



**HAL**  
open science

# Génération d'harmoniques d'ordre élevé à deux faisceaux portant du moment angulaire

Céline Chappuis

► **To cite this version:**

Céline Chappuis. Génération d'harmoniques d'ordre élevé à deux faisceaux portant du moment angulaire. Optique [physics.optics]. Université Paris Saclay (COMUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLS022 . tel-02292788

**HAL Id: tel-02292788**

**<https://theses.hal.science/tel-02292788>**

Submitted on 20 Sep 2019

**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.

# Génération d'harmoniques d'ordre élevé à deux faisceaux portant du moment angulaire

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay  
préparée à l'Université Paris-Sud

Ecole doctorale n°572 Ondes et Matière (EDOM)  
Spécialité de doctorat : lasers, molécules, rayonnement atmosphérique

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 25 janvier 2019, par

**MME CÉLINE CHAPPUIS**

## Composition du Jury :

M. Stéphane Sebban Directeur de recherche, CNRS, ENSTA, École Polytechnique, LOA	Président
M. Jérémie Caillat Maitre de conférences, CNRS, Sorbonne Université (LCPMR)	Rapporteur
M. Denis Penninckx Directeur de recherche, CEA (CESTA)	Rapporteur
M. Franck Lépine Chargé de recherche, CNRS, Université Lyon I (ILM)	Examinateur
Mme Laurence Pruvost Directrice de recherche, CNRS, Université Paris-Sud (LAC)	Examinatrice
M. Thierry Ruchon Chercheur, CEA (LIDYL)	Directeur de thèse





THÈSE DE DOCTORAT  
DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY  
PRÉPARÉE À L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD  
AU SEIN DU  
LABORATOIRE INTERACTIONS, DYNAMIQUES ET LASERS

École doctorale n° 572 : Ondes et Matière  
Spécialité : lasers, molécules, rayonnement atmosphérique

GÉNÉRATION D'HARMONIQUES  
D'ORDRE ÉLEVÉ À DEUX FAISCEAUX  
PORTANT DU MOMENT ANGULAIRE

CÉLINE CHAPPUIS



Composition du jury :

<i>Président</i>	STÉPHANE SEBBAN	Directeur de recherche, LOA
<i>Rapporteurs</i>	JÉRÉMIE CAILLAT	Maitre de conférences, Sorbonne Université
	DENIS PENNINGCKX	Directeur de recherche, CEA/CESTA
<i>Examineurs</i>	FRANCK LÉPINE	Chargé de recherche, ILM
	LAURENCE PRUVOST	Directrice de recherche, LAC
<i>Directeur de thèse</i>	THIERRY RUCHON	Chercheur, CEA/LIDYL



# Remerciements

Décembre 2014, un mois décisif. Alors étudiante en troisième année à l'Institut d'Optique, j'étais à la recherche d'un stage de fin d'études débouchant sur une thèse. Au départ, j'étais partie pour me lancer dans les atomes froids. Bien que la physique atomique ne fût pas le cours qui me réussissait le mieux, j'étais très attirée par cette physique que je trouvais (et trouve toujours) très belle. Mais peu de temps après ma première rencontre avec l'équipe qui m'a par la suite accueillie en thèse, naquit en moi ce sentiment inexplicable de passer à côté de quelque chose, à la fois scientifiquement et personnellement, si jamais je n'empruntais pas cette voie de la physique ultra-rapide. Je me félicite aujourd'hui de ce choix qui m'a finalement ramenée dans le droit chemin des photons. Ainsi vient le moment de traduire toute ma considération pour l'ensemble des personnes impliquées d'une manière ou d'une autre dans cette réussite.

Je tiens tout d'abord à remercier chaleureusement Jérémie Caillat et Denis Penninckx d'avoir accepté de vous immerger dans des domaines qui ne sont pas forcément dans votre zone de confort afin de rapporter ce manuscrit avec une grande bienveillance, et ce dans un délai extrêmement court englobant les fêtes de fin d'année... Je remercie aussi sincèrement Franck Lépine, Laurence Pruvost et Stéphane Sebban, qui ont bien voulu me faire l'honneur de participer au jury.

Je souhaite naturellement exprimer toute ma gratitude à mon directeur de thèse, Thierry Ruchon, pour m'avoir donné l'opportunité de travailler sur un sujet aussi pointu qu'intéressant, et d'élargir mes horizons au travers de multiples collaborations. J'admire autant tes qualités scientifiques, qu'elles soient théoriques ou expérimentales, qu'humaines : merci (entre autres) pour ta pédagogie, ta générosité, ta patience et ta compréhension. C'est véritablement une chance de pouvoir travailler à tes côtés.

Je suis également particulièrement reconnaissante envers celui qui m'a mis le pied à l'étrier, Romain Géneaux, mon prédécesseur. Ta vivacité d'esprit et tes connaissances en physique ont souvent impressionné l'opticienne que je suis !

Il règne au LIDYL une ambiance agréable, bienveillante et stimulante. Je veux notamment saluer l'enthousiasme de son directeur, Philippe Martin, l'excellence (dans tous les domaines) de Bertrand Carré que j'ai eu la chance immense de rencontrer, ainsi que la rigueur de Pascal Salières qui a été officiellement mon directeur de thèse avant que Thierry n'obtienne son habilitation à diriger des recherches. Cette thèse n'aurait pas eu la même saveur (allusion subtile aux tomates cerises) intellectuelle et quotidienne sans les calculs et l'humour de Thierry Auguste. Aucun résultat expérimental n'existerait sans les beaux photons de LUCA dont ont pris soin chaque jour Fabien Lepetit, Delphine Guillaumet et Michel Perdrix. Je remercie tout particulièrement Olivier Gobert : merci pour ta disponibilité, pour avoir continué de t'occuper de ce bon vieux LUCA (surtout le soir !) et pour m'avoir toujours apporté ton aide (intellectuelle et matérielle) lorsque tu me trouvais un peu perplexe en fin de journée. Je remercie également Tiberio Ceccotti pour m'avoir gentiment initiée à l'art du démontage et remontage de l'ensemble MCP + phosphore : cette petite formation m'a été extrêmement précieuse par la suite ! Enfin, si le quotidien est si doux, c'est aussi grâce à la présence de l'ensemble des collègues thésards

et post-docs, ainsi que l'assistance de Caroline Lebe, Véronique Gereczy, Sylvie Jubera, Marc Billon, Sarah Kieffer, Gilles Le Chevallier, Michel Bougeard, André Fillon et Sylvain Foucquart.

Au cours de ces trois années, j'ai eu la chance de pouvoir voyager. Merci donc aux collaborateurs qui ont bien voulu m'accueillir : David Gauthier et Giovanni De Ninno à Trieste et Nova Gorica pour cette collaboration très fructueuse et pour la découverte de la grande installation qu'est FERMI, Antoine Camper, Tim Gorman et Lou DiMauro à Columbus pour votre infatigabilité et votre grande hospitalité, Samuel Beaulieu, Valérie Blanchet et Yann Mairesse au CELIA pour la (courte) initiation au PECD et les prêts de matériel, ainsi qu'Aura Gonzalez, Loïc Lavenu et Marc Hanna au LCF pour l'aperçu de cette belle manip FUI-STAR et le partage des joies de la plomberie !

Je glisse ici un petit mot pour ma nouvelle équipe au CESTA, car c'est parmi vous que j'ai préparé ma soutenance : merci de m'avoir si bien accueillie parmi vous et merci notamment à Jérôme Néauport de m'avoir accordé tout le temps dont j'ai eu besoin pour cette dernière ligne droite. Une mention spéciale pour Sébastien Vermersch : je tiens à te remercier très sincèrement pour m'avoir bichonnée tout au long de mon recrutement et aussi pour m'avoir trouvé un excellent rapporteur.

Pour finir, j'ai eu la chance de toujours pouvoir compter sur ma famille musicienne du Bassin et sur la super team apéro-poney du CHV : j'ai partagé d'excellents moments avec vous, et vous avez toujours été présents pour moi, chacun à votre façon, quand j'en ai eu besoin. Je ne saurais vous dire combien votre amitié m'est chère. Et surtout, j'ai la chance d'avoir des parents en or qui me tirent toujours vers le haut : merci pour votre soutien inconditionnel, sans vous rien de tout cela n'aurait été possible.

À tous donc, un immense merci !

Céline

# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>1</b>
<b>I Présentation des concepts fondamentaux</b>	<b>7</b>
<b>1 Le moment angulaire de la lumière</b>	<b>9</b>
1.1 Définition du moment angulaire et équation d'onde . . . . .	9
1.2 Les modes du champ portant du moment angulaire de spin . . . . .	10
1.2.1 États de polarisation de la lumière . . . . .	10
1.2.2 Outils expérimentaux . . . . .	11
1.3 Les modes du champ portant du moment angulaire orbital . . . . .	12
1.3.1 Modes d'Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss . . . . .	12
1.3.2 Techniques expérimentales de mise en forme du front d'onde . . . . .	18
<b>2 La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz</b>	<b>21</b>
2.1 Bases théoriques . . . . .	21
2.1.1 Description semi-classique : le modèle à trois étapes . . . . .	21
2.1.2 Description quantique : le modèle de Lewenstein . . . . .	24
2.1.3 L'accord de phase . . . . .	25
2.2 Aspects expérimentaux . . . . .	28
2.2.1 Le système laser . . . . .	28
2.2.2 La génération d'harmoniques d'ordre élevé . . . . .	28
2.2.3 Le spectro-photomètre . . . . .	29
<b>II La génération d'harmoniques avec un faisceau portant du moment angulaire</b>	<b>33</b>
<b>3 Conservation de l'indice azimutal lors de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss</b>	<b>35</b>
3.1 Profils spatiaux d'harmoniques générées à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss	36
3.1.1 Dispositif expérimental . . . . .	36
3.1.2 Résultats obtenus . . . . .	36
3.2 Conservation du moment angulaire orbital . . . . .	37
3.2.1 Simulations numériques . . . . .	37
3.2.2 Caractérisation de l'indice azimutal dans l'extrême ultraviolet . . . . .	39
<b>4 L'indice radial : un nombre quantique non conservé ?</b>	<b>41</b>
4.1 Simulations numériques : rôle de la phase atomique dans la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss . . . . .	41
4.1.1 Comment générer des modes XUV d'indice radial non nul ? . . . . .	42
4.1.2 Simulations numériques . . . . .	42
4.2 Observation expérimentale de faisceaux harmoniques d'indices radiaux élevés . .	43

4.2.1	Profils harmoniques obtenus . . . . .	43
4.2.2	Interprétation des résultats : étude du contenu modal du champ . . . . .	44
<b>5</b>	<b>Conservation du spin lors de la génération d’harmoniques à partir d’un faisceau polarisé elliptiquement</b>	<b>47</b>
5.1	Rendements harmoniques en fonction de l’ellipticité infrarouge . . . . .	47
5.1.1	Résultats expérimentaux . . . . .	47
5.1.2	Interprétation : le rôle des trajectoires électroniques . . . . .	50
5.2	États de polarisation harmoniques obtenus dans la littérature . . . . .	51
5.2.1	Ellipticité . . . . .	51
5.2.2	Orientation de l’ellipse de polarisation . . . . .	52
5.3	Description photonique de la génération d’harmoniques en polarisation elliptique	52
5.4	Divergence des harmoniques . . . . .	54
<b>III</b>	<b>La génération d’harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires</b>	<b>61</b>
<b>6</b>	<b>Généralisation du modèle multiphotonique à la génération d’harmoniques à deux faisceaux – Lois de conservation</b>	<b>63</b>
6.1	Développement perturbatif de la phase atomique dans le cas de deux faisceaux colinéaires . . . . .	64
6.1.1	Calcul dans le cadre de l’approximation de champ fort . . . . .	64
6.1.2	Modèle multiphotonique : conservation de la parité et de l’énergie . . . . .	66
6.2	Calcul du dipôle harmonique dans le cas de deux faisceaux non-colinéaires . . . . .	69
6.2.1	Modèle multiphotonique : conservation de l’impulsion . . . . .	69
6.2.2	Développement perturbatif et condition d’accord de phase . . . . .	69
6.3	Rendements harmoniques . . . . .	74
<b>7</b>	<b>Expériences de génération d’harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires</b>	<b>75</b>
7.1	Le dispositif expérimental : interféromètre de type Mach-Zehnder . . . . .	75
7.2	Spectres harmoniques obtenus en fonction de l’énergie de perturbation et de l’angle entre les deux faisceaux . . . . .	76
7.3	Intensités relatives des ordres de perturbation : premières limites du modèle perturbatif . . . . .	79
7.3.1	Au sujet du régime perturbatif . . . . .	79
7.3.2	Compétition entre somme et différence de fréquences . . . . .	81
<b>8</b>	<b>Le réseau actif : description fine de la structure du champ électrique créé par deux faisceaux non-colinéaires</b>	<b>85</b>
8.1	Théorie du réseau échelette : rappels . . . . .	85
8.1.1	Cas d’un réseau de dimension infinie . . . . .	86
8.1.2	Influence du contraste de phase . . . . .	88
8.1.3	Le réseau échelette de dimension finie . . . . .	88
8.1.4	Conclusions sur ce modèle . . . . .	89
8.2	Le réseau actif : étude numérique et analytique . . . . .	90
8.2.1	Structure du champ électrique au foyer . . . . .	90
8.2.2	Génération d’harmoniques par le réseau actif . . . . .	94
8.3	Confrontation du réseau actif aux résultats expérimentaux et numériques du chapitre 7 . . . . .	97
8.3.1	Champ proche harmonique calculé par le modèle quantique complet . . . . .	97
8.3.2	Champ lointain expérimental et numérique . . . . .	99
8.3.3	Conclusion . . . . .	101

## IV La génération d'harmoniques à deux faisceaux portant des moments angulaires 103

### 9 Conservation du moment angulaire orbital lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux 105

9.1	Profils des harmoniques générées à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss . . . . .	105
9.1.1	Expériences à deux couleurs : campagne de Nova Gorica . . . . .	106
9.1.2	Expériences à une couleur : campagne de Saclay . . . . .	108
9.1.3	Caractérisation du moment angulaire orbital : divergence des harmoniques générées à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss . . . . .	110
9.1.4	Confrontation avec les résultats du groupe d'Ottawa et conclusions sur le transfert de moment angulaire orbital aux harmoniques . . . . .	113
9.2	Relations entre ordres de diffraction d'une harmonique donnée . . . . .	114
9.2.1	Franges d'interférences . . . . .	114
9.2.2	Intensités relatives . . . . .	118
9.3	Conclusion . . . . .	120

### 10 Le moment angulaire de spin dans la génération d'harmoniques à deux faisceaux : mélange de polarisations linéaires et circulaires 121

10.1	Modulation de la polarisation du faisceau perturbatif . . . . .	122
10.1.1	Influence de l'ellipticité de la perturbation . . . . .	122
10.1.2	Polarisation circulaire : effet de l'énergie de perturbation . . . . .	127
10.1.3	Polarisation linéaire de la perturbation : influence de la direction de polarisation . . . . .	127
10.2	Mesures de polarimétrie optique . . . . .	129
10.2.1	Paramètres de Stokes . . . . .	130
10.2.2	Description du polarimètre . . . . .	130
10.2.3	Calibration du polarimètre . . . . .	132
10.2.4	Extraction des paramètres de l'ellipse . . . . .	133
10.2.5	Résultats de mesures . . . . .	134
10.3	Interprétation et conclusions . . . . .	137
10.3.1	Dépolarisation . . . . .	137
10.3.2	Commentaire sur les cas bi-circulaires démontrés dans la littérature . . . . .	138
10.3.3	Conclusion . . . . .	139

### 11 Analogie entre moments angulaires de spin et orbital : mélanges de faisceaux de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss 141

11.1	Génération d'harmoniques avec des faisceaux d'Hermite-Gauss . . . . .	141
11.1.1	Génération gaussienne et perturbation Hermite-Gaussienne . . . . .	142
11.1.2	Génération Hermite-Gaussienne et perturbation gaussienne . . . . .	146
11.1.3	Conclusion . . . . .	148
11.2	Génération d'harmoniques à partir d'un mélange de faisceaux de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss . . . . .	148
11.2.1	Génération Hermite-Gaussienne et perturbation Laguerre-Gaussienne . . . . .	148
11.2.2	Génération Laguerre-Gaussienne et perturbation Hermite-Gaussienne . . . . .	150
11.2.3	Conclusion . . . . .	155

## Conclusions et perspectives 157

### Annexes

#### A Terme multiphotonique de la phase atomique 165



<b>B</b>	<b>Ellipticité en fonction de l'orientation de la lame quart d'onde</b>	<b>167</b>
<b>C</b>	<b>Démonstration des formules du réseau actif</b>	<b>169</b>
C.1	Équation (8.25) . . . . .	169
C.2	Équation (8.30) . . . . .	169
C.3	Équation (8.31) . . . . .	170
C.4	Équation (8.27) . . . . .	170
C.5	Équation (8.28) . . . . .	171
C.6	Équation (8.33) . . . . .	171
C.7	Équation (8.34) . . . . .	171
C.8	Équation (8.38) . . . . .	171
<b>D</b>	<b>Calcul analytique du vecteur d'onde local dans le cadre du réseau actif pour des faisceaux de Laguerre-Gauss</b>	<b>173</b>
D.1	Cas général . . . . .	173
D.2	Cas particuliers . . . . .	174
	<b>Bibliographie</b>	<b>175</b>
	<b>Publications</b>	<b>187</b>
	Article 1 : Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation . . . . .	189
	Article 2 : Radial index of Laguerre-Gaussian modes in high-order-harmonic generation	197
	Article 3 : High-order harmonic generation in an active grating . . . . .	203

# Introduction

## Contexte des travaux présentés

L'attoseconde ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ) est à la seconde ce que la seconde est comparée à l'âge de l'univers. Au cours d'une attoseconde, la lumière parcourt une distance correspondant à trois atomes d'hydrogène. La génération d'impulsions de durées attosecondes constitue un résultat essentiel de recherches tant théoriques que technologiques dans le domaine du laser tout au long du XX<sup>ème</sup> siècle.

Tout commence en 1917 lorsqu'Albert Einstein introduit la notion d'émission stimulée [Einstein 1917], au cœur du principe de fonctionnement du laser. Mais il faudra patienter jusqu'au milieu du XX<sup>ème</sup> siècle pour que les progrès s'accélèrent. En 1950, Alfred Kastler imagine un procédé de pompage optique (récompensé par le Prix Nobel de Physique en 1966) [Kastler 1950], qui sera démontré expérimentalement deux ans plus tard par [Brossel et al. 1952]. Puis est né le maser, dont les théories ont été rapidement adaptées aux longueurs d'onde visibles par [Schawlow et Townes 1958]. Le Prix Nobel de Physique a été attribué à Townes en 1964 pour ces travaux, qui ont effectivement permis l'observation deux ans plus tard de la première émission laser par [Maiman 1960] au moyen d'un cristal de rubis.

Par la suite, la technologie laser, et en particulier celle des lasers impulsions, s'est très vite positionnée comme l'instrument de choix pour la spectroscopie à haute résolution (en atteste le Prix Nobel de Physique décerné à Schawlow en 1981 pour sa contribution au développement de la spectroscopie laser). Il est intéressant à ce stade de faire le parallèle avec la chronophotographie, dont Eadweard Muybridge fut le précurseur (voir la figure 1), qui permet la décomposition de mouvements trop brefs pour être observés convenablement à l'œil nu. Cette méthode permet de résoudre des mouvements d'autant plus rapides que le temps de pose de l'appareil photographique est court. Débute alors dans le monde du laser une course à l'impulsion la plus courte, favorisant l'essor rapide des techniques de commutation-Q (*Q-switching* en anglais) [McClung et Hellwarth 1962] qui a permis de réduire les durées d'impulsions de quatre ordres de grandeurs et ainsi accéder à la dizaine de nanosecondes, suivies des techniques de blocage de modes (*mode-locking* en anglais) [DeMaria et al. 1966] propulsant à des durées de l'ordre de la picoseconde. Le régime femtoseconde a été atteint dans les années 1980, avec un record de six femtosecondes obtenu par [Fork et al. 1987] grâce à une méthode de compensation de la dispersion.

En parallèle, d'importants efforts ont également été déployés pour augmenter l'énergie par impulsion des lasers, spécialement la technique d'amplification à dérive de fréquence (*chirped-pulse amplification* en anglais) inventée par [Strickland et Mourou 1985], lauréats du Prix Nobel de Physique 2018.

Ces avancées technologiques ont ouvert la voie à la mise en œuvre de processus hautement non-linéaires tels que la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Ce processus, central dans cette thèse, est un phénomène de champ fort nécessitant des éclaircissements de l'ordre de  $10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Il est observé lorsqu'un atome, souvent d'un gaz noble, est soumis à un laser infrarouge femtoseconde intense. Un phénomène extrêmement non-linéaire est alors initié dans le milieu, résultant en la conversion partielle du rayonnement incident en un peigne d'harmoniques d'ordre élevé. L'atome soumis au champ fort est d'abord ionisé par effet tunnel, puis l'électron émis se

propage dans le continuum et gagne de l'énergie grâce au champ laser, et enfin l'électron peut se recombinaison avec son ion parent et il se libère alors de son surplus d'énergie en émettant un photon, dont la longueur d'onde se situe généralement dans l'extrême ultraviolet (XUV). Le contrôle de ce phénomène a conduit à la naissance de la physique attoseconde [Agostini et DiMauro 2004], qui a pour objet principal l'étude des mouvements électroniques dans les atomes et les molécules, et qui se développe aujourd'hui dans deux directions majeures [Salières et al. 2012].

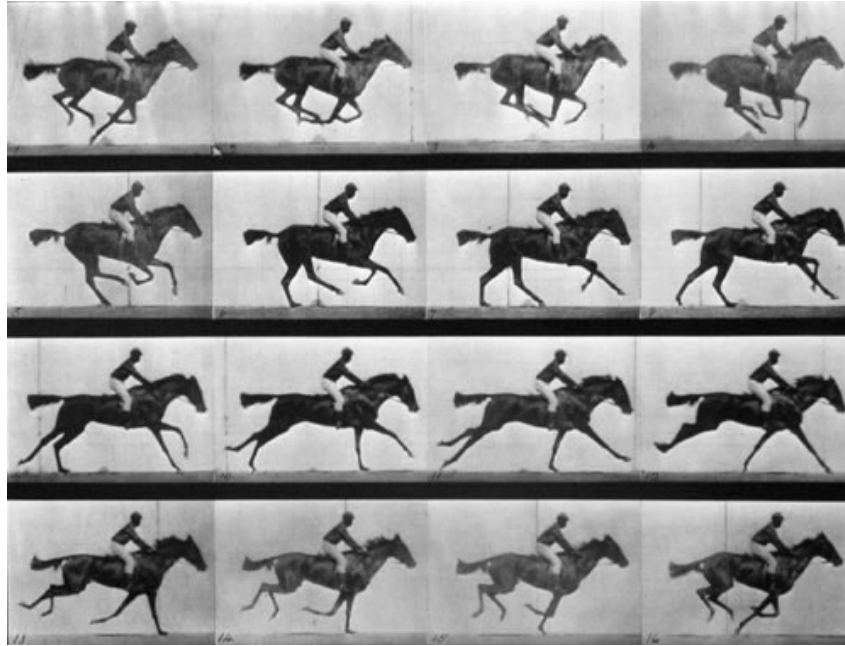


FIGURE 1 – Eadweard Muybridge, *Cheval au galop* (1878). C'est grâce à ces célèbres clichés que le photographe mit fin à la grande polémique sur l'existence ou non d'un temps de suspension (*i.e.* où aucun pied ne touche le sol) dans le mécanisme du galop d'un cheval.

La première consiste en des études résolues en temps, que ce soit dans le domaine temporel en mettant en place des expériences de type pompe-sonde, ou dans le domaine spectral en utilisant par exemple la technique RABBIT (*Reconstruction of Attosecond Beating By Interference of two-photon Transitions* en anglais) [Paul et al. 2001, Klünder et al. 2011, Haessler et al. 2009b, Caillat et al. 2011, Gruson et al. 2016]. L'interaction entre les impulsions XUV attosecondes et les atomes ou molécules étudié(e)s permet d'extraire des délais de photo-ionisation.

La seconde voie de développement de la physique attoseconde est appelée "spectroscopie harmonique". Le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé est considéré comme une auto-sonde via l'étape de recombinaison radiative et nous renseigne directement sur les dynamiques du système ionisé par effet tunnel [Jin et al. 2012, Levesque et al. 2007, Vozzi et al. 2005, Li et al. 2008, Wagner et al. 2006, Haessler et al. 2009a, Tehlar et al. 2013, Wörner et al. 2010]. Cette méthode permet également la reconstruction d'orbitales moléculaires [Itatani et al. 2004, Haessler et al. 2010, Vozzi et al. 2011].

Récemment, le champ de ces études a été élargi aux cas de faisceaux portant du moment angulaire, soit de spin (*i.e.* polarisés circulairement) soit orbital (*i.e.* présentant un front d'onde en spirale). La structure spatiale (en polarisation et front d'onde) de tels faisceaux est illustrée sur la figure 2. Leur synthèse dans l'extrême ultraviolet par génération d'harmoniques d'ordre élevé rend par exemple accessibles en laboratoire (plutôt que sur synchrotrons ou lasers à électrons libres) des études de dichroïsmes circulaires dans des molécules chirales [Garcia et al. 2003] et potentiellement de dichroïsmes hélicoïdaux dans des métaux de transition [van Veenendaal et McNulty 2007].

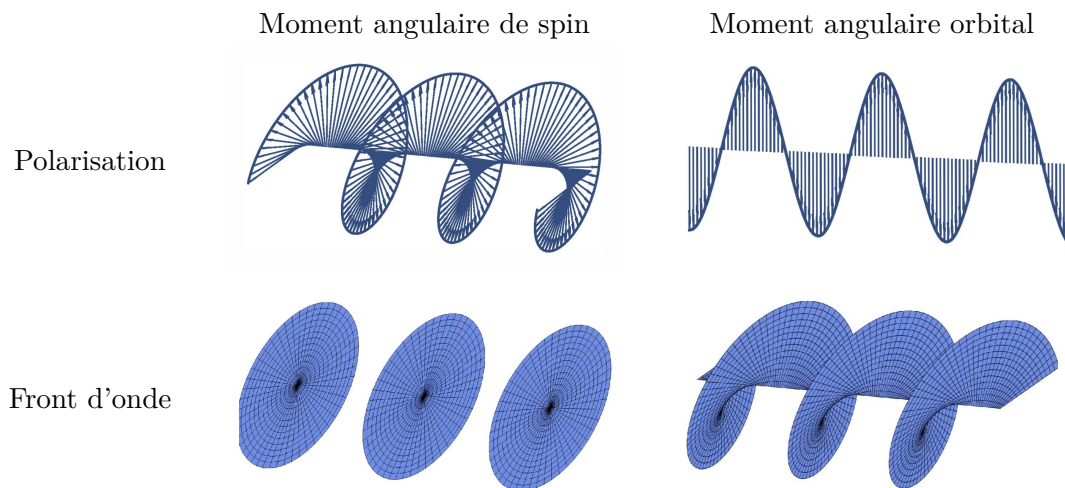


FIGURE 2 – État de polarisation et forme du front d'onde de faisceaux portant du moment angulaire de spin ou orbital. Figure adaptée de [Géneaux 2016].

La chiralité est un concept omniprésent en biologie. Il suffit en effet de regarder nos deux mains pour en avoir une illustration : elles sont images l'une de l'autre dans un miroir, mais non superposables. Il en est de même pour de nombreuses molécules couramment utilisées dans les industries alimentaires ou pharmaceutiques. Les deux exemplaires d'une même molécule sont appelés "énantiomères". Lors de la photo-ionisation de l'un des énantiomères par un rayonnement polarisé circulairement, la distribution angulaire d'émission des électrons présente une asymétrie qui dépend du sens de rotation de la polarisation et de l'énantiomère étudié : on parle de dichroïsme circulaire de photo-électrons (PECD : *PhotoElectron Circular Dichroism* en anglais). La distinction des deux énantiomères d'une molécule peut s'avérer primordiale en médecine. Par exemple, la méthamphétamine est une molécule chirale dont les deux énantiomères ont des effets physiologiques très différents : l'un est utilisé comme décongestionnant nasal, tandis que l'autre est une drogue psychotrope... Accéder de façon simple et robuste à la chiralité d'une molécule constitue donc un enjeu industriel et sociétal important. De plus, avoir accès aux dynamiques de molécules chirales dans le régime femtoseconde, voire attoseconde, ouvre des perspectives de recherche en physico-chimie extrêmement larges. La génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisées circulairement doit permettre de répondre à ces questions et fait, pour cette raison, l'objet d'intenses recherches actuellement.

De manière analogue, [van Veenendaal et McNulty 2007] prédisent, dans l'absorption de la bande K de métaux de transition, un dichroïsme lié au moment angulaire orbital de la lumière. En référence au front d'onde des faisceaux portant du moment angulaire orbital, ils proposent de le nommer dichroïsme hélicoïdal. Il est prévu dépendre du signe du moment angulaire orbital porté par la lumière, et être lié à des transitions quadrupolaires électriques. Son observation expérimentale requiert cependant des faisceaux intenses et fortement focalisés dans l'extrême ultraviolet. D'un point de vue technique, ceci reste encore aujourd'hui un défi de taille, dont la faisabilité est en cours d'étude. Le contrôle du moment angulaire orbital de faisceaux XUV femtosecondes donnerait accès à des transitions actuellement très délicates à mesurer, mais jouant certainement un rôle important dans l'interprétation du magnétisme. De tels faisceaux pourraient donc nourrir une percée dans la compréhension du magnétisme, non seulement en régime statique, mais aussi dynamique.

## Objectifs de la thèse

Ce travail s'inscrit dans ce contexte qui exprime le besoin de contrôler davantage de propriétés de l'émission harmonique, notamment son état de polarisation et son front d'onde. **Le premier objectif** de cette thèse porte donc sur l'étude du transfert de moment angulaire lors de ce phénomène hautement non-linéaire qu'est la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Outre l'intérêt fondamental de cette problématique, plus nous saurons manipuler finement ces caractéristiques du rayonnement XUV, plus nous verrons s'étendre la gamme d'applications pouvant bénéficier de telles avancées. Par exemple, certaines techniques d'ores et déjà maîtrisées dans le visible ou l'infrarouge pourraient gagner en sensibilité (comme le dichroïsme circulaire de photo-électrons, plus marqué en régime d'ionisation à un photon qu'en régime multiphotonique [Beaulieu et al. 2016]) ou en résolution (comme la microscopie [Hell et Wichmann 1994, Fürhapter et al. 2005]) en passant à de plus courtes longueurs d'onde.

Nous verrons plus tard que la mise en forme du front d'onde ou de la polarisation des harmoniques d'ordre élevé nécessite de mettre en œuvre des schémas de générations à deux faisceaux. Jusqu'alors, une description paramétrique a été adoptée pour interpréter ces expériences [Bertrand et al. 2011]. Nous montrons dans cette thèse que cet argument, certes intuitif, n'est cependant pas suffisamment rigoureux pour expliquer certains aspects propres à la physique extrêmement non-linéaire décrivant la génération d'harmoniques d'ordre élevé et mettant en jeu des effets d'accord de phase. **Le second objectif** de cette thèse a alors été d'aboutir à la proposition d'un modèle permettant d'appréhender plus finement les rendements obtenus lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux en prenant en compte les aspects macroscopiques.

## Plan du manuscrit

Nous introduirons dans la partie **I** les deux notions centrales de cette thèse que sont le moment angulaire de la lumière et la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Nous verrons d'abord que le moment angulaire peut être séparé en deux parties, l'une intrinsèque, appelée moment angulaire de spin et correspondant à l'état de polarisation de la lumière, et l'autre extrinsèque, nommée moment angulaire orbital, reliée à la forme du front d'onde et faisant notamment intervenir des faisceaux de Laguerre-Gauss. Après une description formelle des modes du champ portant du moment angulaire, nous expliquerons comment les mettre en œuvre expérimentalement dans le domaine du visible et de l'infrarouge. Ensuite, nous aborderons le sujet de la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz, dans le cas le plus simple mettant en jeu un seul faisceau et des atomes de gaz noble. Nous présenterons les deux modèles théoriques couramment utilisés pour décrire ce processus d'interaction laser-matière extrêmement non-linéaire, puis nous détaillerons le dispositif expérimental utilisé à Saclay.

Disposant de ces fondamentaux, nous pourrions alors nous intéresser à la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau portant du moment angulaire. Ce sera l'objet de la partie **II**. Nous commencerons par la génération avec un faisceau de Laguerre-Gauss. La composante azimutale donnant le moment angulaire orbital du faisceau, nous étudierons le transfert de cette propriété lors du processus très non-linéaire de génération d'harmoniques. Nous nous pencherons également sur le cas de la composante radiale, liée à un phénomène de dilatation [Article 2]. Le sujet du moment angulaire de spin sera également traité : nous exposerons nos résultats concernant les rendements et divergences harmoniques obtenus en fonction de l'ellipticité du faisceau pilote, et nous rappellerons les états de polarisation harmoniques rapportés dans la littérature pour ce type d'expériences. Ces travaux nous amèneront à la conclusion que nous devons envisager des schémas de génération à deux faisceaux si nous voulons mieux contrôler le moment angulaire des harmoniques.

L'interprétation des expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires n'est pas triviale. Avant d'y ajouter du moment angulaire, nous nous concentrerons dans la par-

tie **III** sur la configuration la plus simple de deux faisceaux gaussiens polarisés linéairement dans la même direction. Nous commencerons par rappeler le modèle multiphotonique abondamment employé dans la littérature, qui découle d'un développement perturbatif de la phase atomique dans le cadre de l'approximation de champ fort. En le confrontant à nos expériences et simulations numériques, nous mettrons en évidence des premières limites de ce modèle, concernant notamment la prédiction des rendements harmoniques. Ceci nous amènera à proposer un nouveau modèle, que nous avons appelé "réseau actif" [**Article 3**], basé sur une description fine du champ électrique au niveau du milieu générateur.

Une fois que nous maîtriserons la génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires, nous pourrons leur donner des moments angulaires afin de contrôler les propriétés de polarisation et de front d'onde du rayonnement harmonique. Ces travaux seront exposés dans la partie **IV** de ce manuscrit. Nous nous intéresserons d'abord aux mélanges de faisceaux de Laguerre-Gauss, permettant la génération d'harmoniques d'ordre élevé portant des moments angulaires orbitaux arbitraires [**Article 1**]. Puis, nous étudierons la génération à partir d'un faisceau polarisé linéairement avec un second faisceau moins intense de polarisation circulaire (les deux faisceaux étant gaussiens). Ces expériences mettront en lumière une autre limite du modèle multiphotonique : contrairement à ses prévisions, nous verrons que le rayonnement harmonique n'est pas polarisé circulairement. Enfin, dans le but de mieux comprendre le transfert de moment angulaire lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux, nous bâtirons une analogie entre les deux types de moments, qui nous conduira à réaliser des expériences mêlant faisceaux de Laguerre-Gauss et d'Hermite-Gauss.



# Première partie

## Présentation des concepts fondamentaux

Les travaux réalisés au cours de cette thèse font principalement appel à deux notions, à savoir le moment angulaire du photon et la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz. Le but de cette première partie est de nous doter des outils nécessaires pour exposer ces travaux.

Elle se compose donc de deux chapitres donnant les bases théoriques et expérimentales requises pour une compréhension suffisante de chacun de ces deux concepts fondamentaux.





# Chapitre 1

## Le moment angulaire de la lumière

En mécanique classique, le moment angulaire (ou moment cinétique) d'un point matériel est associé à un mouvement de rotation et est donné par le produit vectoriel  $\vec{J} = \vec{r} \wedge \vec{p}$ , où  $\vec{r}$  et  $\vec{p}$  sont respectivement la position et la quantité de mouvement de ce point matériel. Notons que le moment angulaire est ainsi défini par rapport à une origine. La mécanique lagrangienne établit clairement le lien entre invariance par rotation et conservation du moment angulaire. Le concept est même enrichi en mécanique quantique, faisant apparaître la notion de spin, sans équivalence classique.

Dans ce chapitre, il sera question du moment angulaire de la lumière. Nous commencerons par définir dans la section 1.1 cette grandeur pour un champ électromagnétique en utilisant le formalisme développé par Maxwell. Nous montrerons qu'elle peut se décomposer en une partie intrinsèque nommée moment angulaire de spin, et une partie extrinsèque appelée moment angulaire orbital, détaillées respectivement dans les sections 1.2 et 1.3. Nous rappelons simplement dans ce chapitre les éléments nécessaires à la compréhension des travaux présentés dans cette thèse, une démonstration complète ayant déjà été réalisée dans la thèse de [Géneaux 2016].

### 1.1 Définition du moment angulaire et équation d'onde

L'existence du moment angulaire de la lumière a été envisagée pour la première fois par Poynting [Poynting 1909]. Par analogie entre une onde électromagnétique polarisée circulairement et une onde élastique de torsion, il suggère que la lumière peut fournir un couple à la matière. Quelques années plus tard, cet effet sera observé expérimentalement par [Beth 1936] qui mesurera le couple exercé par la lumière sur une lame de verre biréfringente.

L'expression classique du moment angulaire du champ électromagnétique s'écrit :

$$\vec{J}(\vec{r}) = \int_V \frac{\vec{r} \wedge \vec{\Pi}}{c^2} dV = \epsilon_0 \int_V \vec{r} \wedge (\vec{E} \wedge \vec{B}) dV \quad (1.1)$$

où  $\vec{r}$  est la position dans le volume  $V$  du faisceau,  $\vec{E}$  le champ électrique,  $\vec{B}$  l'induction magnétique et  $\vec{\Pi}$  le vecteur de Poynting donnant la direction de propagation de l'énergie. [Géneaux 2016] montre qu'en séparant  $\vec{E}$  et  $\vec{B}$  en leurs composantes longitudinale et transverse, le moment angulaire total  $\vec{J}$  peut être décomposé en deux parties :

— l'une dite intrinsèque, indépendante des coordonnées spatiales :

$$\vec{S} = \epsilon_0 \int_V (\vec{E}_\perp \wedge \vec{A}_\perp) d\vec{r} \quad (1.2)$$

— et l'autre qualifiée d'extrinsèque, agissant sur les coordonnées spatiales :

$$\vec{L} = \epsilon_0 \int_V \left( \sum_{i=x,y,z} \vec{E}_\perp^i \cdot (\vec{r} \wedge \vec{\nabla}) \vec{A}_\perp^i \right) d\vec{r} \quad (1.3)$$

où  $\vec{A}$  est le potentiel vecteur défini tel que  $\vec{B} = \vec{\nabla} \wedge \vec{A}$ , et où le symbole  $\perp$  réfère à la composante transverse des champs.

En optique quantique, la notion de photon émerge de la quantification du champ électromagnétique, également appelée "seconde quantification". À partir des équations (1.2) et (1.3), il est alors possible d'établir les expressions des opérateurs  $\hat{S}$  et  $\hat{L}$  (tels que  $\hat{J} = \hat{L} + \hat{S}$  [Cohen-Tannoudji et al. 1973]) définissant respectivement les moments angulaires de spin et orbital du photon. Des expériences ont mis en évidence la possibilité de les transférer à la matière, induisant deux effets de rotation différents : le moment angulaire de spin fait tourner une particule sur elle-même [Beth 1936] tandis que le moment angulaire orbital fait tourner la particule autour de l'axe du faisceau [He et al. 1995].

Les propriétés des photons étant intimement liées aux modes sur lesquels le rayonnement classique est décomposé [Grynberg et al. 2010], nous pouvons trouver les modes du champ portant du moment angulaire en utilisant le formalisme de Maxwell. La propagation du champ électrique (il en est de même pour l'induction magnétique) obéit à l'équation de d'Alembert :

$$\nabla^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \vec{0} \quad (1.4)$$

Pour une onde monochromatique de pulsation  $\omega$ , nous pouvons introduire la notation complexe  $\vec{E} = \mathcal{R} [\vec{\mathcal{E}} e^{i\omega t}]$ , ce qui nous permet d'aboutir à l'équation d'Helmholtz :

$$\nabla^2 \vec{\mathcal{E}} + k^2 \vec{\mathcal{E}} = \vec{0} \quad (1.5)$$

où  $k = \omega/c$  est le nombre d'onde et la norme du vecteur d'onde  $\vec{k}$ .

Nous présenterons dans les sections suivantes des solutions de cette équation d'onde (1.5) qui portent du moment angulaire. Dans chaque cas, nous expliquerons comment les mettre en œuvre expérimentalement.

## 1.2 Les modes du champ portant du moment angulaire de spin

Les ondes planes constituent des solutions possibles à l'équation (1.5). Elles s'écrivent sous la forme  $\vec{E} = \mathcal{R} [\vec{\mathcal{E}}_0 e^{i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}]$  et nous pouvons montrer que  $(\vec{k}, \vec{E}, \vec{B})$  forme un trièdre orthogonal direct.

Très tôt, [Raman et Bhagavantam 1931] relie la quantité microscopique qu'est le spin du photon à la grandeur macroscopique de la polarisation de la lumière.

### 1.2.1 États de polarisation de la lumière

Dans un repère cartésien, le champ électrique transverse d'une onde plane se propageant selon  $z$ , s'écrit :

$$\vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{0x} \cos(kz - \omega t) \\ E_{0y} \cos(kz - \omega t - \varphi) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

avec  $\varphi$  la phase relative entre les deux composantes transverses d'amplitudes  $E_{0x}$  et  $E_{0y}$ . L'état de polarisation de cette onde plane est décrit par la courbe dans le plan  $(x0y)$  parcourue par l'extrémité du vecteur champ électrique. De manière générale, il s'agit d'une ellipse d'équation [Born et Wolf 2003] :

$$\left( \frac{E_x}{E_{0x}} \right)^2 + \left( \frac{E_y}{E_{0y}} \right)^2 - 2 \frac{E_x E_y}{E_{0x} E_{0y}} \cos \varphi = \sin^2 \varphi \quad (1.7)$$

Les paramètres de l'ellipse sont donnés par :

$$a^2 + b^2 = E_{0x}^2 + E_{0y}^2 \quad (1.8)$$

$$\tan 2\psi = \tan 2\alpha \cos \varphi \quad \text{avec} \quad \tan \alpha = \frac{E_{0y}}{E_{0x}} \quad (1.9)$$

$$\sin 2\chi = \sin 2\alpha \sin \varphi \quad (1.10)$$

où  $a$  et  $b$  sont respectivement les demi-grand axe et demi-petit axe de l'ellipse,  $\psi$  est son azimut et  $\chi$  donne l'ellipticité  $\epsilon = \tan \chi$ .

La figure 1.1 illustre les états de polarisation obtenus pour différentes valeurs de  $\varphi$  dans le cas où  $E_{0x} = E_{0y}$ . Lorsque  $\varphi \equiv 0(\pi)$ , la polarisation est linéaire (ou rectiligne). Lorsque  $\varphi \equiv \pm\pi/2(2\pi)$ , la polarisation est circulaire droite ou gauche respectivement. Autrement la polarisation est elliptique et le rapport d'amplitudes des composantes horizontale et verticale influence son orientation.

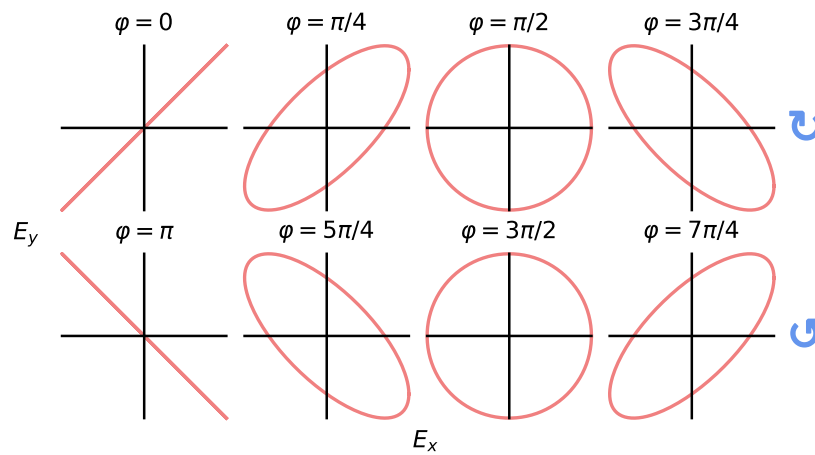


FIGURE 1.1 – États de polarisation pour différentes valeurs de  $\varphi$ , les amplitudes  $E_{0x}$  et  $E_{0y}$  étant égales. Les flèches bleues sur la droite indiquent le sens de parcours des ellipses (droit en haut et gauche en bas).

En notation complexe, les polarisations circulaires s'écrivent :

$$\vec{E}_{c_d} = E_0 e^{i\omega t} \left( \frac{\vec{e}_x \pm i\vec{e}_y}{\sqrt{2}} \right) \quad (1.11)$$

Nous remarquons ainsi aisément qu'un état circulaire s'écrit comme la somme de deux états linéaires orthogonaux et en quadrature de phase. Inversement, un état linéaire peut s'écrire comme la somme de deux états circulaires de sens opposé (le déphasage entre les deux donne la direction de l'état linéaire).

[Raman et Bhagavantam 1931] démontrent expérimentalement que la projection sur l'axe de propagation du moment angulaire de spin du photon vaut  $\pm\hbar$  pour une onde de polarisation circulaire droite ou gauche respectivement. Une polarisation linéaire est alors décrite comme composée de particules ayant une probabilité égale d'avoir un spin positif ou négatif. De même, une polarisation elliptique est vue comme une probabilité inégale des deux signes.

## 1.2.2 Outils expérimentaux

Nous disposons expérimentalement de plusieurs outils pour mettre en forme et analyser la polarisation de la lumière.

Une polarisation linéaire peut être obtenue grâce à des polariseurs linéaires en transmission (tels que les Polaroids, constitués de longues chaînes polymères hydrocarbonées parallèles sur

lesquelles sont fixés des atomes portant un imposant nuage électronique, comme l'iode [Granier]) ou en réflexion sur une surface séparant deux milieux isolants éclairée à l'incidence de Brewster  $i_B = \arctan\left(\frac{n_2}{n_1}\right)$  ( $n_1$  et  $n_2$  étant les indices de réfraction des deux milieux). L'intensité transmise par le polariseur est donnée par la loi de Malus :

$$I_t = I_{inc} \cos^2 \theta \quad (1.12)$$

où  $I_{inc}$  est l'intensité lumineuse incidente sur le polariseur et  $\theta$  l'angle de la polarisation incidente par rapport à la direction du polariseur. Si la lumière incidente n'est pas polarisée, nous effectuons une moyenne sur toutes les directions possibles, et finalement la moitié de l'intensité passe à travers le polariseur.

Une fois que nous disposons d'une lumière polarisée rectilignement, nous pouvons modifier son état de polarisation à l'aide de lames à faces parallèles constituées de matériaux anisotropes. Nous nous intéresserons aux cas particuliers de deux lames biréfringentes, *i.e.* ayant deux indices de réfraction différents selon deux axes neutres orthogonaux. La lumière se propage alors à des vitesses de phase différentes selon l'orientation du champ électrique par rapport à la lame. Une lame demi-onde (respectivement quart d'onde) introduit un retard de  $(2p+1)\pi$  (respectivement  $(2p+1)\pi/2$ ) entre les deux composantes transverses du champ et permet ainsi de faire tourner la direction de polarisation (respectivement de modifier l'ellipticité de la polarisation). En particulier, lorsque la polarisation incidente est linéaire, orientée à  $45^\circ$  de ses lignes neutres, la polarisation en sortie d'une lame quart d'onde est circulaire, et inversement.

