M., UPHUES, T., SCHULTZE, M., VERHOEF, A. J., YAKOVLEV, V., KLING, M. F., RAUSCHENBERGER, J., KABACHNIK, N. M., SCHRODER, H., LEZIUS, M., KOMPA, K. L., MULLER, H.-G., VRACKING, M. J. J., HENDEL, S., KLEINEBERG, U., HEINZMANN, U., DRESCHER, M. et KRAUSZ, F.

- 
- (2007). Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature*, 446(7136):627–632. [105](#)
- [Varjú *et al.*, 2005] VARJÚ, K., MAIRESSE, Y., CARRÉ, B., GAARDE, M. B., JOHNSON, P., KAZAMIAS, S., LÓPEZ-MARTENS, R., MAURITSSON, J., SCHAFER, K. J., BALCOU, P., L’HULLIER, A. et SALIÈRES, P. (2005). Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses. *Journal of Modern Optics*, 52(2-3):379–394. [5](#), [10](#)
- [Vincenti et Quéré, 2012] VINCENTI, H. et QUÉRÉ, F. (2012). Attosecond lighthouses : How to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 108:113904. [35](#)
- [Wang *et al.*, 2015] WANG, F., HE, L., ZHAI, C., SHI, W., ZHANG, Q., LAN, P. et LU, P. (2015). Time-dependent phase matching of high-order-harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 92:063839. [64](#)
- [Wernet *et al.*, 2011] WERNET, P., GAUDIN, J., GODEHUSEN, K., SCHWARZKOPF, O. et EBERHARDT, W. (2011). Femtosecond time-resolved photoelectron spectroscopy with a vacuum-ultraviolet photon source based on laser high-order harmonic generation. *Review of Scientific Instruments*, 82(6). [106](#)
- [Winterfeldt *et al.*, 2008] WINTERFELDT, C., SPIELMANN, C. et GERBER, G. (2008). Colloquium. *Rev. Mod. Phys.*, 80:117–140. [96](#)
- [Yeh et Lindau, 1985] YEH, J. et LINDAU, I. (1985). Atomic subshell photoionization cross sections and asymmetry parameters :  $1 \leq z \leq 103$ . *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 32(1):1 – 155. [116](#)
- [Zhao *et al.*, 2012] ZHAO, K., ZHANG, Q., CHINI, M., WU, Y., WANG, X. et CHANG, Z. (2012). Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. *Opt. Lett.*, 37(18):3891–3893. [104](#)