### 1.3 Les modes du champ portant du moment angulaire orbital

Le sujet du moment angulaire orbital de la lumière a été abordé bien plus tard que celui du spin. [Allen et al. 1992] montrent qu'il est relié à sa structure spatiale transverse.

Dans le cadre de l'approximation paraxiale<sup>1</sup>, nous pouvons transformer l'équation d'Helmholtz vectorielle (1.5) en une équation d'onde scalaire :

$$\nabla_t^2 u + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (1.13)$$

où  $u$  est une fonction d'amplitude. Ainsi, le potentiel vecteur d'une onde se propageant suivant  $z$  et polarisée selon  $\vec{t}$  s'écrit de manière générale  $\vec{A} = u e^{ikz\vec{t}}$ . Les champs électrique et magnétique sont alors donnés par :

$$\vec{\mathcal{E}} = i\omega \left( \vec{A} + \frac{\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{A})}{k^2} \right) \quad (1.14)$$

$$\vec{\mathcal{B}} = \vec{\nabla} \wedge \vec{A} \quad (1.15)$$

#### 1.3.1 Modes d'Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss

Selon le système de coordonnées utilisé, nous pouvons trouver deux grandes familles de modes solutions de l'équation de propagation paraxiale (1.13).

Nous pouvons ensuite calculer les champs électrique et magnétique correspondants grâce aux équations (1.14) et (1.15), afin de déterminer si ces modes portent ou non du moment angulaire orbital.

---

1. L'approximation paraxiale est vérifiée pour tout système optique centré travaillant dans les conditions de Gauss : un rayon est dit paraxial s'il est proche de l'axe optique et peu incliné par rapport à ce dernier. Mathématiquement, il est alors possible d'appliquer l'approximation des petits angles (linéarisation). Lrsque l'on sort de ce cadre, des aberrations géométriques apparaissent.

**Modes d’Hermite-Gauss** Dans un repère cartésien  $(x, y, z)$ , nous écrivons le potentiel vecteur  $\vec{A} = u(x, y, z)e^{ikz\vec{t}}$ . Les modes d’Hermite-Gauss sont obtenus par séparation des variables transverses :

$$u_{mn}^{HG}(x, y, z) = u_m^{HG}(x, z)u_n^{HG}(y, z) \quad (1.16)$$

où  $m$  et  $n$  sont les indices du mode dans les directions  $x$  et  $y$  respectivement. La structure spatiale des modes d’Hermite-Gauss est donnée par [Siegman 1986] :

$$u_m^{HG}(x, z) = \frac{C_m^{HG}}{\sqrt{w(z)}} H_m\left(\frac{\sqrt{2}x}{w(z)}\right) e^{-\frac{x^2}{w(z)^2}} e^{ik\frac{x^2 z}{2(z_R^2 + z^2)}} e^{i(m+\frac{1}{2})\chi(z)} \quad (1.17)$$

Dans cette expression :

- $C_m^{HG} = \frac{1}{\sqrt{2^m m!}} \left(\frac{2}{\pi}\right)^{1/4}$  est une constante de normalisation
- $H_m$  est le polynôme d’Hermite d’ordre  $m$
- $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$  est la largeur à  $1/e^2$  du faisceau, avec  $w_0$  son *waist* (au foyer) et  $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda}$  sa distance de Rayleigh (dans l’expression de la largeur du faisceau, le terme en  $\frac{z}{z_R}$  peut être vu comme un écart à l’onde plane)
- $\chi(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right)$  est la phase de Gouy.

La première exponentielle est une amplitude gaussienne, tandis que la seconde est une phase qui détermine la courbure du front d’onde. Les profils transverses d’intensité et de phase des premiers modes d’Hermite-Gauss sont illustrés sur les figures 1.2 et 1.3 respectivement. Les indices  $m$  et  $n$  correspondent aux nombres de sauts de phase de  $\pi$  (et donc d’annulations d’intensité) dans les directions  $x$  et  $y$  respectivement. Ces modes d’Hermite-Gauss sont à la fois transverses électriques (voir l’équation (1.14)) et transverses magnétiques ((1.15)), c’est pourquoi ils sont également appelés modes transverses électromagnétiques, notés  $\text{TEM}_{mn}$ . Nous reconnaissons en particulier le premier d’entre eux  $(m, n) = (0, 0)$  : il s’agit du mode gaussien usuel. Il est intéressant de noter que ces modes forment une base orthonormée complète sur laquelle tout champ électrique peut être décomposé. En revanche, ils ne portent pas de moment angulaire orbital puisque les composantes selon  $z$  des champs électrique et magnétique sont toutes les deux nulles. Ceci est confirmé par la figure 1.3 : les surfaces équi-phases sont des plans parallèles au plan transverse  $(x0y)$  et le front d’onde est donc orthogonal à l’axe de propagation du faisceau. Il peut ainsi paraître surprenant de remarquer qu’un faisceau portant du moment angulaire peut être exprimé uniquement en fonction de modes n’en portant pas : un exemple sera donné un peu plus loin.

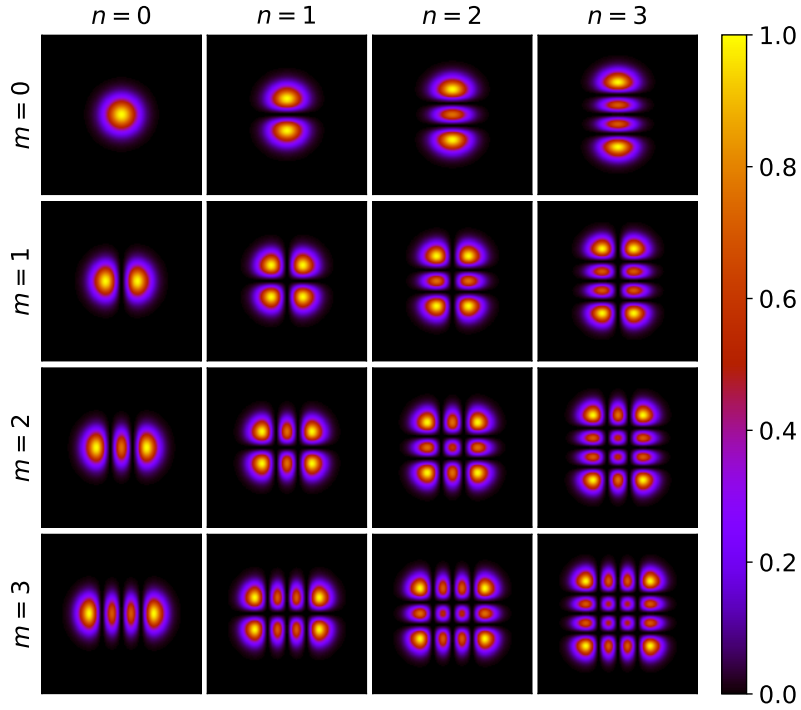


FIGURE 1.2 – Profil transverse d'intensité des modes d'Hermite-Gauss.

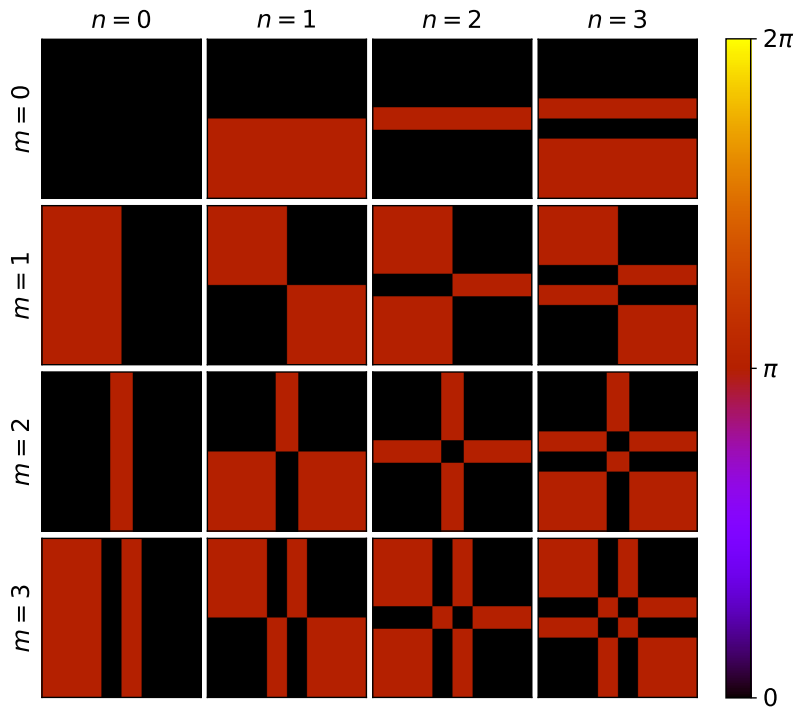


FIGURE 1.3 – Profil transverse de phase des modes d'Hermite-Gauss.

**Modes de Laguerre-Gauss** En coordonnées cylindriques, l'équation d'onde (1.13) s'exprime :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial r} + \frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 u}{\partial \phi^2} + 2ik \frac{\partial u}{\partial z} = 0 \quad (1.18)$$

En écrivant le potentiel vecteur  $\vec{A} = u(r, \phi, z)e^{ikz}\vec{t}$ , les modes de Laguerre-Gauss apparaissent alors comme solutions normalisées de l'équation (1.18) définies par [Siegman 1986] :

$$u_{\ell,p}^{LG}(r, \phi, z) = \frac{C_{\ell,p}^{LG}}{w(z)} \left( \frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{|\ell|} L_p^{|\ell|} \left( \frac{2r^2}{w(z)^2} \right) e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} e^{i\ell\phi} e^{ik\frac{r^2}{2R(z)}} e^{i(2p+|\ell|+1)\chi(z)} \quad (1.19)$$

Dans cette expression :

- $\ell$  et  $p$  sont les indices respectivement azimutal et radial du mode, le premier pouvant être positif ou négatif et le second uniquement positif (au sens large)
- $C_{\ell,p}^{LG} = \sqrt{\frac{2p!}{\pi(1+\delta_{0\ell})(p+|\ell|)!}}$  est une constante de normalisation (avec  $\delta_{0\ell}$  le symbole de Kronecker)
- $L_p^{|\ell|}$  est le polynôme de Laguerre généralisé
- $w(z)$  et  $\chi(z)$  sont la taille caractéristique et la phase de Gouy définies de manière identique aux modes d'Hermite-Gauss
- $R(z) = z \left( 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right)$  est le rayon de courbure du front d'onde.

Les profils transverses d'intensité et de phase des modes de Laguerre-Gauss sont illustrés sur les figures 1.4 et 1.5 respectivement. Il est intéressant de constater que nous retrouvons le mode gaussien usuel lorsque  $(\ell, p) = (0, 0)$ . L'indice  $\ell$  agit sur la composante azimutale de la phase via le terme en  $e^{i\ell\phi}$  et provoque ainsi une variation de la phase allant de 0 à  $\ell \times 2\pi$  lorsque  $\phi$  varie de 0 à  $2\pi$ . Notons qu'au centre du faisceau, l'azimut n'est pas défini : nous avons une singularité de phase qui est responsable (avec le terme en  $r^{|\ell|}$ ) du profil d'intensité annulaire pour  $\ell \neq 0$ . Quant à l'indice  $p$ , il crée des sauts de phase de  $\pi$  le long de la coordonnée radiale : nous observons alors  $p$  annulations d'intensité pour  $r > 0$ . À l'instar des modes d'Hermite-Gauss, ils forment une base orthonormée complète sur laquelle tout champ peut être décomposé.

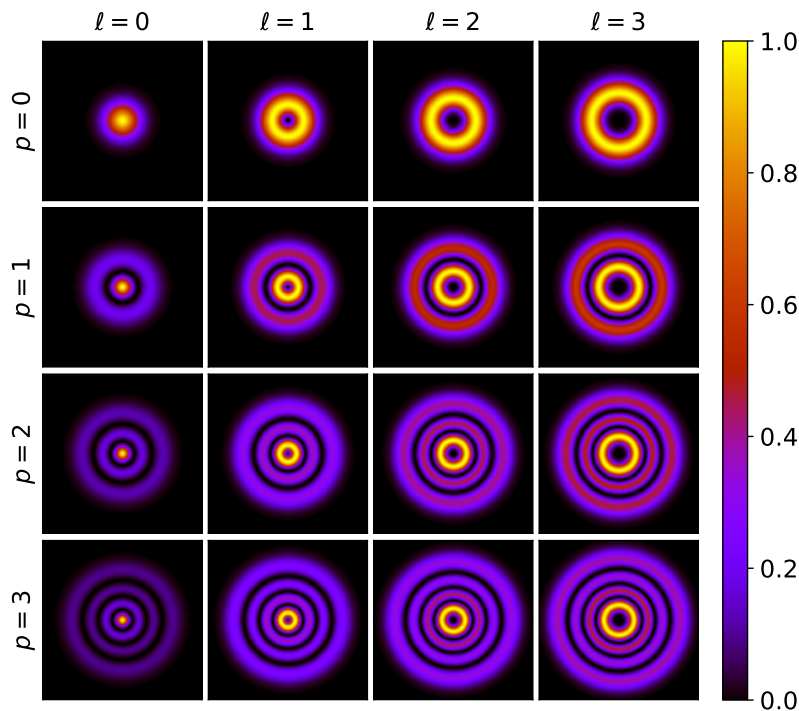


FIGURE 1.4 – Profil transverse d'intensité des modes de Laguerre-Gauss.



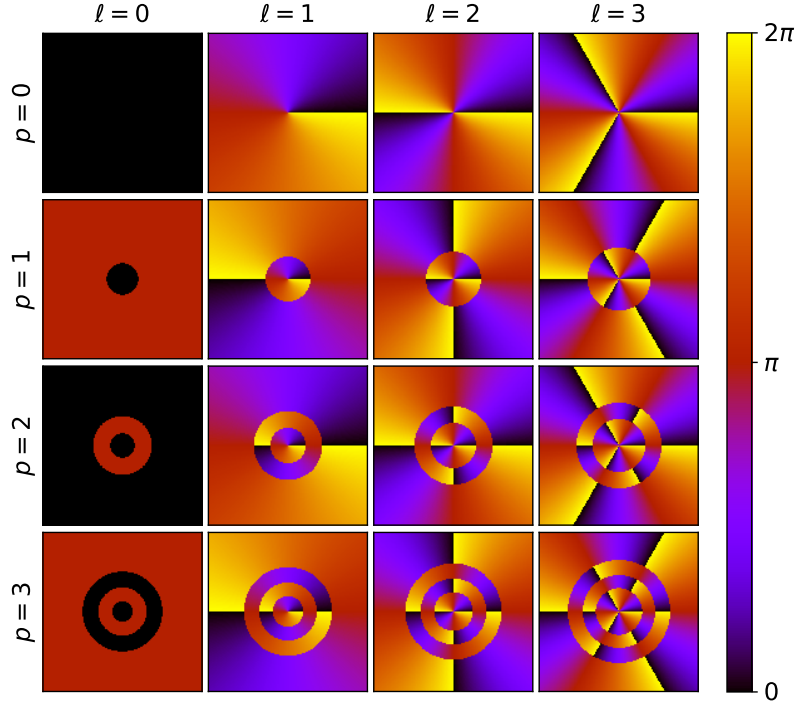


FIGURE 1.5 – Profil transverse de phase des modes de Laguerre-Gauss.

Lors de nos expériences avec des faisceaux de Laguerre-Gauss, nous chercherons à caractériser la taille des modes obtenus dans le cas où  $p = 0$ . Leur taille caractéristique  $w(z)$  n'étant pas directement mesurable, nous préférons définir le rayon d'intensité maximale. Sachant que  $\forall \ell, L_0^{|\ell|} = 1$ , leur intensité s'écrit :

$$I_\ell(r, z) = \frac{(C_{\ell,p}^{LG})^2}{w(z)^2} \left( \frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{2|\ell|} e^{-\frac{2r^2}{w(z)^2}} \quad (1.20)$$

Au maximum d'intensité selon  $r$ , la dérivée radiale s'annule. Nous trouvons une unique solution non nulle [Généaux et al. 2016] :

$$R_{max} = w(z) \sqrt{\frac{|\ell|}{2}} \quad (1.21)$$

L'intensité maximale est alors donnée par :

$$I_{max} = \frac{(C_{\ell,p}^{LG})^2}{w(z)^2} |\ell|^{|\ell|} e^{-|\ell|} \approx \frac{2}{\pi w(z)^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi|\ell|}} \quad (1.22)$$

en remplaçant par l'expression de la constante de normalisation et en utilisant la formule de Stirling. L'intensité d'un mode de Laguerre-Gauss (d'indice radial nul) évolue donc en  $1/\sqrt{|\ell|}$ . Pour nos expériences impliquant de tels faisceaux, il faudra donc garder à l'esprit qu'en modifiant l'indice azimutal, la taille du faisceau et l'intensité crête seront modifiées.

Enfin, intéressons-nous à leur structure spatiale vectorielle. [Arora et Lu 1994] montrent que les champs électrique et magnétique des modes de Laguerre-Gauss s'écrivent dans le cadre de

l'approximation paraxiale :

$$\vec{\mathcal{E}} = \begin{pmatrix} i\omega u_{\ell,p}^{LG} e^{ikz} \\ 0 \\ \frac{\omega e^{ikz}}{k} \left( \cos \phi \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial r} - \frac{\sin \phi}{r} \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial \phi} \right) \end{pmatrix} \quad (1.23)$$

$$\vec{\mathcal{B}} = \begin{pmatrix} 0 \\ ik u_{\ell,p}^{LG} e^{ikz} \\ -e^{ikz} \left( \sin \phi \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial r} - \frac{\cos \phi}{r} \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial \phi} \right) \end{pmatrix} \quad (1.24)$$

Si le potentiel vecteur est bien transverse, nous ne pouvons en dire de même des champs  $\vec{\mathcal{E}}$  et  $\vec{\mathcal{B}}$ . Ici, l'onde n'est alors ni transverse électrique ni transverse magnétique, contrairement aux modes d'Hermitte-Gauss qui combinent ces deux propriétés. Par définition, le front d'onde est une surface équi-phase :

$$\ell\theta + k \frac{r^2}{2R(z)} + (2p + |\ell| + 1)\chi(z) + kz = cste \quad (1.25)$$

Pour un faisceau collimaté (*i.e.* de rayon de courbure infini et de phase de Gouy constante), l'équation (1.25) décrit une surface d'onde hélicoïdale. Les fronts d'onde des modes  $\ell = 1, 2, 3$  et  $p = 0$  sont représentés sur la figure 1.6. De manière générale, nous avons  $\ell$  hélices entrelacées. Nous pouvons calculer explicitement l'expression du vecteur de Poynting [Allen et al. 1992] :

$$\vec{\Pi} = c |u_{\ell,p}^{LG}|^2 \left( \frac{rz}{z_R^2 + z^2} \vec{e}_r + \frac{\ell}{kr} \vec{e}_\phi + \vec{e}_z \right) \quad (1.26)$$

Les trois composantes sont de gauche à droite relatives à la courbure du faisceau, au moment angulaire et à la quantité de mouvement portée par l'onde. Pour un faisceau collimaté, l'angle d'inclinaison du front d'onde a été mesuré expérimentalement par [Leach et al. 2006] et s'écrit analytiquement :

$$\alpha = \frac{\vec{\Pi} \cdot \vec{e}_\phi}{\vec{\Pi} \cdot \vec{e}_z} = \frac{\ell}{kr} \quad (1.27)$$

L'évolution du vecteur de Poynting au cours de la propagation du faisceau est illustrée sur la figure 1.7 dans le cas  $(\ell, p) = (1, 0)$  : il décrit une spirale autour de l'axe optique. Ce vecteur donnant la direction de propagation de l'énergie, nous comprenons ainsi intuitivement qu'un mode de Laguerre-Gauss puisse mettre en rotation un objet. [Allen et al. 1992] montrent que ces modes portent un moment angulaire orbital bien défini de  $\ell\hbar$  par photon<sup>2</sup> selon l'axe  $z$ . En référence à cette structure les modes de Laguerre-Gauss sont parfois qualifiés dans la littérature de "vortex optiques" et leur indice azimutal  $\ell$  peut être nommé "charge topologique".

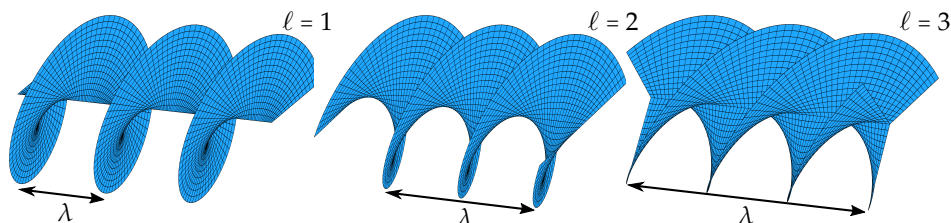


FIGURE 1.6 – Fronts d'onde des modes de Laguerre-Gauss d'indices  $\ell = 1, 2, 3$  et  $p = 0$ .

2. Dans la suite de ce manuscrit, nous omettrons les  $\hbar$  pour quantifier les moments angulaires, aussi bien orbitaux que de spin.

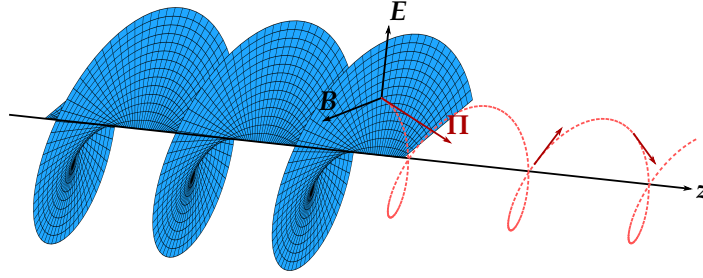


FIGURE 1.7 – Front d’onde (surface bleue) et vecteur de Poynting (flèches rouges) d’un mode de Laguerre-Gauss  $(\ell, p) = (1, 0)$ . L’évolution de la direction du vecteur de Poynting au cours de la propagation est représentée en pointillés rouges pour une distance  $r$  choisie.

**Relations entre les deux familles de modes** La famille des modes d’Hermite-Gauss et celle des modes de Laguerre-Gauss forment toutes deux des bases complètes du champ. Nous pouvons notamment exprimer les premiers en fonction des seconds et inversement. [Kimel et Elias 1993] donnent les relations entre ces deux bases. Nous remarquons tout d’abord que le mode gaussien est commun aux deux familles. La décomposition suivante est également intéressante pour la suite de nos travaux :

$$u_{\ell=\pm 1, p=0}^{LG} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left( u_{10}^{HG} \mp i u_{01}^{HG} \right) \quad (1.28)$$

Nous obtenons des décompositions analogues à celles trouvées pour les états de polarisation dans la section 1.2 : un mode de Laguerre-Gauss  $(|\ell|, p) = (1, 0)$  s’écrit comme la somme des deux modes d’Hermite-Gauss  $TEM_{10}$  et  $TEM_{01}$  en quadrature de phase, et inversement (le déphasage entre les modes de Laguerre-Gauss donne l’orientation du mode d’Hermite-Gauss).

### 1.3.2 Techniques expérimentales de mise en forme du front d’onde

Une première possibilité pour générer des modes d’Hermite-Gauss ou de Laguerre-Gauss consiste à modifier la cavité laser pour qu’elle lase directement dans le mode désiré. En pratique, sélectionner de la sorte un mode de Laguerre-Gauss n’est pas chose aisée, mais l’obtention de modes d’Hermite-Gauss d’indices assez bas s’avère relativement simple (ceci peut être réalisé en insérant un ou plusieurs fils dans le faisceau).

[Beijersbergen et al. 1993] proposent une méthode de conversion d’un mode d’Hermite-Gauss orienté à  $45^\circ$  en mode de Laguerre-Gauss basée sur l’équation (1.28) et sur l’utilisation de lentilles cylindriques. Le principe est illustré sur la figure 1.8. Le mode d’Hermite-Gauss à  $45^\circ$  (par rapport aux directions focalisante et non-focalisante des lentilles cylindriques) se décompose en la somme des deux modes orthogonaux (l’un vertical et l’autre horizontal) en phase. Deux lentilles cylindriques convergentes (de même focale  $f$ ) focalisent dans une seule dimension puis recollimatent le faisceau. La composante focalisée va alors subir un déphasage dû à la phase de Gouy, et l’autre non. Pour que le déphasage entre les deux soit de  $\pi/2$ , la distance entre les deux lentilles doit être de  $\sqrt{2}f$ . Ce dispositif présente cependant deux inconvénients :

- il faut disposer d’un mode d’Hermite-Gauss au départ, ce qui n’est pas notre cas avec le laser LUCA
- étant donnée l’énergie de LUCA (nécessaire à la génération d’harmoniques d’ordre élevé), il faudrait placer ce dispositif sous vide pour ne pas ioniser l’air au foyer.

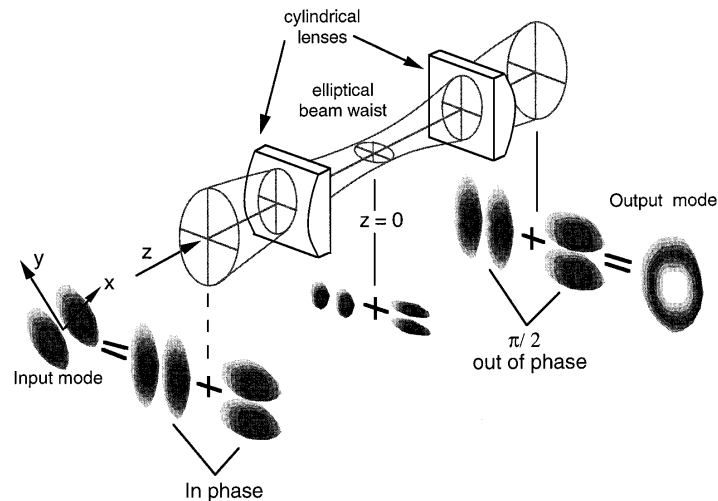


FIGURE 1.8 – Principe de fonctionnement du convertisseur de mode permettant d’obtenir un mode de Laguerre-Gauss ( $\ell = 1, p = 0$ ) à partir d’un mode  $TEM_{01}$  incliné à  $45^\circ$ . Figure tirée de [Padgett et Allen 1999].

Nous préférons donc utiliser des lames de phase pour synthétiser des modes d’Hermite-Gauss ou de Laguerre-Gauss à partir d’un mode gaussien. Pour réaliser un mode  $TEM_{01}$  ou  $TEM_{10}$ , nous disposons du masque de phase  $0 - \pi$  décrit dans la thèse de [Camper 2014] (voir la figure 1.3). Pour créer des modes de Laguerre-Gauss  $\ell = \pm 1, 2, 3$  ( $p = 0$ ), nous avons deux lames de phase en spirale [Beijersbergen et al. 1994] permettant d’imprimer comme illustré sur la figure 1.9 une phase variant azimuthalement de  $0$  à  $2\pi$  pour l’une et de  $0$  à  $4\pi$  pour l’autre. Leur fonctionnement est décrit en détail dans la thèse de [Géneaux 2016].

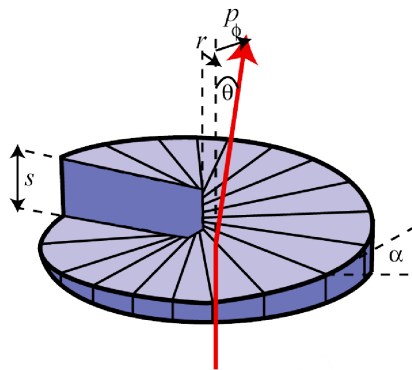


FIGURE 1.9 – Lame de phase en spirale. La flèche rouge représente le trajet d’un rayon lumineux. Figure tirée de [Yao et Padgett 2011].

Les taux de conversion des lames de phase peuvent atteindre 93% pour le masque  $0 - \pi$  [Moll et al. 2006] et 78.5% pour la lame  $\ell = 1$  [Beijersbergen et al. 1994, Sueda et al. 2004] (le reste de l’énergie allant dans les modes d’ordres supérieurs). Ces taux de conversion sont naturellement liés aux contraintes de fabrication des lames de phase. Pour le masque  $0 - \pi$ , il faut deux marches bien planes avec un saut de  $\pi$  entre les deux le plus net possible. Quant à la lame  $\ell = 1$ , elle est généralement réalisée en marches d’escalier : le taux de conversion dépend alors de la discrétisation choisie (il sera d’autant meilleur que le profil de phase sera continu). Dans les deux cas, les lames de phase sont conçues pour une longueur d’onde donnée. Ainsi, les performances des lames sont légèrement dégradées lorsqu’elles sont éclairées par des impulsions courtes, du fait de la largeur spectrale de celles-ci. La figure 1.10 illustre les profils d’intensité obtenus expérimentalement sur la laser LUCA au foyer d’une lentille de focale 1 m,

sans lame de phase, avec le masque  $0-\pi$  et avec la lame de phase en spirale  $\ell = 1$ . Chacun de ces profils est ajusté par les expressions théoriques des modes respectivement gaussien,  $\text{TEM}_{10}$  et  $(\ell, p) = (1, 0)$ . Ces ajustements mettent en valeur la qualité spatiale du mode gaussien du laser LUCA et montrent que nos lames de phase fournissent de bonnes approximations des modes d’Hermite-Gauss et Laguerre-Gauss.

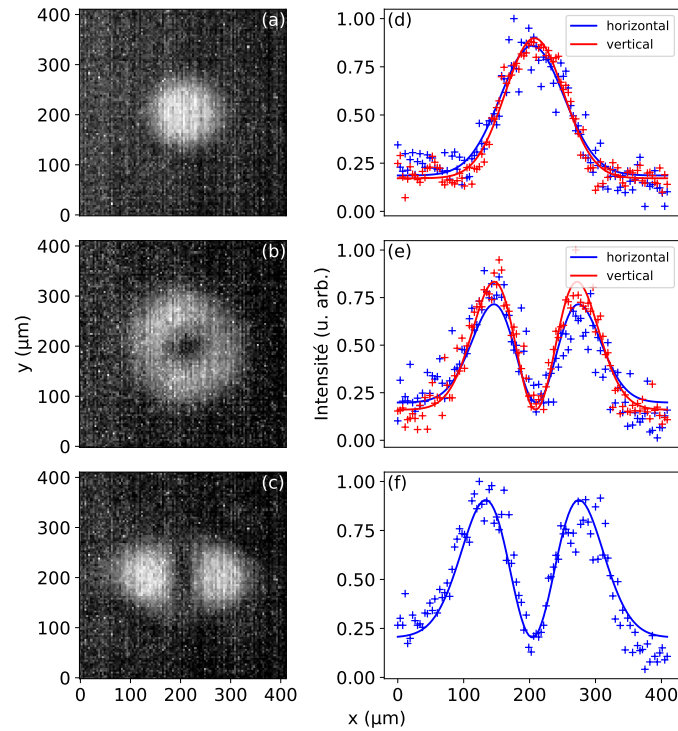


FIGURE 1.10 – (a) Profil transverse d’intensité du laser LUCA, enregistré sur une caméra CCD. (d) Coupes selon les directions horizontale et verticale (croix), ajustées par des gaussiennes (lignes continues). (b) Profil d’intensité obtenu sur la caméra en insérant une lame de phase  $\ell = 1$  dans le faisceau. (e) Coupes et ajustements par un mode de Laguerre-Gauss  $(\ell, p) = (1, 0)$  dans les directions horizontale et verticale. (c) Profil d’intensité obtenu sur la caméra avec le masque  $0 - \pi$ . (e) Coupe et ajustement par un mode  $\text{TEM}_{10}$  dans la direction horizontale.

Pour conclure, la technique basée sur l’utilisation de lames de phase pour synthétiser des faisceaux de Laguerre-Gauss ou Hermite-Gauss est tout à fait satisfaisante pour nos études de génération d’harmoniques à partir de tels faisceaux.

## Chapitre 2

# La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz

La génération d'harmoniques d'ordre élevé est un phénomène de champ fort, observé pour la première fois par [McPherson et al. 1987] et [Ferry et al. 1988] en soumettant des gaz rares à un champ laser dans le bon régime d'intensité et d'accord de phase. Nous décrivons ce phénomène de manière théorique dans la section 2.1 et expliquerons sa mise en œuvre expérimentale dans la section 2.2.

### 2.1 Bases théoriques

Six ans après ces premières observations expérimentales, un modèle semi-classique de la génération d'harmoniques d'ordre élevé est proposé par [Schafer et al. 1993] et [Corkum 1993], offrant une compréhension simple et semi-quantitative du processus. Ce modèle est appelé "modèle à trois étapes". Il faudra attendre une année supplémentaire pour que [Lewenstein et al. 1994] établisse un modèle complètement quantique décrivant le mécanisme de génération d'harmoniques par un atome unique en se basant sur une approximation de champ fort (SFA : *Strong Field Approximation* en anglais). Enfin, nous verrons que pour que l'émission harmonique ait lieu, il faut que les contributions de tous les atomes dans zone d'interaction soient en phase : comme pour tout phénomène non-linéaire, l'accord de phase joue un rôle important.

#### 2.1.1 Description semi-classique : le modèle à trois étapes

Le premier modèle proposé (et le plus simple) pour décrire la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz, considère de façon semi-classique un atome unique soumis à un champ laser (visible ou infrarouge) intense. Il se décompose, comme son nom l'indique, en trois étapes :

1. **L'ionisation tunnel** : le champ laser abaisse la barrière de potentiel de l'atome et un paquet d'onde électronique peut alors être émis par effet tunnel. Cette étape d'ionisation est décrite quantiquement.
2. **La propagation dans le continuum** : une fois libéré, ce paquet d'onde électronique est accéléré dans la direction du champ laser. Quand ce dernier s'annule et change de signe, le paquet d'onde électronique est d'abord freiné puis ré-acceléré vers son atome parent. Lors de cette excursion dans le continuum, le paquet d'onde électronique gagne de l'énergie sous forme cinétique. Cette étape de propagation est décrite classiquement.
3. **La recombinaison radiative** : lorsque le paquet d'onde électronique arrive au voisinage de l'atome, il peut éventuellement se recombiner avec celui-ci en restituant son surplus d'énergie sous forme photonique. Le photon ainsi émis a une énergie située dans l'extrême ultraviolet.

Considérons le problème unidimensionnel d'un électron sur l'état fondamental d'un atome. Cet électron est soumis d'une part au potentiel coulombien du noyau  $V_0(x) = -1/|x|$ , et d'autre part au champ électrique du laser polarisé linéairement  $\vec{E} = E\vec{e}_x$ . Le potentiel total dans lequel est plongé notre électron est représenté sur la figure 2.1 et s'écrit (en unités atomiques) :

$$V(x) = V_0(x) + Ex \quad (2.1)$$

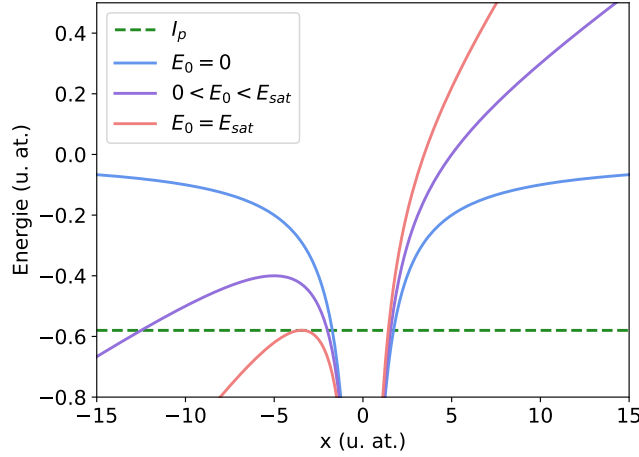


FIGURE 2.1 – Potentiels ressentis par l'électron dans le cas de l'argon en l'absence de champ électrique (bleu), pour un champ électrique de 0.04 (violet) et 0.084 (rouge) unités atomiques. Le potentiel d'ionisation de l'argon est représenté en pointillés verts.

Le champ électrique a pour effet d'abaisser la barrière de potentiel d'un côté (courbe violette), vers les  $x < 0$  si  $E > 0$  et inversement. S'il est suffisamment fort, une partie du paquet d'onde électronique peut traverser la barrière par effet tunnel, avec une probabilité qui dépend de la hauteur et de l'épaisseur de la barrière. Si l'éclairement dépasse une valeur de saturation donnée par  $I_{sat} = I_p^4/16$  (en unités atomiques, soit  $2.5 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> pour l'argon ; courbe rouge), la barrière de potentiel est abaissée en dessous du potentiel d'ionisation et nous passons dans le régime d'ionisation par suppression de barrière [Bauer et Mulser 1999]. Revenons au régime tunnel. Nous devons prendre en compte l'évolution temporelle du champ électrique :

$$\vec{E}(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \vec{e}_x \quad (2.2)$$

qui a pour effet de faire osciller le potentiel ressenti par l'électron au cours du temps, comme illustré par la figure 2.2.

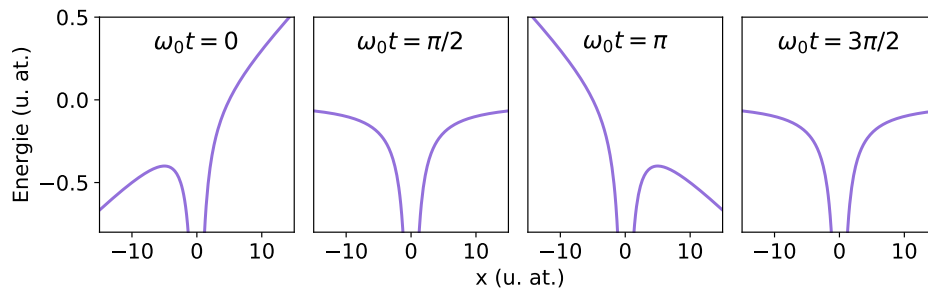


FIGURE 2.2 – Potentiel ressenti par l'électron en différents instants, pour  $E_0 = 0.04$  unités atomiques.



Pour que l'ionisation puisse avoir lieu, il faut que la barrière soit abaissée suffisamment longtemps. L'abaissement est maximal à  $t = 0 + nT_0/2$  (avec  $T_0 = 2\pi/\omega_0$  est la période du laser fondamental), où  $n$  est un entier. L'ionisation tunnel se produit donc deux fois par cycle optique ( $T_0 = 2.67$  fs pour  $\lambda_0 = 800$  nm), avec une efficacité caractérisée par le paramètre de Keldysh [Keldysh 1965] :

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad \text{avec} \quad U_p = \frac{E^2}{4\omega_0^2} \quad \text{le potentiel pondéromoteur} \quad (2.3)$$

Pour un champ fort de basse fréquence, nous avons  $\gamma \ll 1$  : le régime d'ionisation tunnel domine. À l'inverse, pour un champ faible et une fréquence élevée,  $\gamma \gg 1$  et nous sommes en régime multiphotonique. Dans nos expériences de génération d'harmoniques dans l'argon, nous atteignons un éclaircissement au foyer de l'ordre de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, ce qui donne un  $\gamma$  légèrement inférieur à 1 : le régime d'ionisation tunnel est favorisé.

Une fois le paquet d'onde électronique sorti du potentiel coulombien, il se propage dans le continuum. Nous considérons le champ électrique suffisamment fort pour négliger les effets à longue portée du potentiel atomique. Ainsi, le paquet d'onde électronique est uniquement soumis à la force de Lorentz et sa trajectoire peut alors être décrite classiquement par les lois de Newton. L'équation du mouvement s'écrit :

$$\ddot{x}(t) = -E_0 \cos(\omega_0 t) \quad (2.4)$$

Pour intégrer cette équation, nous utilisons les conditions initiales suivantes :

$$\begin{cases} x(t_i) = 0 \\ \dot{x}(t_i) = 0 \end{cases} \quad (2.5)$$

où  $t_i$  est l'instant d'ionisation. Autrement dit, nous négligeons l'extension du mouvement du paquet d'onde électronique à travers la barrière, et nous considérons qu'il perd toute son énergie cinétique en la traversant. Nous trouvons successivement :

$$\dot{x}(t) = -\frac{E_0}{\omega_0} (\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_i)) \quad (2.6)$$

$$x(t) = \frac{E_0}{\omega_0^2} (\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_i)) + \frac{E_0}{\omega_0} \sin(\omega_0 t_i)(t - t_i) \quad (2.7)$$

Le paquet d'onde électronique oscille donc autour de son atome parent situé en  $x = 0$ . Cependant, il s'étale dans la dimension transverse au cours de sa propagation, réduisant ainsi la probabilité de recombinaison en  $x = 0$  à chaque période, si bien que seul le premier retour sera finalement significatif. En résolvant l'équation  $x(t_r) = 0$ , nous obtenons donc un unique instant de recombinaison  $t_r$  dépendant de l'instant d'ionisation  $t_i$ . Nous calculons alors l'énergie cinétique à la recombinaison  $E(t_r) = E_c$  représentée en fonction de  $(t_i, t_r)$  sur la figure 2.3 [Kazamias et Balcou 2004]. Cette énergie passe par un maximum qui vaut  $E_c^{max} = 3.17U_p$ . L'énergie de photon émise lors de la recombinaison est donnée par la conservation de l'énergie :

$$\hbar\omega = I_p + E_c \quad (2.8)$$

où  $\omega$  est la fréquence du photon émis. Nous avons donc une loi de coupure  $\hbar\omega_{max} = I_p + 3.17U_p$  qui détermine l'énergie de photon maximale pouvant être émise lors du processus. De plus, nous observons sur la figure 2.3 que pour chaque énergie, nous avons deux couples  $(t_i, t_r)$  de solutions possibles, correspondant à deux familles de trajectoires nommées "courtes" et "longues" relativement à la longueur de l'excursion du paquet d'onde électronique dans le continuum. Ces deux familles de trajectoires convergent jusqu'à se confondre à l'énergie de coupure.



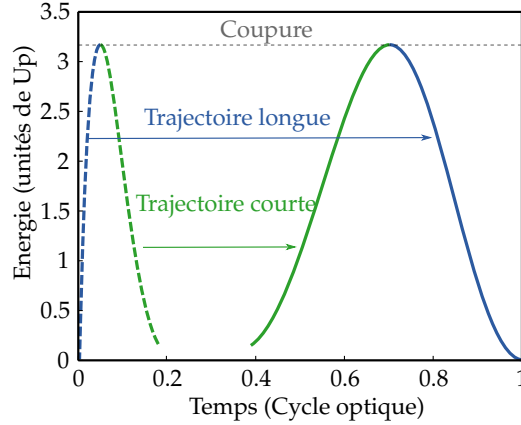


FIGURE 2.3 – Energie à la recombinaison en fonction des instants d'ionisation (pointillés) et de recombinaison (traits pleins). Les trajectoires courtes et longues sont représentées respectivement en vert et en bleu. Figure extraite de [Généaux 2016].

Enfin, notons que ce processus en trois étapes se reproduit au voisinage de chaque maximum et minimum du champ électrique, c'est-à-dire tous les demi-cycles optiques. Cette périodicité temporelle de  $T_0/2$  se traduit dans le domaine spectral par une périodicité de  $2\omega_0$ . Le milieu de génération étant centro-symétrique, les harmoniques émises sont impaires. Temporellement, l'émission prend alors la structure d'un train d'impulsions attosecondes [Antoine et al. 1996a, Paul et al. 2001], chaque impulsion étant séparée de la suivante par  $T_0/2$ .

### 2.1.2 Description quantique : le modèle de Lewenstein

Un traitement totalement quantique a été développé par [Lewenstein et al. 1994] afin de décrire le processus de génération d'harmoniques de manière plus quantitative et rigoureuse, dont nous présentons ici succinctement les grandes lignes.

Nous commençons par écrire l'équation de Schrödinger pour un seul électron soumis à un champ électrique  $\vec{E}(t)$  :

$$i \frac{\partial |\psi(t)\rangle}{\partial t} = \left( -\frac{\nabla_r^2}{2} + V_0(\vec{x}) + \vec{E} \cdot \vec{x} \right) |\psi(t)\rangle \quad (2.9)$$

où  $V_0(\vec{x})$  est le potentiel atomique et  $\vec{E} \cdot \vec{x}$  le potentiel d'interaction avec le champ.

Le modèle de Lewenstein repose sur les approximations suivantes :

- Seul l'état fondamental de la structure atomique est considéré. Cette hypothèse est valable dans le régime d'ionisation tunnel : le laser n'induit pas de transfert de population significatif vers les états excités.
- L'électron est considéré libre dans le continuum. Le laser est supposé suffisamment intense pour qu'une fois libéré, l'électron ne ressente plus le potentiel coulombien du noyau : il s'agit de l'approximation de champ fort (souvent abrégée en "SFA" pour *Strong Field Approximation* en anglais), déjà évoquée dans l'approche classique.
- La déplétion du niveau fondamental est négligée. Nous considérerons en effet que l'éclairement du gaz cible est inférieur à son éclairement de saturation, de sorte que le taux d'ionisation reste faible.

Dans ces conditions, nous pouvons calculer le moment dipolaire :

$$\vec{x}(t) = \langle \psi(t) | \vec{x} | \psi(t) \rangle \quad (2.10)$$

$$= -i \int_0^t dt_i \int d\vec{p} d\vec{p}'_{\vec{p}+\vec{A}(t)} e^{iS(\vec{p}, t_i, t)} \vec{E}(t_i) d\vec{p}'_{\vec{p}+\vec{A}(t_i)} \quad (2.11)$$

avec  $\vec{p}$  le moment canonique,  $\vec{d}$  un dipôle de transition,  $\vec{A}$  le potentiel vecteur du champ électromagnétique et  $S$  l'intégrale d'action. Nous reconnaissons dans l'équation (2.11) les trois étapes du modèle semi-classique :

1. À l'instant d'ionisation  $t_i$ , une partie du paquet d'onde électronique, ayant une impulsion  $\vec{p} + \vec{A}(t_i)$ , passe d'un état lié à un état du continuum en réalisant une transition dipolaire d'amplitude  $\vec{E}(t_i) \vec{d}_{\vec{p} + \vec{A}(t_i)}$ .
2. Puis, entre les instants  $t_i$  et  $t_r$ , le paquet d'onde électronique se propage librement dans le continuum sous l'action du champ laser et acquiert alors une phase donnée par l'intégrale d'action  $S(\vec{p}, t_i, t_r) = - \int_{t_i}^{t_r} \left( \frac{(\vec{p} + \vec{A}(t'))^2}{2} + I_p \right) dt'$ .
3. Enfin, à l'instant de recombinaison  $t_r$ , le paquet d'onde électronique a une impulsion  $\vec{p} + \vec{A}(t_r)$  et comme le dipôle de recombinaison est le conjugué du dipôle de photoionisation, la probabilité de transition dipolaire électrique s'écrit  $\vec{d}_{\vec{p} + \vec{A}(t_r)}^*$ .

Pour obtenir le spectre harmonique, il suffit de calculer la transformée de Fourier du moment dipolaire :

$$\vec{x}(\omega_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} \vec{x}(t_r) e^{i\omega_q t_r} dt_r \quad (2.12)$$

$$= \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \int_0^{t_r} dt_i \int d\vec{p} \vec{b}(\vec{p}, t_i, t_r) e^{i\phi_q(\vec{p}, t_i, t_r)} \quad (2.13)$$

Nous pouvons reconsidérer l'équation (2.13) dans le cadre de la théorie des intégrales de chemin de Feynman [Salières et al. 2001]. Nous avons là une somme cohérente des contributions de tous les chemins quantiques reliant l'état initial à l'état final. Le poids de chaque contribution est un nombre complexe d'amplitude  $\vec{b}(\vec{p}, t_i, t_r)$  et de phase donnée par l'intégrale d'action classique suivant le chemin emprunté :

$$\phi_q(\vec{p}, t_i, t_r) = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left( \frac{(\vec{p} + \vec{A}(t'))^2}{2} + I_p \right) dt' \quad (2.14)$$

Parmi l'infinité de chemins quantiques possibles, nous pouvons chercher ceux qui dominent en appliquant le principe de la phase stationnaire. Le calcul de  $\vec{\nabla} \phi_q(\vec{p}, t_i, t_r) = 0$  mène à des équations de point selle dont la résolution permet de trouver  $(\vec{p}, t_i, t_r)$ . Deux trajectoires sont ainsi identifiées, correspondant à des temps d'excursion  $\tau = t_r - t_i$  courts et longs. Comme nous pouvons le voir sur la figure 2.4, les résultats obtenus sont très proches de ceux du modèle semi-classique à trois étapes : nous observons des instants d'ionisation et de recombinaison légèrement différents ainsi qu'une correction à la loi de la coupure.

Finalement, la figure 2.5 illustre la structure typique d'un spectre harmonique. Les ordres les plus bas sont générés par des processus multiphotoniques (voir l'annexe A) : leur intensité décroît selon une loi perturbative. Dans la région appelée "plateau", l'intensité est constante en fonction de l'ordre harmonique, puis décroît très rapidement au-delà de la fréquence de coupure.

### 2.1.3 L'accord de phase

Nous venons d'étudier la réponse d'un atome unique dans le cadre de l'approximation de champ fort. Or d'un point de vue macroscopique, le rayonnement harmonique est la somme cohérente des contributions de tous les atomes uniques éclairés par le laser. Par conséquent, si ces contributions ne sont pas en phase, des interférences destructives empêcheront l'émission harmonique. Une bonne compréhension de ce phénomène est essentielle pour expliquer les propriétés macroscopiques du rayonnement harmonique [Salières et al. 1995] et optimiser le rendement du processus de génération [Kazamias et al. 2003].

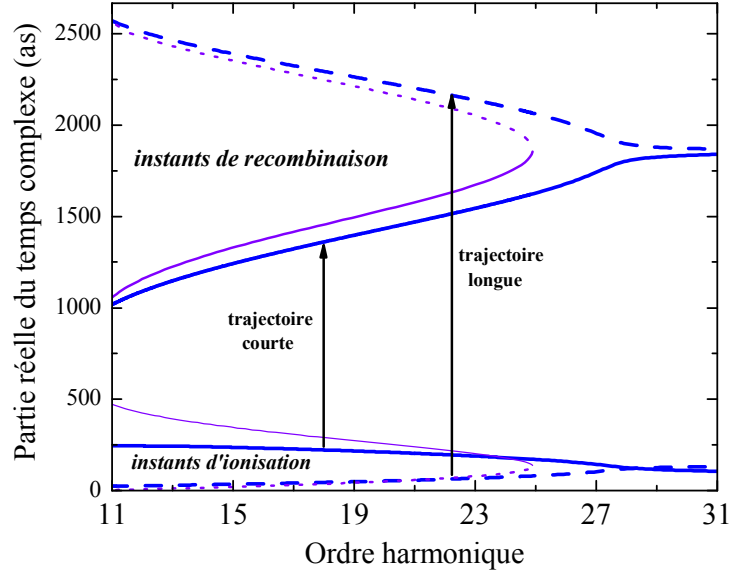


FIGURE 2.4 – Partie réelle des instants d'ionisation et de recombinaison en fonction de l'ordre harmonique, calculés dans l'argon à  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> par résolution des équations complexes de point selle (lignes épaisses bleues). Les trajectoires courtes sont représentées en traits continus et les longues en tirets. Les lignes fines violettes sont les résultats du calcul classique. Figure extraite de [Mairesse 2005].

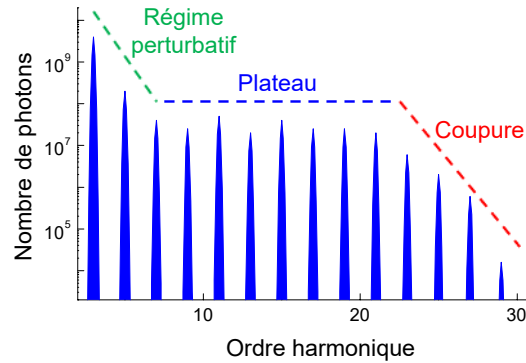


FIGURE 2.5 – Spectre harmonique typique adapté de [Salières et Lewenstein 2001].

Intéressons-nous pour commencer à la phase atomique donnée par l'équation (2.14). [Varjú et al. 2005] ont mis en évidence la dépendance quasiment linéaire de celle-ci vis à vis de l'intensité infrarouge pour les harmoniques du plateau (figure 2.6) :

$$\phi_q^j = -\alpha_q^j I \quad (2.15)$$

où  $j$  désigne la trajectoire considérée. Notons que la pente obtenue pour la trajectoire longue  $\alpha_q^{longue} \approx -25 \times 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W est nettement plus forte que celle trouvée pour la trajectoire courte  $\alpha_q^{courte} \approx -1 \times 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W. Par ailleurs, la valeur de  $\alpha_q^{courte}$  croît avec l'ordre harmonique tandis que celle de  $\alpha_q^{longue}$  décroît. Cette remarque aura un impact sur les profils spatiaux des harmoniques. En effet, au niveau macroscopique, dans le cas d'un profil transverse d'intensité gaussien, la phase atomique introduit une courbure du front de phase, ce qui va modifier la divergence des harmoniques. Ainsi, dans le plateau, les trajectoires courtes seront moins divergentes que les longues, et dans la coupure les deux finissent par se confondre ( $\alpha_q^{courte}$  et  $\alpha_q^{longue}$  convergent vers une valeur de l'ordre de  $-12 \times 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W).

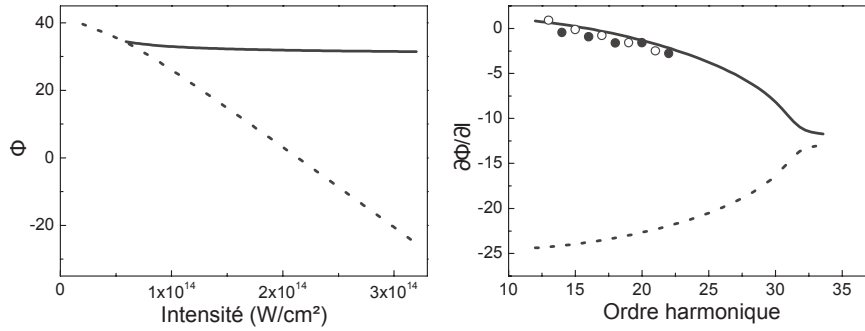


FIGURE 2.6 – Figure adaptée de [Varjú et al. 2005]. À gauche : évolution de la phase atomique en fonction de l'intensité laser, calculée pour l'harmonique 19 générée dans l'argon. À droite : dérivée de la phase atomique par rapport à l'intensité laser, en fonction de l'ordre harmonique, pour une intensité laser de  $1.5 \times 10^{-14} \text{ W/cm}^2$ . Les traits pleins (respectivement pointillés) représentent la trajectoire courte (respectivement longue). Les cercles pleins (respectivement vides) proviennent de mesures expérimentales (respectivement de simulations numériques).

Revenons à notre problème principal : pour observer macroscopiquement un rayonnement harmonique, il faut que toutes les contributions des atomes uniques soient en phase. La phase atomique que nous venons de détailler aura un effet important, mais ce n'est pas la seule à prendre en compte : les phases associées à la dispersion des particules neutres et chargées, ainsi que la phase de Gouy peuvent également jouer un rôle dans la somme cohérente des contributions. La condition d'accord de phase pour l'harmonique  $q$  s'écrit généralement :

$$\vec{k}_q = q\vec{k}_1 + \vec{\Delta k} \quad (2.16)$$

où  $\vec{\Delta k}$  est le désaccord de phase regroupant les quatre phases précédemment mentionnées. Notons que  $\vec{\Delta k}$  dépend de l'ordre harmonique. Néanmoins, dans le plateau (et en l'absence de toute résonance), toutes les harmoniques présentent un comportement similaire. [Balcou et al. 1997] ont évalué l'évolution spatiale de ce désaccord de phase dans le cas des trajectoires courtes et longues séparément. La figure 2.7 montre les cartes obtenues pour l'harmonique 45.

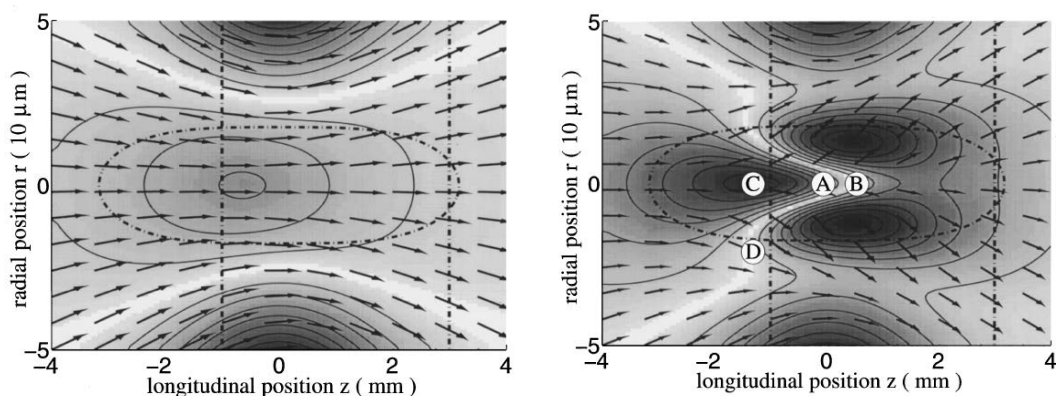


FIGURE 2.7 – Figure adaptée de [Balcou et al. 1997]. Désaccord de phase pour la trajectoire courte à gauche et longue à droite. Le laser se propage de la gauche vers la droite et son foyer se situe en  $z = 0$ . Les zones les plus claires correspondent à un bon accord de phase. Les flèches représentent la direction d'émission du champ harmonique. Les lignes en pointillés verticales indiquent les position des optima de génération d'harmoniques. Le calcul a été réalisé à une intensité de  $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  dans le néon, pour l'harmonique 45 et avec un paramètre confocal de 5 mm.

Pour la trajectoire courte, le désaccord de phase est maximal vers  $z \approx -0.5$  mm. Si nous nous éloignons trop du foyer, l’éclairement diminue et la génération sera moins efficace. Les auteurs montrent que l’optimum se situe en aval du foyer à  $z = 3$  mm, où le désaccord de phase reste faible sur un assez grand volume. C’est donc à cet endroit que nous devons placer notre jet de gaz pour maximiser le rendement harmonique dans ce cas.

Concernant la trajectoire longue, nous observons une structure un peu plus complexe. Le désaccord de phase est minimal au niveau des zones B et D. La seconde étant bien plus étendue que la première, elle contribuera majoritairement à l’émission harmonique. Cette fois-ci, l’optimum se situe donc en amont du foyer à  $z = -1$  mm.

En conclusion, nous pourrions expérimentalement favoriser les trajectoires courtes (respectivement longues) en focalisant en amont (respectivement en aval) du jet de gaz.

## 2.2 Aspects expérimentaux

Intéressons-nous dans cette section à la mise en œuvre expérimentale de la génération d’harmoniques d’ordre élevé dans les gaz. Nous décrivons ici le dispositif utilisé lors de toutes les expériences réalisées à Saclay présentées dans ce manuscrit.

### 2.2.1 Le système laser

LUCA (Laser Ultra-Court Accordable) est une chaîne laser amplifiée par la technique d’amplification à dérive de fréquence (*Chirped Pulse Amplification*) [Strickland et Mourou 1985] employant le titane-saphir comme milieu à gain. Nous partons d’un oscillateur commercial lasant à 800 nm et délivrant des impulsions de 30 fs à une cadence de 76 MHz. Dans un premier temps, ces impulsions sont étalées temporellement à l’aide d’un étireur de Öffner. Elles sont ensuite amplifiées d’abord par une cavité régénérative (gain  $\times 10^6$ ) puis par un amplificateur multi-passage (gain  $\times 20$ ), tous deux pompés par des lasers Nd:YAG doublés en fréquence, eux-mêmes pompés par des lampes flash à 20 Hz. Après ces deux étages d’amplification, le faisceau subit une étape de filtrage modal par une fibre creuse de longueur 30 cm et de diamètre 128  $\mu\text{m}$ , permettant de sélectionner un mode de propagation très proche d’un mode gaussien pur [Mahieu et al. 2015]. Enfin, les impulsions sont recomprimées dans un compresseur à réseaux. Ainsi, le laser LUCA délivre des impulsions de profils temporel et spatial gaussiens, d’énergie 35 mJ et de durée 60 fs, à un taux de répétition de 20 Hz et à une longueur d’onde de 792 nm. La qualité spatiale du faisceau est un atout majeur de LUCA pour nos expériences mettant en jeu des modes de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss.

### 2.2.2 La génération d’harmoniques d’ordre élevé

Les principaux éléments permettant d’ajuster les paramètres laser afin de contrôler la génération d’harmoniques d’ordre élevé sont représentés sur la figure 2.8.

Un iris et un atténuateur constitué d’une lame demi-onde suivie d’une paire de polariseurs (lames à l’incidence de Brewster) permettent de régler respectivement le diamètre et l’énergie du faisceau infrarouge. Une lentille sert ensuite à focaliser le laser dans le jet de gaz. Dès lors, nous travaillons sous vide, d’une part car le faisceau infrarouge est suffisamment intense lorsqu’il est focalisé pour ioniser l’air ou simplement perdre sa structure gaussienne spatiale et temporelle par effets non-linéaires, et d’autre part car le rayonnement harmonique (dans l’extrême ultraviolet) serait très vite absorbé par l’air. Le gaz servant à la génération est délivré par une vanne pulsée synchronisée sur la cadence du laser grâce à un système piézo-électrique. Ceci permet d’injecter environ 10 mbar de gaz tout en limitant la pression résiduelle dans la chambre à vide. Notons par ailleurs que l’orifice de la vanne est choisi suffisamment petit (150  $\mu\text{m}$ ) pour que le jet de gaz ait une extension supersonique. Nous disposons ainsi d’une longueur d’interaction (dans la

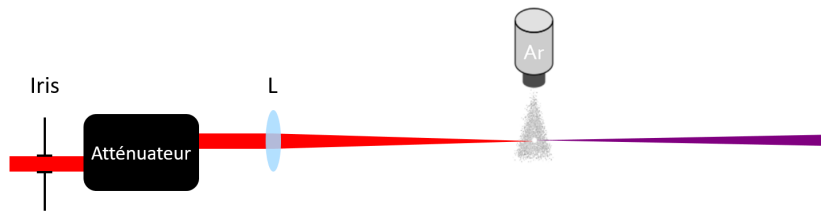


FIGURE 2.8 – Montage expérimental de génération d'harmoniques d'ordre élevé. La lumière se propage de la gauche vers la droite. En rouge : le faisceau fondamental issu du laser LUCA. En violet : le faisceau harmonique généré. L : lentille convergente. Ar : jet de gaz d'argon. Après la traversée du jet, il reste beaucoup d'infrarouge mais nous avons choisi de ne pas le représenter ici par souci de clarté.

dimension longitudinale) assez courte, limitant les effets d'accord de phase qui pourraient nuire à l'efficacité de la génération.

Typiquement, nous parvenons à générer efficacement des harmoniques avec le laser LUCA dans l'argon (ce gaz est intéressant car il est simple, peu coûteux et possède une grande section efficace) pour un diamètre de faisceau de l'ordre de 10 mm, une énergie d'environ 3 mJ et une focale d'un mètre.

### 2.2.3 Le spectro-photomètre

Pour les expériences présentées dans ce manuscrit, nous avons besoin d'imager le profil spatial d'intensité des harmoniques séparément. Pour ce faire, nous nous sommes inspirés des travaux de [Ruf 2012] pour concevoir un spectromètre de photons réalisant une imagerie de qualité. Le dispositif est illustré sur la figure 2.9.

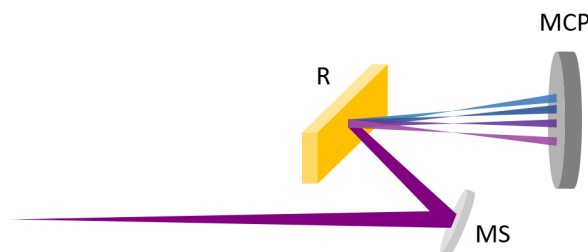


FIGURE 2.9 – Spectromètre imageur de photons inspiré de [Ruf 2012]. MS : miroir sphérique en  $B_4C$ . R : réseau plan en or. MCP : galettes de micro-canaux (*Micro-Channel Plates*) associées à un écran de phosphore. Sur cette figure, la lumière se propage du bas à gauche vers le haut à droite.

L'élément clé de tout spectromètre est naturellement le réseau de diffraction. Habituellement, la communauté utilise des réseaux cylindriques à pas variable, éclairés en incidence rasante pour optimiser la réflectivité. Ces réseaux focalisent dans une seule dimension, celle qui disperse le spectre harmonique, formant alors une image spatio-spectrale (c'est-à-dire sur laquelle nous lisons la fréquence dans une dimension et la divergence dans l'autre : voir la figure 2.10). Ici, nous n'avons pas besoin d'un excellent pouvoir de résolution ; au contraire, nous cherchons à minimiser le couplage spatio-spectral afin d'obtenir une image spatio-spatiale des harmoniques. Il nous faut pour cela maximiser (en veillant à ce que les harmoniques restent séparables) la divergence totale à mi-hauteur des pics de diffraction qui est donnée par [Gross 2005] :

$$\Delta\theta_{1/2} = \frac{\lambda}{2gN} \quad (2.17)$$



où  $g$  est le pas du réseau et  $N$  le nombre de traits éclairés. Ainsi, la finesse du réseau augmente avec le nombre de traits contribuant au phénomène d'interférence. Nous devons donc illuminer le moins de traits possible. À cette fin :

1. Nous choisirons un réseau plan (pour la qualité d'imagerie) en or (pour la réflectivité dans l'extrême ultraviolet) de 600 traits/mm. Ce réseau présente également l'avantage d'être environ vingt fois moins onéreux que les réseaux cylindriques à pas variables couramment utilisés pour les expériences de génération d'harmoniques.
2. Nous re-focaliserons au préalable notre faisceau harmonique et placerons le réseau au plus près du foyer en veillant naturellement à rester sous le seuil de dommage du réseau (environ  $15 \text{ mJ/cm}^2$ ). Le fait d'illuminer le réseau en lumière convergente contribue, en enrichissant le faisceau en composantes spatiales, au rendu spatio-spatial de l'image.

Toujours dans un souci de déformer le moins possible notre image, nous ferons travailler notre réseau en incidence proche de la normale (au détriment de la réflectivité).

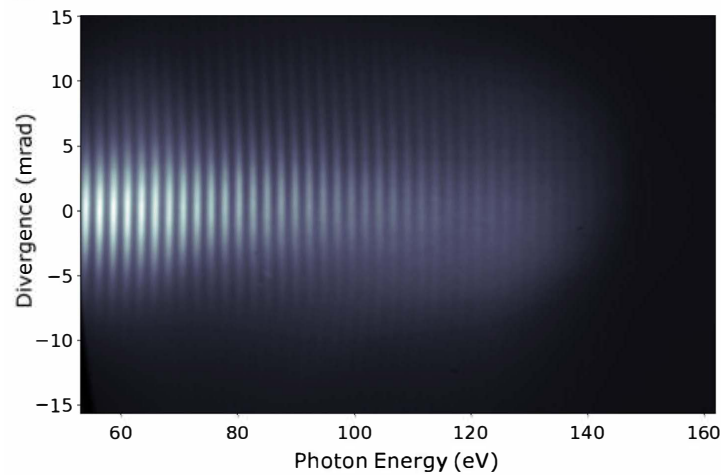


FIGURE 2.10 – Distribution spatio-spectrale d'intensité. Figure tirée de [Gonzalez et al. 2018].

Nous devons donc également choisir une optique de focalisation. Tout d'abord, le domaine spectral exploré (l'extrême ultraviolet) nécessite que cette optique travaille en réflexion. Ensuite, si nous voulons par la suite observer des modes de Laguerre-Gauss, nous devons à tout prix minimiser l'astigmatisme. Un miroir sphérique en incidence quasi-normale répond à ce critère de manière tout à fait acceptable. Là encore, le choix de l'incidence est défavorable au flux de photons. Un revêtement en  $\text{B}_4\text{C}$  offre une réflectivité de 10 à 30% jusqu'à l'harmonique 19 pour une incidence de  $10^\circ$  (voir la figure 2.11).

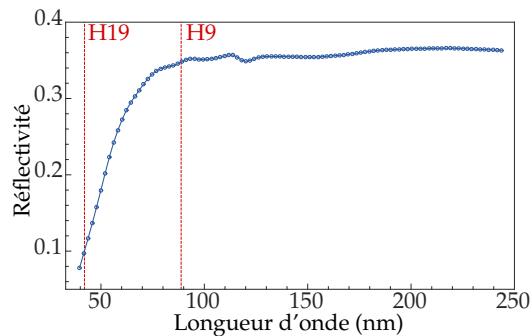


FIGURE 2.11 – Réflectivité mesurée du miroir en  $\text{B}_4\text{C}$  en fonction de la longueur d'onde. L'angle d'incidence est de  $10^\circ$ . Figure adaptée de [Ruf 2012].

Le dernier objectif de notre spectromètre est bien évidemment de recueillir les photons harmoniques. Ceci est réalisé par un assemblage de galettes de micro-canaux et d'un écran de phosphore, permettant de convertir nos photons harmoniques d'abord en électron puis en lumière visible. Nous enregistrons finalement l'image formée sur le phosphore à l'aide d'une caméra CCD (*Charge-Coupled Device*).

Comme nous le voyons sur la figure 2.12, notre spectro-photomètre fournit une qualité d'imagerie satisfaisante et présente de plus l'avantage d'être peu coûteux. En revanche, sa transmission est assez faible en raison des deux réflexions en incidence normale, mais notre génération d'harmoniques avec LUCA est largement assez efficace pour recueillir un signal suffisant. La méthode de calibration de ce spectromètre est détaillée dans [Géneaux 2016].

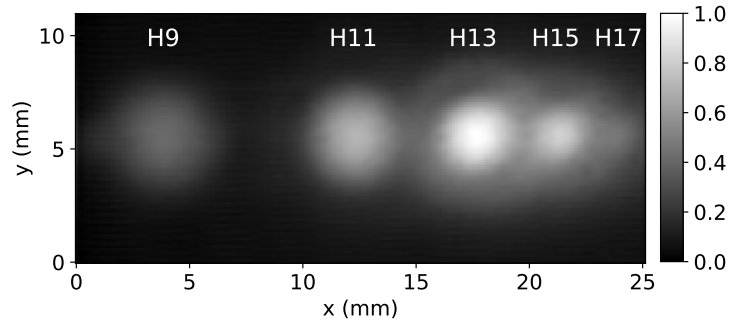


FIGURE 2.12 – Spectre harmonique obtenu avec notre spectro-photomètre.





## Deuxième partie

# La génération d'harmoniques avec un faisceau portant du moment angulaire

Dans la partie **I**, nous avons défini les deux notions centrales de cette thèse, que sont le moment angulaire de la lumière et la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Nous pouvons alors les assembler dans cette partie **II** et présenter des résultats sur la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau portant du moment angulaire, posant ainsi les jalons des principaux travaux de cette thèse, exposés dans les parties **III** et **IV**.

Cette partie s'articule autour de trois chapitres relativement courts. Les deux premiers traitent de la génération d'harmoniques avec un faisceau de Laguerre-Gauss, et le troisième de la génération avec un faisceau polarisé elliptiquement. La plupart des résultats discutés ici synthétisent ceux issus de la précédente thèse sur le sujet au sein du groupe [[Géneaux 2016](#)] ou de la littérature, et constituent donc un pré-requis pour comprendre les travaux originaux présentés dans les parties suivantes de ce manuscrit. La conclusion de cette partie mettra en lumière nos motivations pour étudier les schémas de génération d'harmoniques à deux faisceaux au cœur de cette thèse.



## Chapitre 3

# Conservation de l'indice azimutal lors de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss

Les propriétés des modes de Laguerre-Gauss les rendent intéressants pour de nombreuses applications telles que l'information quantique [Wang et al. 2012, Borges et al. 2010, Leach et al. 2010], la microscopie de contraste de phase [Fürhapter et al. 2005] ou de déplétion par émission stimulée [Hell et Wichmann 1994], la manipulation de microparticules [Yao et Padgett 2011], la structuration de matériaux [Toyoda et al. 2012]... Tous ces travaux ont été réalisés dans le domaine visible ou infrarouge. Pourtant, nombre d'entre elles gagneraient en résolution ou en efficacité en passant dans l'extrême ultraviolet.

Nous avons vu dans le chapitre 1 comment synthétiser des faisceaux portant du moment angulaire orbital dans les domaines du visible et de l'infrarouge. Malheureusement, ces techniques ne peuvent être directement appliquées dans l'extrême ultraviolet (à cause de la forte absorption dans cette gamme spectrale). Les lasers à électrons libres et les sources basées sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé permettent la conversion vers les courtes longueurs d'ondes. Si les premiers ont récemment prouvé leur capacité de générer des faisceaux XUV portant du moment angulaire orbital [Hemsing et al. 2013, Ribič et al. 2017], les sources harmoniques présentent cependant l'avantage d'être beaucoup plus compactes. Les harmoniques héritent de la plupart des propriétés du fondamental, comme la cohérence, la durée ou la divergence. De plus, le transfert de moment angulaire orbital lors de processus non-linéaires d'ordres plus faibles, comme la génération de seconde harmonique [Dholakia et al. 1996, Courtial et al. 1997, Roger et al. 2013], les mélanges à trois ondes [Caetano et al. 2002, Camper et al. 2017] ou encore l'effet Raman [Strohaber et al. 2012], a été démontré. Ainsi, la génération d'harmoniques se présente comme un candidat de choix pour transférer les propriétés des faisceaux de Laguerre-Gauss de l'infrarouge à l'extrême ultraviolet.

Nous proposons donc dans ce chapitre d'étudier la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Nous nous concentrerons ici sur la conservation de l'indice azimutal, autrement dit sur le transfert de moment angulaire orbital aux harmoniques. D'autres applications que celles citées précédemment pourraient bénéficier de ces résultats, comme la découverte de nouvelles formes de dichroïsmes [van Veenendaal et McNulty 2007, Zambrana-Puyalto et al. 2014] ou encore l'émergence de nouveaux outils de diagnostic ultra-rapides [Hernández-García et al. 2013, Pariente et Quéré 2015].

### 3.1 Profils spatiaux d'harmoniques générées à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss

Commençons par réaliser l'expérience de génération d'harmoniques d'ordres élevé avec un faisceau de Laguerre-Gauss. Après avoir présenté le montage expérimental, nous décrirons les profils d'intensité obtenus pour chaque configuration.

#### 3.1.1 Dispositif expérimental

Les expériences décrites dans ce chapitre ont été réalisées juste avant le début de cette thèse [Géneaux 2016]. Le système d'imagerie XUV était alors différent de celui présenté dans le chapitre 2. L'ensemble du dispositif expérimental est illustré sur la figure 3.1.

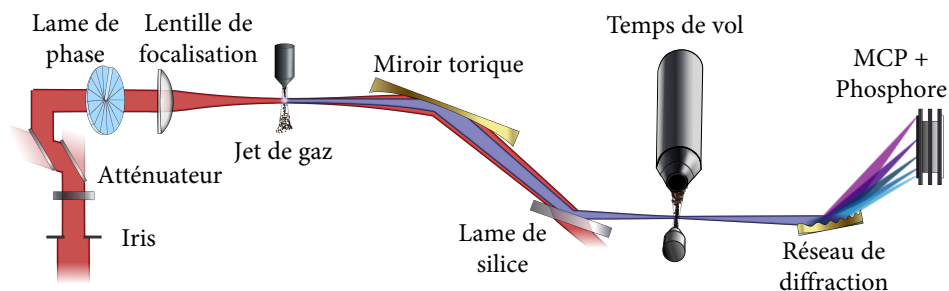


FIGURE 3.1 – Schéma du montage expérimental utilisé lors des expériences de génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Figure adaptée de [Géneaux 2016].

Comme dans toute expérience de génération d'harmoniques, un iris, un atténuateur constitué d'une lame demi-onde et d'un polariseur (deux lames à l'incidence de Brewster), ainsi qu'une lentille convergente permettent d'optimiser les paramètres du faisceau infrarouge pour la génération. Afin de synthétiser des faisceaux de Laguerre-Gauss, la technique reposant sur des éléments optiques diffractifs est utilisée. Disposant de deux lames de phase en spirale, l'une allant de 0 à  $2\pi$  et l'autre de 0 à  $4\pi$  (pour  $\lambda = 800$  nm), nous pouvons produire les modes infrarouges  $\ell_1 = 1$ ,  $\ell_1 = 2$  et  $\ell_1 = 3$  (en associant les deux lames dans le même sens). Nous supposons ici que l'indice radial des faisceaux ainsi obtenus est nul.

Une fois les harmoniques générées dans le jet d'argon, elles sont focalisées au niveau d'une bouteille magnétique à temps de vol à l'aide d'un miroir torique. Ces éléments ne sont pas nécessaires pour les expériences décrites ici. Ensuite, le faisceau XUV est imagé sur des galettes de micro-canaux associées à un écran de phosphore grâce à un réseau de diffraction cylindrique, qui focalise et sépare les composantes spectrales dans la dimension horizontale. Afin de détériorer le moins possible le profil spatial des harmoniques, le plan de détection est placé légèrement hors foyer (voir la thèse de [Géneaux 2016]).

#### 3.1.2 Résultats obtenus

La figure 3.2 présente les profils spatiaux d'intensité obtenus pour trois valeurs différentes du moment angulaire orbital du faisceau infrarouge.

Les harmoniques présentent dans chaque cas un profil d'intensité annulaire, légèrement déformé à cause des optiques astigmatiques utilisées (*i.e.* le miroir torique et le réseau cylindrique). Cependant, ne disposant pas d'information quant à leur profil de phase, nous ne pouvons affirmer qu'il s'agit de modes de Laguerre-Gauss et donc encore moins conclure qu'elles portent du moment angulaire orbital.

Néanmoins, nous remarquons que pour une charge topologique infrarouge donnée, toutes les harmoniques ont la même taille. De plus, la taille des anneaux augmente légèrement avec

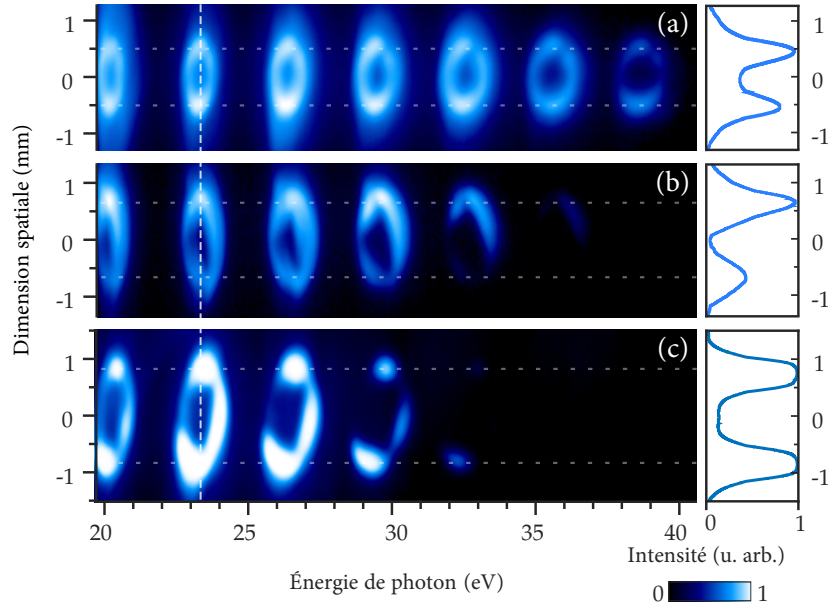


FIGURE 3.2 – Intensités normalisées des harmoniques 13 à 25 générées à partir d'un faisceau fondamental portant une charge topologique (a)  $\ell_1 = 1$ , (b)  $\ell_1 = 2$  et (c)  $\ell_1 = 3$ . Sur la droite sont représentées les coupes d'intensité le long de la ligne en pointillés blanche verticale. Les positions moyennes des maxima des anneaux sont repérées par les lignes en pointillés horizontales.

$\ell_1$ . Nous verrons dans la section 3.2 comment exploiter cette signature pour établir la règle de transfert du moment angulaire orbital lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Enfin, il est intéressant de noter que lorsque l'indice azimutal du faisceau pilote augmente, son intensité pic diminue (voir le chapitre 1). C'est pourquoi nous observons une diminution de l'énergie de coupure quand  $\ell_1$  augmente.

## 3.2 Conservation du moment angulaire orbital

Afin de déterminer si nos harmoniques portent du moment angulaire orbital et en quelle quantité, nous pouvons nous appuyer sur les simulations numériques de Thierry Auguste ainsi que sur la taille des anneaux générés.

### 3.2.1 Simulations numériques

Une simulation complète de l'expérience (même la lame de phase a été simulée), basée sur le modèle quantique de la génération d'harmoniques, a été réalisée (pour  $\ell_1 = 1$ ). Le champ obtenu en sortie du milieu de génération pour l'harmonique 15 est représenté sur la figure 3.3.

Le profil d'intensité exhibe une forme annulaire comme attendu. Notons cependant la présence de deux anneaux, l'un à l'intérieur et l'autre à l'extérieur de l'anneau principal, tous deux d'intensité largement moindre que l'anneau central. Nous verrons dans le chapitre 4 à quoi est due l'existence de ces anneaux supplémentaires. Quant à la phase, nous reconnaissons bien la structure hélicoïdale d'un mode de Laguerre-Gauss d'indice azimutal  $\ell_{15} = 15$ .

Propageons ensuite le champ harmonique jusqu'au détecteur. Le profil d'intensité résultant pour l'harmonique 33 est illustré sur la figure 3.4 dans le cas où le faisceau infrarouge porte un moment angulaire orbital de 1 et de 2.

Dans les deux configurations, nous obtenons un anneau principal bien homogène, signe que l'indice azimutal est bien défini, ainsi qu'un anneau externe moins intense, dû à une légère impureté du mode infrarouge en termes d'indice radial d'une part, et à la contribution de la

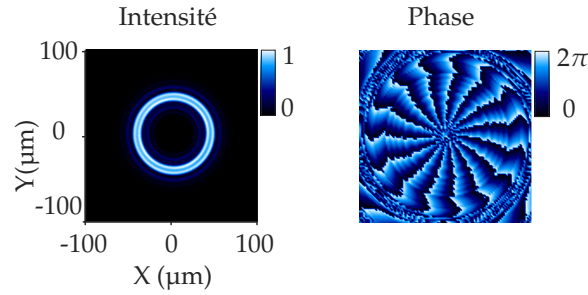


FIGURE 3.3 – Profils d'intensité et de phase en champ proche calculés numériquement pour l'harmonique 15 générée à partir d'un faisceau infrarouge d'indice azimutal 1.

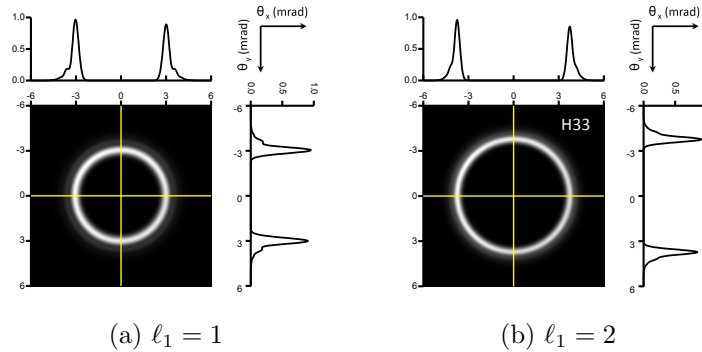


FIGURE 3.4 – Profils d'intensité obtenus en champ lointain pour l'harmonique 33 générée à partir de  $\ell_1 = 1$  (a) et  $\ell_1 = 2$  (b). Des coupes sont réalisées le long des lignes jaunes.

trajectoire longue d'autre part, comme nous le verrons dans le chapitre 4. Dans nos expériences, les conditions de focalisation sont telles que la trajectoire longue n'est pas présente.

Enfin, la figure 3.5 présente l'évolution de la taille des anneaux en fonction de l'ordre harmonique, dans le cas de moments angulaires orbitaux de 1 et 2 pour l'infrarouge. Nous obtenons des résultats en excellent accord avec les observations expérimentales : pour une charge topologique infrarouge donnée, nous obtenons des anneaux tous de même diamètre (hormis un petit saut entre les harmoniques 25 et 27 que nous pouvons attribuer à une interférence entre trajectoires quantiques au voisinage de la coupure [Zaïr et al. 2008]). Notons que ceux générés à partir de  $\ell_1 = 2$  sont environ 1.4 fois plus grands que ceux générés à partir de  $\ell_1 = 1$ .

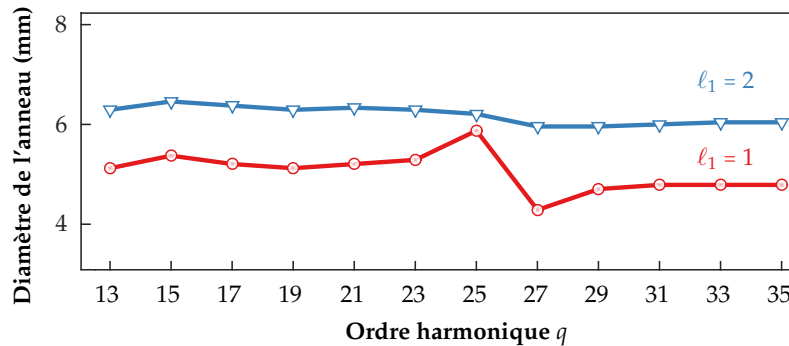


FIGURE 3.5 – Diamètre des anneaux harmoniques en champ lointain pour  $\ell_1 = 1$  et  $\ell_1 = 2$ .

Ainsi, il semble bien que les anneaux observés expérimentalement soient effectivement des modes de Laguerre-Gauss (quasiment) purs, d'indices azimutal  $\ell_q = q\ell_1$  et radial  $p = 0$ . Nous allons le vérifier par des calculs analytiques.

### 3.2.2 Caractérisation de l'indice azimutal dans l'extrême ultraviolet

Il existe plusieurs techniques permettant de caractériser le moment angulaire orbital des harmoniques. La plupart consiste en des mesures de la phase spatiale, soit par reconstruction du front d'onde avec un analyseur de Hartmann [Article 1], soit par interférométrie avec un faisceau harmonique de référence gaussien [Gariépy et al. 2014].

La méthode proposée ici se base uniquement sur les profils d'intensité des harmoniques. Elle présente l'avantage d'être très peu coûteuse et extrêmement simple de mise en œuvre. En revanche, elle prend pour acquise l'hypothèse que les anneaux constituent des modes de Laguerre-Gauss purs.

Dans le chapitre 1, nous avons établi l'expression du rayon d'intensité maximale d'un mode de Laguerre-Gauss d'indice radial nul (équation (1.21)). Pour l'harmonique  $q$  observée à la distance  $z$  du foyer, à la longueur d'onde  $\lambda_q$  et avec l'indice azimutal  $\ell_q$ , ce rayon s'écrit :

$$R_{max}(\lambda_q, \ell_q, z) = w(\lambda_q, z) \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} = w(\lambda_q, z=0) \sqrt{1 + \left( \frac{z\lambda_q}{\pi w(\lambda_q, z=0)^2} \right)^2} \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} \quad (3.1)$$

Émettons à présent l'hypothèse que les zones de haute intensité sont les mêmes pour les harmoniques et l'infrarouge :

$$w(\lambda_q, z=0) \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} = w(\lambda_1, z=0) \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} \quad (3.2)$$

Ce postulat est tout à fait raisonnable puisque la génération d'harmoniques est un processus extrêmement non-linéaire et est donc plus efficace au niveau des zones de forte intensité.

Puis remplaçons dans l'équation (3.1) pour obtenir :

$$R_{max}(\lambda_q, \ell_q) = w(\lambda_1, z=0) \sqrt{1 + \left( \frac{z\lambda_1}{\pi w(\lambda_1, z=0)^2} \frac{\ell_q}{q\ell_1} \right)^2} \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} \quad (3.3)$$

De manière évidente, pour une valeur donnée de  $\ell_1$ , l'unique solution produisant des anneaux harmoniques tous de même taille est donnée par :

$$\ell_q = q\ell_1 \quad (3.4)$$

L'observation expérimentale est donc compatible avec la conservation de l'indice azimutal lors de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Cette loi peut s'interpréter en termes de photons : si l'émission de l'harmonique  $q$  correspond à l'absorption de  $q$  photons fondamentaux (conservation de l'énergie), alors le moment angulaire orbital du photon harmonique est égal à celui d'un photon infrarouge multiplié par le nombre de photons absorbés.

Compte de tenu de (3.4), l'équation (3.3) devient donc :

$$R_{max}(\lambda_q, \ell_q) = w(\lambda_1, z=0) \sqrt{1 + \left( \frac{z\lambda_1}{\pi w(\lambda_1, z=0)^2} \right)^2} \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} \quad (3.5)$$

Nous remarquons alors que lorsque l'on passe de  $\ell_1 = 1$  à  $\ell_1 = 2$ , la taille des anneaux harmoniques est multipliée par  $\sqrt{2} \simeq 1.4$ , conformément aux résultats des simulations numériques présentées plus haut.

En conclusion, ces travaux ont démontré la possibilité de transférer du moment angulaire orbital de l'infrarouge à l'extrême ultraviolet grâce à la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Nous nous sommes focalisés ici sur l'indice azimutal des modes de Laguerre-Gauss et avons obtenu des valeurs élevées de celui-ci du fait de la loi de conservation (3.4). Nous verrons respectivement dans les chapitres 4 et 9 si l'indice radial est également conservé et comment générer des harmoniques de charges topologiques arbitraires.





## Chapitre 4

# L'indice radial : un nombre quantique non conservé ?

Nous venons de montrer dans le chapitre 3 que l'indice azimutal était conservé lors de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Mais qu'en est-il de l'indice radial? Longtemps oublié (y compris dans les domaines visible et infrarouge), il n'a connu un regain d'intérêt que très récemment et a même été surnommé "the forgotten quantum number" par [Karimi et al. 2014a] et [Plick et Krenn 2015]. Ces deux équipes se sont attachées à associer une observable à ce nombre quantique en réalisant des interférences de Hong-Ou-Mandel [Karimi et al. 2014b] et à lui trouver une signification physique [Plick et Krenn 2015]. Il correspondrait au moment hyperbolique du photon et serait donc associé à des phénomènes de dilatation.

Cet indice radial trouve pourtant des applications intéressantes, notamment en optique quantique où il a permis de construire des états intriqués de dimensions considérables [Salakhutdinov et al. 2012, Krenn et al. 2014]. Les modes d'indice radial élevé présentent de plus des propriétés d'auto-régénération similaires aux faisceaux de Bessel [Mendoza-Hernández et al. 2015], c'est-à-dire que même si une partie du faisceau se trouve endommagée, le mode se reconstruit au cours de sa propagation. Cette propriété est particulièrement intéressante dans le domaine des communications. Par ailleurs, [Granata et al. 2010] ont montré que les modes d'indice élevé sont moins sensibles au bruit thermique qui agite les miroirs et offrent donc une meilleure stabilité interférométrique pour la détection d'ondes gravitationnelles.

Dans ce chapitre, nous montrerons comment contrôler l'indice radial des harmoniques d'ordre élevé par la sélection des trajectoires quantiques. Notre étude du contenu modal des harmoniques dévoilera que ce nombre quantique est transféré aux harmoniques de manière plus complexe que l'indice azimutal. Les résultats présentés dans ce chapitre ont été publiés dans l'article 2.

### 4.1 Simulations numériques : rôle de la phase atomique dans la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss

Dans le chapitre 3, nous avons généré des faisceaux de Laguerre-Gauss dans l'extrême ultraviolet ayant un indice radial nul. Du point de vue expérimental, nous ne disposons pas de lames de phase permettant de synthétiser des modes infrarouges d'indices supérieurs. Néanmoins, nous avons remarqué dans le chapitre précédent que les simulations numériques faisaient apparaître une faible contribution de modes d'indices radiaux non nuls. Nous rechercherons donc dans cette section une explication à cette observation afin de trouver une méthode pour contrôler le contenu radial des faisceaux harmoniques.

### 4.1.1 Comment générer des modes XUV d'indice radial non nul ?

Tout d'abord, la génération d'harmoniques est un processus de champ fort ; partons donc du faisceau pilote. Une modélisation numérique de notre lame de phase, censée créer un mode de Laguerre-Gauss ( $\ell = 1, p = 0$ ), nous permet de remarquer qu'en réalité, notre faisceau infrarouge n'est pas exactement un mode pur. La figure 4.1 présente le profil d'intensité du faisceau infrarouge au foyer ainsi que les coefficients de la décomposition modale sur la base  $(\ell, p)$  obtenus.

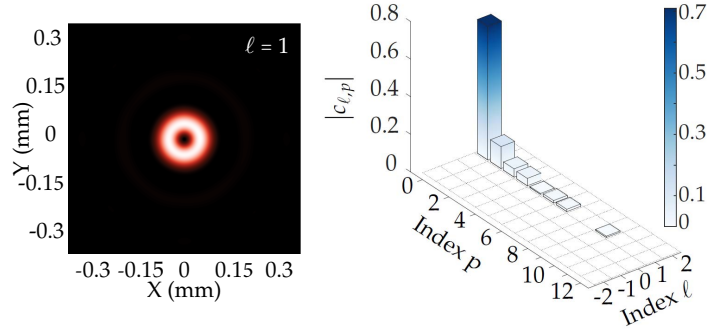


FIGURE 4.1 – Modélisation de la lame de phase en spirale  $\ell = 1$  : profil d'intensité du faisceau infrarouge au foyer de génération (à gauche) et décomposition sur la base des modes de Laguerre-Gauss (à droite).

Comme le montre le profil d'intensité, il est impossible de discerner à l'œil nu des anneaux d'ordres supérieurs. Cependant, notre lame de phase ne synthétise pas un mode ( $\ell = 1, p = 0$ ) pur : si ce mode est largement majoritaire, nous constatons également la présence de modes ( $\ell = 1, p > 0$ ). Ceci peut être imputé au procédé de fabrication de la lame : son épaisseur ne décrit pas une spirale continue mais seize marches d'escalier. Elle ne crée donc pas parfaitement le profil de phase en  $\ell\phi$  attendu.

Intéressons-nous à présent à la génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir de ce faisceau infrarouge. Comme nous l'avons précisé dans l'introduction de ce chapitre, l'indice radial des modes de Laguerre-Gauss est associé à une dilatation selon la coordonnée radiale. Dans le processus de génération d'harmoniques, nous pouvons identifier deux effets conduisant à une modification radiale du champ :

- La non-linéarité : la génération nécessitant de fortes intensités, le profil harmonique sera davantage piqué autour des maxima que celui de l'infrarouge. Cet effet aura plutôt tendance à réduire la contribution des modes d'indices radiaux non nuls, les anneaux d'ordres supérieurs étant nettement moins intenses que l'anneau d'ordre 0.
- La phase atomique : nous avons vu dans le chapitre 2 que lors de sa propagation dans le continuum, l'électron acquiert une phase approximativement proportionnelle à l'intensité infrarouge  $\phi_{at}(r, \theta) = \alpha_{traj} I_{IR}(r, \theta)$ , où le coefficient  $\alpha_{traj}$  dépend de la trajectoire quantique. Pour un faisceau de Laguerre-Gauss, l'intensité dépend fortement de la coordonnée radiale. Cette phase spatiale peut donc créer une forme de dilatation et ainsi modifier le contenu modal du champ harmonique.

### 4.1.2 Simulations numériques

Si les conséquences du premier effet décrit ci-dessus sont assez intuitives, le rôle de la phase atomique est moins aisé à prévoir. Nous avons vu dans le chapitre 2 qu'il était possible de sélectionner expérimentalement l'une ou l'autre des deux premières trajectoires quantiques en jouant sur les conditions de focalisation. Afin de mieux comprendre cet effet, nous avons réalisé des simulations numériques, basées sur l'approximation de champ fort et tenant compte des effets macroscopiques (accord de phase et propagation), que nous présentons sur la figure 4.2.

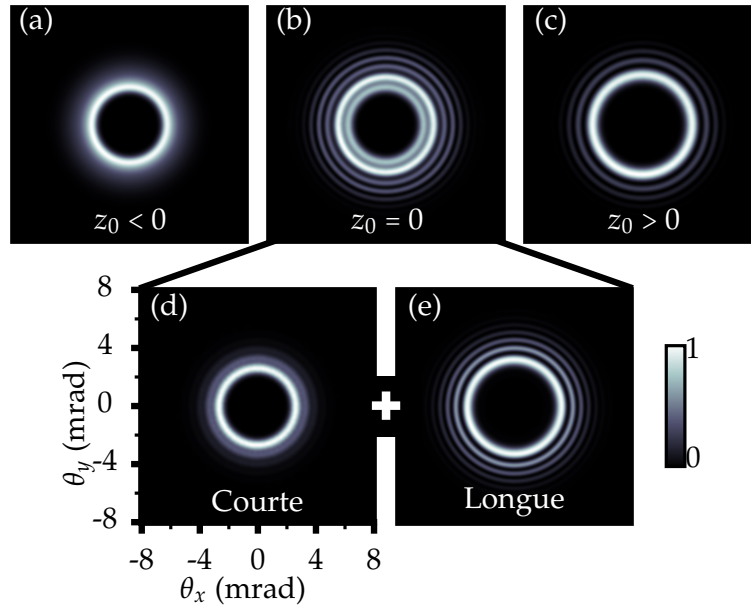


FIGURE 4.2 – Contribution des différentes trajectoires quantiques lors de la génération d'harmoniques à partir du faisceau infrarouge modélisé précédemment (figure 4.1). Le profil d'intensité en champ lointain de l'harmonique 21 est représenté lorsque le laser est focalisé (a) avant le jet, (b) dans le jet et (c) après le jet. Lorsque le foyer est situé au niveau du jet, les contributions des trajectoires courte (d) et longue (e) ont été numériquement isolées.

Lorsque le laser est focalisé avant le jet de gaz (figure 4.2a), la trajectoire courte est favorisée et le profil d'intensité présente un seul anneau, comme lors des expériences décrites dans le chapitre 3. Quand le foyer est situé après le jet (figure 4.2c), c'est la trajectoire longue qui est favorisée et le profil d'intensité exhibe plusieurs anneaux externes, signatures de la présence de modes d'indices radiaux non nuls. Dans le cas intermédiaire où le laser est focalisé dans le jet (figure 4.2b), le profil est davantage modulé en raison des interférences entre trajectoires quantiques. Ces observations sont confirmées en isolant "à la main" l'une ou l'autre des trajectoires (figure 4.2d-e).

Enfin, notons que le profil d'intensité de l'harmonique 33 présenté dans le chapitre 3 a été simulé dans le cas où le foyer est situé dans le jet de gaz, mais il ne montre qu'un seul anneau car cette harmonique se situe dans la coupure pour l'énergie considérée. Les trajectoires courte et longue sont alors confondues.

## 4.2 Observation expérimentale de faisceaux harmoniques d'indices radiaux élevés

Dans cette section, nous allons vérifier expérimentalement les prédictions de nos simulations numériques. Nous présenterons d'abord les résultats obtenus puis nous réaliserons une analyse du contenu modal des profils harmoniques générés.

### 4.2.1 Profils harmoniques obtenus

Nous générons des harmoniques à partir du faisceau infrarouge décrit sur la figure 4.1 en balayant la position longitudinale de la lentille de focalisation. Le foyer est ainsi déplacé de part et d'autre du jet de gaz et pour chaque position nous enregistrons les profils d'intensité des harmoniques à l'aide du spectromètre imageur de photons présenté dans le chapitre 2. Ce dernier permet de visualiser des profils moins déformés qu'avec le dispositif illustré sur la figure 3.1 car

il utilise moins d'optiques astigmatiques (seul le miroir sphérique peut créer cette aberration, mais l'angle d'incidence sur celui-ci a été minimisé afin de réduire au maximum l'astigmatisme). La figure 4.3 résume les résultats de cette expérience.

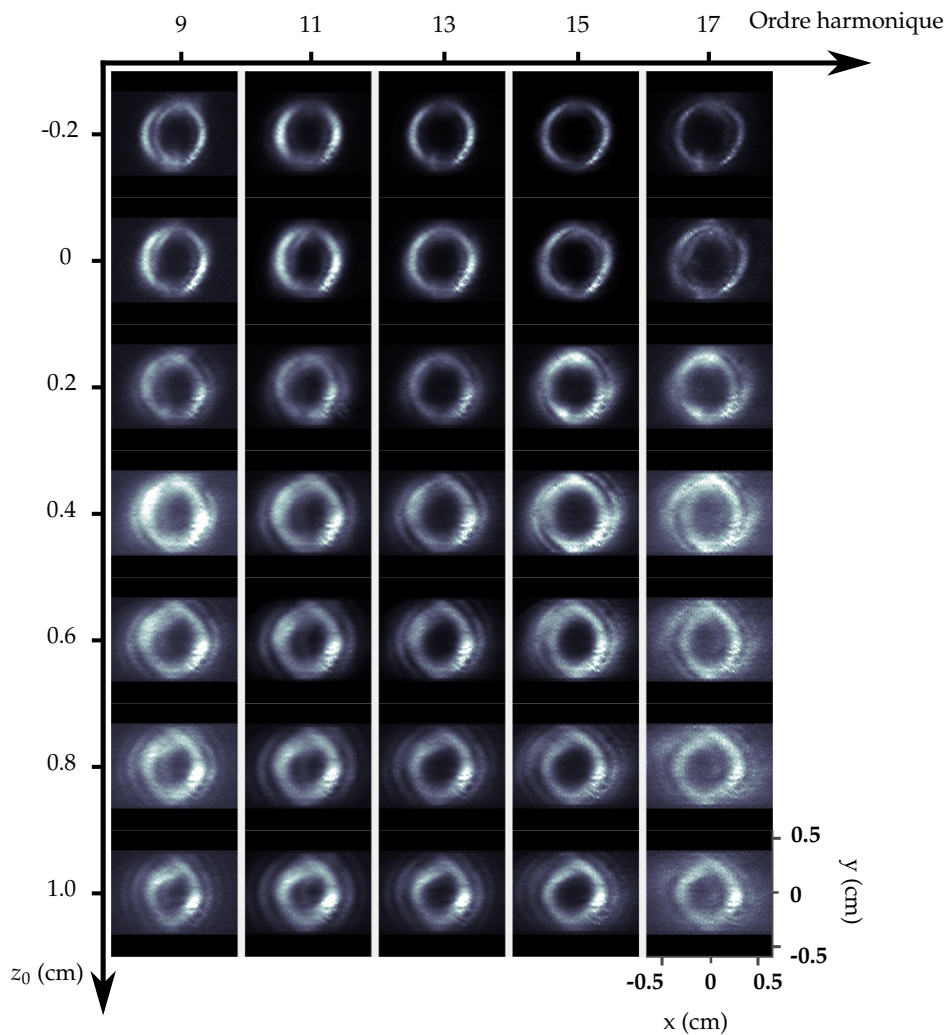


FIGURE 4.3 – Profils d'intensité des harmoniques 9 à 17 pour différentes positions longitudinales de la lentille. Les valeurs négatives (respectivement positives) de  $z_0$  correspondent à un foyer situé avant (respectivement après) le jet de gaz.

La position  $z_0 = 0$  correspondant à un foyer infrarouge exactement dans le jet de gaz est difficile à déterminer avec précision. Les harmoniques de la première ligne présentent un anneau unique, tandis que celles de la troisième à la dernière ligne exhibent toute une série d'anneaux d'ordres supérieurs. Quant à la seconde ligne, nous voyons apparaître un anneau à l'intérieur de l'anneau principal : en nous basant sur les simulations de la figure 4.2, c'est cette position de la lentille que nous avons définie comme  $z_0 = 0$ .

Nous avons donc un anneau unique lorsque les trajectoires courtes sont favorisées, et un nombre croissant d'anneaux externes lorsque nous déplaçons le foyer vers les trajectoires longues. Nos résultats expérimentaux sont donc en excellent accord avec la théorie.

#### 4.2.2 Interprétation des résultats : étude du contenu modal du champ

Afin de comprendre plus finement les structures observées, nous avons simulé simplement la génération d'harmoniques à partir du champ représenté sur la figure 4.1 en appliquant la formule ADK [Tong et Lin 2005] dans le cadre du modèle SFA [Lewenstein et al. 1994]. Nous réalisons

ensuite une décomposition des champs harmoniques obtenus sur la base des indices  $(\ell, p)$  des modes de Laguerre-Gauss.

**Trajectoire courte** Commençons par sélectionner uniquement la trajectoire courte. Les profils d'intensité et de phase, les résultats de l'analyse modale ainsi que la propagation de l'harmonique 19 sont présentés sur la figure 4.4. Au foyer, l'intensité prend la forme d'un seul anneau et la phase montre une légère courbure le long de l'anneau, de l'ordre du radian entre le centre et le bord de l'anneau ( $\alpha_{courte} \approx -1 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{W}$  et  $I_{IR} \approx 10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ ). La décomposition donne un mode quasiment pur, constitué à 99% du mode  $(\ell = 19, p = 0)$ . Le faisceau harmonique est nettement plus pur que le faisceau infrarouge dont il est issu (78%), phénomène que nous pouvons attribuer d'une part à la forte non-linéarité de la génération d'harmonique qui n'est efficace que dans les zones de haute intensité et gomme donc les résidus d'anneaux d'ordres supérieurs présents dans l'infrarouge, et d'autre part à la faible valeur de la phase atomique qui ne crée pas de dilatation. Le faisceau harmonique ainsi généré se propage alors comme un mode de Laguerre-Gauss pur et nous obtenons bien un seul anneau en champ lointain.

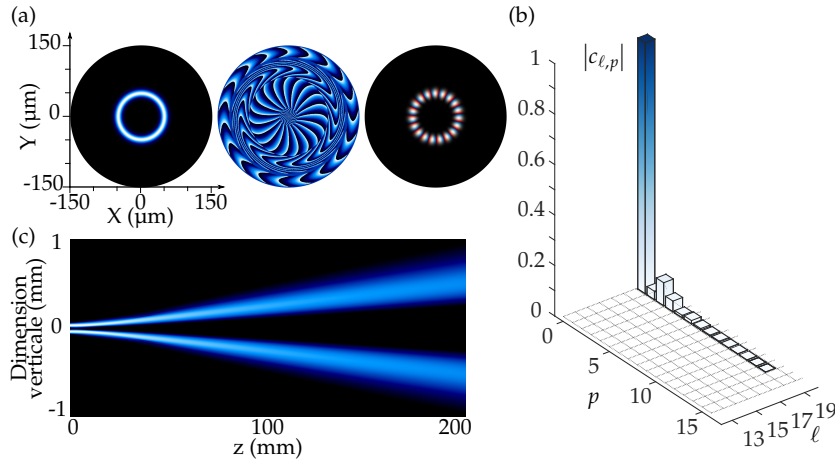


FIGURE 4.4 – Harmonique 19 simulée dans le cas de la trajectoire courte. (a) De gauche à droite : intensité, phase et représentation mixte où la couleur donne la phase et la luminosité l'intensité, du champ harmonique au foyer. (b) Modules des coefficients de la décomposition de ce champ sur la base  $(\ell, p)$ . (c) Propagation de ce champ.

**Trajectoire longue** Sélectionnons maintenant uniquement la trajectoire longue. Comme précédemment, nous représentons sur la figure 4.5 l'intensité et la phase de l'harmonique 19 au foyer, ainsi que son contenu modal et sa propagation. Nous avons toujours un anneau unique au foyer, en revanche la courbure de phase est plus importante dans ce cas en raison d'une valeur de  $\alpha_{longue}$  environ vingt fois supérieure à celle de  $\alpha_{courte}$ . Nous trouvons par suite un contenu modal beaucoup plus riche que précédemment, composé de modes  $(\ell = 19, 0 \leq p \leq \sim 30)$ . Le mode dominant est toujours celui d'indice radial nul, mais il ne compte cette fois que pour 52% du contenu modal. Nous attribuons cet enrichissement radial du contenu modal à la valeur de  $\alpha_{longue}$  suffisamment élevée pour induire une dilatation visible. Enfin, lorsque nous propageons cette harmonique en champ lointain, l'anneau unique au foyer (dû à la non-linéarité de la génération d'harmoniques) se transforme peu à peu en une série d'anneaux (telle que celles observées expérimentalement), résultat de l'interférence entre tous ses modes. Pourtant les coefficients de la décomposition ne changent pas au cours de la propagation puisque nous parlons de modes. C'est donc leur phase relative qui évolue et modifie le profil d'intensité au cours de la propagation. D'après l'expression des modes de Laguerre-Gauss donnée dans le chapitre 1, seule la phase de Gouy  $\psi_{\ell,p}(z) = (2p + |\ell| + 1) \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right)$  peut être responsable d'une telle évolution.

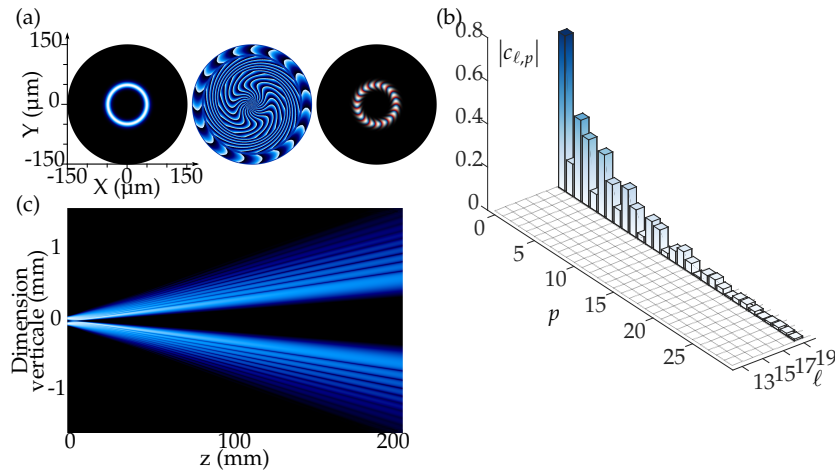


FIGURE 4.5 – Harmonique 19 simulée dans le cas de la trajectoire longue. (a) De gauche à droite : intensité, phase et représentation mixte où la couleur donne la phase et la luminosité l'intensité, du champ harmonique au foyer. (b) Modules des coefficients de la décomposition de ce champ sur la base  $(\ell, p)$ . (c) Propagation de ce champ.

**Conclusion** Nous avons montré dans ce chapitre qu'en jouant sur les conditions de focalisation de l'infrarouge afin de sélectionner une trajectoire quantique, nous pouvons soit générer un mode harmonique pur d'indice radial nul (trajectoire courte), soit générer une superposition d'un grand nombre de modes d'indices radiaux différents (trajectoire longue), et ce à partir du même faisceau pilote (légèrement impur). Nous avons relié cette dilatation du contenu modal à la phase atomique, qui dépend du type de trajectoire et de l'intensité laser. Finalement, contrairement au moment angulaire orbital, il semble que le moment hyperbolique des faisceaux de Laguerre-Gauss ne soit pas conservé lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé.



## Chapitre 5

# Conservation du spin lors de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau polarisé elliptiquement

Dans les chapitres 3 et 4, nous avons vu qu'il était possible de transférer les propriétés des modes de Laguerre-Gauss du faisceau fondamental aux harmoniques. Qu'en est-il du moment angulaire de spin ? Pouvons-nous générer des harmoniques ayant une polarisation elliptique à partir d'un faisceau infrarouge polarisé elliptiquement ? Les premières expériences de ce type [Budil et al. 1993] montrent que le transfert de moment angulaire de spin n'est pas efficace dans le schéma habituel de génération d'harmoniques. Nous présenterons dans la section 5.1 les résultats obtenus au cours de cette thèse avec le laser LUCA et dans la littérature à ce sujet, ainsi qu'une interprétation de ces rendements grâce au modèle à trois étapes. L'état de polarisation harmonique obtenu a également pu être mesuré : nous donnerons dans la section 5.2 les ellipticités atteintes et leur orientation. Dans la section 5.3, nous proposerons une interprétation en termes de photons des observations faites dans les sections 5.1 et 5.2. Enfin, nous aborderons dans la section 5.4 une question qui à notre connaissance n'a pas encore été traitée dans la littérature, celle de la divergence des harmoniques en fonction de l'ellipticité du faisceau infrarouge.

### 5.1 Rendements harmoniques en fonction de l'ellipticité infrarouge

Nous étudions ici l'évolution des rendements harmoniques en fonction de l'ellipticité du faisceau pilote. Nous verrons que les résultats expérimentaux peuvent être expliqués simplement en s'intéressant aux trajectoires empruntées par l'électron lors de son excursion dans le continuum.

#### 5.1.1 Résultats expérimentaux

Le montage expérimental utilisé pour la mesure de l'intensité des harmoniques en fonction de l'ellipticité de l'infrarouge est schématisé sur la figure 5.1. Le rôle de chaque élément a déjà été décrit dans le chapitre 2. Nous avons simplement ajouté une lame quart d'onde suivie d'une lame demi-onde pour contrôler l'état de polarisation du faisceau infrarouge. La méthode appliquée pour varier l'ellipticité tout en gardant le grand axe de l'ellipse vertical<sup>1</sup> sera décrite dans le chapitre 10.

Nous enregistrons le spectre harmonique (figure 5.2a) pour différentes valeurs d'ellipticité. L'intensité (normalisée) de chaque harmonique est obtenue en intégrant tous les pixels contenus

---

1. Nous nous affranchissons ainsi des effets polarisants des différentes optiques XUV (principalement le réseau), qui pourraient moduler notre signal de manière non négligeable en fonction de la polarisation.



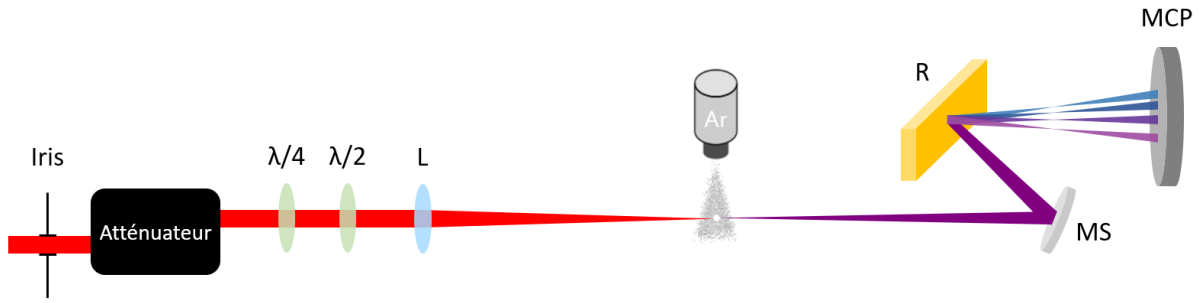


FIGURE 5.1 – Dispositif expérimental de génération d'harmoniques à partir d'un faisceau infrarouge polarisé elliptiquement. L : lentille de focalisation. MS : miroir sphérique. R : réseau de diffraction. MCP : galettes de micro-canaux associées à un écran de phosphore.

dans un carré (représenté en pointillés blancs) contenant chacune d'entre elles. L'évolution de cette intensité en fonction de l'ellipticité infrarouge est ajustée par une fonction gaussienne de la forme :

$$\frac{I_q(\epsilon_{IR})}{I_q(\epsilon_{IR} = 0)} = e^{-\beta_q \epsilon_{IR}^2} \quad (5.1)$$

et tracée sur la figure 5.2b.

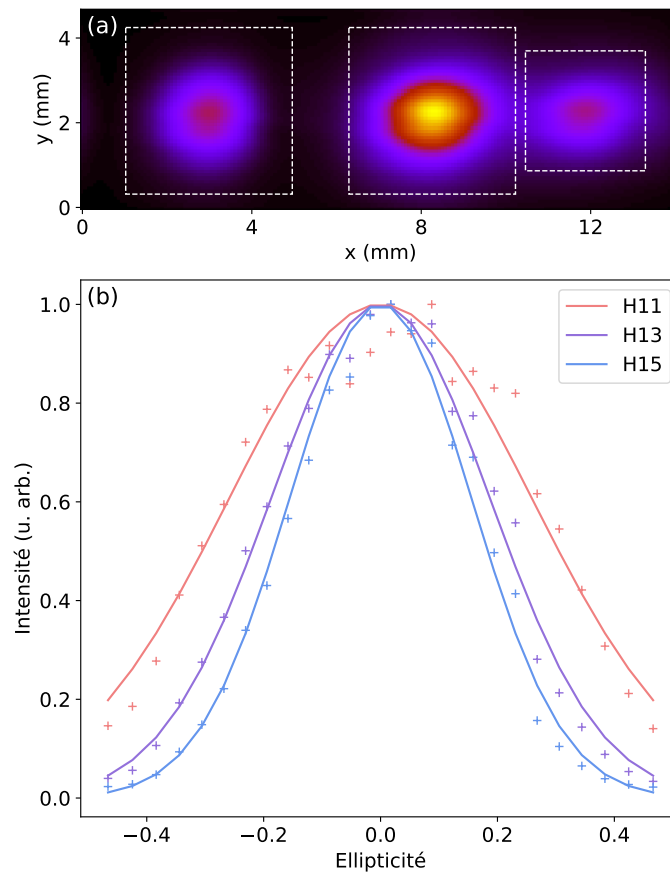


FIGURE 5.2 – Génération d'harmoniques à partir d'un faisceau polarisé elliptiquement. Panneau (a) : de gauche à droite, harmoniques 11, 13 et 15. Panneau (b) : évolution de l'intensité de chaque harmonique en fonction de l'ellipticité du laser pilote. Les valeurs expérimentales sont représentées par les croix et les ajustements gaussiens par les traits pleins.

Dans l'équation (5.1),  $\epsilon_{IR} = \tan \theta_{\lambda/4}$  est l'ellipticité du faisceau infrarouge, avec  $\theta_{\lambda/4}$  l'angle d'un axe neutre de la lame quart d'onde par rapport à la polarisation incidente (verticale). La démonstration de cette formule est réalisée dans l'annexe B. Les valeurs des paramètres  $\beta_q$  extraites des ajustements gaussiens sont données dans le tableau 5.1.

$q$	$\beta_q$
11	7.4
13	14.2
15	20.6

TABLE 5.1 – Valeurs de  $\beta_q$  extraites des ajustements gaussiens.

Les valeurs obtenues ici sont légèrement inférieures à celles présentées dans [Gruson et al. 2018], obtenues à la même longueur d'onde laser et dans le même gaz (argon). Nous devons donc vérifier qu'elles sont toutefois plausibles. Elles peuvent en effet varier avec l'intensité ou les conditions de focalisation [Larsen et al. 2015, Möller et al. 2012, Dietrich et al. 1994].

Dans [Larsen et al. 2015], les auteurs n'utilisent pas le paramètre  $\beta_q$  mais définissent une ellipticité seuil  $\epsilon_{th}$  telle que :

$$e^{-\beta_q \epsilon_{th}^2} = \frac{1}{2} \quad \text{soit} \quad \beta_q = \frac{\ln 2}{\epsilon_{th}^2} \quad (5.2)$$

Ils mesurent ainsi, pour l'harmonique 15 dans l'argon et à  $\lambda = 1030$  nm, des  $\epsilon_{th}$  d'environ 0.12 et 0.16 selon que le foyer est situé respectivement avant et dans le jet de gaz, en ne prenant en compte que la trajectoire courte.

Pour trouver les valeurs équivalentes de  $\epsilon_{th}$  à  $\lambda = 792$  nm (longueur d'onde du laser LUCA), nous utilisons la formule établie dans [Möller et al. 2012] :

$$\frac{I_q(\epsilon_{IR})}{I_q(\epsilon_{IR} = 0)} = e^{-\frac{\beta^2 \sqrt{2I_p I}}{4\pi^2 c^2} \lambda^2 \epsilon_{IR}^2} \quad \text{où} \quad \beta = \left( \frac{\sin(\omega t_r) - \sin(\omega t_i)}{\omega(t_r - t_i)} - \cos(\omega t_i) \right) \quad (5.3)$$

avec  $I_p$  le potentiel d'ionisation du gaz de génération,  $I$  l'éclairement laser au foyer et  $t_i$  et  $t_r$  les instants respectivement d'ionisation et de recombinaison.

Les auteurs définissent cette fois-ci  $\epsilon_{th}$  telle que<sup>2</sup> :

$$e^{-\frac{\beta^2 \sqrt{2I_p I}}{4\pi^2 c^2} \lambda^2 \epsilon_{th}^2} = \frac{1}{10} \quad \text{soit} \quad \epsilon_{th} = \frac{2\pi c}{\beta} \sqrt{\frac{\ln 10}{2}} \frac{1}{I_p^{1/4}} \frac{1}{I^{1/4}} \frac{1}{\lambda} \quad (5.4)$$

Nous obtenons donc pour l'harmonique 15 :

$$\epsilon_{th}^{792} = \epsilon_{th}^{1030} \times \frac{1030}{792} \quad (5.5)$$

soit finalement :

$$\beta_{H15}^{792} = \frac{\ln 2}{\left( \epsilon_{th}^{1030} \times \frac{1030}{792} \right)^2} \quad (5.6)$$

$$= \begin{cases} 28 & \text{si le foyer est avant le jet} \\ 16 & \text{si le foyer est dans le jet} \end{cases} \quad (5.7)$$

Notre valeur expérimentale de  $\beta_{H15}$  de l'harmonique 15, générée dans l'argon à partir d'un laser à 792 nm et dans une géométrie de focalisation favorisant les trajectoires courtes, est bien comprise entre les deux valeurs données par l'équation (5.7), correspondant à des conditions de

2. Nous pouvons tout à fait garder la définition précédente de  $\epsilon_{th}$ . Il suffit de remplacer  $\ln 10$  par  $\ln 2$  dans l'équation 5.4. Dans cette étude, seule la dépendance en  $1/\lambda$  nous intéresse.

génération très similaires. De plus, les paramètres  $\beta_q$  que nous avons obtenus pour les autres harmoniques suivent raisonnablement la tendance donnée par la figure 4d de [Gruson et al. 2018]. L'écart entre ces données et les nôtres est possiblement lié à un éclairage au foyer légèrement différent (les équations (5.4) et (5.2) montrent une dépendance en  $\sqrt{I}$  des  $\beta_q$ ) ou à une géométrie de focalisation différente. Nous pouvons ainsi conclure que nos résultats sont en bon accord avec les expériences du même type rencontrées dans la littérature.

### 5.1.2 Interprétation : le rôle des trajectoires électroniques

Nous trouvons la cause de la diminution observée des rendements harmoniques lorsque l'ellipticité du faisceau pilote augmente dans le modèle à trois étapes décrit dans le chapitre 2. La polarisation du laser détermine la trajectoire de l'électron dans le continuum :

$$\begin{cases} \ddot{x}(t) = -E_0 \cos(\omega_0 t) \\ \ddot{y}(t) = -\epsilon_{IR} E_0 \sin(\omega_0 t) \end{cases} \quad (5.8)$$

L'équation selon  $x$  s'intègre exactement de la même manière que dans le cas d'une polarisation linéaire en supposant une position et une vitesse nulles à l'instant d'ionisation  $t_i$ . L'instant de recombinaison  $t_r$  est alors obtenu en résolvant l'équation  $x(t_r) = 0$ .

Quant à l'équation selon  $y$ , si nous prenons le même genre de conditions initiales, l'équation  $y(t_r) = 0$  n'a alors pas de solution : l'électron ne retourne pas suffisamment proche de son atome parent pour pouvoir se recombinaison avec celui-ci (figure 5.3a).

Pour trouver une solution, nous devons utiliser une description quantique selon la dimension  $y$  : le paquet d'onde électronique est émis au niveau de l'atome (en  $y(t_i) = 0$ ) avec une extension spatiale  $\Delta y$  qui dépend de l'orbitale considérée [Murray et al. 2011]. L'impulsion selon  $y$  a donc une largeur de l'ordre de  $\hbar/\Delta y$ , centrée autour de 0 à l'instant d'ionisation  $t_i$ . [Strelkov 2006] montre que pour avoir recombinaison, nous devons prendre la condition initiale  $p_y(t_i) = -\bar{y}/\tau$  où  $\bar{y}$  est la quantité représentée sur la figure 5.3a (appelée paramètre d'impact en théorie des collisions) et  $\tau$  est le temps d'excursion dans le continuum. La trajectoire de l'électron décrit alors une ellipse (figure 5.3b).

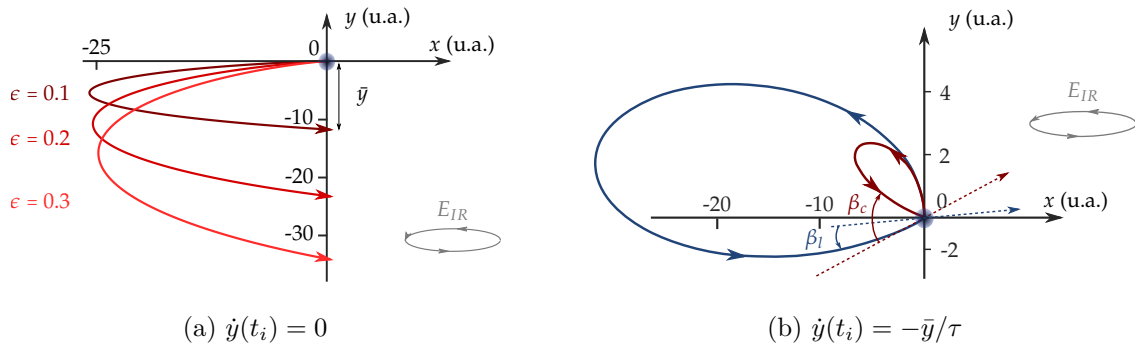


FIGURE 5.3 – Trajectoire classique d'un électron dans un champ électrique de polarisation elliptique, pour différentes conditions initiales. Figures extraites de [Géneaux 2016], adaptées de (a) [Gruson 2015] et (b) [Shafir et al. 2012].

Ainsi, nous constatons sur la figure 5.3 que lorsque l'ellipticité infrarouge augmente, la quantité  $\bar{y}$  augmente également, et donc l'impulsion initiale nécessaire à la recombinaison aussi. Or la distribution de l'impulsion est centrée autour de 0. Par conséquent, plus sa valeur est élevée, moins elle est probable. Ceci explique la baisse de rendement harmonique observée plus haut.

## 5.2 États de polarisation harmoniques obtenus dans la littérature

La génération d'harmoniques d'ordre élevé est d'autant moins efficace que l'ellipticité du champ infrarouge est élevée, en raison d'une modification des trajectoires électroniques, moins favorables à la recombinaison radiative. Il est tout de même possible d'analyser l'état de polarisation des harmoniques générées [Antoine et al. 1997] en réalisant des lois de Malus. Cette méthode de polarimétrie optique sera présentée en détails dans le chapitre 10. Nous verrons que nous ne pouvons obtenir ainsi qu'une borne supérieure de l'ellipticité, atteinte pour une lumière totalement polarisée.

### 5.2.1 Ellipticité

La figure 5.4 présente une évaluation expérimentale et numérique de l'ellipticité des harmoniques 17 et 23 générées dans l'argon, en fonction de l'ellipticité du faisceau pilote, par [Antoine et al. 1997]. Le calcul numérique donne également accès au degré de polarisation harmonique.

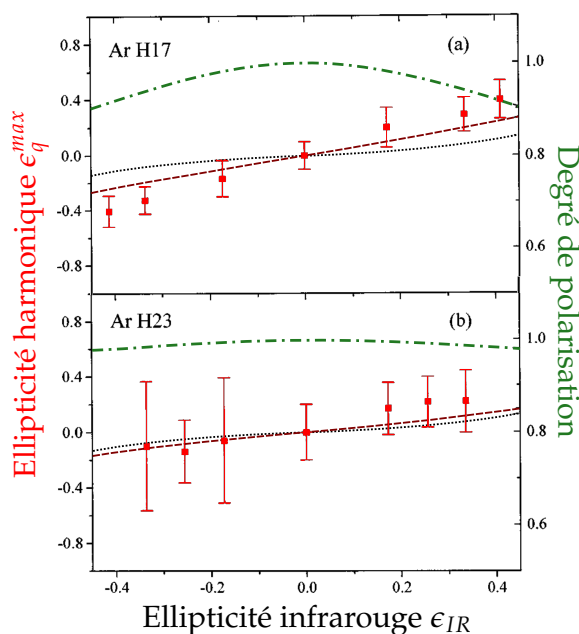


FIGURE 5.4 – Ellipticité des harmoniques 17 et 23 mesurée expérimentalement (carrés rouges) et calculée (courbes bordeaux et noires), ainsi que le degré de polarisation obtenu par le calcul (en vert), en fonction de l'ellipticité infrarouge. Figure adaptée de [Antoine et al. 1997].

Nous observons que l'ellipticité harmonique mesurée augmente avec celle de l'infrarouge, et ce plus rapidement pour l'harmonique basse. Cependant, nous remarquons également qu'à mesure que l'ellipticité infrarouge augmente, le rayonnement devient de moins en moins polarisé, et ce phénomène est davantage marqué pour l'harmonique basse. L'ellipticité est d'autant plus surestimée que le degré de polarisation est faible. Pour l'harmonique 17, l'ellipticité "vraie" est alors presque deux fois inférieure à la valeur mesurée.

Cette dépolarisation provient du fait que le dipôle harmonique dépend de l'intensité infrarouge. Ceci résulte en une polarisation inhomogène spatialement et temporellement, et donc en un champ partiellement polarisé.

Nous pouvons néanmoins conclure que l'ellipticité infrarouge est bien transférée au champ harmonique, même si l'ellipticité harmonique reste toujours inférieure à celle du laser générateur. Cette ellipticité du rayonnement harmonique peut être expliquée qualitativement en observant la

figure 5.3b : l'électron se recombine sur son atome parent avec un angle  $\beta$  qui dépend de l'ordre harmonique et de la trajectoire quantique (courte ou longue). [Strelkov et al. 2011] montrent que cet angle introduit une quadrature de phase entre les deux composantes transverses du dipôle harmonique, donnant donc lieu à une émission polarisée elliptiquement.

### 5.2.2 Orientation de l'ellipse de polarisation

Les harmoniques présentent donc une polarisation légèrement elliptique. Intéressons-nous à présent à l'orientation de l'ellipse. Les résultats expérimentaux et numériques de [Antoine et al. 1997] sont présentés sur la figure 5.5.

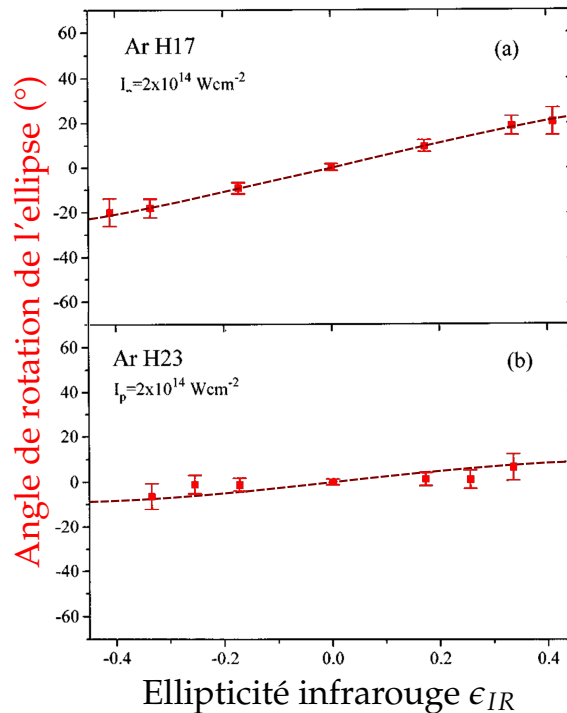


FIGURE 5.5 – Orientation de l'ellipse de polarisation des harmoniques 17 et 23 mesurée expérimentalement (carrés rouges) et calculée (courbes bordeaux), en fonction de l'ellipticité infrarouge. Figure adaptée de [Antoine et al. 1997].

Nous constatons que l'ellipse de polarisation est de plus en plus inclinée par rapport à la verticale à mesure que l'ellipticité infrarouge augmente, et ce plus rapidement pour l'harmonique basse.

Les trajectoires électroniques représentées sur la figure 5.3b permettent également d'expliquer ce comportement. [Strelkov 2006] montre que pour une orbitale de symétrie sphérique, la direction de l'électron lors de la recollision détermine l'axe majeur de l'ellipse de polarisation du rayonnement harmonique. L'angle de recombinaison  $\beta$  est donc aussi responsable de la rotation de l'ellipse.

## 5.3 Description photonique de la génération d'harmoniques en polarisation elliptique

Nous pouvons retrouver les résultats présentés dans les sections 5.1 et 5.2 à partir d'une image paramétrique de la génération d'harmoniques. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, les états de polarisation circulaires gauche et droit forment une base complète permettant

de décrire n'importe quel état de polarisation. Partant de ce principe, considérons un champ infrarouge d'ellipticité  $\epsilon_{IR}$  :

$$\vec{E} = \frac{E_0 e^{i\omega t}}{2\sqrt{2}} \left( \frac{1 + \epsilon_{IR}}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \frac{\vec{e}_x + i\vec{e}_y}{\sqrt{2}} + \frac{1 - \epsilon_{IR}}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \frac{\vec{e}_x - i\vec{e}_y}{\sqrt{2}} \right) \quad (5.9)$$

Du point de vue de la mécanique quantique, les deux seules valeurs permises du moment angulaire de spin du photon sont +1 et -1. Nous pouvons alors envisager une polarisation elliptique comme un mélange de photons de spins +1 et -1 dont les proportions sont données par l'équation (5.9).

Nous décrivons alors la génération d'harmoniques comme un processus multiphotonique (même si ce modèle est très limité, il permet de prédire simplement les comportements observés), au cours duquel l'harmonique  $q$  est produite par absorption de  $n_d$  photons circulaires droits et  $n_g$  photons circulaires gauches. La conservation de l'énergie donne  $q = n_d + n_g$  et celle du moment angulaire de spin  $s_q = n_d - n_g = \pm 1$ . Nous n'avons alors que deux combinaisons possibles ( $q$  étant nécessairement impair) :

$$(n_d, n_g) = \left( \frac{q+1}{2}, \frac{q-1}{2} \right) \quad \text{ou} \quad (n_d, n_g) = \left( \frac{q-1}{2}, \frac{q+1}{2} \right) \quad (5.10)$$

Dans une telle description paramétrique, l'amplitude d'un processus à  $n$  photons évolue approximativement comme la puissance  $n^{\text{ème}}$  du champ fondamental. L'amplitude d'un processus  $(n_d, n_g)$  vaut donc :

$$E_{(n_d, n_g)} \propto \left( \frac{1 + \epsilon_{IR}}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \right)^{n_d} \left( \frac{1 - \epsilon_{IR}}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \right)^{n_g} \quad (5.11)$$

ce qui donne pour l'intensité :

$$I_{(n_d, n_g)} \propto \left( \frac{1 + \epsilon_{IR}}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \right)^{2n_d} \left( \frac{1 - \epsilon_{IR}}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \right)^{2n_g} \quad (5.12)$$

Nous obtenons alors l'ellipticité de l'harmonique  $q$  en calculant la valeur moyenne de son moment angulaire de spin :

$$\langle s_q \rangle = \frac{I_{(\frac{q+1}{2}, \frac{q-1}{2})} \times s_{(\frac{q+1}{2}, \frac{q-1}{2})} + I_{(\frac{q-1}{2}, \frac{q+1}{2})} \times s_{(\frac{q-1}{2}, \frac{q+1}{2})}}{I_{(\frac{q+1}{2}, \frac{q-1}{2})} + I_{(\frac{q-1}{2}, \frac{q+1}{2})}} \quad (5.13)$$

$$= \frac{2\epsilon_{IR}}{1 + \epsilon_{IR}^2} \quad (5.14)$$

et son intensité en sommant celle des deux canaux :

$$I_q = \left( \frac{(1 + \epsilon_{IR})(1 - \epsilon_{IR})}{\sqrt{1 + \epsilon_{IR}^2}} \right)^q \times \frac{1 + \epsilon_{IR}^2}{1 - \epsilon_{IR}^2} \quad (5.15)$$

Pour des ordres harmoniques relativement bas (11 à 15) et des ellipticités infrarouges inférieures à 0.4, nous pouvons raisonnablement utiliser des développements limités pour  $\epsilon_{IR}^2$  proche de zéro, afin de retrouver l'évolution gaussienne donnée par l'équation (5.1) de l'intensité en fonc-

tion de l'ellipticité infrarouge :

$$I_q = e^{q \ln \frac{1-\epsilon_{IR}^2}{\sqrt{1+\epsilon_{IR}^2}}} \left( \frac{1+\epsilon_{IR}^2}{1-\epsilon_{IR}^2} \right) \quad (5.16)$$

$$\approx e^{q \ln \left( (1-\epsilon_{IR}^2) \left( 1 - \frac{\epsilon_{IR}^2}{2} \right) \right)} (1+\epsilon_{IR}^2)^2 \quad (5.17)$$

$$\approx e^{q \ln(1-\frac{3}{2}\epsilon_{IR}^2)} e^{2 \ln(1+\epsilon_{IR}^2)} \quad (5.18)$$

$$\approx e^{-\frac{3}{2}q\epsilon_{IR}^2} e^{2\epsilon_{IR}^2} \quad (5.19)$$

$$\approx e^{-(\frac{3}{2}q-2)\epsilon_{IR}^2} \quad (5.20)$$

Nous trouvons ainsi un  $\beta_q = \frac{3}{2}q - 2$  qui augmente bien avec l'ordre harmonique.

L'évolution des deux quantités  $I_q$  et  $\langle s_q \rangle$  est représentée sur la figure 5.6 en fonction de l'ellipticité du faisceau fondamental. Nous retrouvons qualitativement les comportements décrits dans les sections 5.1 et 5.2, hormis deux écarts : la dépendance en  $q$  de l'ellipticité harmonique et le fait que cette dernière soit inférieure à celle de l'infrarouge. Il semble donc que ce modèle ne soit pas suffisamment rigoureux...

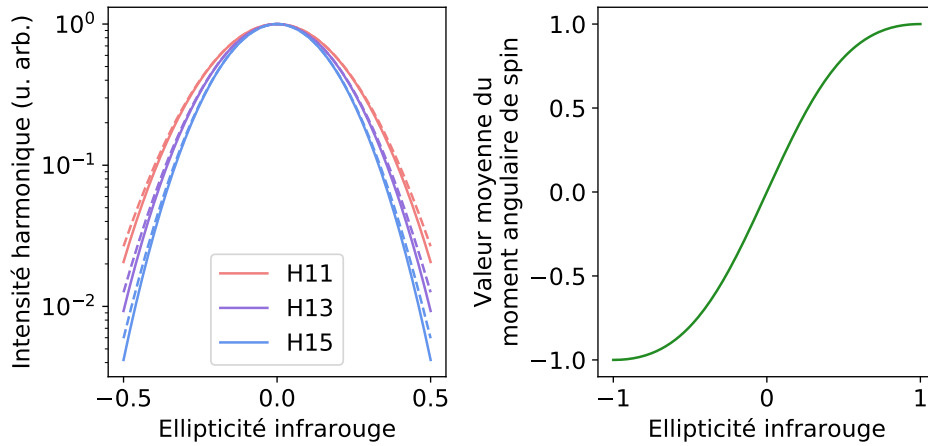


FIGURE 5.6 – Évolution de l'intensité et de l'ellipticité harmoniques en fonction de l'ellipticité infrarouge dans le cadre du modèle multiphotonique. Les courbes d'intensité en traits pleins (respectivement pointillés) sont calculées à partir de l'équation (5.15) (respectivement (5.20)).

## 5.4 Divergence des harmoniques

Le dernier aspect de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau de polarisation elliptique auquel nous nous sommes intéressés concerne la divergence des harmoniques.

Nous avons commencé par tracer sur la figure 5.7 les coupes du profil d'intensité dans la direction verticale pour chaque valeur d'ellipticité du laser infrarouge. Si l'ellipticité infrarouge a un impact sur la taille des harmoniques, celui-ci est trop faible pour être observable directement sur cette figure.

Nous avons donc ensuite ajusté chacun de ces profils d'intensité par une fonction gaussienne, afin d'extraire la largeur en  $1/e^2$  des harmoniques. L'évolution de cette dernière en fonction de l'ellipticité infrarouge est illustrée sur la figure 5.8. Un ajustement polynomial de ces courbes nous permet de mettre en évidence la diminution quadratique de la divergence des harmoniques lorsque l'ellipticité du laser infrarouge augmente (en valeur absolue).

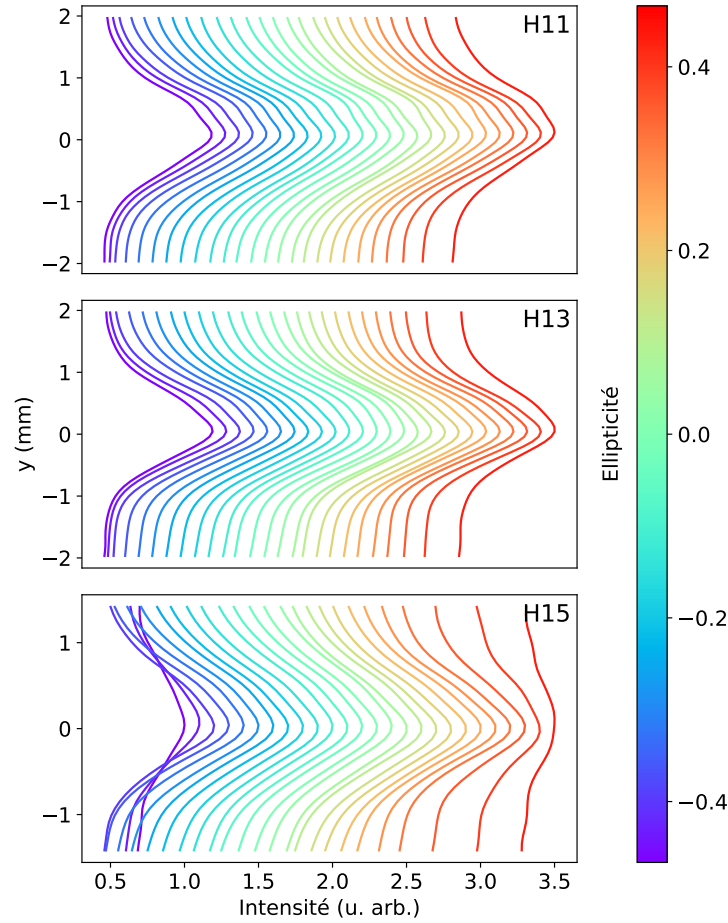


FIGURE 5.7 – Évolution du profil d'intensité (dans la direction verticale) des harmoniques 11, 13 et 15 (détectées expérimentalement) en fonction de l'ellipticité du laser pilote. Chaque courbe est décalée horizontalement par souci de clarté. Pour chaque courbe, l'ellipticité infrarouge est donnée par sa couleur.

Pour expliquer qualitativement (une étude plus quantitative est actuellement en cours) ce phénomène, nous envisageons deux contributions.

D'une part, la phase atomique en  $\alpha I$  influence la divergence  $\theta_q$  des harmoniques [Ye et al. 2014] :

$$\theta_q = \frac{\lambda_q}{2\pi w_{qz}} \sqrt{1 + \left( \frac{qk}{2R_z} - 2\alpha \frac{I_{0z}}{w_z^2} \right)^2} w_{qz}^2 \quad (5.21)$$

où  $k$ ,  $R_z$ ,  $w_z$  et  $I_{0z}$  sont respectivement le vecteur d'onde, le rayon de courbure du front d'onde, la taille et l'intensité sur l'axe, du faisceau fondamental, à la position longitudinale  $z$ , et enfin  $\lambda_q$  et  $w_{qz}$  sont respectivement la longueur d'onde et la taille du faisceau harmonique en  $z$ . Cette équation nous indique que la divergence harmonique augmente avec la valeur absolue de la constante  $\alpha$  de la phase atomique. Intéressons-nous alors à la variation de  $\alpha$  en fonction de l'ellipticité infrarouge : la figure 5.9 présente l'évolution de la dérivée de la phase atomique par rapport à l'intensité laser (c'est-à-dire  $\alpha$ ) calculée par Thierry Auguste pour un atome unique, dans le cas de l'harmonique 15, en fonction de l'ellipticité infrarouge. Dans le cas d'un faisceau pilote polarisé elliptiquement, il faut prendre en compte les deux composantes transverses (selon  $x$  et  $y$ ) du dipôle atomique. Nous constatons que  $\alpha$  diminue en valeur absolue lorsque l'ellipticité augmente. Par conséquent, la phase atomique entraîne une diminution de la divergence des harmoniques lorsque l'ellipticité infrarouge augmente, comme observé expérimentalement.



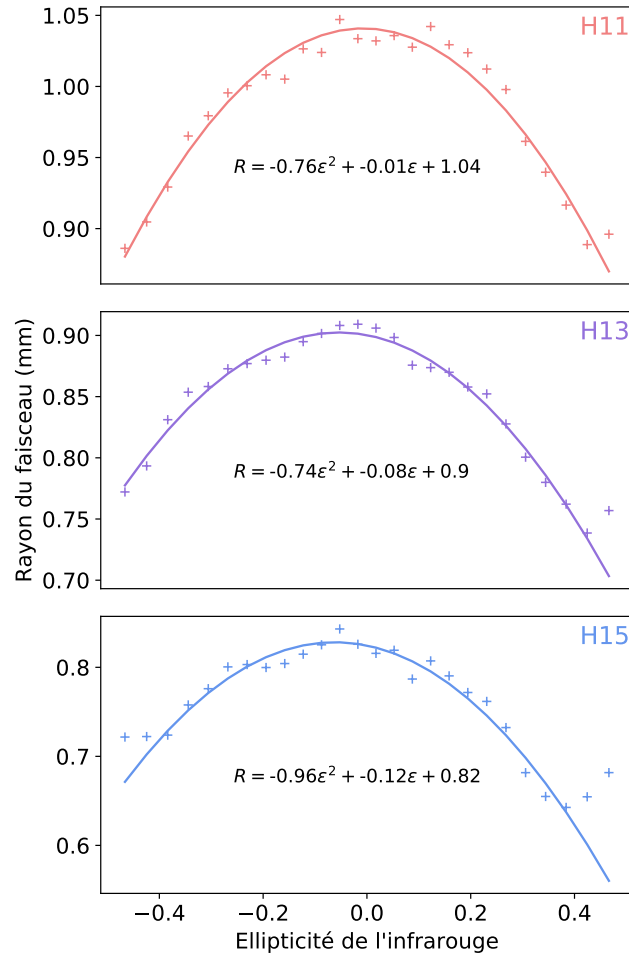


FIGURE 5.8 – Évolution de la taille des harmoniques 11, 13 et 15 en fonction de l'ellipticité du laser pilote. Pour chaque valeur d'ellipticité, la taille du faisceau est extraite d'un ajustement gaussien du profil d'intensité (dans la direction verticale). Ces valeurs sont représentées par des croix et ajustées par une parabole tracée en trait plein et dont l'équation est donnée sur chaque panneau.

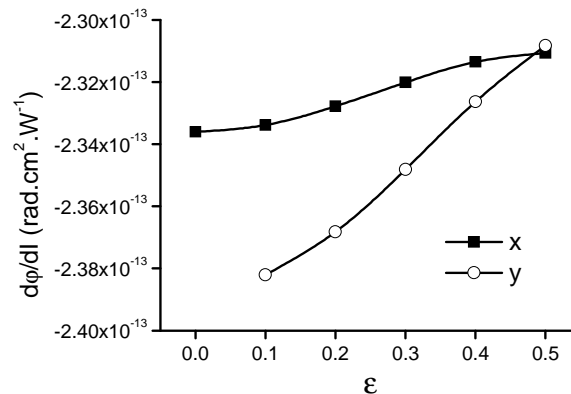


FIGURE 5.9 – Évolution des composantes transverses (selon  $x$  et  $y$ ) de la dérivée de la phase atomique par rapport à l'intensité laser, en fonction de l'ellipticité du faisceau pilote. Réponse de l'atome unique calculée par Thierry Auguste pour l'harmonique 15 générée dans l'argon.

D'autre part, nous avons tracé sur la figure 5.10 l'amplitude du dipôle atomique en fonction de l'intensité laser (toujours issue de la réponse de l'atome unique calculée par Thierry Auguste), pour différentes valeurs d'ellipticité infrarouge, pour l'harmonique 15 générée dans l'argon (nous obtenons des courbes similaires à celles de [Antoine et al. 1996b] pour l'harmonique 43 dans le néon). La force du dipôle donnant le rendement harmonique, nous remarquons que la décroissance du rendement avec l'intensité laser est d'autant plus lente que l'ellipticité infrarouge est élevée : en effet, entre les deux lignes verticales, nous perdons (de droite à gauche) presque un ordre de grandeur pour  $\epsilon = 0$  contre seulement un facteur d'environ 2 pour  $\epsilon = 0.4$ . Ceci implique une zone génératrice plus grande au foyer lorsque l'ellipticité infrarouge augmente, et donc une taille en champ lointain plus petite.

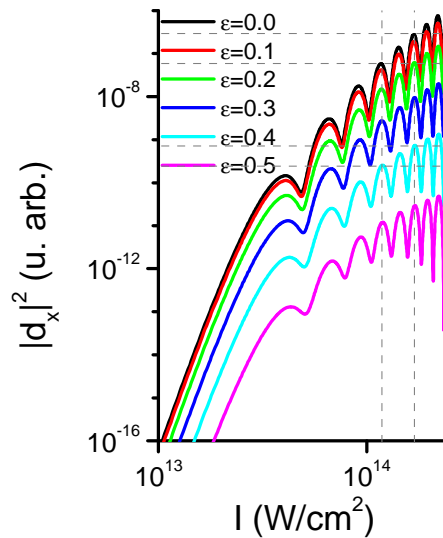


FIGURE 5.10 – Amplitude du dipôle dans la direction verticale en fonction de l'intensité laser, pour différentes valeurs de l'ellipticité infrarouge. Réponse de l'atome unique calculée par Thierry Auguste pour l'harmonique 15 générée dans l'argon.

En conclusion, nous avons identifié deux effets contribuant à diminuer la divergence harmonique lorsque l'ellipticité infrarouge augmente : la dépendance en ellipticité de la phase atomique ainsi que la modification du diamètre du faisceau harmonique au foyer. Cette étude reste pour le moment qualitative. Des travaux en cours visent à déterminer quel processus domine et retrouver la loi de décroissance quadratique en ellipticité.



# Conclusions – Nécessité de générer à deux faisceaux

Nous avons vu dans cette partie que la génération d’harmoniques d’ordre élevé permet le transfert de moment angulaire orbital ou de spin de l’infrarouge à l’extrême ultraviolet. Nous présentons toutefois dans ce chapitre quelques limites des montages utilisés précédemment. Un objectif central de cette thèse a été de les dépasser afin de mieux contrôler le moment angulaire des harmoniques. Pour ce faire, nous devons envisager des schémas de génération à deux faisceaux, offrant davantage de degrés de liberté, que nous étudierons dans les parties **III** et **IV**.

## Génération d’harmoniques polarisées circulairement

Le développement de sources harmoniques polarisées circulairement est nécessaire pour réaliser des expériences (autrement que sur grands instruments tels que les synchrotrons) de dichroïsme circulaire de photo-électrons [Powis 2008] ou de dichroïsme circulaire magnétique de rayons X [Kfir et al. 2015] résolues en temps.

Or nous avons montré dans le chapitre 5 que ceci est impossible en générant les harmoniques à partir d’un seul faisceau<sup>3</sup> : d’une part, le rendement harmonique décroît rapidement avec l’ellipticité du laser pilote, et d’autre part, l’ellipticité harmonique ainsi produite est toujours inférieure à celle de l’infrarouge générateur. La trajectoire électronique lors de l’étape de propagation du paquet d’onde électronique dans le continuum est responsable de ces faibles efficacités et ellipticités.

Une solution à ce problème a été initialement proposée par [Eichmann et al. 1995], qui consiste à manipuler la trajectoire électronique par un champ bicolore. En combinant deux faisceaux colinéaires de polarisations circulaires opposées, l’un étant doublé en fréquence, nous obtenons une trajectoire électronique en forme de trèfle à trois feuilles représentée sur la figure 5.11. La trajectoire repassant par l’origine, la probabilité de recombinaison radiative est alors plus élevée que dans le cas de la trajectoire elliptique. L’expérience a été réalisée par [Fleischer et al. 2014] et [Kfir et al. 2015], démontrant des ellipticités harmoniques très proches de 1. Ces expériences sont couramment décrites de manière paramétrique en invoquant une loi de conservation du moment angulaire de spin que nous discuterons dans le chapitre 10.

Ainsi, l’ajout d’un second faisceau s’avère extrêmement intéressant pour mieux contrôler le transfert de moment angulaire de spin lors de la génération d’harmoniques d’ordre élevé. Nous développerons plus amplement cette thématique dans le chapitre 10.

---

3. La génération à partir d’un champ polarisé linéairement dans des molécules alignées permet d’obtenir des ellipticités parfois élevées [Mairesse et al. 2010]. Cependant, cette technique est assez peu flexible, pas très simple à mettre en œuvre et produit des ellipticités globalement modestes en raison notamment d’un degré de polarisation relativement faible.

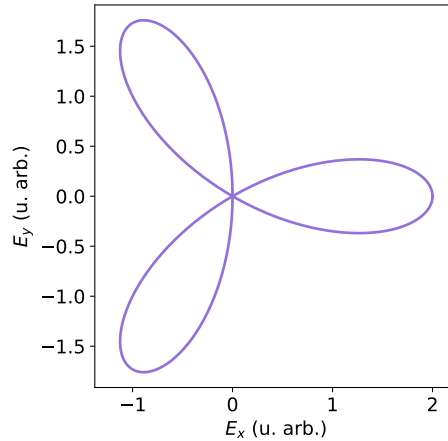


FIGURE 5.11 – État de polarisation d'un champ composé du fondamental et de sa seconde harmonique (de même amplitude), tous deux polarisés circulairement en sens contraires.

## Contrôle du moment angulaire orbital des harmoniques

Dans le chapitre 3, nous avons démontré la possibilité de générer des harmoniques d'ordre élevé portant du moment angulaire orbital. Cependant, le schéma utilisé est régi par la loi de transfert  $\ell_q = q\ell_1$ , ce qui limite considérablement la flexibilité du dispositif. Par exemple, il ne permet pas de produire des harmoniques ayant un moment angulaire orbital unitaire.

Or un plus grand contrôle de la charge topologique harmonique pourrait bénéficier à de nombreuses applications citées en introduction du chapitre 3, à l'instar des communications quantiques où il serait intéressant de pouvoir générer des harmoniques de moment angulaire orbital arbitraire, ou bien de la microscopie qui gagnerait en résolution en diminuant la taille des modes de Laguerre-Gauss, autrement dit leur indice azimutal.

Là encore, l'utilisation d'un second faisceau pilote offrirait un degré de liberté supplémentaire et permettrait ainsi de répondre à ces besoins. C'est l'objet de la proposition théorique de [Gariépy et al. 2014], qui consiste à généraliser la loi de conservation du moment angulaire orbital dans le cas de la génération d'harmoniques à deux faisceaux, en s'appuyant sur le modèle multiphotonique présenté dans le chapitre 6. Nous avons réalisé cette expérience au cours de cette thèse et en présenterons les résultats au chapitre 9.

## Troisième partie

# La génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires

Nous venons de montrer dans la partie **II** que pour contrôler pleinement la mise en forme du front d'onde ou de l'état de polarisation des harmoniques d'ordre élevé, les schémas de génération à un seul faisceau sont insuffisants. Nous devons donc envisager des configurations mettant en jeu deux faisceaux pilotes. Avant de leur adjoindre des moments angulaires, nous proposons dans cette partie d'étudier le montage le plus simple de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires, *i.e.* le cas où les faisceaux sont gaussiens et polarisés linéairement.

Nous présenterons dans le chapitre **6** une généralisation du modèle multiphotonique permettant d'anticiper un bon nombre de caractéristiques de l'émission harmonique. Néanmoins, ce modèle très intuitif possède des limites que nous mettrons en évidence par des expériences et des simulations numériques dans le chapitre **7**. Ces considérations nous ont finalement amenés à élaborer dans le chapitre **8** une théorie plus fine et donc plus complète de la génération à deux faisceaux, que nous avons baptisée "réseau actif".



## Chapitre 6

# Généralisation du modèle multiphotonique à la génération d'harmoniques à deux faisceaux – Lois de conservation

Dès les années 1990, de nombreuses expériences de génération d'harmoniques à partir de champs à plusieurs couleurs ont été réalisées, mélangeant soit la fréquence fondamentale et une (ou plusieurs) de ses harmoniques basses, soit des fréquences non commensurables, dans le but de suivre et contrôler le processus de génération [Dudovich et al. 2006, Shafir et al. 2012], d'améliorer le rendement harmonique [Kim et al. 2005, Watanabe et al. 1994, Brizuela et al. 2013], de produire une source XUV accordable [Eichmann et al. 1994, Gaarde et al. 1996b, Hilbig et Wallenstein 1982], de générer une seule impulsion XUV par cycle optique [Mauritsson et al. 2006], de synthétiser des impulsions attosecondes uniques [Pfeifer et al. 2006, Ivanov et al. 1995, Mashiko et al. 2008, Bandulet et al. 2010, Mansten et al. 2009]...

Ces travaux ont permis très tôt [Perry et Crane 1993] d'établir des règles de conservation fondées sur le modèle multiphotonique que nous présentons dans ce chapitre. De par sa grande simplicité, ce modèle a été largement employé par la suite pour décrire les expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux [Bertrand et al. 2011, Heyl et al. 2014]. Très intuitif, il a même inspiré de nombreuses expériences afin de démontrer de nouvelles lois de conservation [Fleischer et al. 2014, Kfir et al. 2015; 2016, Hickstein et al. 2015, Gariepy et al. 2014]. En effet, il suffit de dénombrer pour chaque faisceau incident les photons absorbés ou émis lors du processus pour prédire la présence ou l'absence d'harmoniques.

Du point de vue expérimental, le faisceau principal sera orienté le long de l'axe optique et aura toujours suffisamment d'énergie pour générer des harmoniques à lui seul, tandis que le second faisceau fera un petit angle (généralement entre 15 et 20 mrad) avec l'axe optique et ne pourra pas (dans la majorité des cas) générer d'harmoniques seul. De ce fait, nous distinguerons nos deux faisceaux en qualifiant l'un de "faisceau de génération" et l'autre de "faisceau de perturbation" (même si cela constituera souvent un abus de langage). Dans toute la suite, nous noterons  $n_1$  le nombre de photons provenant du faisceau principal et  $n_2$  le nombre de photons du second faisceau ; ces quantités peuvent être positives ou négatives selon qu'il s'agit de photons absorbés ou émis de façon stimulée respectivement. Plus généralement, toutes les valeurs indexées par 1 ou 2 se rapporteront respectivement au faisceau principal ou au faisceau perturbatif.

Cependant, il est quelque peu surprenant de constater que contrairement à la génération d'harmonique standard (*i.e.* à un seul faisceau) pour laquelle on peut trouver une littérature assez étendue, relativement peu de publications traitent de l'accord de phase lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux. Nous proposons dans les sections 6.1 et 6.2 de généraliser le modèle quantique de la génération d'harmoniques présenté dans le chapitre 2 afin de retrouver



les lois de conservation du modèle multiphotonique dans le cas à deux faisceaux. Ces lois posent les jalons de toutes les expériences décrites dans la suite de ce manuscrit. Enfin, nous aborderons dans la section 6.3 le sujet des rendements harmoniques obtenus dans le cadre de cette théorie perturbative basée sur l'approximation de champ fort, et ferons le lien avec l'accord de phase.

## 6.1 Développement perturbatif de la phase atomique dans le cas de deux faisceaux colinéaires

Nous avons vu dans le chapitre 2 que la phase atomique joue un rôle important dans l'accord de phase lors de la génération d'harmoniques à un seul faisceau. Lorsqu'un second faisceau peu intense et doublé en fréquence vient perturber le processus, [Dahlström et al. 2011] et [Pedatzur et al. 2015] ont montré que la correction apportée à la phase atomique dans le cadre de l'approximation de champ fort peut être calculée analytiquement. Nous appliquons ici le même développement perturbatif lorsque les deux faisceaux sont de même fréquence et rappelons les résultats dans le cas à deux couleurs.

### 6.1.1 Calcul dans le cadre de l'approximation de champ fort

Redonnons l'expression du dipôle rayonné par l'atome unique [Lewenstein et al. 1994] :

$$\vec{x}(t) = -i \int_{-\infty}^t dt_i \int d\vec{p} \vec{d}_{\vec{p}+e\vec{A}(t)}^* e^{i\frac{S(\vec{p},t_i,t)}{\hbar}} \vec{E}(t_i) \cdot \vec{d}_{\vec{p}+e\vec{A}(t_i)} \quad (6.1)$$

$$\text{où } S(\vec{p}, t_i, t) = - \int_{t_i}^t dt' \left( I_p + (\vec{p} + e\vec{A}(t'))^2 / 2m \right) \quad (6.2)$$

est l'intégrale d'action. Le spectre rayonné  $\vec{x}_\omega$  est simplement donné par la transformée de Fourier de ce dipôle. Commençons par le cas où les deux faisceaux sont colinéaires. L'intégrale d'action est modifiée ainsi :

$$S(\vec{p}, t_i, t_f) = - \underbrace{\int_{t_i}^{t_f} dt' \left( I_p + \frac{(\vec{p} + e\vec{A}_1(t'))^2}{2m} \right)}_{S_1(\vec{p}, t_i, t_f)} - \underbrace{\lambda \int_{t_i}^{t_f} dt' \frac{(\vec{p} + e\vec{A}_1(t')) (e\vec{A}_2(t', \varphi))}{m}}_{\lambda\sigma(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi)} \quad (6.3)$$

où  $\vec{A}_1(t')$  et  $\lambda\vec{A}_2(t', \varphi)$  sont respectivement les potentiels vecteurs associés aux champs de génération et de perturbation,  $\varphi$  est le déphasage entre ces deux champs,  $S_1(\vec{p}, t_i, t_f)$  l'intégrale d'action dans le cas à un seul faisceau, et  $\lambda \ll 1$  un scalaire. Dans cette approche, les points selles sont calculés uniquement pour le faisceau principal, donnant les valeurs des instants d'ionisation  $t_i$  et de recombinaison  $t_r$ , ainsi que du moment canonique stationnaire de l'électron  $\vec{p}$ .

**Cas à une couleur** Dans toutes les expériences réalisées sur le laser LUCA à Saclay, les deux faisceaux ont la même fréquence  $\omega$ . Considérons pour simplifier des ondes planes progressives monochromatiques et écrivons leurs potentiels vecteurs  $\vec{A}_1 = \vec{A}_1^{(0)} \sin(\omega t)$  et  $\vec{A}_2 = \vec{A}_2^{(0)} \sin(\omega t + \varphi)$ . L'intégration du terme perturbatif peut être réalisée analytiquement [Dahlström et al. 2011, Pedatzur et al. 2015] :

$$\sigma(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi) = \frac{e}{m} \left[ \vec{p} \cdot \vec{A}_2^{(0)} \frac{\cos(\omega t' + \varphi)}{\omega} + e\vec{A}_1^{(0)} \cdot \vec{A}_2^{(0)} \left( \frac{\sin(2\omega t' + \varphi)}{4\omega} - \frac{\cos(\varphi)}{2} t' \right) \right]_{t_i}^{t_f} \quad (6.4)$$

Nous pouvons ensuite développer  $\sigma(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi)$  en utilisant l'identité de Jacobi-Anger :

$$\begin{aligned} e^{\frac{i}{\hbar}S(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi)} &= e^{\frac{i}{\hbar}S_1(\vec{p}, t_i, t_f)} e^{\frac{i}{\hbar}\lambda\sigma(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi)} \\ &= e^{\frac{i}{\hbar}S_1(\vec{p}, t_i, t_f)} \left( \sum_{r=-\infty}^{+\infty} i^r J_r(u) e^{ir(\omega t_f + \varphi)} \right) \left( \sum_{s=-\infty}^{+\infty} J_s\left(\frac{v}{2}\right) e^{is(2\omega t_f + \varphi)} \right) e^{-iv \cos(\varphi)\omega t_f} \end{aligned} \quad (6.5)$$

où par souci de simplicité, nous avons omis les termes en  $t_i$ . Dans cette équation,  $u$  et  $v$  sont des petites quantités (d'amplitudes équivalentes) définies par :

$$\begin{cases} u = \lambda \frac{e}{m} \frac{\vec{p} \cdot \vec{A}_2^{(0)}}{\hbar\omega} & \text{où } |\vec{p}| \simeq \sqrt{2m(q\hbar\omega - I_p)} \\ v = \lambda \frac{e}{m} \frac{e\vec{A}_1^{(0)} \cdot \vec{A}_2^{(0)}}{2\hbar\omega} \end{cases} \quad (6.6)$$

Notons que dans l'équation 6.5 :

- le facteur  $e^{\frac{i}{\hbar}S_1(\vec{p}, t_i, t_f)}$  contient une somme (pondérée) sur  $n$  de  $e^{in\omega t_f}$  (voir l'annexe A), devant laquelle nous pouvons négliger  $e^{-iv \cos(\varphi)\omega t_f}$  (en effet,  $v \cos(\varphi) \ll 1 < n$ )
- dans le produit des sommes, le couple  $(r, s) = (0, 0)$  correspond au spectre harmonique non perturbé.

Jusqu'ici nous avons considéré un seul demi-cycle laser. Étudions à présent comment se somment les événements de demi-cycles successifs [Dahlström et al. 2011], autrement dit comment les événements se produisant entre  $t_i$  et  $t_f$  s'additionnent avec ceux entre  $t_i + T/2$  et  $t_f + T/2$ ,  $T = 2\pi/\omega$  étant la période du laser. L'élément de transition du dipôle  $\vec{d}_{\vec{p}+e\vec{A}(t)}^*$  dans l'équation (6.1) ne change pas de signe, alors que  $\vec{E}(t_i) \cdot \vec{d}_{\vec{p}+e\vec{A}(t_i)}^*$  change de signe en raison du changement de signe du champ électrique à  $t_i$ . Comme  $\vec{p}$  et  $\vec{A}$  changent tous les deux de signe dans l'équation (6.2) [Pedatzur et al. 2015], l'action principale  $S_1(\vec{p}, t_i, t_f)$  reste inchangée. Finalement, le terme  $e^{-i\omega_q t_f}$  est multiplié par  $e^{-i\omega_q T/2}$ . En prenant  $\lambda = 0$ , nous obtenons pour la somme sur  $M$  périodes du champ :

$$\vec{x}_\omega^{sum} = \vec{x}_\omega \sum_{j=1}^M \left( 1 - e^{-i\omega_q(T/2)} \right) = \vec{x}_\omega (1 - (-1)^q) \quad (6.7)$$

De manière évidente, les termes de la somme sont nuls si  $q$  est pair, tandis qu'il s'ajoutent constructivement pour les harmoniques impaires.

Revenons maintenant au cas où  $\lambda \neq 0$ . Comme mentionné dans [Pedatzur et al. 2015],  $\vec{p}$  change de signe entre deux demi-cycles consécutifs, donc  $u$  aussi. On utilise l'identité  $\forall n \in \mathbb{Z}$ ,  $J_n(-u) = J_{-n}(u) = (-1)^n J_n(u)$  pour généraliser l'équation (6.7) :

$$\vec{x}_\omega^{sum} = \vec{x}_\omega \sum_{r,s} J_r(u) J_s\left(\frac{v}{2}\right) e^{i(r+2s)\omega t_f + i(r+s)\varphi + ir\pi/2} \left( 1 - (-1)^{n+r} \right) \quad (6.8)$$

Un triplet  $(n, r, s)$  génère l'harmonique  $q = n + r + 2s$ . Cette harmonique est non nulle seulement si  $n + r$  est impair.

**Cas à deux couleurs** Dans les expériences que nous avons réalisées chez nos collaborateurs en Slovénie [Article 1], ainsi que dans de nombreuses expériences décrites dans la littérature [Bertrand et al. 2011, Heyl et al. 2014, Gariépy et al. 2014, Fleischer et al. 2014, Kfir et al. 2015; 2016], le faisceau perturbatif est doublé en fréquence. Les deux potentiels vecteurs s'écrivent

désormais  $\vec{A}_1 = \vec{A}_1^{(0)} \sin(\omega t)$  et  $\vec{A}_2 = \vec{A}_2^{(0)} \sin(2\omega t + \varphi)$ . Les équations (6.4), (6.5) et (6.8) deviennent alors :

$$\sigma(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi) = \frac{e}{m} \left[ \vec{p} \cdot \vec{A}_2^{(0)} \frac{\cos(2\omega t' + \varphi)}{2\omega} + e \vec{A}_1^{(0)} \cdot \vec{A}_2^{(0)} \left( \frac{\sin(3\omega t' + \varphi)}{6\omega} - \frac{\sin(\omega t' + \varphi)}{2\omega} \right) \right]_{t_i}^{t_f} \quad (6.9)$$

$$e^{\frac{i}{\hbar} S(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi)} = e^{\frac{i}{\hbar} S_1(\vec{p}, t_i, t_f, \varphi)} \left( \sum_{k=-\infty}^{+\infty} i^k J_k(u) e^{ik(2\omega t_f + \varphi)} \right) \left( \sum_{r=-\infty}^{+\infty} J_r\left(\frac{v}{3}\right) e^{ir(3\omega t_f + \varphi)} \right) \left( \sum_{s=-\infty}^{+\infty} J_s(-v) e^{is(\omega t_f + \varphi)} \right) \quad (6.10)$$

$$\text{avec} \begin{cases} u = \lambda \frac{e}{m} \frac{\vec{p} \cdot \vec{A}_2^{(0)}}{2\hbar\omega} \\ v = \lambda \frac{e}{m} \frac{e \vec{A}_1^{(0)} \cdot \vec{A}_2^{(0)}}{2\hbar\omega} \end{cases} \quad (6.11)$$

$$\vec{x}_\omega^{sum} = \vec{x}_\omega \sum_{k,r,s} J_k(u) J_r\left(\frac{v}{3}\right) J_s(-v) e^{i(2k+3r+s)\omega t_f + (k+r+s)\varphi + k\pi/2} \left(1 - (-1)^{n+k}\right) \quad (6.12)$$

Un quadruplet  $(n, k, r, s)$  génère l'harmonique  $q = n + 2k + 3r + s$ . Cette harmonique est non nulle seulement si  $n + k$  est impair.

### 6.1.2 Modèle multiphotonique : conservation de la parité et de l'énergie

Intéressons-nous à présent à ce qu'impliquent ces résultats en termes de photons. Pour cela, commençons par rappeler les règles de conservation de l'énergie et de la parité, et voyons ensuite pour chacun des deux cas étudiés comment interpréter l'expression obtenue pour le dipôle harmonique afin de retrouver ces deux lois qui découlent du modèle multiphotonique.

D'une manière générale, la loi de conservation de l'énergie, lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux, s'écrit :

$$\hbar\omega_q = n_1 \hbar\omega_1 + n_2 \hbar\omega_2 \quad \text{soit} \quad \omega_q = n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 \quad (6.13)$$

où  $\omega_1$ ,  $\omega_2$  et  $\omega_q$  sont respectivement les pulsations des faisceaux de génération, de perturbation et de l'harmonique d'ordre  $q$  générée. Nous pouvons considérer sans perte de généralité que  $n_1$  est un entier positif et  $n_2$  un entier positif ou négatif rendant compte de la somme ou la différence de fréquences respectivement.

De plus, la conservation de la parité stipule que seuls les processus impliquant un nombre total pair de photons (nombre impair de photons infrarouges + un photon XUV émis) sont autorisés dans les milieux centrosymétriques. Autrement dit, il faut que la somme  $n_1 + n_2$  soit toujours impaire.

**Expériences à une couleur** Dans ce cas, nous avons  $\omega_q = q\omega$  et la conservation de l'énergie se simplifie pour donner  $q = n_1 + n_2$ . Du fait de la conservation de la parité, seules les harmoniques impaires peuvent être générées. Ces règles se retrouvent dans l'équation (6.8) :

- les indices  $n$  et  $r$  correspondent respectivement à des photons du faisceau principal et du faisceau perturbatif
- l'indice  $s$  renvoie quant à lui à un battement de fréquence à  $2\omega$  entre les deux faisceaux et correspond donc à deux photons, l'un du faisceau principal et l'autre du faisceau perturbatif.

Le nombre total de photons absorbés provenant du faisceau principal vaut alors  $n_1 = n + s$  et le nombre de photons perturbatifs absorbés est  $n_2 = r + s$ . L'indice  $s$  comptant pour deux photons, la somme  $n + r$  est de même parité que  $n_1 + n_2$ . Nous retrouvons ainsi les lois de conservation de l'énergie et de la parité du modèle multiphotonique où  $q = n_1 + n_2$ . Notons qu'il existe ainsi plusieurs combinaisons de photons  $(n_1, n_2)$  possibles pour produire la même harmonique. Quelques exemples sont représentés sur la figure 6.1 pour l'harmonique 11.

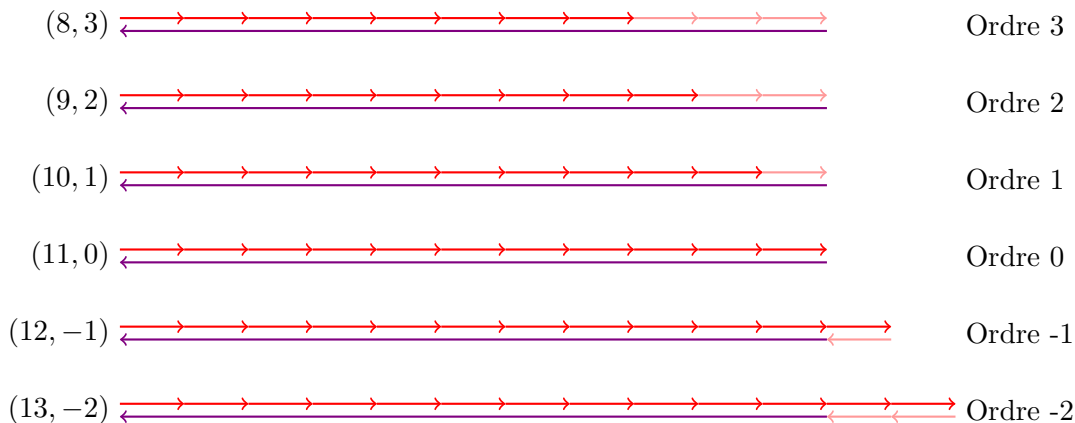


FIGURE 6.1 – Quelques combinaisons de  $(n_1, n_2)$  possibles pour générer un photon de l'harmonique 11 dans le cas à une couleur. Les photons des faisceaux de génération, de perturbation et harmonique sont représentés en rouge intense, rouge pâle et violet respectivement.

L'ordre 0 de perturbation correspond au couple  $(r, s) = (0, 0)$ . Seules les harmoniques impaires sont générées et  $q = n = n_1$ .

Considérons à présent le premier ordre de perturbation. Les couples  $(r, s)$  mis en jeu sont donnés dans le tableau 6.1, ainsi que les valeurs correspondantes de  $n, n_1$  et  $n_2$ . Quand  $n < q$  (soit  $n_2 > 0$ ), on a absorption d'un photon du faisceau perturbatif (somme de fréquences). Quand  $n > q$  (soit  $n_2 < 0$ ), on a émission d'un photon perturbatif (différence de fréquences). Dans chacun de ces deux cas, deux processus interviennent, avec des amplitudes relatives comparables  $J_{\pm 1}(u)J_0(\frac{v}{2})$  et  $J_0(u)J_{\pm 1}(\frac{v}{2})$ .

$(r, s)$	(1, 0)	(0, 1)	(-1, 0)	(0, -1)
$n$	$q - 1$	$q - 2$	$q + 1$	$q + 2$
$n_1$	$q - 1$		$q + 1$	
$n_2$	1		-1	

TABLE 6.1 – Premier ordre de perturbation de l'harmonique  $q$  (impair).

L'ensemble des processus donnant lieu au second ordre de perturbation est donné dans le tableau 6.2. Comme précédemment, on a absorption (respectivement émission) de deux photons perturbatifs lorsque  $n_2 > 0$  (respectivement  $n_2 < 0$ ). La somme (tout comme la différence) de fréquences fait intervenir trois processus, d'amplitudes relatives  $J_{\pm 2}(u)J_0(\frac{v}{2})$ ,  $J_{\pm 1}(u)J_{\pm 1}(\frac{v}{2})$  et  $J_0(u)J_{\pm 2}(\frac{v}{2})$ .

$(r, s)$	(2, 0)	(1, 1)	(0, 2)	(-2, 0)	(-1, -1)	(0, -2)
$n$	$q - 2$	$q - 3$	$q - 4$	$q + 2$	$q + 3$	$q + 4$
$n_1$	$q - 2$			$q + 2$		
$n_2$	2			-2		

TABLE 6.2 – Second ordre de perturbation de l'harmonique  $q$  (impair).

Nous pouvons faire de même avec le troisième ordre de perturbation (tableau 6.3). La somme et la différence de fréquence font chacune intervenir quatre processus, d'amplitudes relatives  $J_{\pm 3}(u)J_0(\frac{v}{2})$ ,  $J_{\pm 2}(u)J_{\pm 1}(\frac{v}{2})$ ,  $J_{\pm 1}(u)J_{\pm 2}(\frac{v}{2})$  et  $J_0(u)J_{\pm 3}(\frac{v}{2})$ .

$(r, s)$	$(3, 0)$	$(2, 1)$	$(1, 2)$	$(0, 3)$	$(-3, 0)$	$(-2, -1)$	$(-1, -2)$	$(0, -3)$
$n$	$q - 3$	$q - 4$	$q - 5$	$q - 6$	$q + 3$	$q + 4$	$q + 5$	$q + 6$
$n_1$	$q - 3$				$q + 3$			
$n_2$	$3$				$-3$			

TABLE 6.3 – Troisième ordre de perturbation de l'harmonique  $q$  (impaire).

D'une manière générale, seules les harmoniques impaires sont émises et chaque ordre de perturbation fait intervenir  $n_2 + 1$  processus (en réalité, bien davantage de processus peuvent entrer en jeu, mais nous verrons dans la section 6.3 que leurs amplitudes relatives sont plus faibles que ceux mentionnés ici).

**Expériences à deux couleurs** Dans le cas où la perturbation est doublée en fréquence, la conservation de l'énergie s'écrit alors  $q = n_1 + 2n_2$  et la conservation de la parité autorise désormais la génération d'harmoniques paires. Ces règles se retrouvent dans l'équation (6.12) :

- les indices  $n$  et  $k$  correspondent respectivement à des photons du faisceau principal et du faisceau perturbatif
- l'indice  $r$  (respectivement  $s$ ) renvoie quant à lui à un battement de fréquence à  $3\omega$  (respectivement  $\omega$ ) entre les deux faisceaux et correspond donc à deux photons, l'un du faisceau principal et l'autre du faisceau perturbatif.

Le nombre total de photons absorbés provenant du faisceau principal vaut alors  $n_1 = n + r - s$  et le nombre de photons perturbatifs absorbés est  $n_2 = k + r + s$ . Les indices  $r$  et  $s$  comptant pour deux photons, la somme  $n + k$  est de même parité que  $n_1 + n_2$ . L'absorption d'un nombre impair de photons à la fréquence  $\omega$  (et donc d'un nombre pair de photons à  $2\omega$ ) conduit à la génération des harmoniques impaires, tandis que les harmoniques paires sont générées par absorption d'un nombre pair de photons à  $\omega$  (et donc d'un nombre impair de photons à  $2\omega$ ). Nous retrouvons ainsi les lois de conservation de l'énergie et de la parité du modèle multiphotonique où  $q = n_1 + 2n_2$ . Quelques combinaisons possibles sont représentés sur les figures 6.2 et 6.3 pour les harmoniques 10 et 11 respectivement.

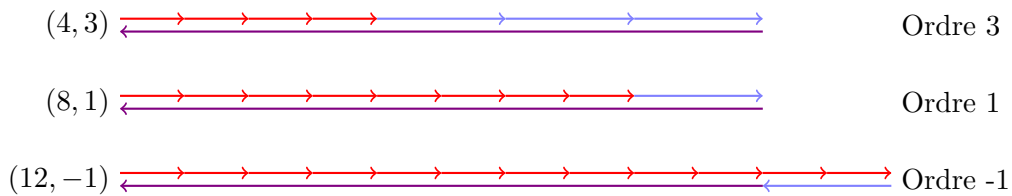


FIGURE 6.2 – Quelques combinaisons de  $(n_1, n_2)$  possibles pour générer un photon de l'harmonique 10 dans le cas à deux couleurs. Les photons des faisceaux de génération, de perturbation et harmonique sont représentés en rouge, bleu et violet respectivement. L'absorption d'un nombre pair de photons à  $2\omega$  est interdite par la loi de conservation de la parité.

Considérons le premier ordre de perturbation. Dans le cas de la somme de fréquences, l'harmonique d'ordre  $q$  pair peut être générée par les quadruplets  $(n, k, r, s) = (q - 2, 1, 0, 0)$ ,  $(n, k, r, s) = (q - 3, 0, 1, 0)$  et  $(n, k, r, s) = (q - 1, 0, 0, 1)$ . Ces quadruplets correspondent tous les trois à  $(n_1, n_2) = (q - 2, 1)$  dans le modèle multiphotonique. Pour la différence de fréquences, il suffit d'inverser tous les signes (sauf celui de  $q$ ).

De la même manière, le second ordre positif de perturbation est produit par les quadruplets  $(n, k, r, s) = (q - 4, 2, 0, 0)$ ,  $(n, k, r, s) = (q - 6, 0, 2, 0)$ ,  $(n, k, r, s) = (q - 2, 0, 0, 2)$ ,  $(n, k, r, s) =$

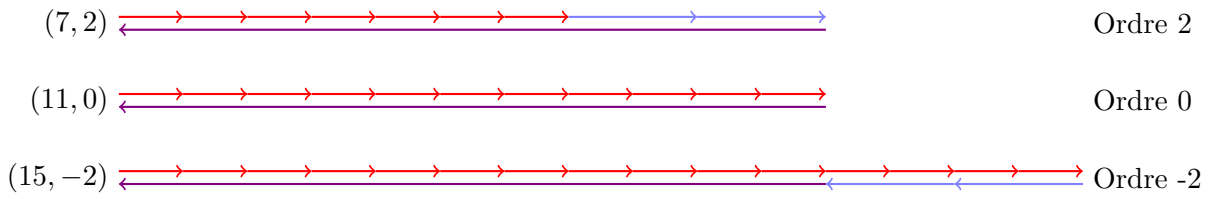


FIGURE 6.3 – Quelques combinaisons de  $(n_1, n_2)$  possibles pour générer un photon de l'harmonique 11 dans le cas à deux couleurs. L'absorption d'un nombre impair de photons à  $2\omega$  est interdite par la loi de conservation de la parité.

$(q - 5, 1, 1, 0)$ ,  $(n, k, r, s) = (q - 3, 1, 0, 1)$  et  $(n, k, r, s) = (q - 4, 0, 1, 1)$ . L'ordre -2 est également obtenu en inversant les signes.

Il est intéressant de noter que par rapport au cas à une couleur, un plus grand nombre de processus conduisent à la génération d'un même ordre de perturbation dans le cas à deux couleurs.

## 6.2 Calcul du dipôle harmonique dans le cas de deux faisceaux non-colinéaires

Outre le choix des fréquences, la génération d'harmoniques à plusieurs faisceaux fournit un degré de liberté très intéressant : l'angle entre les faisceaux. En effet, l'utilisation de géométries non-colinéaires offre de nombreux avantages, tels que la séparation en champ lointain des faisceaux harmoniques et fondamentaux [Peatross et al. 1994, Paul et al. 2001, Fomichev et al. 2002, Negro et al. 2014], la séparation des différents ordres harmoniques sans avoir recours à un spectromètre [Birulin et al. 1996, Ellis et al. 2017], la génération d'harmoniques assistée par cavité [Ozawa et al. 2008, Wu et Zeng 2007, Moll et al. 2006], la caractérisation spatio-temporelle d'impulsions attosecondes [Kim et al. 2013]...

### 6.2.1 Modèle multiphotonique : conservation de l'impulsion

En particulier, la combinaison non-colinéaire de deux faisceaux permet de séparer angulairement les photons harmoniques générés par les différentes combinaisons de photons  $(n_1, n_2)$  présentées juste avant [Bertrand et al. 2011]. La direction d'émission est gouvernée par la loi de conservation de l'impulsion :

$$\vec{k}_q = n_1 \vec{k}_1 + n_2 \vec{k}_2 \quad (6.14)$$

où  $\vec{k}_1$ ,  $\vec{k}_2$  et  $\vec{k}_q$  sont respectivement les vecteurs d'onde des faisceaux de génération, de perturbation et de l'harmonique d'ordre  $q$  générée. La figure 6.4 illustre ce phénomène dans le cas à une couleur pour les combinaisons de photons représentées sur la figure 6.1.

Nous allons maintenant démontrer comment nous pouvons retrouver cette règle par le calcul du dipôle harmonique dans le cadre de l'approximation de champ fort.

### 6.2.2 Développement perturbatif et condition d'accord de phase

En effectuant un développement perturbatif de la phase atomique dans le cadre de l'approximation de champ fort, nous avons trouvé dans la section 6.1 une multitude de processus intervenant dans la génération d'harmoniques à deux faisceaux colinéaires. Soyons à présent plus complet et prenons en compte l'effet d'un petit angle  $\gamma \ll 1$  rad entre les deux faisceaux. Il suffit pour cela d'inclure les vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  dans les expressions des potentiels vecteurs.

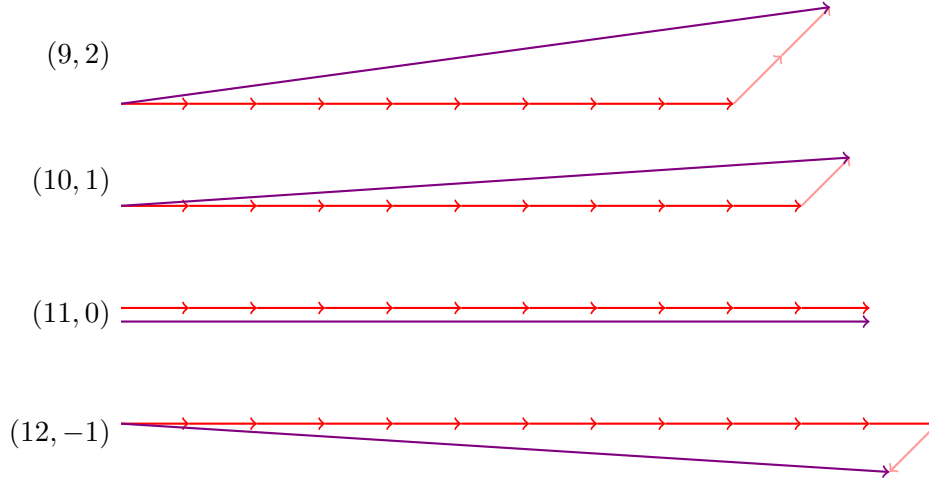


FIGURE 6.4 – Illustration de la conservation de l'impulsion dans le cas à une couleur pour l'harmonique 11.

**Cas à une couleur** Nous reprenons le calcul de la phase atomique avec :

$$\begin{cases} \vec{A}_1 = \vec{A}_1^{(0)} \sin(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r}) \\ \vec{A}_2 = \vec{A}_2^{(0)} \sin(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r} + \varphi) \end{cases} \quad (6.15)$$

où  $\vec{r}$  décrit la position dans le milieu. Nous introduisons également le vecteur d'onde de l'XUV  $\vec{k}_q$ . La condition d'accord de phase s'écrit désormais :

$$\vec{k}_q = \vec{\nabla} \Phi_{XUV} + n\vec{k}_1 + r\vec{k}_2 + s(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) \quad (6.16)$$

$$= \vec{\nabla} \Phi_{XUV} + (n+s)\vec{k}_1 + (r+s)\vec{k}_2 \quad (6.17)$$

Il est intéressant de noter que dans cette approche perturbative, la phase atomique  $\Phi_{XUV}$  reste inchangée. Ce ne sera plus vrai pour des intensités plus élevées du faisceau "perturbatif", car le temps d'excursion sera significativement modifié par le potentiel vecteur.

Les processus décrits précédemment sont schématisés sur les figures 6.5, 6.6 et 6.7 pour les trois premiers ordres de perturbation de l'harmonique 11. Les différents ordres de perturbation se séparent angulairement. Notons que tous les processus (y compris ceux que nous avons négligés) conduisant à la génération d'un même ordre de perturbation émettent avec le même angle.



FIGURE 6.5 – Harmonique 11 non perturbée. Les flèches rouges représentent les vecteurs d'onde des photons infrarouges et la flèche violette celui de l'XUV. Le terme  $\vec{\nabla} \Phi_{XUV}$  est ici négligé.

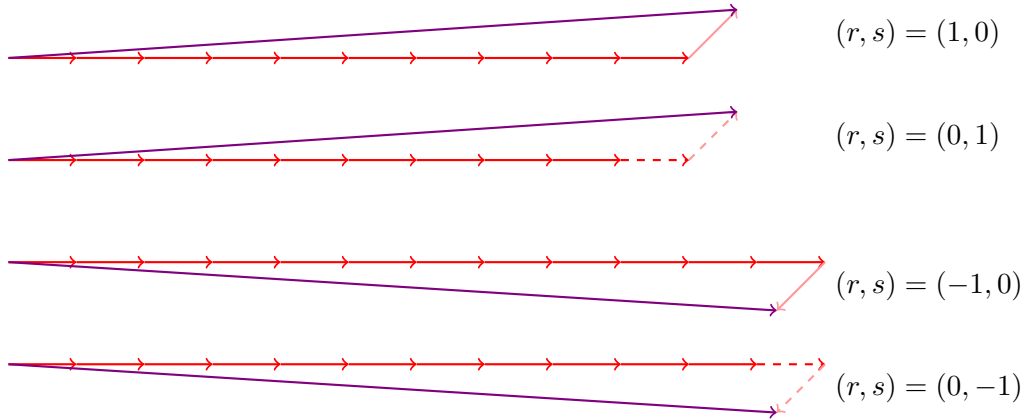


FIGURE 6.6 – Premier ordre de perturbation pour l'harmonique 11. En rouge intense les photons du faisceau principal, en rouge pâle les photons perturbatifs et en violet l'XUV. Les indices  $n$  et  $r$  sont représentés en traits pleins, tandis que l'indice  $s$  est tracé avec des tirets. Le terme  $\vec{\nabla}\Phi_{XUV}$  est ici négligé.

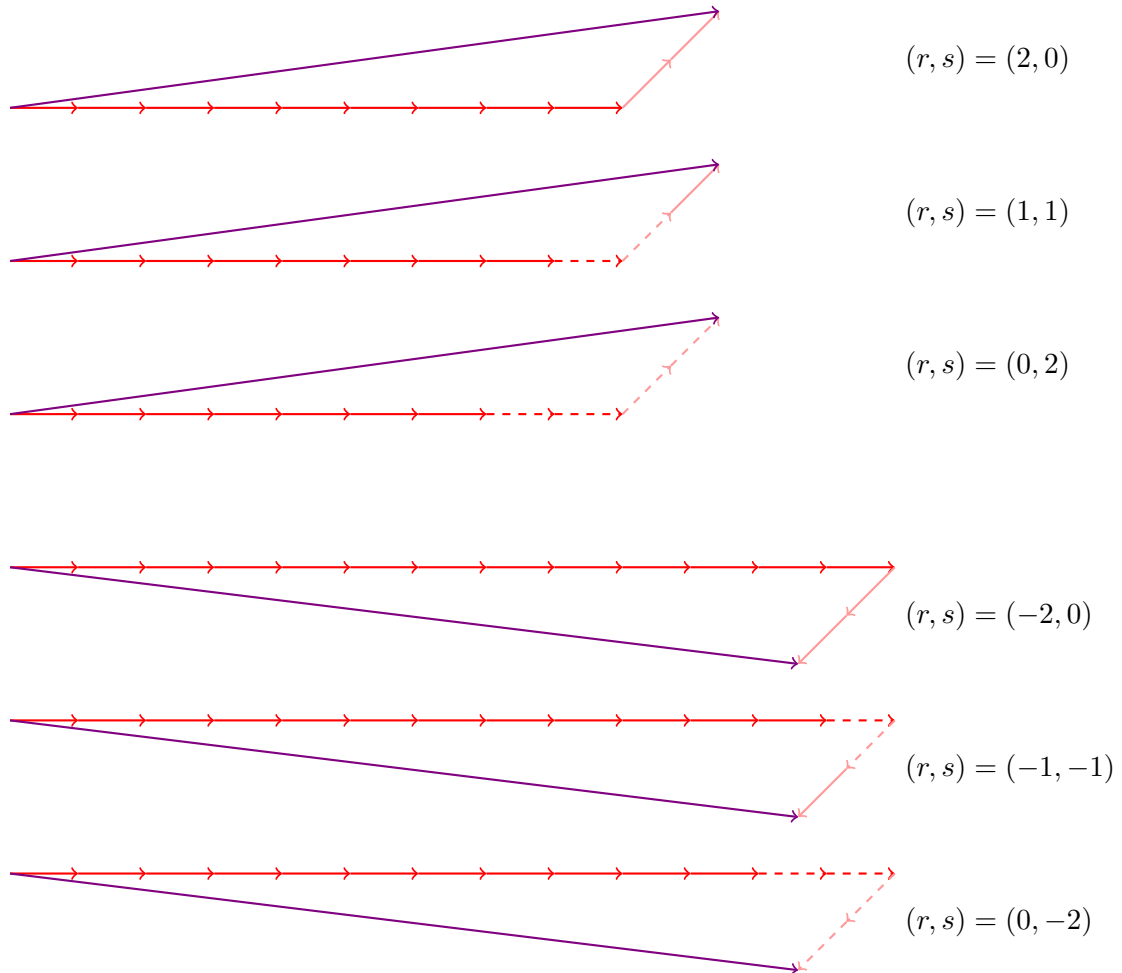


FIGURE 6.7 – Second ordre de perturbation pour l'harmonique 11. En rouge intense les photons du faisceau principal, en rouge pâle les photons perturbatifs et en violet l'XUV. Les indices  $n$  et  $r$  sont représentés en traits pleins, tandis que l'indice  $s$  est tracé avec des tirets. Le terme  $\vec{\nabla}\Phi_{XUV}$  est ici négligé.



**Cas à deux couleurs** Nous reprenons le calcul de la phase atomique avec cette fois-ci :

$$\begin{cases} \vec{A}_1 = \vec{A}_1^{(0)} \sin(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r}) \\ \vec{A}_2 = \vec{A}_2^{(0)} \sin(2\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r} + \varphi) \end{cases} \quad (6.18)$$

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

$$\vec{k}_q = \vec{\nabla}\Phi_{XUV} + n\vec{k}_1 + k\vec{k}_2 + r(\vec{k}_1 + \vec{k}_2) + s(\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \quad (6.19)$$

$$= \vec{\nabla}\Phi_{XUV} + (n+r-s)\vec{k}_1 + (k+r+s)\vec{k}_2 \quad (6.20)$$

Les processus décrits précédemment sont schématisés sur les figures 6.8 et 6.9 pour les ordres de perturbation +1 de l'harmonique 10 et +2 de l'harmonique 11 respectivement.

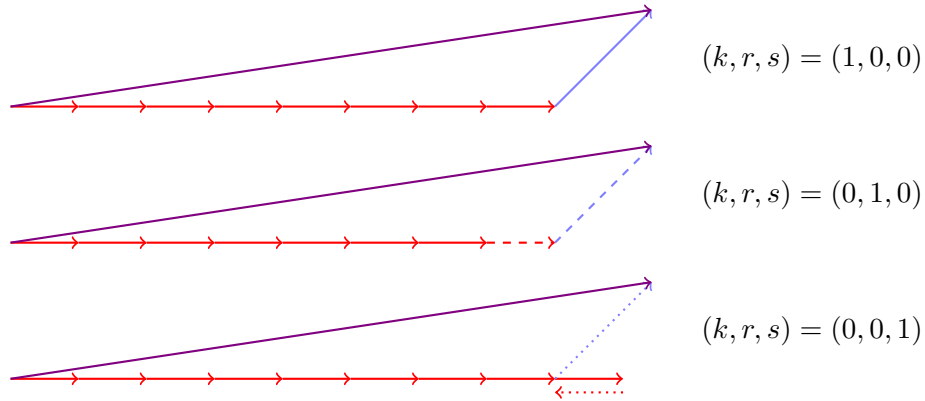


FIGURE 6.8 – Premier ordre de perturbation pour l'harmonique 10. En rouge les photons du faisceau principal, en bleu les photons perturbatifs et en violet l'XUV. Les indices  $n$  et  $k$  sont représentés en traits pleins, tandis que les indices  $r$  et  $s$  sont tracés avec des tirets et des pointillés respectivement. Le terme  $\vec{\nabla}\Phi_{XUV}$  est ici négligé.

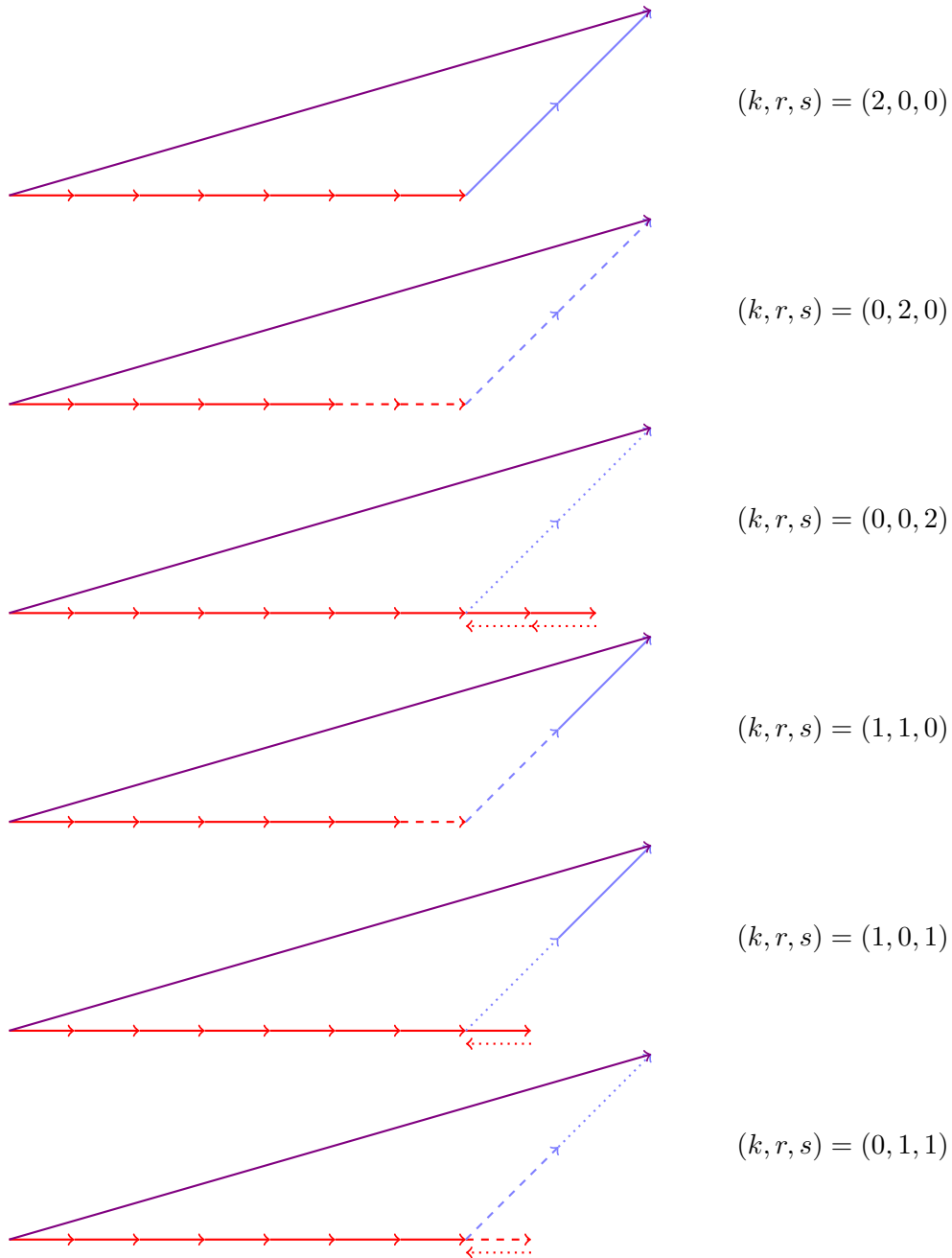


FIGURE 6.9 – Second ordre de perturbation pour l'harmonique 11. En rouge les photons du faisceau principal, en bleu les photons perturbatifs et en violet l'XUV. Les indices  $n$  et  $k$  sont représentés en traits pleins, tandis que les indices  $r$  et  $s$  sont tracés avec des tirets et des pointillés respectivement. Le terme  $\vec{\nabla}\Phi_{XUV}$  est ici négligé.

### 6.3 Rendements harmoniques

Il est intéressant de noter qu'aucune dissymétrie entre somme et différence de fréquences n'apparaît dans ce modèle puisque  $\forall m \in \mathbb{N}, |J_m| = |J_{-m}|$ . Nous aurions donc *a priori* autant de chances d'absorber que d'émettre des photons perturbatifs, et les ordres de perturbation positifs devraient avoir les mêmes amplitudes que leurs homologues négatifs.

Par ailleurs, comme nous pouvons le constater sur la figure 6.10(a), les fonctions de Bessel de première espèce voient leur amplitude décroître autour de zéro lorsque leur ordre augmente. En conséquence, d'après ce modèle, les ordres de perturbation seraient d'autant moins intenses que leur ordre est élevé (en valeur absolue). C'est un résultat très classique d'optique non-linéaire perturbative [Boyd 2008].

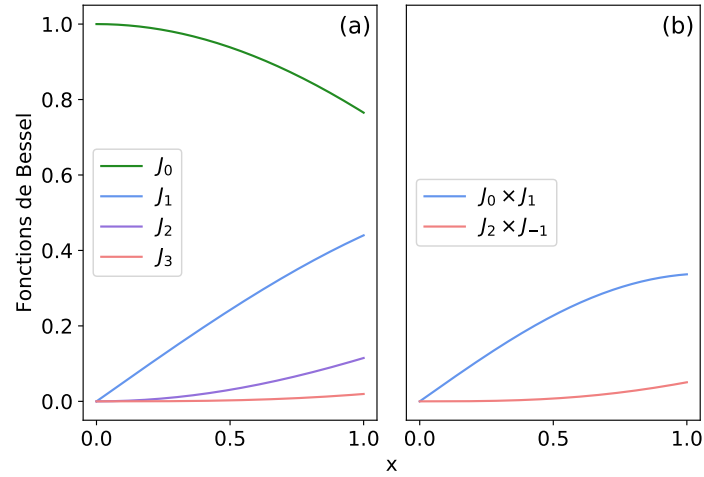


FIGURE 6.10 – (a) Courbes représentatives des quatre premières fonctions de Bessel de première espèce entre 0 et 1. (b) Comparaison de deux produits de fonctions de Bessel correspondant tous deux au premier ordre de perturbation.

Enfin, nous nous sommes permis de négliger certains processus dans la section 6.1. Par exemple, les couples  $(r, s) = (1, -1)$  et  $(r, s) = (-1, 1)$  produisent également l'ordre 0 mais avec des amplitudes relatives  $J_{\pm 1}(u)J_{\mp 1}(\frac{v}{2})$  plus faibles que  $J_0(u)J_0(\frac{v}{2})$ . De même, les couples  $(r, s) = (2, -1)$ ,  $(r, s) = (-1, 2)$ ,  $(r, s) = (-2, 1)$  et  $(r, s) = (1, -2)$  génèrent les ordres  $\pm 1$  mais avec des amplitudes relatives plus faibles (voir la figure 6.10(b)) que les couples  $(r, s) = (1, 0)$ ,  $(r, s) = (0, 1)$ ,  $(r, s) = (-1, 0)$  et  $(r, s) = (0, -1)$ , etc... De façon assez évidente, pour un ordre de perturbation donné, les processus mettant en jeu de plus grands nombres de photons sont moins importants que les processus plus "directs".

Dans le chapitre 7, nous nous proposons de tester expérimentalement (sur le laser LUCA) et numériquement (par les simulations quantiques complètes de Thierry Auguste) la plupart de ces prédictions. Par contre, nous n'avons pas pu séparer les différentes contributions à un ordre de perturbation donné.

## Chapitre 7

# Expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires

Dans le chapitre 6, nous venons de présenter un modèle simple permettant d'appréhender de manière intuitive la génération d'harmoniques à deux faisceaux. Nous allons à présent confronter cette théorie à la réalité. Les expériences que nous exposons dans ce chapitre ont été réalisées sur le laser LUCA à Saclay et mettent en jeu deux faisceaux gaussiens non-colinéaires et de même fréquence. Les résultats obtenus seront ensuite confortés par des simulations numériques effectuées par Thierry Auguste.

### 7.1 Le dispositif expérimental : interféromètre de type Mach-Zehnder

Pour que la génération d'harmoniques à deux faisceaux ait lieu, il faut que les deux impulsions laser génératrices se recouvrent spatialement au niveau du jet de gaz et soient synchronisées temporellement. De plus, nous avons besoin de pouvoir contrôler les paramètres des deux faisceaux indépendamment. Afin de satisfaire à ces conditions, nous avons mis en œuvre un interféromètre de type Mach-Zehnder tel que représenté sur la figure 7.1.

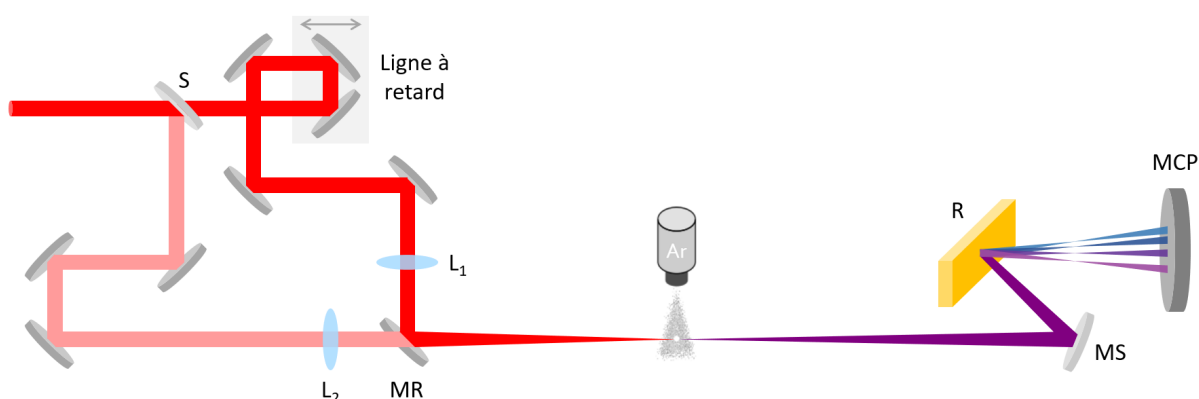


FIGURE 7.1 – Schéma du montage expérimental de génération d'harmoniques à deux faisceaux. S : lame séparatrice.  $L_1$  et  $L_2$  : lentilles convergentes de focale 1 m. MR : miroir de recombinaison. MS : miroir sphérique en  $B_4C$ . R : réseau plan en or. MCP : galettes de micro-canaux suivies d'un écran de phosphore.

Sur ce schéma, la lumière se propage de la gauche vers la droite. Le faisceau est divisé en deux

par une lame séparatrice mince : les parties transmise et réfléchie constituent respectivement les faisceaux de génération et de perturbation. Dans chacun des bras de notre interféromètre se trouvent un atténuateur formé d'une lame demi-onde et d'un polariseur en réflexion (composé de lames à l'incidence de Brewster), ainsi qu'un iris (par souci de lisibilité, ces éléments ne sont pas représentés sur la figure 7.1). Ainsi nous pouvons régler l'énergie et le taille des deux faisceaux indépendamment. Notons qu'il aurait été plus simple d'utiliser une lame demi-onde suivie d'un cube séparateur de polarisation plutôt qu'une lame séparatrice et deux atténuateurs, mais l'épaisseur du cube aurait notablement rallongé la durée d'impulsion, ce qui n'est pas souhaitable pour nos expériences.

Dans le bras de génération, une ligne à retard commandée par une vis micrométrique et un moteur piézoélectrique permet de synchroniser finement les deux faisceaux. Des lentilles de focale 1 m viennent ensuite focaliser les deux faisceaux au niveau du jet de gaz. Au niveau du miroir dit "de recombinaison", les deux faisceaux sont séparés verticalement d'environ 1.5 cm (centre à centre) : la génération est réfléchie par le miroir et se propage sur l'axe optique, tandis que la perturbation passe au-dessus du miroir et arrive avec un petit angle sur la cible. Étant données les tailles de faisceaux que nous utilisons (de l'ordre de 0.5 cm de rayon), nous ne pouvons pas réaliser des angles inférieurs à 13 mrad avec ce dispositif de recombinaison. Une lame séparatrice lèverait cette contrainte mais une partie de la génération et de la perturbation serait transmise ou respectivement réfléchie par celle-ci, ce qui réduirait sensiblement l'énergie disponible en sortie d'interféromètre.

Précisons que dans ces expériences, la polarisation des deux faisceaux est fixée par les atténuateurs et est linéaire verticale. Les faisceaux peuvent alors interférer entre eux : lorsqu'ils se recouvrent bien spatialement et temporellement, nous pouvons visualiser les franges d'égale épaisseur, dont l'interfrange dépend de l'angle entre les deux faisceaux (voir figure 7.2).

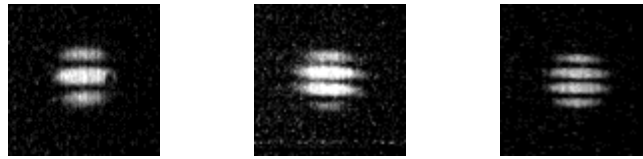


FIGURE 7.2 – Figures d'interférences au foyer (enregistrées à l'aide d'une caméra CCD) pour des angles entre les deux faisceaux de 13, 17 et 21 mrad (de gauche à droite).

Ensuite, les harmoniques sont générées dans l'argon puis détectées à l'aide du spectromètre décrit dans le chapitre 2, constitué d'un miroir en  $B_4C$ , d'un réseau en or et de galettes de micro-canaux.

## 7.2 Spectres harmoniques obtenus en fonction de l'énergie de perturbation et de l'angle entre les deux faisceaux

La figure 7.3 illustre un exemple typique de spectre obtenu avec le laser LUCA lorsqu'on génère des harmoniques à partir de deux faisceaux non-colinéaires. Il s'agit de l'image obtenue directement sur les galettes de micro-canaux, enregistrée avec une caméra visible (nous avons accumulé ici 500 tirs laser).

Le réseau de notre spectromètre diffracte les harmoniques dans le plan horizontal. Nous observons donc de gauche à droite les harmoniques 9, 11, 13 et 15. C'est d'ailleurs pour cette raison que nous avons mis nos deux faisceaux infrarouges dans un plan vertical et non horizontal : ainsi, la séparation des ordres de perturbation (par conservation du moment linéaire) se fait également dans un plan vertical. En résumé, sur l'axe x nous voyons les différents ordres harmoniques et selon l'axe y les différents ordres de perturbation. Dans toute la suite de cette thèse, les spectres harmoniques à deux faisceaux devront être interprétés ainsi.

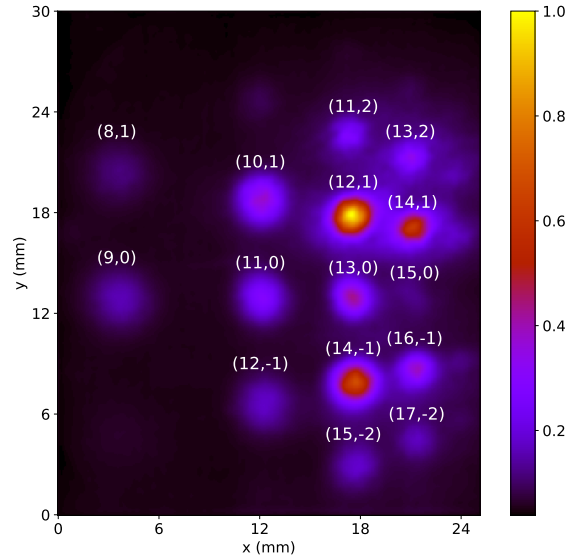


FIGURE 7.3 – Exemple de spectre harmonique obtenu lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires. Chaque ordre de perturbation est identifié par sa combinaison de photons  $(n_1, n_2)$  d'après le modèle multiphotonique,  $n_2$  donnant l'ordre de perturbation.

Cette figure 7.3 semble valider les lois de conservation de la parité, de l'énergie et de l'impulsion établies par le modèle multiphotonique présenté dans le chapitre 6. L'ordre 0 (non perturbé) est émis sur l'axe : les harmoniques ont toutes la même ordonnée sur la figure. C'est notre point de repère pour identifier tous les autres ordres de perturbation. Le schéma 7.4 nous permet d'affirmer que les processus de génération de somme de fréquences se trouvent au-dessus de l'ordre 0 sur la figure (et donc la différence de fréquences est en dessous).

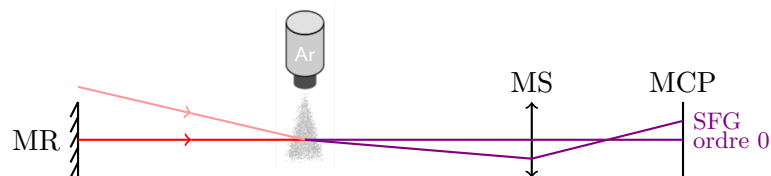


FIGURE 7.4 – Vue de côté simplifiée du montage expérimental. MR : miroir de recombinaison. MS : miroir sphérique. MCP : galettes de micro-canaux (et écran de phosphore). En rouge intense : le faisceau de génération. En rouge pâle : le faisceau de perturbation. En violet : les faisceaux XUV. SFG : génération de somme de fréquences.

Afin de tester plus finement cette théorie, nous avons étudié l'influence de quelques paramètres expérimentaux sur les spectres harmoniques. La figure 7.5 montre les spectres harmoniques obtenus pour différentes valeurs de l'énergie de perturbation et de l'angle entre les deux faisceaux.

Nous observons que l'augmentation de l'énergie du faisceau de perturbation permet la génération d'ordres de perturbation de plus en plus élevés. Ceci peut se comprendre assez intuitivement grâce au modèle multiphotonique : plus il y a d'énergie dans le faisceau perturbatif, plus il y a de photons disponibles pour générer des combinaisons  $(n_1, n_2)$  avec des  $n_2$  de plus en plus élevés. De plus, la somme de fréquences (correspondant à  $n_2 > 0$ ) domine par rapport à la différence de fréquences ( $n_2 < 0$ ). Ces résultats sont assez similaires à ceux de [Bertrand et al. 2011]. Nous commenterons de manière plus détaillée les intensités relatives des ordres de perturbation dans la section 7.3.

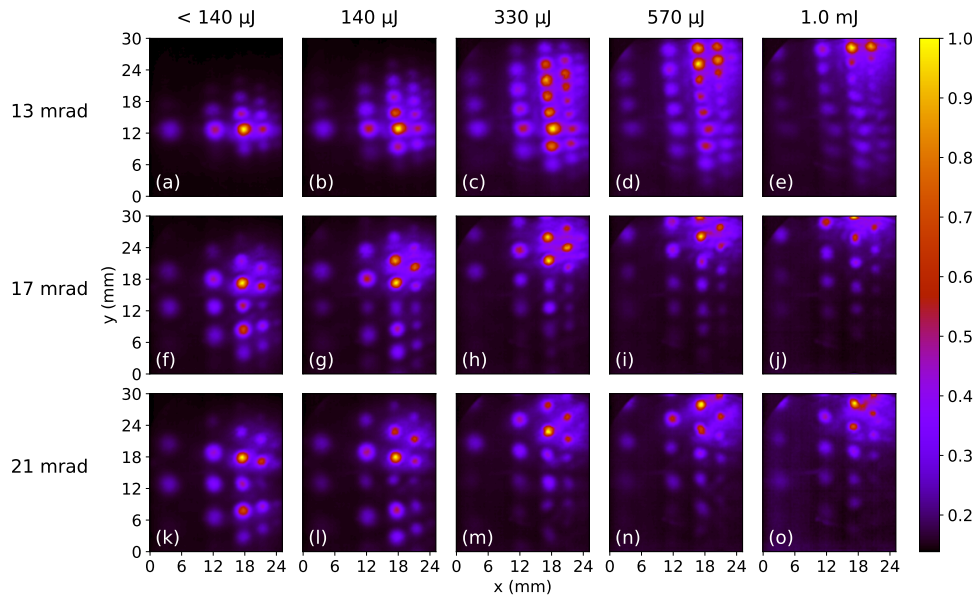


FIGURE 7.5 – Harmoniques 9, 11, 13 et 15 observées pour des énergies de perturbation croissantes de gauche à droite et des angles entre les deux faisceaux croissants de haut en bas.

Enfin, nous remarquons sur la figure 7.5 que la séparation des ordres de perturbation (sur l'axe vertical) augmente avec l'angle entre les deux faisceaux et diminue avec l'ordre harmonique. Comme nous pouvons le constater sur la figure 7.6, cette observation est en bon accord avec la formule de l'angle d'émission harmonique, donnée dans le cas à une couleur par l'équation (7.17).

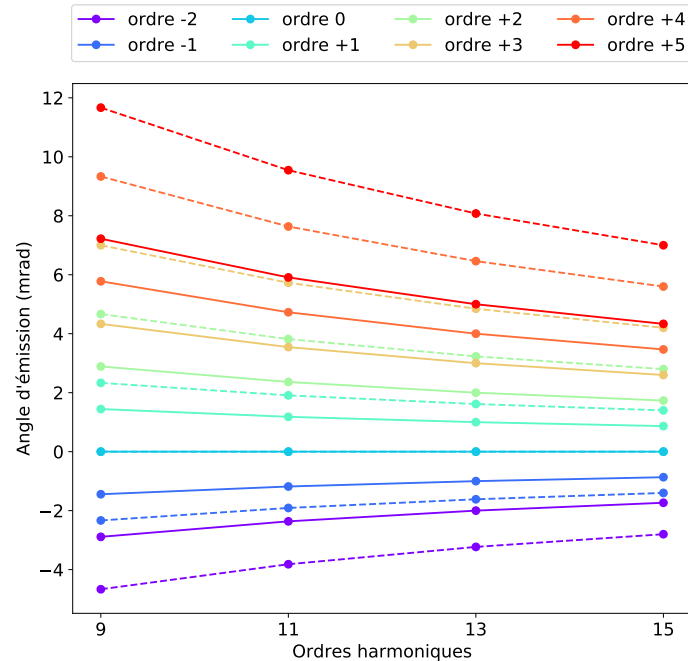


FIGURE 7.6 – Angles d'émission des ordres de perturbation -2 à +5 pour les harmoniques 9, 11, 13 et 15, calculés d'après le modèle multiphotonique. L'angle entre les deux faisceaux vaut 13 mrad pour les courbes en traits pleins et 21 mrad pour les courbes en pointillés.

A première vue, le modèle multiphotonique semble prédire correctement nos expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires. Les lois de conservation de la parité, de l'énergie et de l'impulsion sont bien vérifiées. Néanmoins, nous allons voir que l'étude des rendements des différents ordres de perturbation va nous conduire à remettre en question la théorie perturbative.

### 7.3 Intensités relatives des ordres de perturbation : premières limites du modèle perturbatif

Pour chaque harmonique et pour les trois valeurs d'angle entre les deux faisceaux de la figure 7.5, nous intégrons le signal de chaque ordre de perturbation et le représentons sur la figure 7.7 en fonction de l'énergie du faisceau de perturbation. L'intensité a été normalisée pour chacune des cartes et est donnée par la même échelle de couleur que la figure 7.5. Le comportement que nous observons ici est assez inattendu.

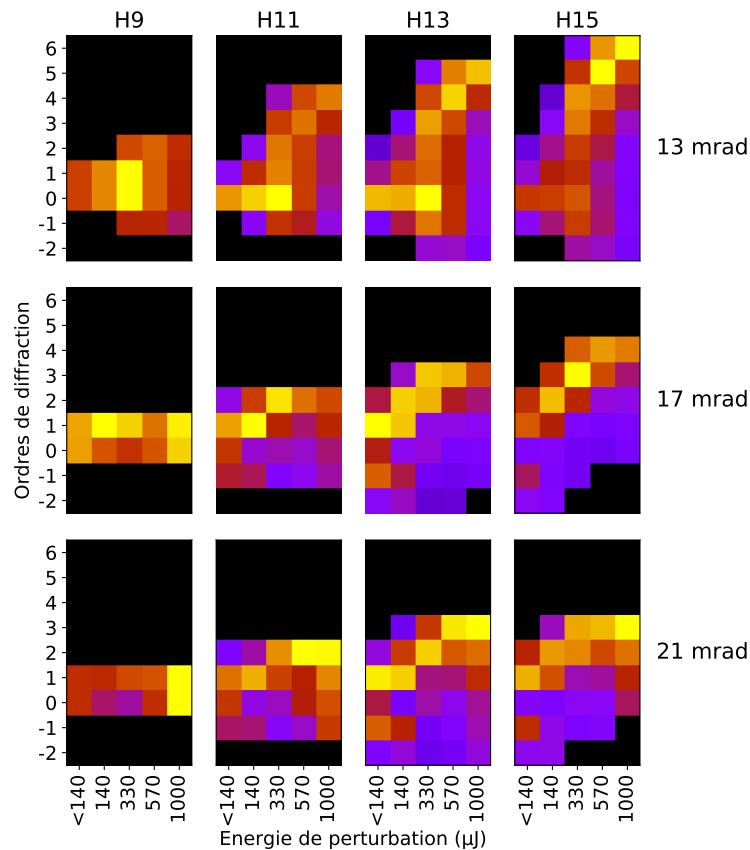


FIGURE 7.7 – Évolution de l'intensité de chaque ordre de perturbation en fonction de l'énergie de perturbation. Dans chacun des spectres harmoniques de la figure 7.5, nous isolons chaque ordre de perturbation en cherchant les maxima locaux. L'intensité d'un ordre de perturbation est ensuite calculée en sommant tous les pixels contenus dans cette zone.

#### 7.3.1 Au sujet du régime perturbatif

Nous remarquons sur la figure 7.7 que pour les énergies de perturbation élevées, les ordres visibles les plus grands sont plus intenses que les ordres inférieurs. Cette observation va à l'encontre de la théorie perturbative, qui prévoit des ordres de perturbation de plus en plus faibles.



Ce comportement est parfaitement reproduit par les simulations de Thierry Auguste (basées sur l'approximation de champ fort) représentées sur la figure 7.8. Sur ces images, l'ordre 0 de perturbation se situe à 0 mrad et les processus de génération de somme de fréquences se situent au-dessus de celui-ci, tout comme sur nos figures expérimentales.

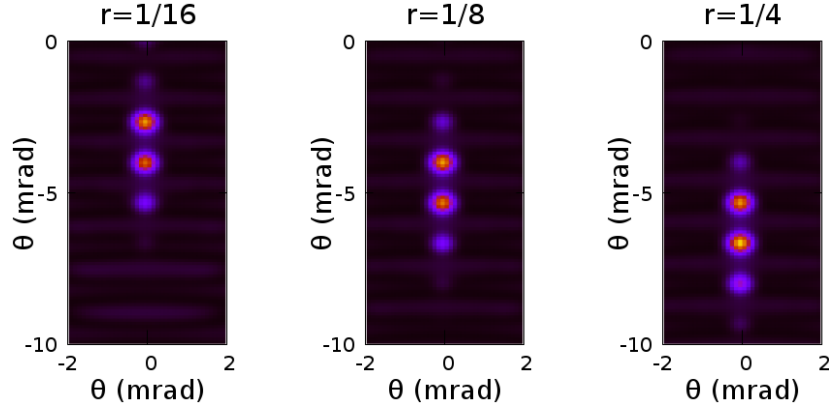


FIGURE 7.8 – Harmonique 15 simulée pour un angle entre les deux faisceaux de 20 mrad, pour des valeurs du rapport d'énergie entre les deux faisceaux de 1/16, 1/8 et 1/4 (de gauche à droite). L'ordre zéro se situe à l'ordonnée 0 mrad. Les ordres positifs de perturbation, correspondant à la génération de somme de fréquences, sont émis vers le bas : en effet, comme lors des expériences sur LUCA, le faisceau de perturbation arrive par le haut, mais les simulations ne tiennent pas compte des optiques du spectromètre qui réalisent une inversion haut/bas (voir la figure 7.4).

Ces résultats d'expériences en laboratoire et numériques contredisent les affirmations de [Bertrand et al. 2011]. Les auteurs ont généré des harmoniques à partir d'un faisceau fondamental et de sa seconde harmonique en configuration non-colinéaire. En s'appuyant sur leurs données expérimentales et leurs simulations numériques (basées sur l'approximation de champ fort), ils affirment que pour de faibles intensités du faisceau à  $2\omega$ , l'intensité des ordres générés suit la loi perturbative. Cependant, si nous regardons leurs données de plus près (voir la figure 7.9), nous nous apercevons que pour les valeurs les plus élevées de l'intensité du faisceau "perturbatif", l'intensité des ordres de perturbation les plus bas se met à décroître. Étonnamment, les auteurs ne commentent pas cette partie de la courbe. Cette décroissance n'est pourtant pas négligeable (l'échelle est logarithmique) et nous l'observons aussi bien sur leurs courbes expérimentales que théoriques.

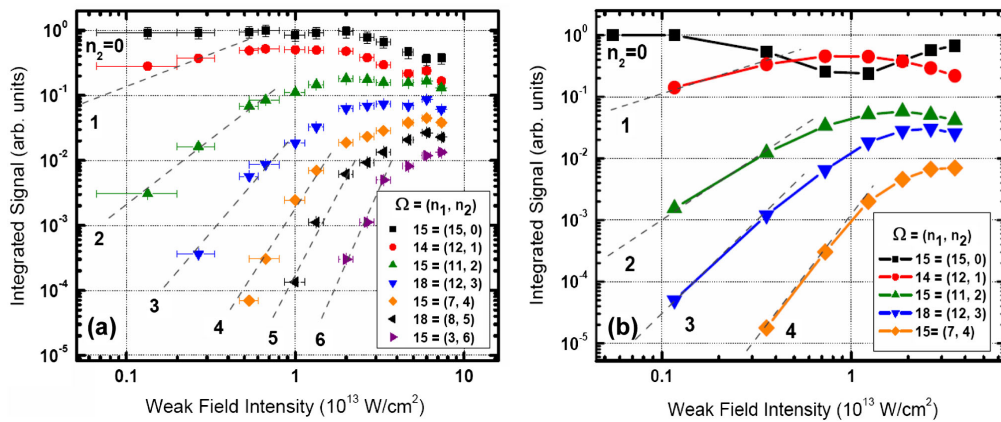


FIGURE 7.9 – Figure 3 de [Bertrand et al. 2011]. Évolution de l'intensité des ordres de perturbation en fonction de l'intensité de perturbation, en échelle logarithmique. (a) Données expérimentales. (b) Simulations numériques.

Ainsi, pour de très faibles énergies de perturbation, le développement perturbatif de la phase atomique reste valable, mais nos expériences et simulations numériques montrent que nous sortons assez rapidement de ce cadre.

Enfin, en examinant les figures 7.5 et 7.7, nous voyons que pour un angle entre les deux faisceaux de 13 mrad, nous générons jusqu'à l'ordre +6 de l'harmonique 15 alors que pour un angle de 21 mrad, nous nous arrêtons à l'ordre +3 pour la même harmonique. Il semble donc que l'énergie de perturbation ne dicte pas l'ordre de perturbation maximal observable mais plutôt l'angle d'émission maximal qu'il est possible d'atteindre. Cette caractéristique ne peut pas être prédite par le modèle multiphotonique.

Ces conclusions nous conduisent à proposer un nouveau modèle pour décrire la génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires, basé sur la théorie des réseaux et présenté dans le chapitre 8.

### 7.3.2 Compétition entre somme et différence de fréquences

Une autre question au sujet des rendements harmoniques demeure intéressante, à savoir : existe-t-il une dissymétrie entre ordres positifs et négatifs de perturbation ? Autrement dit, les processus mettant en jeu des sommes de fréquences peuvent-ils dominer ceux réalisant des différences de fréquences, ou inversement ? Enfin, est-il possible de favoriser l'un ou l'autre ?

Le modèle multiphotonique ne permet pas d'envisager de telles éventualités. Néanmoins, la littérature rapporte différents constats, quelque peu déroutants, à ce propos :

- dans le cas où les deux faisceaux sont colinéaires, [Gaarde et al. 1996a] observent que pour les basses énergies de photons (entre 15 et 30 eV), la génération de somme de fréquence domine par rapport à la différence de fréquences, et cette tendance s'inverse pour les énergies de photons plus élevées (supérieures à 40 eV)
- plus récemment, dans le cadre de la géométrie non-colinéaire et concernant les basses énergies de photons, [Bertrand et al. 2011] rapportent également que la génération de somme de fréquences est plus efficace que la différence, contrairement à [Heyl et al. 2014].

Ces derniers étayent leur propos en introduisant un terme supplémentaire d'accord dû à la géométrie non-colinéaire. Nous effectuons ici le calcul dans la configuration à une couleur et rappelons ensuite le résultat de [Heyl et al. 2014] pour une perturbation doublée en fréquence.

Commençons par le cas de deux faisceaux colinéaires. Le désaccord de phase s'écrit :

$$\overrightarrow{\Delta k}_{\parallel} = \vec{k}_q - n_1 \vec{k}_1 - n_2 \vec{k}_2 \quad (7.1)$$

Tout comme dans le chapitre 2, quatre phénomènes contribuent à ce terme de désaccord de phase : la phase de Gouy, la dispersion atomique, la dispersion électronique et la phase du dipôle harmonique.

Intéressons-nous maintenant au schéma non-colinéaire et négligeons d'abord le terme précédent (soit  $\overrightarrow{\Delta k}_{\parallel} = \vec{0}$ ) afin d'établir le désaccord de phase dû à la géométrie non-colinéaire uniquement. Nous modifions pour cela l'orientation de  $\vec{k}_2$  d'un angle  $\gamma$  et nous noterons ce nouveau vecteur d'onde  $\vec{k}'_2$ . L'émission harmonique a lieu dans la direction définie par la conservation de l'impulsion :

$$\vec{k}'_q = k_q \vec{u}'_q \quad \text{avec} \quad k_q = n_1 k_1 + n_2 k_2 \quad \text{et} \quad \vec{u}'_q = \frac{n_1 \vec{k}_1 + n_2 \vec{k}_2}{\|n_1 \vec{k}_1 + n_2 \vec{k}_2\|} \quad (7.2)$$

Des considérations géométriques (voir la figure 7.10) donnent l'angle d'émission harmonique :

$$\tan \beta = \frac{n_2 k_2 \sin \gamma}{n_1 k_1 + n_2 k_2 \cos \gamma}$$

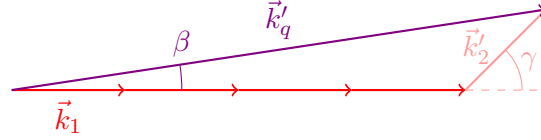


FIGURE 7.10 – Angles et vecteurs d'onde mis en jeu dans la conservation de l'impulsion.

**Cas à une couleur** Si  $k_2 = k_1$ ,  $k_q = n_1 k_1 + n_2 k_2 = q k_1$  et  $\beta, \gamma \ll 1$ , nous trouvons :

$$\beta = \frac{n_2}{q} \gamma \quad (7.3)$$

Le désaccord de phase non-colinéaire s'écrit alors :

$$\vec{\Delta k}_\perp = \vec{k}'_q - n_1 \vec{k}_1 - n_2 \vec{k}'_2 \quad (7.4)$$

Nous projetons cette relation sur  $\vec{u}'_q$  :

$$\Delta k_\perp = k_q - n_1 k_1 \cos \beta - n_2 k_2 \cos(\gamma - \beta) \quad (7.5)$$

$$= n_1 k_1 + n_2 k_2 - n_1 k_1 \cos \beta - n_2 k_2 \cos(\gamma - \beta) \quad (7.6)$$

$$= n_1 k_1 (1 - \cos \beta) + n_2 k_2 (1 - \cos(\gamma - \beta)) \quad (7.7)$$

$$= (q - n_2) k_1 \left(1 - \cos \frac{n_2}{q} \gamma\right) + n_2 k_1 \left(1 - \cos \left(\gamma - \frac{n_2}{q} \gamma\right)\right) \quad (7.8)$$

$$= (q - n_2) k_1 \frac{1}{2} \left(\frac{n_2}{q} \gamma\right)^2 + n_2 k_1 \frac{1}{2} \left(\gamma - \frac{n_2}{q} \gamma\right)^2 \quad (7.9)$$

$$= n_2 \gamma^2 k_1 \left(\frac{1}{2} (q - n_2) \frac{n_2}{q^2} + \frac{1}{2} \left(1 - \frac{n_2}{q}\right)^2\right) \quad (7.10)$$

$$= \frac{1}{2} n_2 \gamma^2 k_1 \left(\frac{n_2}{q} - \frac{n_2^2}{q^2} + 1 - \frac{2n_2}{q} + \frac{n_2^2}{q^2}\right) \quad (7.11)$$

$$= \frac{1}{2} n_2 \gamma^2 k_1 \left(1 - \frac{n_2}{q}\right) \quad (7.12)$$

$$(7.13)$$

Nous obtenons donc  $\vec{\Delta k}_\perp = \frac{1}{2} n_2 \gamma^2 k_1 \left(1 - \frac{n_2}{q}\right) \vec{u}'_q$ .

Si nous prenons en compte à présent le terme de désaccord de phase dû à la dispersion, la phase de Gouy et la phase du dipôle, et si nous supposons que ces phases ne changent pas lorsqu'on ajoute un petit angle entre les deux faisceaux, nous avons d'après l'équation 7.1 :

$$\vec{k}'_q = \left(n_1 k_1 + n_2 k_2 + \Delta k_\parallel\right) \vec{u}'_q \quad (7.14)$$

Finalement, le désaccord de phase total s'écrit :

$$\vec{\Delta k} = \vec{k}'_q - n_1 \vec{k}_1 - n_2 \vec{k}'_2 \quad (7.15)$$

$$= \Delta k_\parallel \vec{u}'_q + \vec{\Delta k}_\perp \quad \text{avec} \quad \Delta k_\perp = \frac{1}{2} n_2 \gamma^2 \left(1 - \frac{n_2}{q}\right) \frac{\omega}{c} \quad (7.16)$$

La condition d'accord de phase dans cette configuration est représentée sur la figure 7.11.

**Cas à deux couleurs** Dans le cas où  $k_2 = 2k_1$ , nous obtenons :

$$\beta = \frac{2n_2}{q} \gamma \quad \text{et} \quad \Delta k_\perp = n_2 \gamma^2 \left(1 - \frac{2n_2}{q}\right) \frac{\omega}{c} \quad (7.17)$$

ce qui est en parfait accord avec la formule établie par [Heyl et al. 2014]. La différence de signe vient de la définition du désaccord de phase.

**Discussion** Une explication à cette controverse entre [Bertrand et al. 2011] et [Heyl et al. 2014] pourrait être donnée par [Ellis et al. 2017] : les auteurs argumentent que le taux d'ionisation peut inverser le signe du  $\Delta k_{\parallel}$  de [Heyl et al. 2014] et donc de rendre la condition d'accord de phase favorable soit à la somme soit à la différence de fréquences, comme illustré sur la figure 7.11.

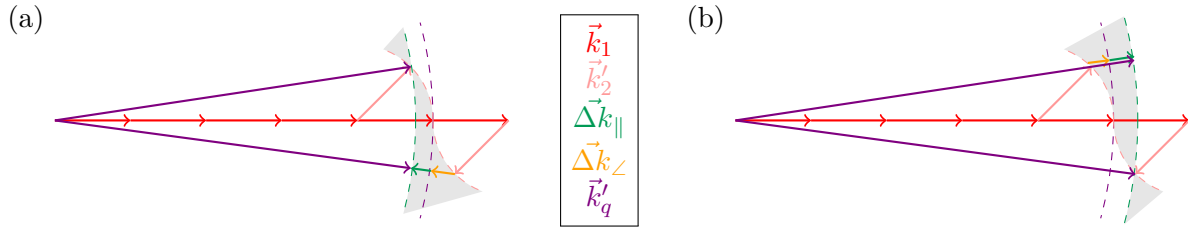


FIGURE 7.11 – Accord de phase favorisant (a) la somme et (b) la différence de fréquences, dans le cas à une couleur. Les régions grisées représentent l'amplitude du désaccord de phase total  $\vec{\Delta k}$ . Panneau (a) : lorsque  $\Delta k_{\parallel} < 0$ , il peut être compensé par le terme non-colinéaire dans le cas de la somme de fréquences, tandis qu'il amplifie le désaccord de phase pour la différence de fréquences. Panneau (b) : lorsque  $\Delta k_{\parallel} > 0$ , il peut être compensé par le terme non-colinéaire dans le cas de la différence de fréquences, tandis qu'il amplifie le désaccord de phase pour la somme de fréquences.

Les résultats expérimentaux obtenus sur le laser LUCA à Saclay (figures 7.5 et 7.7) montrent que les ordres positifs de perturbation (*i.e.* la génération de somme de fréquences) dominent, et nous retrouvons la même tendance dans les simulations numériques de Thierry Auguste (figure 7.8).

Le modèle du réseau actif que nous développons dans le chapitre 8 offre une description plus complète que le modèle multiphotonique de la génération d'harmoniques à deux faisceaux, et nous permettra alors de justifier ces résultats. Nous pensons que ce terme de désaccord de phase  $\vec{\Delta k}_{\perp}$  ne joue qu'un rôle secondaire.



## Chapitre 8

# Le réseau actif : description fine de la structure du champ électrique créé par deux faisceaux non-colinéaires

Nous avons vu dans les deux chapitres précédents que si les lois de conservation s'avèrent très pratiques pour expliquer certains mécanismes, elles ne permettent pas une compréhension fine du processus de génération à deux faisceaux non-colinéaires. En outre, même l'addition d'un terme géométrique d'accord de phase [Heyl et al. 2014] ne parvient à expliquer les rendements harmoniques que nous avons obtenus expérimentalement et numériquement.

La génération d'harmoniques étant un phénomène de champ fort, nous avons concentré notre attention sur la structure du champ électrique total au foyer de génération. Comme nous l'avons vu au chapitre 7, la superposition des deux faisceaux non-colinéaires résulte en une modulation de l'intensité au foyer (figure 7.2), qui va induire une modulation spatiale de la phase du dipôle. Nous nous proposons dans ce chapitre de décrire ce réseau de phase au foyer et faire le lien entre ses propriétés et les caractéristiques du rayonnement harmonique en champ lointain.

Il est intéressant ici de faire le parallèle avec la technique de spectroscopie harmonique du réseau transitoire, où un réseau d'excitation moléculaire est d'abord créé par deux faisceaux non-colinéaires, puis un troisième faisceau, retardé par rapport aux deux autres, génère des harmoniques d'ordre élevé. L'analyse de l'émission harmonique permet alors d'observer des dynamiques rotationnelles ou vibrationnelles dans les molécules [Mairesse et al. 2008, Ferré et al. 2014].

Dans notre cas, les deux faisceaux créent le réseau de phase et génèrent en même temps les harmoniques. Ainsi, nous l'appelons "réseau actif" et parlerons désormais d'ordres de "diffraction" plutôt que de "perturbation". Nous verrons dans la section 8.2 que le champ électrique résultant au foyer présente une structure assez complexe mais proche de celle du réseau "blazé" ou réseau échelette, qui est lui abordable de manière analytique. Nous rappellerons donc dans un premier temps les principaux résultats du réseau échelette, puis nous traiterons numériquement (et analytiquement autant que possible) le cas réel du réseau actif.

### 8.1 Théorie du réseau échelette : rappels

Nous reprenons ici l'étude du réseau échelette menée dans le cours de [Barbastathis et al. Spring 2009]. Nous commencerons par le cas d'école du réseau de taille infinie et de contraste 100%. Puis nous ferons varier le contraste et donnerons une taille finie au réseau afin de nous rapprocher au maximum de nos conditions expérimentales. Enfin nous conclurons sur l'impact des paramètres du réseau de phase sur la figure diffractée en champ lointain.

### 8.1.1 Cas d'un réseau de dimension infinie

**Transmission complexe** Avant toute chose, nous devons définir mathématiquement notre réseau de phase au foyer. Le réseau échelonné (ou réseau "blazé") de période  $\Lambda$  a un profil de phase, sur une période de 0 à  $\Lambda$ , donné par :

$$\varphi(x) = 2\pi \frac{x}{\Lambda} \quad (8.1)$$

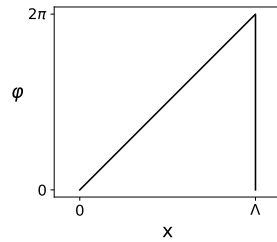


FIGURE 8.1 – Profil de phase d'une période du réseau échelonné.

Notons que l'équation (8.1) et la figure 8.1 représentent le profil de phase du réseau (sur une période). Afin de pouvoir calculer par la suite l'amplitude diffractée par un tel réseau, nous devons écrire sa transmission (on propage des amplitudes complexes et non des phases directement). La transmission complexe de cette période du réseau s'écrit donc :

$$t_{\Lambda}(x) = \text{rect} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) e^{i2\pi \frac{x}{\Lambda}} \quad (8.2)$$

Afin que le réseau devienne périodique, nous convoluons l'équation (8.2) par un peigne de Dirac  $\text{III}$  de période  $\Lambda$  et décalé de  $\Lambda/2$  :

$$t(x) = \left[ \text{rect} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) e^{i2\pi \frac{x}{\Lambda}} \right] \otimes \text{III} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) \quad (8.3)$$

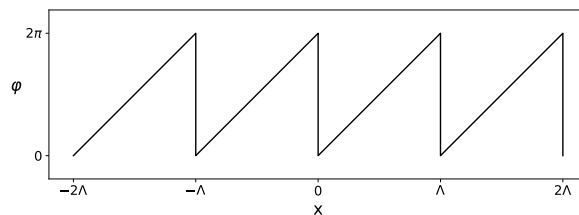


FIGURE 8.2 – Profil de phase du réseau échelonné.

L'équation (8.3) et la figure 8.2 nous donnent respectivement la transmission complexe et le profil de phase du réseau échelonné dans le cas le plus général.

**Figure de diffraction de Fraunhofer** Puisque nous nous intéressons au rayonnement diffracté en champ lointain, nous allons nous placer dans l'approximation de Fraunhofer [Born et Wolf 2003]. Dans ce cadre, le calcul de la figure de diffraction revient à prendre la transformée

de Fourier  $\mathcal{F}$  de la transmission complexe du réseau :

$$\mathcal{F}\{t(x)\} = \left[ \mathcal{F}\left\{\text{rect}\left(\frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda}\right)\right\} \otimes \mathcal{F}\left\{e^{i2\pi\frac{x}{\Lambda}}\right\} \right] \mathcal{F}\left\{\text{III}\left(\frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda}\right)\right\} \quad (8.4)$$

$$= \left[ \left(\Lambda \text{sinc}(\Lambda u) e^{-i2\pi\frac{\Lambda}{2}u}\right) \otimes \delta\left(u - \frac{1}{\Lambda}\right) \right] \Lambda \text{III}(\Lambda u) e^{-i2\pi\frac{\Lambda}{2}u} \quad (8.5)$$

$$= \Lambda^2 \text{sinc}\left(\Lambda\left(u - \frac{1}{\Lambda}\right)\right) e^{-i2\pi\frac{\Lambda}{2}\left(u - \frac{1}{\Lambda}\right)} \text{III}(\Lambda u) e^{-i2\pi\frac{\Lambda}{2}u} \quad (8.6)$$

$$= \Lambda^2 e^{-i2\pi\Lambda\left(u - \frac{1}{2\Lambda}\right)} \text{sinc}\left(\Lambda\left(u - \frac{1}{\Lambda}\right)\right) \text{III}(\Lambda u) \quad (8.7)$$

Pour exprimer la figure de diffraction dans un plan d'observation situé en  $z$ , il suffit de remplacer  $u$  par  $x' / (\lambda z)$ ,  $x'$  étant la coordonnée spatiale dans le plan d'observation. Il est intéressant de noter que la dispersion par le réseau est anormale : les grandes longueurs d'onde sont davantage diffractées que les courtes longueurs d'onde, ce qui est en accord avec nos observations expérimentales du chapitre 7. En effet, sur la figure 7.3 par exemple, nous constatons que pour un ordre de diffraction donné, l'angle d'émission des harmoniques décroît lorsque l'ordre harmonique augmente.

Enfin, l'efficacité de diffraction de l'ordre  $p$  est donnée par :

$$I_{(p)} \sim \text{sinc}^2(p - 1) \quad (8.8)$$

Comme nous pouvons le voir sur la figure 8.3a, nous obtenons alors un seul ordre de diffraction pour la fréquence fondamentale. Cependant, les ordres de diffraction qui vont retenir notre attention sont ceux des harmoniques. À ces fréquences, nous pouvons voir sur la figure 8.3b que plusieurs ordres de diffraction sont permis, dont les intensités sont données par l'enveloppe du sinus cardinal. En particulier, pour l'harmonique  $q$ , tous les ordres qui sont des multiples (sauf +1) de  $q$  s'annulent.

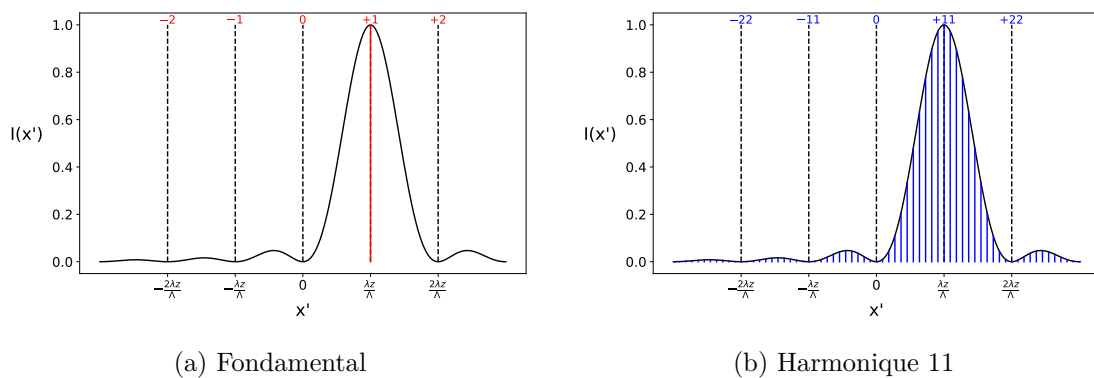


FIGURE 8.3 – Figures de diffraction de Fraunhofer pour un réseau échelle de dimension infinie, pour la longueur d'onde fondamentale (a) et sa onzième harmonique (b). En traits pleins noirs : le sinus cardinal donnant l'efficacité de diffraction. En pointillés noirs : le peigne de Dirac avec les ordres de diffraction correspondants juste au-dessus (en rouge pour le fondamental et en bleu pour l'harmonique 11). En rouge : l'unique pic de diffraction observé (correspondant à l'ordre +1) pour l'infrarouge. En bleu : la multitude de pics de diffraction de l'harmonique 11. Sur les axes des abscisses,  $\lambda$  désigne la longueur d'onde du fondamental.

Il est intéressant de noter que les ordres de diffraction positifs (correspondant à la génération de somme de fréquences dans nos expériences) sont largement favorisés par rapport aux ordres négatifs (différence de fréquences).



### 8.1.2 Influence du contraste de phase

**Transmission complexe et figure de diffraction** Expérimentalement, nous avons observé que l'efficacité des ordres de diffraction (harmoniques) dépend du rapport d'énergie entre les deux faisceaux, c'est-à-dire de la profondeur de modulation du réseau (plus le rapport d'énergie est grand, plus le contraste de la figure d'interférences est faible). Nous allons donc maintenant nous intéresser au cas où le contraste de phase est réduit de  $2\pi$  à  $\varphi_0$ , tel que :

$$\varphi(x) = \varphi_0 \frac{x}{\Lambda} \quad (8.9)$$

La transmission complexe du réseau échelle s'écrit alors :

$$t(x) = \left[ \text{rect} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) e^{i\varphi_0 \frac{x}{\Lambda}} \right] \otimes \text{III} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) \quad (8.10)$$

De la même manière que précédemment, nous calculons la figure de diffraction de Fraunhofer à l'aide de la transformée de Fourier :

$$\mathcal{F} \{t(x)\} = \left[ \left( \Lambda \text{sinc}(\Lambda u) e^{-i2\pi \frac{\Lambda}{2} u} \right) \otimes \delta \left( u - \frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda} \right) \right] \Lambda \text{III}(\Lambda u) e^{-i2\pi \frac{\Lambda}{2} u} \quad (8.11)$$

$$= \Lambda^2 \text{sinc} \left( \Lambda \left( u - \frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda} \right) \right) e^{-i2\pi \frac{\Lambda}{2} \left( u - \frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda} \right)} \text{III}(\Lambda u) e^{-i2\pi \frac{\Lambda}{2} u} \quad (8.12)$$

$$= \Lambda^2 e^{-i2\pi\Lambda \left( u - \frac{\varphi_0}{4\pi\Lambda} \right)} \text{sinc} \left( \Lambda \left( u - \frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda} \right) \right) \text{III}(\Lambda u) \quad (8.13)$$

L'efficacité de diffraction de l'ordre  $p$  vérifie désormais :

$$I_{(p)} \sim \text{sinc}^2 \left( p - \frac{\varphi_0}{2\pi} \right) \quad (8.14)$$

Nous pouvons à présent avoir plusieurs ordres de diffraction à la fréquence fondamentale. Aux fréquences harmoniques, nous avons toujours une multitude d'ordres diffractés mais avec des intensités relatives différentes. Ainsi, nous venons de montrer que l'efficacité de diffraction peut être ajustée en jouant sur la profondeur de modulation du réseau.

**Évolution des efficacités de diffraction en fonction du contraste** Étudions plus précisément l'évolution des intensités des différents ordres de diffraction en fonction de la profondeur de modulation du réseau échelle. Nous remarquons d'après l'équation (8.13) que lorsque  $\varphi_0$  augmente, le peigne de Dirac reste inchangé tandis que le sinus cardinal est translaté vers la droite, favorisant ainsi des ordres de diffraction (harmoniques) de plus en plus grands, conformément aux observations expérimentales du chapitre 7 (voir la figure 7.5).

### 8.1.3 Le réseau échelle de dimension finie

En réalité, le réseau a une dimension finie. Nous devons donc définir une fonction "enveloppe" qui spécifie les contours du réseau, et étudier l'effet de cette fonction sur la figure de diffraction de Fraunhofer. La transmission complexe du réseau échelle sera alors multipliée par la fonction représentant cette enveloppe, ce qui va se traduire par une convolution de la figure de diffraction par la transformée de Fourier de l'enveloppe.

Dans la pratique, la dimension du réseau est déterminée par la taille des faisceaux infrarouges. Le laser LUCA ayant un profil spatial quasi-gaussien, nous allons choisir une enveloppe de forme gaussienne, de largeur  $w_0$ . La transmission complexe vaut alors :

$$t_{\text{Gauss}}(x) = t(x) e^{-\frac{x^2}{w_0^2}} \quad (8.15)$$

$$= \left[ \left[ \text{rect} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) e^{i\varphi_0 \frac{x}{\Lambda}} \right] \otimes \text{III} \left( \frac{x - \frac{\Lambda}{2}}{\Lambda} \right) \right] e^{-\frac{x^2}{w_0^2}} \quad (8.16)$$

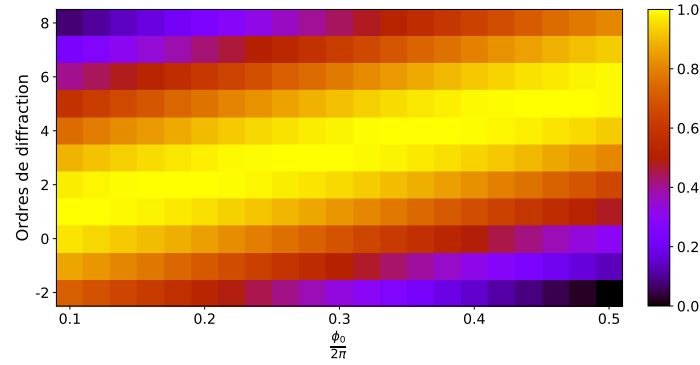


FIGURE 8.4 – Évolution de l’efficacité de diffraction en fonction de l’ordre de diffraction et de  $\varphi_0$  pour l’harmonique 11.

et la figure de diffraction de Fraunhofer est finalement donnée par :

$$\mathcal{F}\{t_{\text{Gauss}}(x)\} = \mathcal{F}\{t(x)\} \otimes \mathcal{F}\left\{e^{-\frac{x^2}{w_0^2}}\right\} \quad (8.17)$$

$$= \left[ \Lambda^2 e^{-i2\pi\Lambda\left(u - \frac{\varphi_0}{4\pi\Lambda}\right)} \text{sinc}\left(\Lambda\left(u - \frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda}\right)\right) \text{III}(\Lambda u) \right] \otimes w_0 \sqrt{\pi} e^{-\pi^2 w_0^2 u^2} \quad (8.18)$$

Comme nous pouvons le voir sur la figure 8.5, les ordres de diffraction ne sont maintenant plus des pics de Dirac mais ont bien évidemment une forme gaussienne, puisque la transformée de Fourier d’une gaussienne est une gaussienne. Notons que pour une harmonique  $q$  donnée, tous les ordres de diffraction ont la même largeur  $w_q = \frac{\lambda q z}{\pi w_0}$ . Nous retrouvons bien la formule de focalisation des faisceaux gaussiens.

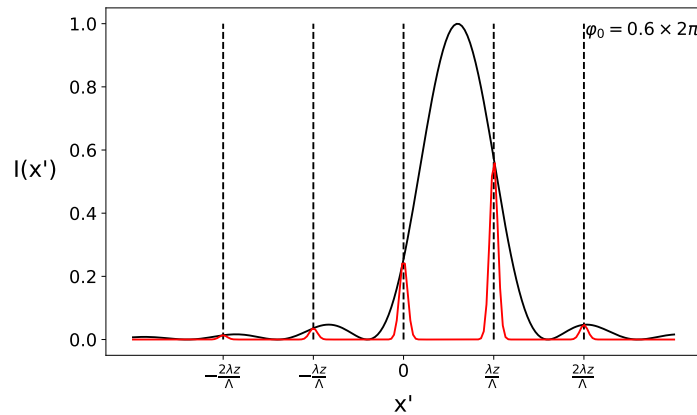


FIGURE 8.5 – Figure de diffraction de Fraunhofer (pour le fondamental) par un réseau échelette limité par une enveloppe gaussienne et avec un contraste de phase de  $0.6 \times 2\pi$ . En traits pleins noirs : le sinus cardinal donnant l’efficacité de diffraction. En pointillés noirs : le peigne de Dirac. En rouge : les pics de diffraction de forme gaussienne observés.

### 8.1.4 Conclusions sur ce modèle

Le tableau 8.1 résume les liens établis dans cette section entre la théorie du réseau échelette et nos expériences de génération d’harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires.

Nous rappelons de plus deux conclusions tirées de ce modèle analytique et également en parfait accord avec les observations expérimentales du chapitre 7 :

Configuration des 2 faisceaux	Caractéristiques du réseau	Figure de diffraction
angle entre les 2 faisceaux	pas du réseau	écartement des pics
intensité relative des 2 faisceaux	profondeur de modulation	efficacité relative des pics
profil spatial des faisceaux	enveloppe	forme et largeur des pics

TABLE 8.1 – Tableau récapitulatif du réseau échelette.

- la dispersion anormale
- les processus de génération de somme de fréquences sont favorisés par rapport à la différence de fréquences.

Finalement, la question de l'accord de phase lors de la génération à deux faisceaux non-colinéaires requiert une description fine de la structure du champ électrique au foyer. En effet, contrairement aux théories présentées dans le chapitre 6, celle du réseau échelette permet d'expliquer correctement les rendements harmoniques observés expérimentalement. Nous allons démontrer dans la section suivante l'existence d'un tel réseau de phase et nous l'étudierons de façon un peu plus complète.

## 8.2 Le réseau actif : étude numérique et analytique

Dans cette section, nous chercherons dans un premier temps à décrire le plus finement possible la structure du champ électrique résultant de l'interférence entre les deux faisceaux infrarouges au foyer de génération, et dans un second temps, nous étudierons la génération d'harmoniques d'ordres élevés à partir d'un tel champ ainsi que leur propagation jusqu'au détecteur en champ lointain. Enfin, nous comparerons dans la section 8.3 les résultats de ce modèle à ceux des expériences et des simulations numériques de Thierry Auguste.

### 8.2.1 Structure du champ électrique au foyer

Nous avons représenté sur la figure 8.6 l'intensité et le champ électrique au niveau du foyer de génération, formés par l'intersection de deux faisceaux gaussiens de même fréquence et de polarisations rectilignes selon l'axe  $x$ , le faisceau principal se propageant selon l'axe  $z$  et le faisceau "perturbatif" avec un angle  $\theta$  par rapport à l'axe  $z$  dans le plan  $(xOz)$ , au-dessus du premier. Naturellement, l'intensité forme un réseau de surfaces parallèles au plan  $(yOz)$ , comme observé expérimentalement. En revanche, le champ électrique présente une structure plus complexe. Si nous retrouvons bien la figure d'interférences à un instant donné et dans un plan transverse donné, nous ne pouvons cependant plus associer les surfaces équiphasées à des plans parallèles à  $(yOz)$ . Par conséquent, nous ne pouvons plus définir un unique vecteur d'onde pour le champ résultant, et la condition d'accord de phase lors de la génération d'harmoniques doit dorénavant être écrite localement :

$$\vec{\Delta k}_{XUV}(\vec{r}) = \vec{k}_q(\vec{r}) - q\vec{k}_s(\vec{r}) - \vec{K}(\vec{r}) \quad (8.19)$$

où  $\vec{r}$  décrit la position dans le milieu,  $\vec{k}_q(\vec{r})$  (respectivement  $\vec{k}_s(\vec{r})$ ) est le vecteur d'onde harmonique (respectivement infrarouge résultant) et  $\vec{K}$  représente la phase atomique, la phase de Gouy et les phases liées à la dispersion.

**Ondes planes** Considérons pour commencer le cas simple des ondes planes, c'est-à-dire sans enveloppe ni temporelle ni spatiale. Le champ résultant au foyer s'écrit :

$$E_s = \mathcal{R} \left[ E_1 e^{i\omega t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + \alpha E_1 e^{i\omega t - i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}} \right] \quad (8.20)$$

$$= E_1 \mathcal{R} \left[ e^{i\omega t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} \left( 1 + \alpha e^{-i\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}} \right) \right] \quad (8.21)$$

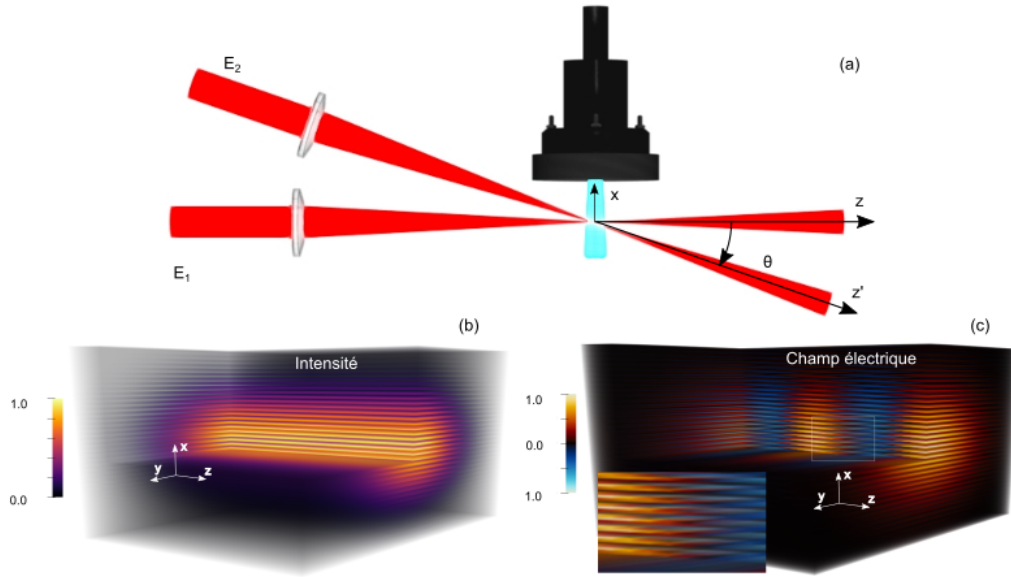


FIGURE 8.6 – Intensité et champ électrique résultants de l'interaction de deux faisceaux non-colinéaires de même fréquence, au niveau du foyer de génération.

avec  $E_1$  l'amplitude du faisceau principal,  $\alpha$  une constante entre 0 et 1,  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  les vecteurs d'onde des deux faisceaux infrarouges, et  $\vec{\Delta k} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Les coupes dans le plan  $(xOz)$  de ce champ électrique sont représentées sur la figure 8.7 (a, d et g) pour trois amplitudes différentes du faisceau de perturbation (5%, 20% et 80% de l'amplitude du faisceau de génération). Lorsque  $\alpha$  augmente, les lignes iso-amplitude (le long de l'axe  $x$ ) caractéristiques des ondes planes sont progressivement détruites pour aboutir à une figure où les zones de haute intensité (donnant lieu à la génération d'harmoniques) forment une sorte de damier.

Afin d'obtenir l'amplitude et la phase du champ au foyer, il est commode d'utiliser sa représentation analytique (*i.e.* sans la partie réelle) :

$$\vec{E}_s = E_1 f_m \left( \alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right) e^{i\omega t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - i\varphi \left( \alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right)} \quad (8.22)$$

où l'amplitude est donnée par :

$$f_m \left( \alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right) = \sqrt{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos \left( \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right)} \quad (8.23)$$

et la phase vaut :

$$\varphi \left( \alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right) = \arctan \left( \frac{\alpha \sin \left( \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right)}{1 + \alpha \cos \left( \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} \right)} \right) \quad (8.24)$$

Les cartes d'amplitude et de phase (toujours dans le plan  $(xOz)$ ) sont représentées sur la figure 8.7 (b, e et h) et (c, f et i) respectivement. Nous retrouvons pour l'intensité l'habituelle figure de diffraction avec un contraste qui augmente lorsque  $\alpha$  augmente. Quant à la phase, nous voyons apparaître une faible modulation selon  $x$  qui se transforme progressivement en dents de scie. Il est intéressant de noter que les zones de haute intensité du signal analytique correspondent à un front d'onde stationnaire et incliné vers le bas. Nous pouvons donc anticiper une émission harmonique favorisée vers le bas, *i.e.* dans la direction de la génération de somme de fréquences (la perturbation arrive par le haut).

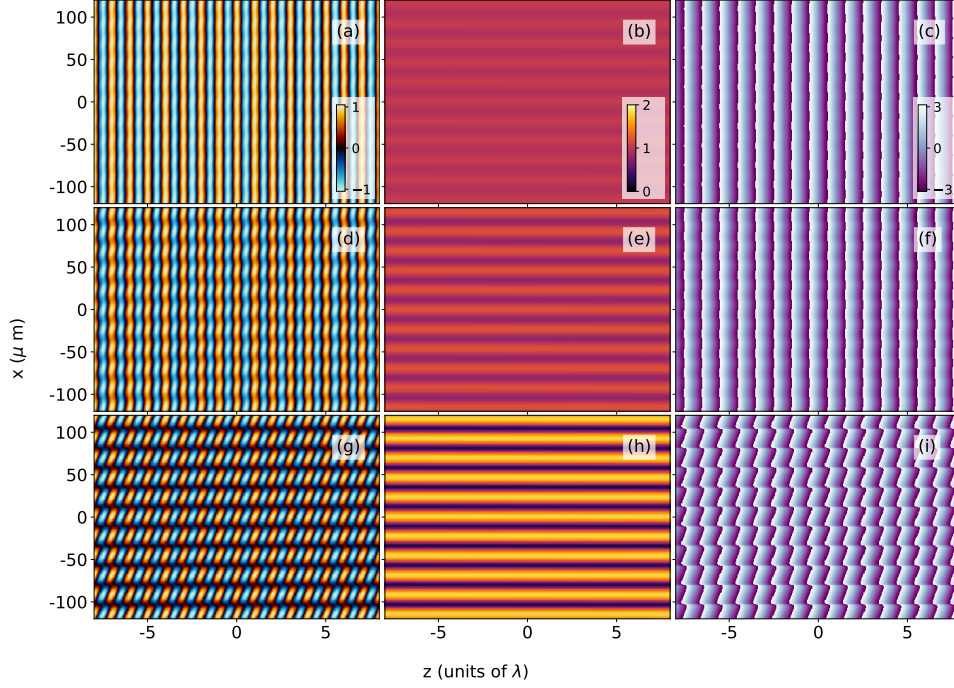


FIGURE 8.7 – Colonne de gauche : champ électrique résultant de la superposition de deux faisceaux se croisant avec un angle de  $2^\circ$  avec  $\alpha = 0.05$  (ligne du haut),  $\alpha = 0.2$  (ligne du milieu) et  $\alpha = 0.8$  (ligne du bas). Colonne du milieu : module du champ analytique. Colonne de droite : phase du champ analytique. Pour chaque colonne, les échelles de couleurs sont les mêmes pour toutes les lignes.

Pour nous en convaincre, intéressons-nous au vecteur d'onde local (car c'est principalement lui qui donnera la direction de l'émission harmonique), donné par le gradient de la phase<sup>1</sup> :

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \vec{\nabla}\varphi = \vec{k}_1 + \frac{\alpha \left( \alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \right)}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \vec{\Delta k} \quad (8.25)$$

Le vecteur d'onde du faisceau principal est perturbé par une contribution orientée selon  $\vec{\Delta k}$  (quasi-orthogonale à  $\vec{k}_1$ ) et dont l'amplitude dépend fortement de la position dans le milieu. L'amplitude relative de ce terme de perturbation ainsi que l'angle de  $\vec{k}_s$  par rapport à l'horizontale sont tracés sur la figure 8.8 en fonction de la dimension transverse  $x$  pour différentes valeurs du rapport entre les deux champs :

- Dans le cas perturbatif ( $\alpha \ll 1$ ), l'amplitude relative et l'angle varient tous deux sinusoidalement, avec une parfaite symétrie haut/bas. Nous pouvons retrouver ce résultat en réécrivant l'équation (8.25) ainsi :

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \alpha \vec{\Delta k} \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \quad (8.26)$$

ce qui donne pour l'amplitude relative et l'angle :

$$\frac{|k_s| - |k_1|}{|k_1|} \simeq -\alpha \frac{\theta^2}{2} \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \quad (8.27)$$

$$\theta_s \simeq \alpha \sin \theta \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \quad (8.28)$$

Nous retrouvons bien la modulation sinusoidale de l'amplitude et de l'angle, parfaitement symétrique et ne faisant donc aucune différence entre ordres positifs et négatifs de diffraction (somme et différence de fréquences).

1. Le détail des calculs qui suivent est explicité dans l'annexe C.

- Lorsque la perturbation augmente, l'excursion du vecteur d'onde local devient de plus en plus riche pour finalement converger (au niveau des zones de haute intensité) vers les valeurs constantes de  $-1.5 \times 10^{-4}$  et  $\theta/2$  pour l'amplitude relative et l'angle respectivement. Comme attendu, lorsque  $\alpha = 1$  (interférences de deux faisceaux de même intensité),  $\vec{k}_s$  pointe simplement dans la direction donnée par la bissectrice des deux faisceaux. En effet, dans ce cas, l'équation (8.25) devient :

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \vec{\Delta k}/2 \quad (8.29)$$

ce qui donne pour l'amplitude relative et l'angle :

$$\frac{|k_s| - |k_1|}{|k_1|} \simeq -\frac{1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (8.30)$$

$$\theta_s = \theta/2 \quad (8.31)$$

La modulation du vecteur d'onde ne dépend plus de la position dans le milieu et nous retrouvons bien les valeurs de la figure 8.8.

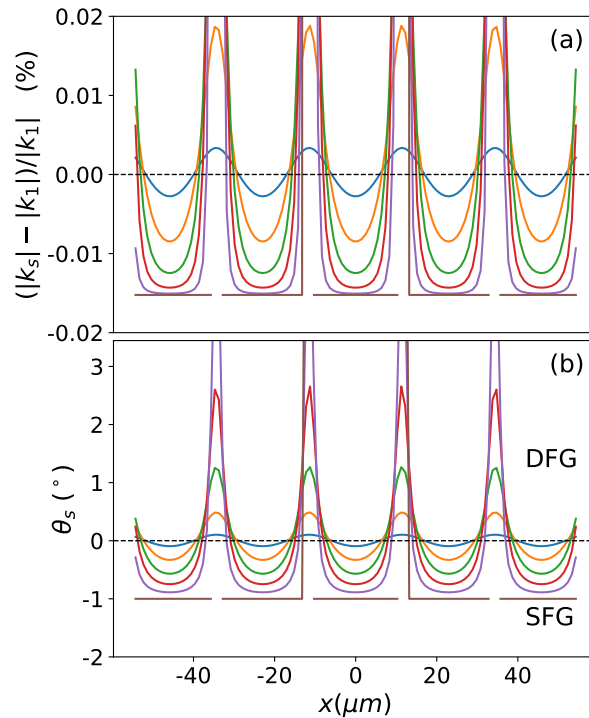


FIGURE 8.8 – Amplitude relative (a) et angle par rapport à l'horizontale (b) du vecteur d'onde local en fonction de la coordonnée transverse  $x$ , pour  $\alpha = 0.05$  (bleu),  $\alpha = 0.2$  (orange),  $\alpha = 0.4$  (vert),  $\alpha = 0.6$  (rouge),  $\alpha = 0.8$  (violet) et  $\alpha = 1$  (marron). Les données correspondant à des amplitudes du signal analytique inférieures à 10% du maximum ne sont pas représentées.

Nous distinguons donc deux régimes que nous qualifions de "perturbatif" ( $\alpha \ll 1$ ) et "non perturbatif". Si le premier semble s'accorder avec la théorie multiphotonique au sujet de la compétition entre somme et différence de fréquences, le second s'en éloigne d'autant plus que  $\alpha$  augmente, favorisant la génération de somme de fréquences. Concentrons-nous donc sur le cas un peu plus général où  $\alpha$  est quelconque (non négligeable devant 1). La génération d'harmoniques d'ordre élevé étant un phénomène de champ fort, notre intérêt se portera sur les zones de haute intensité. En particulier, nous en avons une autour de  $x = 0$  d'après la figure 8.7. Nous constatons



sur la figure 8.8 que le vecteur d'onde est stationnaire dans cette zone et vaut :

$$\vec{k}_s(\vec{r}=0) = \vec{k}_1 + \frac{\alpha}{1+\alpha} \vec{\Delta k} \quad (8.32)$$

$$|\vec{k}_s(\vec{r}=0)| = |\vec{k}_1| \sqrt{1 - \frac{4\alpha}{(1+\alpha)^2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)} \quad (8.33)$$

$$\theta_s = \arctan\left(\frac{\alpha \sin \theta}{1 + \alpha \cos \theta}\right) \quad (8.34)$$

Nous pouvons simplifier les équations (8.33) et (8.34) en considérant que  $\theta \ll 1$ . Nous obtenons :

$$\frac{|\vec{k}_s(\vec{r}=0)| - |\vec{k}_1|}{|\vec{k}_1|} \simeq -\frac{2\alpha}{(1+\alpha)^2} \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \quad (8.35)$$

$$\theta_s \simeq \frac{\alpha}{1+\alpha} \theta \quad (8.36)$$

Au niveau des zones de haute intensité, le front d'onde local devient de plus en plus plan et incliné (par rapport à l'horizontale) à mesure que l'amplitude de perturbation  $\alpha$  (et donc la profondeur de modulation du réseau) augmente. Ainsi, la structure champ électrique au foyer est d'autant plus proche du réseau échelonné que la "perturbation" est importante. De plus, l'équation (8.36) nous permet de quantifier le terme additionnel d'accord de phase dû au réseau actif : nous trouvons une amplitude comparable aux autres termes habituels (phase atomique, phase de Gouy et phases de dispersion). En effet, pour l'harmonique d'ordre  $q$ ,  $\theta = 2^\circ$  et  $\alpha = 0.1$ , l'amplitude du vecteur d'onde est modulée d'environ  $q \times 0.5$  rad/mm, tandis que les autres termes d'accord de phase sont de l'ordre de la fraction de rad/mm [Roos et al. 1999, Dinh 2012]. Notre terme du réseau actif est donc loin d'être négligeable.

**Profils spatial et temporel gaussiens** Afin de réaliser des simulations les plus réalistes possibles, nous prenons en compte le profil spatio-temporel des faisceaux. Autrement dit, nous y ajoutons une enveloppe temporelle gaussienne (selon  $z$ ) et une enveloppe spatiale également gaussienne (selon  $x$ ). Les conclusions précédentes restent valables localement, *i.e.* pour un ratio donné des amplitudes des deux faisceaux. Cependant, comme nous pouvons le voir sur la figure 8.9, même dans un milieu de quelques dizaines de microns de long avec des faisceaux ayant des waists de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ , l'amplitude du champ résultant peut varier de manière significative. Les cartes représentant le champ électrique résultant (a), son amplitude (b) et sa phase (c) sont similaires à celles observées dans le cas de l'onde plane, aux enveloppes gaussiennes près. En revanche, l'amplitude et l'angle du vecteur d'onde local présentent des profils remarquablement différents : nous avons toujours la modulation transverse mais une dissymétrie amont/aval et haut/bas apparaît, due à la variation du rapport d'amplitude des deux faisceaux avec la position dans le milieu. Cette dissymétrie est traitée de manière détaillée dans l'article 3.

## 8.2.2 Génération d'harmoniques par le réseau actif

Nous disposons désormais d'une description fine de la structure du champ électrique au foyer. Intéressons-nous donc à présent au processus de génération d'harmoniques à partir d'un tel champ. Nous pouvons considérer pour cela que le champ harmonique macroscopique à la position  $\vec{r}_{cp}$  en sortie du milieu générateur (autrement dit le champ proche) s'écrit comme la somme de toutes les contributions dans le volume  $V$  de génération, soit :

$$E_q(\vec{r}_{cp}) = \iint_V e_q(\vec{r}) e^{i\Delta\vec{k}_{XUV}(\vec{r}) \cdot \vec{r}} d^3\vec{r} \quad (8.37)$$

où  $e_q(\vec{r})$  est la réponse microscopique à la position  $\vec{r}$  dans le milieu,  $\Delta\vec{k}_{XUV}(\vec{r}) = q\vec{k}_s(\vec{r}) - \vec{k}_q(\vec{r})$  est le désaccord de phase local. Dans un souci de simplicité, nous considérerons que le volume de gaz  $V$  est infiniment fin selon  $z$ .

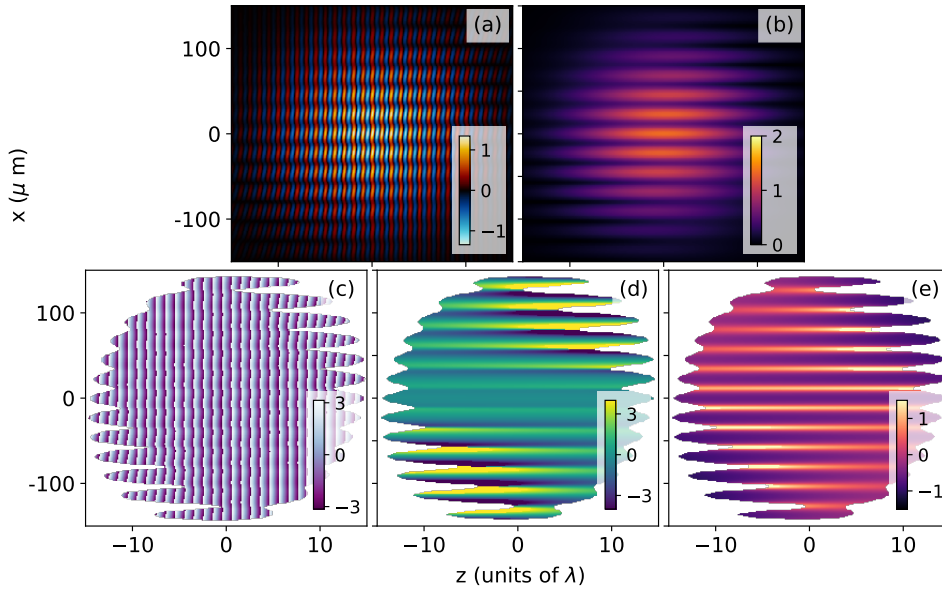


FIGURE 8.9 – (a) Champ électrique résultant de deux faisceaux gaussiens de waists  $100 \mu\text{m}$ , de durée  $30 \text{ fs}$ , de longueur d’onde  $800 \text{ nm}$ , séparés de  $2^\circ$  et avec  $\alpha = 0.4$ . (b) Amplitude et (c) phase du signal analytique associé. (d) Amplitude relative ( $|\vec{k}_s| - |\vec{k}_1|$  en  $10^4 \text{ m}^{-1}$ ) et (e) angle d’inclinaison du vecteur d’onde local. Pour les cartes (c-e), les données correspondant à des amplitudes du signal analytique en dessous de  $10\%$  de son maximum ne sont pas représentées.

La réponse  $e_q(\vec{r})$  à l’amplitude locale du champ est extrêmement non-linéaire et nécessite donc de fortes intensités. La modulation de l’amplitude du champ infrarouge va alors créer une série de fentes génératrices, formant un réseau d’amplitude parfaitement symétrique par rapport à l’axe  $x$  en  $z = 0$ . Par ailleurs, nous avons vu dans le chapitre 2 que la réponse des atomes en champ fort génère une phase spatiale proportionnelle à l’intensité infrarouge. Nous avons donc également un réseau de phase, lui aussi symétrique en  $z = 0$ .

Quant à la phase, nous venons d’établir qu’elle est quasiment linéaire sur chaque tranche de haute intensité, constituant ainsi un réseau de phase en échelle qui est lui dissymétrique par rapport à l’axe  $x$  et vient se superposer à la structure décrite juste au-dessus.

En nous appuyant sur ces considérations ainsi que sur la théorie du réseau échelle rappelée dans la section 8.1, nous pouvons établir un modèle simple (schématisé ci-contre) pour décrire la génération d’harmoniques, en construisant un réseau transverse ayant les caractéristiques suivantes :

- la période de la structure aussi bien en amplitude qu’en phase, est  $\Lambda = 2\pi/|k_1 - k_2| = \lambda/\sin\theta$
- l’amplitude est constituée d’une série de fentes gaussiennes éti-quetées de  $-n_0$  à  $n_0$  et ayant chacune une largeur  $\delta x$
- l’enveloppe de cette série de fentes est également gaussienne, de largeur  $\Delta x$
- la phase linéaire selon  $x$  s’écrit pour l’harmonique  $q$  (voir l’annexe C pour le détail du calcul) :

$$\varphi(x) = q \times \frac{\alpha}{1 + \alpha} \times 2\pi \times \frac{x}{\Lambda} = q\varphi_0 \frac{x}{\Lambda} \quad (8.38)$$

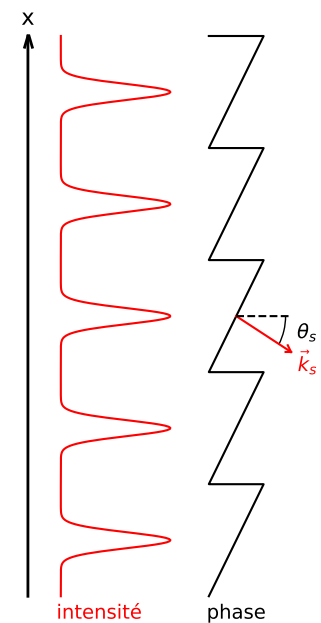


FIGURE 8.10 – Modèle simplifié de la génération d’harmoniques par le réseau actif : intensité et phase au foyer.



Nous pouvons alors écrire la probabilité d'émission de ce réseau de la manière suivante :

$$E_q(\vec{r}_{cp}) = \left[ G\left(\frac{x}{\delta x}\right) \times e^{iq\varphi_0 \frac{x}{\Lambda}} \right] * \left[ \sum_{n=-n_0}^{n_0} \delta\left(\frac{x}{\Lambda} - n\right) \times G\left(\frac{x}{\Delta x}\right) \right] \quad (8.39)$$

où  $G$  est la fonction gaussienne donnée par  $G(x) = e^{-x^2}$ . Puis, comme nous l'avons fait dans la section 8.1, nous calculons le champ lointain dans le régime de diffraction de Fraunhofer :

$$E_q(\vec{r}_{cl}) \propto \left[ G\left(\pi\delta x \left(u - q\frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda}\right)\right) \times \sum_{n=-n_0}^{n_0} e^{-i2\pi n\Lambda u} \right] * G(\pi\Delta x u) \quad (8.40)$$

$$\propto \left[ G\left(\pi\delta x \left(u - q\frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda}\right)\right) \times e^{-i\pi\Lambda u \frac{\sin(2\pi n_0\Lambda u)}{\sin(\pi\Lambda u)}} \right] * G(\pi\Delta x u) \quad (8.41)$$

avec  $u = x'/(\lambda_q z_{cl})$ ,  $x'$  étant la coordonnée transverse dans le plan d'observation,  $z_{cl}$  la distance entre ce plan et le milieu générateur, et  $\lambda_q$  la longueur d'onde de l'harmonique d'ordre  $q$ .

La première gaussienne a une largeur :

$$L_q = \frac{\lambda_q z_{cl}}{\pi\delta x} \quad (8.42)$$

et elle est centrée sur :

$$x'_c = \frac{\lambda}{\Lambda} \times \frac{\varphi_0}{2\pi} \times z_{cl} \quad (8.43)$$

Le rapport des sinus converge quand  $n_0$  augmente vers un peigne de Dirac de période :

$$\delta x'_{\text{III}} = \frac{\lambda z_{cl}}{q\Lambda} \quad (8.44)$$

Finalement, la convolution par la dernière gaussienne transforme les pics de Dirac en ordres de diffraction gaussiens de largeur :

$$w_q = \frac{\lambda_q z_{cl}}{\pi\Delta x} \quad (8.45)$$

En résumé, le champ lointain se compose d'une série de pics (les ordres de diffraction) gaussiens de largeur  $w_q$ <sup>2</sup>, espacés de  $\delta x'_{\text{III}}$  et d'amplitude déterminée par l'enveloppe gaussienne de largeur  $L_q$  et centrée autour de  $x'_c$ . Notons que l'ordre de diffraction dominant est déterminé par la profondeur de modulation  $\varphi_0$  du réseau, indépendamment de l'ordre harmonique  $q$ . Ce dernier n'intervient que dans la séparation des ordres de diffraction.

Ceci est confirmé par la figure 8.11. Lorsque la phase n'est pas prise en compte (première ligne), les pics de diffraction en champ lointain sont centrés autour de  $x' = 0$  quelle que soit la valeur de  $\alpha$ . Lorsque nous la prenons en compte (deuxième ligne), les pics se décalent vers les  $x$  négatifs à mesure que  $\alpha$  augmente. La génération d'harmoniques, et notamment la première étape d'ionisation tunnel, étant un processus extrêmement non-linéaire, nous estimons le signal harmonique par la formule ADK (troisième ligne) et obtenons en champ proche des pics moins nombreux et plus fins que pour le champ infrarouge. Par conséquent, le profil en champ lointain est plus épuré et pointe toujours dans la direction de la génération de somme de fréquences. Enfin, notre modèle de réseau de phase en échelle superposé à un réseau d'amplitude composé de fentes gaussiennes, reproduit très bien ce rôle de l'amplitude du faisceau de perturbation sur l'amplitude relative des ordres de diffraction.

2. Nous retrouvons encore une fois la formule de focalisation des faisceaux gaussiens.

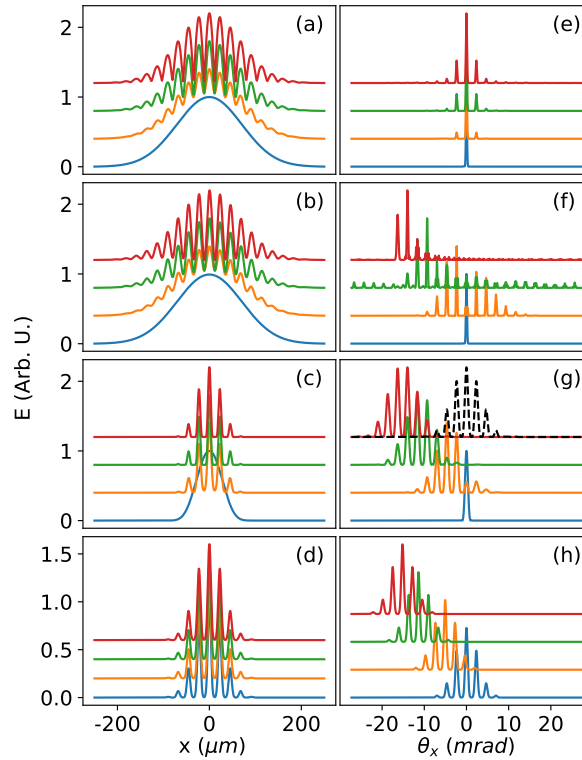


FIGURE 8.11 – Amplitudes en champ proche (a-d) et en champ lointain (e-h) pour  $\alpha = 0$  (bleu),  $\alpha = 0.2$  (orange),  $\alpha = 0.6$  (vert),  $\alpha = 1$  (rouge). Pour plus de clarté, les courbes ont toutes été normalisées à 1 et décalées verticalement de 0, 0.4, 0.8 et 1.2 respectivement. Les amplitudes correspondent à : la coupe en  $z = 0$  de la figure 8.9(b) pour les deux premières lignes, l’amplitude du taux d’ionisation calculée avec le modèle ADK [Tong et Lin 2005] pour la troisième ligne, et notre réseau de fentes gaussiennes de périodicité  $\Lambda = 1/\Delta k$ , de largeur  $\Lambda/5$  et avec une enveloppe gaussienne de largeur  $60 \mu\text{m}$  pour la dernière ligne. Quant à la phase, elle est donnée par : zéro pour la première ligne, la coupe en  $z = 0$  de la figure 8.9(c) pour les deux lignes du milieu, et l’équation (8.38) pour la dernière ligne. (g) La ligne noire en pointillés est la même que la rouge mais pour une phase nulle.

### 8.3 Confrontation du réseau actif aux résultats expérimentaux et numériques du chapitre 7

Notre modèle du réseau actif étant à présent établi, nous devons tester s’il fonctionne correctement en le comparant à nos données expérimentales et numériques (avec la théorie quantique complète) présentées dans le chapitre précédent. Pour ce faire, nous nous intéresserons d’abord au champ proche généré en sortie du jet de gaz, puis au champ lointain et enfin nous concluons quant à l’adéquation entre le modèle et les données.

#### 8.3.1 Champ proche harmonique calculé par le modèle quantique complet

Dans les simulations numériques réalisées au chapitre 7, nous avons accès à l’amplitude et la phase du champ harmonique en sortie du milieu générateur. Nous les avons représentés sur la figure 8.12 pour les harmoniques 15 et 27 situées respectivement dans le plateau et la coupure.

Concernant les amplitudes, nous observons dans les deux cas une série de pics de même période que le réseau actif (l’amplitude du champ infrarouge résultant est tracée en pointillés). Naturellement, la génération d’harmoniques étant un processus hautement non-linéaire, les pics harmoniques sont situés au niveau des maxima d’intensité infrarouge. De plus, tout comme celle

du réseau, l'amplitude harmonique est symétrique par rapport à  $x = 0$ . Nous relevons enfin une différence notable entre les deux harmoniques : la première présente un profil modulé, imputable aux interférences entre trajectoires courte et longue dans le plateau.

Quant aux phases harmoniques, elles présentent dans les deux cas une structure en dents de scie conforme à notre modèle. Au niveau de chaque maximum de l'amplitude XUV, la phase peut être ajustée par une droite dont la pente  $\frac{\partial\varphi}{\partial x}$  correspond à l'angle d'inclinaison du front d'onde. Nous traçons sur la figure 8.12 cette pente en fonction de  $\alpha$  pour l'harmonique 15 (c) et en fonction de l'ordre harmonique pour  $\alpha = 0.25$  (d). La valeur de la dérivée spatiale de la phase dépend du "trait" du réseau considéré. Ceci est probablement dû à la variation du contraste dans le volume du foyer (figure 8.9). Néanmoins, la valeur moyenne de la pente (en traits pleins) suit raisonnablement la prédiction de notre modèle (tracée en pointillés, sans aucun paramètre d'ajustement). Nous expliquons l'écart entre les deux par la distribution des vecteurs d'onde (voir la figure 5 de l'article 3) pouvant être assez large notamment pour les harmoniques dans le plateau (comme c'est le cas de l'harmonique 15), puisqu'elles peuvent être générées en dessous du pic d'amplitude.

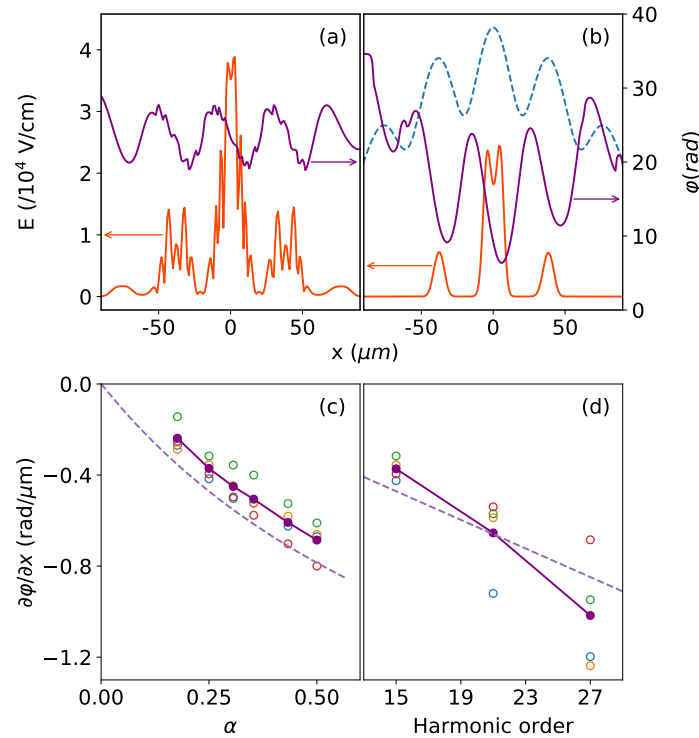


FIGURE 8.12 – Ligne du haut : profil transverse d'amplitude (orange) et de phase (violet) des harmoniques 15 (a) et 27 (b) calculés en sortie du milieu de génération par le modèle totalement quantique. Dans les deux cas, l'amplitude (respectivement la phase) se lit sur l'axe de gauche (respectivement de droite). L'amplitude du champ infrarouge (décalée vers le haut de  $2 \times 10^8$  puis divisée par  $10^4$ ) est donnée en pointillés (b). Ligne du bas : valeurs de la dérivée selon  $x$  de la phase, en fonction de  $\alpha$  pour l'harmonique 15 (c) et en fonction de l'ordre harmonique pour  $\alpha = 0.25$  (d). Les cercles vides de différentes couleurs correspondent à différents maxima du champ XUV (en bleu :  $x \simeq -40 \mu\text{m}$ , en orange :  $x \simeq 0 \mu\text{m}$ , en vert :  $x \simeq 40 \mu\text{m}$  et en rouge :  $x \simeq 80 \mu\text{m}$ ). La valeur moyenne est représentée en cercles et traits pleins violets. En pointillés, la prédiction de notre modèle du réseau actif, donnée par l'équation (8.38).

L'observation du champ proche simulé par le modèle quantique complet constitue ainsi une première validation de notre théorie du réseau actif. Pour aller plus loin, nous allons maintenant nous intéresser au champ lointain.

### 8.3.2 Champ lointain expérimental et numérique

Les figures 8.13 et 8.14 illustrent respectivement les intensités en champ lointain obtenues numériquement (en effectuant une propagation de Fresnel des champs de la figure 8.12) et expérimentalement.

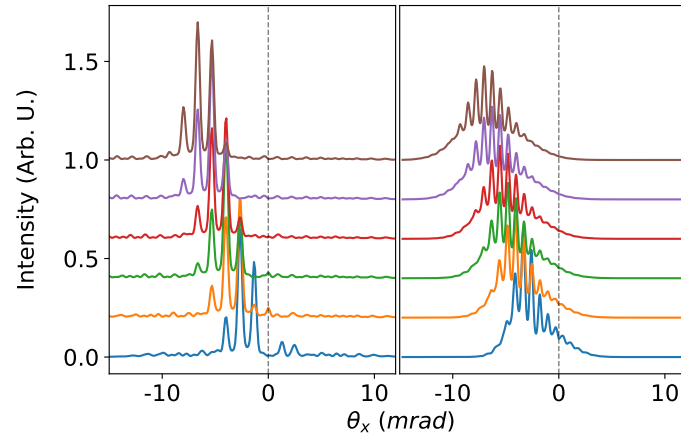


FIGURE 8.13 – Coupes, à partir de cartes (issues de simulations complètes) semblables à celles de la figure 7.8, des harmoniques 15 (à gauche) et 27 (à droite), pour  $\alpha = 0.18$  (bleu),  $\alpha = 0.25$  (orange),  $\alpha = 0.31$  (vert),  $\alpha = 0.35$  (rouge),  $\alpha = 0.43$  (violet) et  $\alpha = 0.5$  (marron). Pour des raisons de visibilité, chaque coupe est décalée de 0.2 vers le haut par rapport à la précédente. Les intensités de l’harmonique 15 sont divisées par deux afin de partager le même axe des ordonnées avec l’harmonique 27.

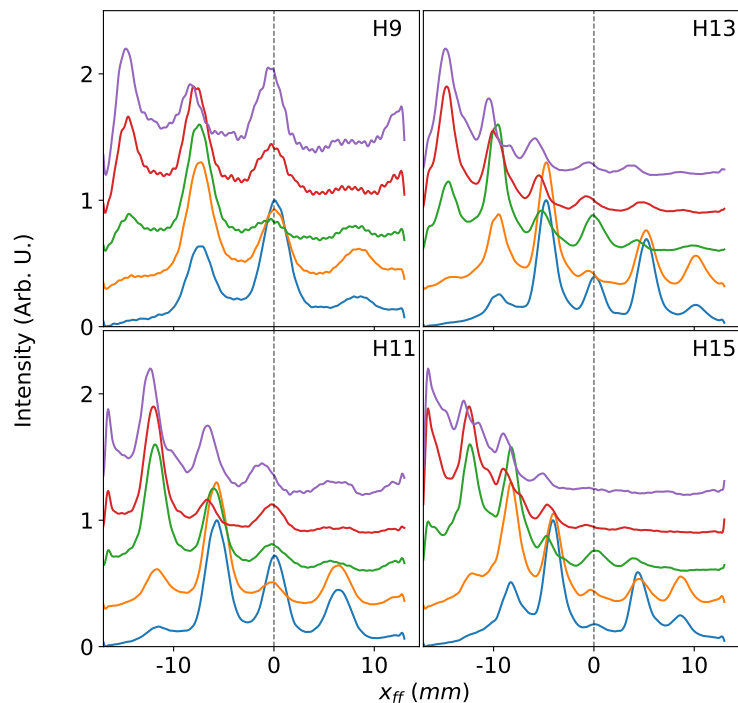


FIGURE 8.14 – Coupes verticales (pour chaque harmonique) des figures expérimentales 7.5(k-o). Chaque courbe est normalisée à 1 et décalée vers le haut de 0.3. L’énergie de génération vaut 2.3 mJ et celle de perturbation  $<140 \mu\text{J}$  (bleu),  $140 \mu\text{J}$  (orange),  $330 \mu\text{J}$  (vert),  $570 \mu\text{J}$  (rouge) et 1.0 mJ (violet).

Comme nous l'avons déjà remarqué, nous observons dans les deux cas des séries d'ordres de diffraction de forme gaussienne, à la fois positifs et négatifs pour de très faibles perturbations, puis la génération de somme de fréquence devient largement dominante à mesure que la perturbation augmente. Cette constatation conforte notre modèle du réseau actif. En particulier, la similitude est frappante entre les figures 8.13 et 8.11(h).

En outre, notons que numériquement et expérimentalement, pour des perturbations suffisamment élevées, les premiers ordres de diffraction s'éteignent. De fait, lorsque la perturbation augmente, le nombre d'ordres de diffraction visibles ne change pratiquement pas (contrairement à l'intuition du modèle multiphotonique du chapitre 6). Nous avons toujours un ordre dominant et l'amplitude des autres autour décroît. Nous retrouvons ici l'effet de l'enveloppe gaussienne de largeur  $L_q$  dans l'équation (8.41) de notre modèle analytique.

Par ailleurs, nous vérifions d'une part que la position de cette enveloppe gaussienne (*i.e.* de l'ordre de diffraction le plus intense) est indépendante de l'ordre harmonique conformément à l'équation (8.43), et d'autre part que les ordres de diffraction se resserrent lorsque l'ordre harmonique augmente, comme prévu par l'équation (8.44).

Nous observons cependant un petit écart à notre modèle : une légère dissymétrie gauche/droite apparaît notamment sur les simulations, que nous attribuons à l'extension longitudinale du milieu générateur (prise en compte dans le modèle quantique complet).

Pour finir, intéressons-nous à la divergence des ordres diffractés en champ lointain. D'après la figure 8.15, nous pouvons raisonnablement affirmer que le modèle quantique résulte bien en des ordres de diffraction tous de même taille pour une harmonique donnée. Et comme nous pouvons le voir sur la figure 8.16, les données expérimentales sont en bon accord avec l'équation (8.45) obtenue dans notre modèle du réseau actif. Notons que la détermination des ordres de diffraction expérimentaux les moins intenses (notamment les ordres négatifs dans le cas de la figure 8.16) est moins précise pour les ordres intenses du fait d'un fonctionnement pas tout à fait linéaire des galettes de micro-canaux lorsque le niveau de signal est très bas.

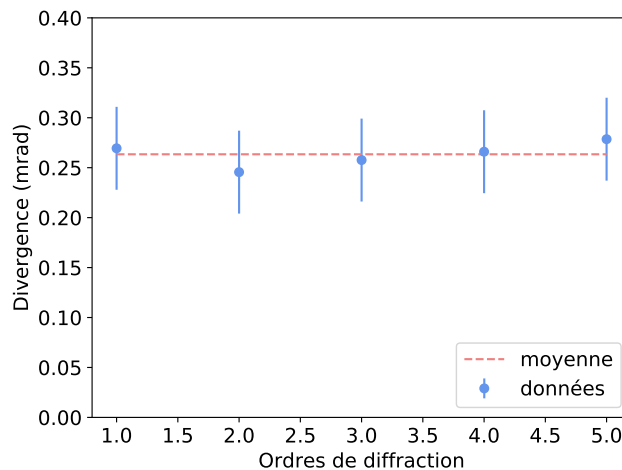


FIGURE 8.15 – Divergence des ordres de diffraction de l'harmonique 15 simulée avec le modèle quantique complet. Les barres d'erreurs sont dues au faible nombre de pixels encodant un ordre de diffraction donné, ce qui rend l'ajustement gaussien peu précis.

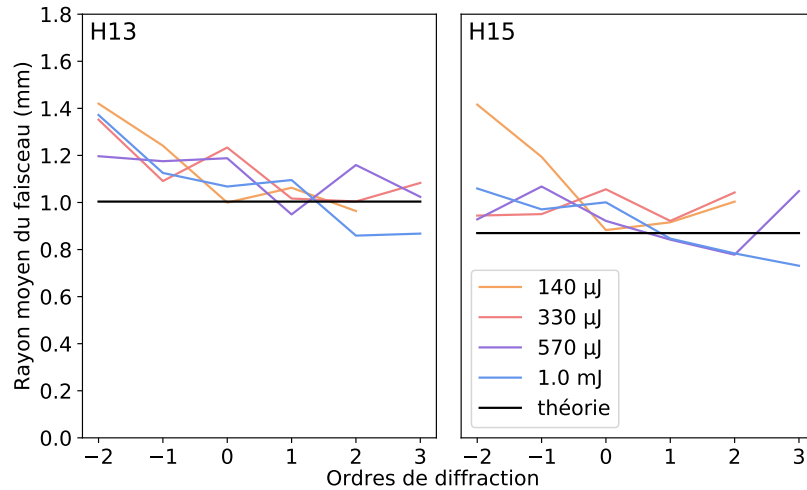


FIGURE 8.16 – Taille des ordres de diffraction expérimentaux (calculée par ajustements gaussiens vertical et horizontal) des harmoniques 13 (a) et 15 (b) pour différentes valeurs de l'énergie de perturbation. La valeur théorique en noir est donnée par l'équation (8.45) sans aucun paramètre d'ajustement.

### 8.3.3 Conclusion

La génération d'harmoniques d'ordre élevé étant un phénomène de champ fort et non un processus multiphotonique, il convient (notamment pour traiter de l'accord de phase) de décrire finement la structure du champ électrique au foyer de génération. C'est précisément ce que propose notre modèle numérique et analytique du réseau actif dans le cadre de la génération à deux faisceaux non-colinéaires. Il permet de prédire la position, la forme et la taille des ordres de diffraction en champ lointain, ainsi que leurs intensités relatives, en excellent accord avec nos expériences et simulations numériques complètes basées sur le modèle quantique de la génération d'harmoniques. Une perspective d'amélioration intéressante de notre modèle consisterait à tenir compte de l'extension longitudinale du milieu : la largeur de la distribution du vecteur d'onde local serait modifiée, mais pas sa valeur asymptotique. Plus généralement, il serait intéressant d'établir un lien avec les travaux approfondis de [Bahabad et al. 2010, Hareli et al. 2018].



## Quatrième partie

# La génération d'harmoniques à deux faisceaux portant des moments angulaires

Nous disposons à présent des fondamentaux pour comprendre la génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires. Nous pouvons donc désormais leur associer des moments angulaires soit orbitaux soit de spin, afin de façonner à volonté le rayonnement harmonique.

Si tout semble se dérouler comme prévu par le modèle multiphotonique en ce qui concerne la génération à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss (qui sera l'objet du chapitre 9), nous ne pouvons en dire de même lorsque l'un des faisceaux arbore une polarisation circulaire tandis que l'autre reste linéaire. Nous verrons en effet dans le chapitre 10 que le modèle perturbatif est une fois de plus mis à mal. Enfin, ces conclusions nous conduiront à appréhender dans le chapitre 11 la question d'une différence fondamentale entre moments angulaires orbital (extrinsèque) et de spin (intrinsèque), en construisant une analogie entre états de polarisation linéaire et circulaire d'un côté, et modes d'Hermite-Gauss et Laguerre-Gauss de l'autre.





## Chapitre 9

# Conservation du moment angulaire orbital lors de la génération d’harmoniques à deux faisceaux

Avant cette thèse, de rares expériences (qu’elles soient de laboratoire ou numériques) de génération d’harmoniques portant du moment angulaire orbital avaient été réalisées [Zürch et al. 2012, Hernández-García et al. 2013, Gariepy et al. 2014, Géneaux et al. 2016]. Toutes ces expériences mettaient en jeu un seul faisceau et offraient un niveau de contrôle de la charge topologique des harmoniques très limité du fait de la règle de transfert  $\ell_q = q\ell_1$  établie dans le chapitre 3. Un objectif important dans la communauté a donc été de réussir à donner n’importe quelle valeur de moment angulaire orbital aux harmoniques. Au cours de cette thèse, ce but a été atteint simultanément dans trois laboratoires : à Saclay, à Nova Gorica [Article 1] et à Ottawa [Kong et al. 2017].

Nous rendons compte dans ce chapitre de l’ensemble de nos travaux sur la génération d’harmoniques à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss. Nous présenterons tout d’abord nos conclusions sur le transfert de moment angulaire orbital lors de ce type d’expériences, puis nous commenterons les interférences entre ordres de diffraction ainsi que leurs intensités relatives.

### 9.1 Profils des harmoniques générées à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss

Dans [Gariepy et al. 2014], les auteurs proposent en fin d’article (l’expérience n’a pas été réalisée) de s’appuyer sur le modèle multiphotonique pour généraliser la loi de conservation du moment angulaire orbital dans un cas où deux faisceaux pilotent la génération d’harmoniques :

$$\ell_q = n_1\ell_1 + n_2\ell_2 \tag{9.1}$$

et ainsi avoir un contrôle total de la charge topologique des harmoniques. Dans cette équation,  $\ell_1$ ,  $\ell_2$  et  $\ell_q$  sont les moments angulaires orbitaux (en unités de  $\hbar$ ) des deux faisceaux pilotes et de l’harmonique d’ordre  $q$  générée. Pour cette expérience, [Gariepy et al. 2014] suggèrent d’utiliser un faisceau de génération gaussien ( $\ell_1 = 0$ ) et un faisceau de perturbation doublé en fréquence portant un moment angulaire orbital  $\ell_2 = 1$ . C’est exactement cette configuration qui a été mise en place au cours de notre collaboration avec le groupe de Giovanni De Ninno à Nova Gorica (Slovénie). Dans nos expériences avec le laser LUCA à Saclay, nous avons choisi d’étudier le cas à une seule couleur et différentes combinaisons de moment angulaires orbitaux ( $\ell_1, \ell_2$ ).

Comme dans les chapitres 3 et 4, nous utilisons des lames de phase en spirale pour synthétiser des faisceaux infrarouges de type Laguerre-Gauss, portant un moment angulaire orbital bien défini [Allen et al. 1992].

### 9.1.1 Expériences à deux couleurs : campagne de Nova Gorica

Le dispositif expérimental consiste en un interféromètre de type Mach-Zehnder très similaire à celui de la figure 7.1 et est représenté sur la figure 1 de l'Article 1. Juste avant d'entrer dans l'interféromètre, le faisceau laser infrarouge est doublé en fréquence dans un cristal de béta-borate de baryum (BBO) de type I. Le miroir dichroïque d'entrée de l'interféromètre transmet l'infrarouge non converti et réfléchit la partie doublée. Le faisceau fondamental reste gaussien et constitue le bras de "génération" de l'interféromètre, tandis que la seconde harmonique est convertie en mode de Laguerre-Gauss  $\ell_2 = 1$  grâce à une lame de phase en spirale et constitue le bras de "perturbation". Dans chaque bras de l'interféromètre, un iris permet d'ajuster la taille du faisceau et une lentille de focaliser dans le jet de gaz où a lieu la génération d'harmoniques d'ordre élevé.

Le recouvrement spatial au foyer d'un mode gaussien avec un mode  $\ell = 1$  n'est pas évident. En effet, si les deux faisceaux ont le même diamètre avant d'être focalisés, alors au foyer les zones de haute intensité de l'un se situent au niveau des zones peu intenses de l'autre (figure 9.1). Afin d'optimiser le recouvrement, il faut donc que le waist du faisceau de Laguerre-Gauss soit plus petit que celui du faisceau gaussien, autrement dit il faut que le diamètre du faisceau de Laguerre-Gauss collimaté soit plus grand que celui du faisceau gaussien<sup>1</sup>. Plutôt que de perdre de l'énergie en diminuant le diamètre de l'iris du fondamental, un afocal (constitué d'une lentille divergente suivie d'une convergente) de grandissement 1.5 a été mis en place dans le faisceau de seconde harmonique.

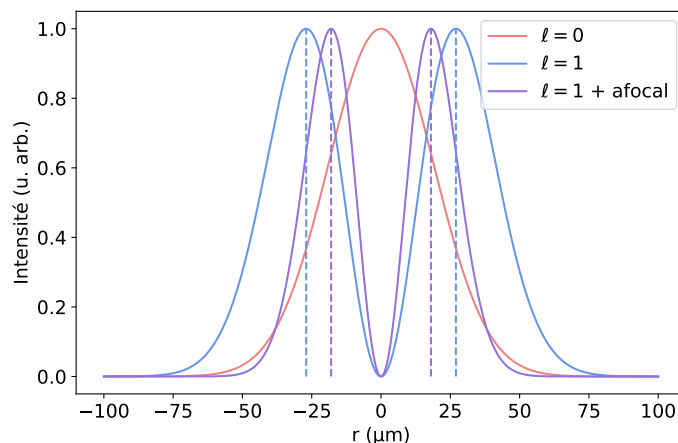


FIGURE 9.1 – Profils transverses au foyer d'un mode gaussien, d'un mode  $\ell = 1$  avec le même waist et d'un mode  $\ell = 1$  lorsque le faisceau collimaté est 1.5 fois plus gros.

Les harmoniques sont ensuite générées dans une cellule d'argon puis passent à travers un monochromateur (constitué d'un réseau placé entre deux miroirs toriques) avant d'être imagées soit sur une caméra CCD XUV soit sur un analyseur de front d'onde de Hartmann. La caméra permet de visualiser directement les profils transverses d'intensité des harmoniques, tandis que l'analyseur de front d'onde permet quant à lui de reconstruire le profil de phase par intégration des vecteurs d'onde mesurés. Ces profils d'intensité et de phase sont représentés respectivement sur les figures 9.2 et 9.3 pour les harmoniques 13 à 19.

1. Nous aurions pu jouer sur les conditions de focalisation pour ajuster la taille des foyers, mais pour des raisons d'optimisation de l'espace, les deux faisceaux sont focalisés avec des lentilles de même focale.

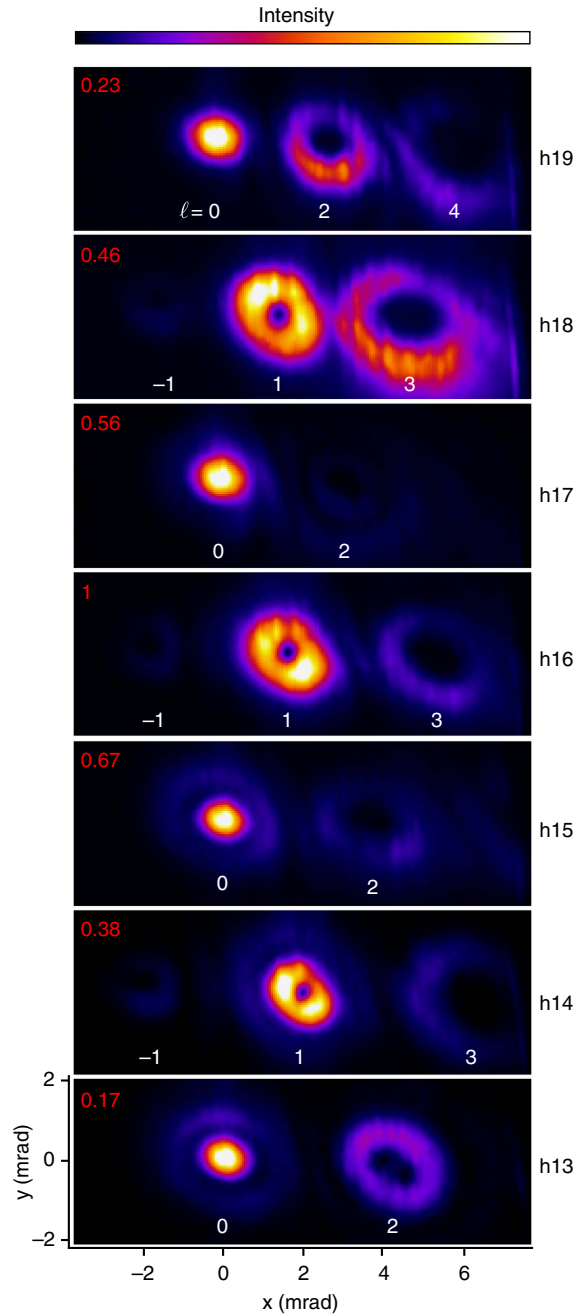


FIGURE 9.2 – Figure 2 de l'Article 1. Profils d'intensité des harmoniques 13 à 19. Ces images, enregistrées avec la caméra XUV et dans les mêmes conditions de génération, résultent chacune d'un seul tir laser. L'intensité est normalisée à 1 pour l'harmonique 16 et la valeur maximale de l'échelle des couleurs est donnée par la valeur en rouge en haut à gauche de chaque image.

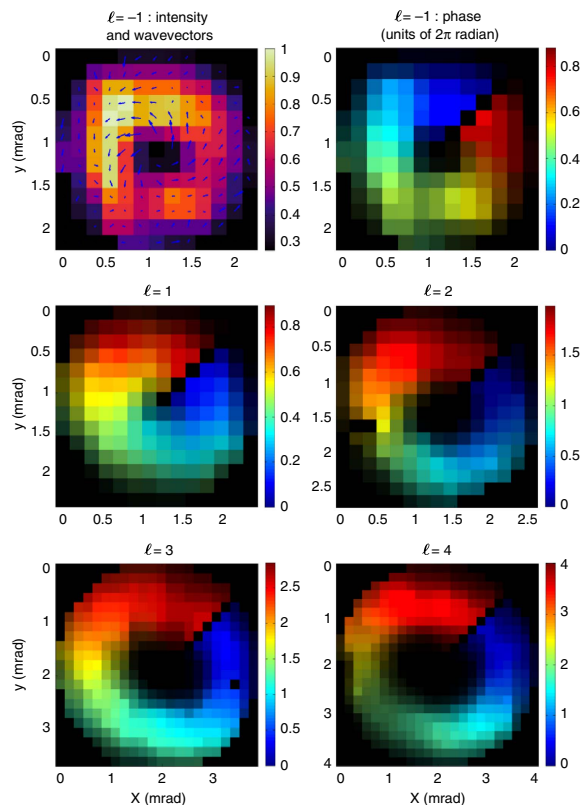


FIGURE 9.3 – Figure 3 de l’[Article 1](#). En haut à gauche : intensité (fausses couleurs) et distribution des vecteurs d’ondes locaux (flèches) de l’ordre -1 de diffraction de l’harmonique 16. Autres images : reconstruction des profils de phase des ordres -1 et +1 de l’harmonique 16, +2 de l’harmonique 19, +3 de l’harmonique 18 et +4 de l’harmonique 19 (de gauche à droite et de haut en bas). Les fausses couleurs représentent la phase (en unités de  $2\pi$  radians) et la luminosité donne l’intensité.

Nous pouvons vérifier sur la figure 9.2 la conservation de la parité, de l’énergie et de l’impulsion : les harmoniques impaires (respectivement paires) présentent seulement des ordres de diffraction pairs (respectivement impairs), et tous les ordres de diffraction sont bien séparés. De plus, chaque ordre de diffraction semble avoir le profil d’intensité d’un mode de Laguerre-Gauss d’indice azimutal égal à l’ordre de diffraction (leur diamètre augmente avec l’ordre de diffraction), ce qui tend à corroborer la loi de conservation du moment angulaire orbital proposée dans l’équation (9.1). Les mesures de front d’onde montrées sur la figure 9.3 confirment que les vecteurs d’onde harmoniques tournent bien autour d’une singularité (au centre du faisceau) et ont une amplitude croissante lorsque l’on s’approche du centre du faisceau. Ces deux observations sont la signature des vortex optiques. Les profils de phase sont obtenus en intégrant ces distributions de vecteurs d’onde [Southwell 1980] et valident notre hypothèse que chaque ordre de diffraction a bien la structure de phase en spirale  $e^{i\ell\theta}$  attendue. Ces résultats constituent une caractérisation sans équivoque de la valeur de moment angulaire orbital porté par les harmoniques d’ordre élevé.

### 9.1.2 Expériences à une couleur : campagne de Saclay

Pour nos expériences à une couleur avec le laser LUCA à Saclay, nous avons utilisé le montage illustré sur la figure 7.1 et y avons simplement ajouté des lames de phase en spirale pour synthétiser des faisceaux de Laguerre-Gauss.

**Résultats expérimentaux** La figure 9.4 présente les profils d'intensité des interférences infrarouges au foyer (en forme de fourche [Bazhenov et al. 1990]) ainsi que des harmoniques imagées sur nos galettes de micro-canaux, pour trois combinaisons différentes de moments angulaires orbitaux ( $\ell_1, \ell_2$ ) des deux faisceaux infrarouges.

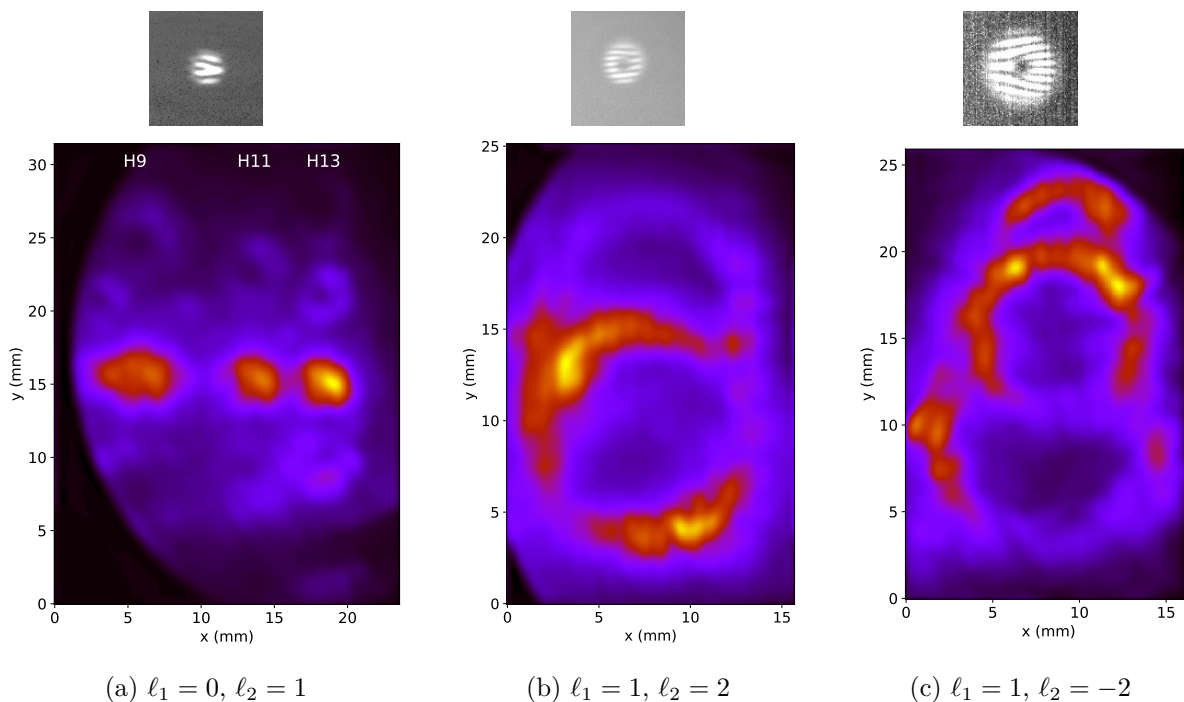


FIGURE 9.4 – Figures d'interférences infrarouges (ligne du haut) et spectres harmoniques enregistrés (ligne du bas) dans le cas à une couleur pour différentes combinaisons de  $(\ell_1, \ell_2)$ .

Dans le cas d'une génération gaussienne ( $\ell_1 = 0$ ) et d'une perturbation  $\ell_2 = 1$  (figure 9.4a), nous obtenons des résultats très proches de ceux issus de la campagne expérimentale de Nova Gorica. La principale différence réside dans le fait que nous avons ici uniquement les harmoniques impaires puisque le faisceau de perturbation n'a pas été doublé en fréquence. Pour chaque harmonique, l'ordre zéro de diffraction présente un profil gaussien tandis que le premier ordre (ordres +1 et -1 respectivement au-dessus et en dessous de l'ordre 0 sur la figure) semble avoir le profil d'un mode de Laguerre-Gauss d'indice azimutal égal à 1. Les ordres de diffraction sont bien séparés spatialement.

Lorsque nous générons avec un faisceau  $\ell_1 = 1$  et perturbons avec  $\ell_2 = 2$  (figure 9.4b), l'ordre zéro de diffraction (anneau du bas sur la figure) présente le même profil d'intensité que lors de la génération à un seul faisceau portant une charge topologique unitaire (chapitre 3). Écrivons  $\Delta\ell = \ell_2 - \ell_1$ . Ici,  $\Delta\ell = 1$  et nous remarquons que le premier ordre de diffraction (anneau du haut) a un diamètre assez proche, légèrement plus grand que celui de l'ordre zéro. Il est intéressant de noter que ces deux anneaux sont de tailles nettement plus grandes que ceux du premier ordre de diffraction de la figure 9.4a et se chevauchent (l'angle entre les deux faisceaux infrarouges est le même pour chacun des trois cas de la figure 9.4).

Enfin, nous avons retourné la lame de phase du faisceau de perturbation pour inverser le signe de sa charge topologique (figure 9.4c). Dans ce cas, nous avons  $\Delta\ell = -3$ . Sur la figure, nous pouvons observer les ordres 0, +1 et +2 de diffraction, de bas en haut. Comme précédemment, l'ordre zéro présente le même diamètre que dans le cas à un seul faisceau, puis le diamètre des anneaux diminue quand l'ordre de diffraction augmente, et ce bien plus rapidement que dans le cas où  $\Delta\ell = 1$ .

Toutes ces observations valident une fois encore les règles de conservation de la parité, de l'énergie et de l'impulsion, et semblent de plus confirmer la loi de conservation du moment

angulaire orbital donnée par l'équation (9.1) et démontrée à Nova Gorica. L'étude de la divergence des harmoniques menée dans la sous-section 9.1.3 va nous permettre de vérifier que nos harmoniques portent bien les charges topologiques attendues.

**Simulations numériques** Ces trois expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux de même couleur et portant du moment angulaire orbital ont également été simulées numériquement par Thierry Auguste en utilisant l'approximation de champ fort et en tenant compte des effets de propagation. Les résultats sont présentés sur la figure 9.5.

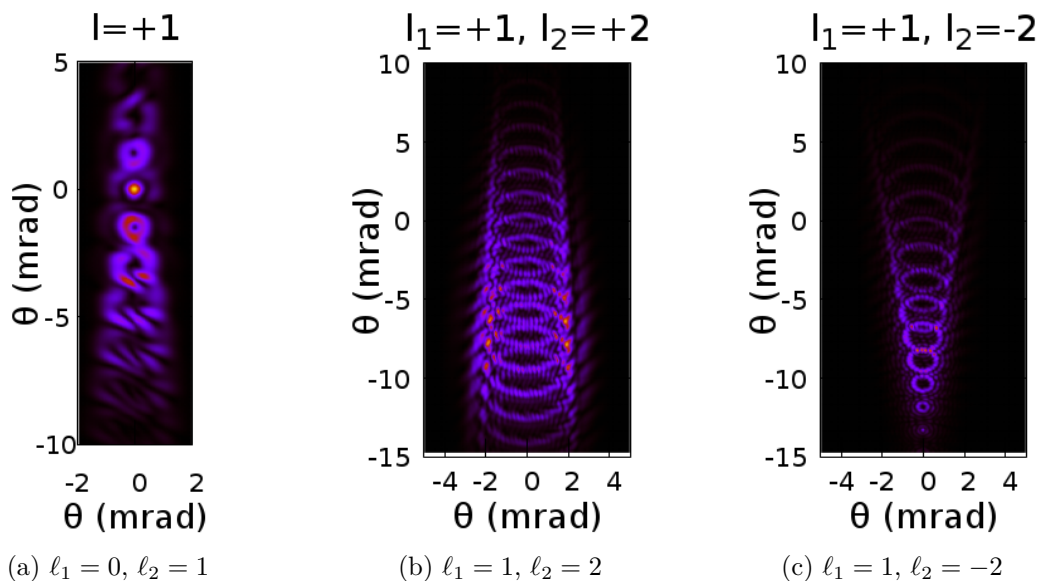


FIGURE 9.5 – Harmonique 27 simulée dans le cas à une couleur pour un angle entre les deux faisceaux de 40 mrad et pour différentes combinaisons de  $(\ell_1, \ell_2)$ .

Quelle que soit la configuration  $(\ell_1, \ell_2)$ , ces simulations sont en excellent accord avec nos expériences réalisées sur le laser LUCA. Nous remarquons une particularité sur cette figure par rapport à la figure 9.4 : les franges d'interférences. Nous ne les voyons pas sur les données expérimentales car nous avons moyenné 500 tirs lasers pour avoir des images plus lisses et plus stables. Nous identifions deux types d'interférences :

- entre trajectoires courtes et trajectoires longues de la génération d'harmoniques (expérimentalement, nous favorisons les premières, tandis que dans les simulations, les deux familles sont présentes)
- entre ordres de diffraction qui se chevauchent (une étude expérimentale de ces interférences sera menée dans la section 9.2).

### 9.1.3 Caractérisation du moment angulaire orbital : divergence des harmoniques générées à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss

Afin de caractériser le moment angulaire orbital de nos harmoniques générées à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss, nous nous proposons d'étudier leur divergence à la manière des travaux (dans le cas de la génération d'harmoniques à un seul faisceau, voir le chapitre 3) de [Géneau et al. 2016]. Nous considérons ici que les harmoniques ont également des profils de Laguerre-Gauss. Le waist n'est pas une quantité très intuitive pour mesurer la taille des anneaux sur nos données expérimentales. C'est pourquoi nous nous intéresserons plutôt au rayon pour lequel l'intensité est maximale. Rappelons l'expression de celui-ci pour un mode de Laguerre-



Gauss d'indice azimutal  $\ell_q$  et de longueur d'onde  $\lambda_q$  (voir le chapitre 1) :

$$R_{max}(\lambda_q, \ell_q, z) = w(\lambda_q, z) \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} = w(\lambda_q, z=0) \sqrt{1 + \left( \frac{z\lambda_q}{\pi w(\lambda_q, z=0)^2} \right)^2} \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} \quad (9.2)$$

Dans nos expériences, nous enregistrons les profils d'intensité en champ lointain. Nous avons alors  $z\lambda_q \gg \pi w(\lambda_q, z=0)^2$ , ce qui nous permet de simplifier l'équation (9.2) :

$$R_{max}(\lambda_q, \ell_q, z) \approx \frac{z\lambda_q}{\pi w(\lambda_q, z=0)} \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} \quad (9.3)$$

Par la suite, nous allégerons les notations en écrivant  $w_q = w(\lambda_q, z=0)$  pour le waist (au foyer donc) de l'harmonique  $q$ , ainsi que  $w_1$  et  $w_2$  pour les waists des faisceaux de génération et de perturbation respectivement.

Pour parler de divergence, il suffit de dériver l'équation (9.3) par rapport à la coordonnée longitudinale  $z$  :

$$\theta_{max}(\lambda_q, \ell_q) = \frac{\partial R_{max}}{\partial z} = \frac{\lambda_q}{\pi w_q} \sqrt{\frac{|\ell_q|}{2}} \quad (9.4)$$

D'après la loi de conservation de l'énergie, nous avons  $\lambda_q = \lambda_1/q$ . Nous savons désormais que la loi de conservation du moment angulaire orbital peut s'écrire  $\ell_q = n_1\ell_1 + (q - n_1)\ell_2$ . De plus, nous pouvons sans perte de généralité considérer que  $\ell_q > 0$  et donc nous affranchir de la valeur absolue dans l'équation (9.4), ce qui nous donne pour la divergence :

$$\theta_{max}(\lambda_q, \ell_q) = \frac{\lambda_1}{q\pi w_q} \sqrt{\frac{n_1\ell_1 + (q - n_1)\ell_2}{2}} \quad (9.5)$$

Comme dans le chapitre 3 et l'article [Géneaux et al. 2016], nous faisons maintenant l'hypothèse que les zones de haute intensité sont les mêmes pour les harmoniques et l'infrarouge. En effet, la génération d'harmoniques est un processus extrêmement non-linéaire et est donc plus efficace au niveau des zones de forte intensité. En observant la figure 9.6, nous remarquons que dans le cas où  $\ell_1 = 0$  et  $\ell_2 = 1$ , le rayon pour lequel l'intensité est maximale dépend du rapport d'énergie entre les deux faisceaux.

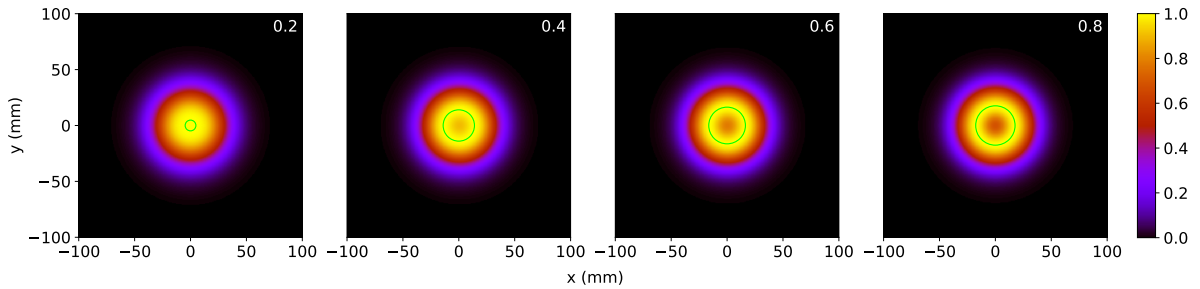


FIGURE 9.6 – Simulation de l'intensité résultante de la somme incohérente d'un faisceau gaussien et d'un mode de Laguerre-Gauss  $\ell = 1$ . Les cercles en vert représentent le rayon (déterminé numériquement) où l'intensité est maximale. Le rapport d'énergie entre les deux faisceaux est indiqué dans le coin en haut à droite de chaque figure. Le waist du faisceau de Laguerre-Gauss est  $\sqrt{2}$  fois plus petit que celui du mode gaussien.

De façon heuristique, nous écrivons donc notre hypothèse sous la forme suivante :

$$w_q \sqrt{\frac{\ell_q}{2}} = \frac{w_1 \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} + \frac{E_2}{E_1} w_2 \sqrt{\frac{|\ell_2|}{2}}}{1 + \frac{E_2}{E_1}} \quad (9.6)$$



où  $E_1$  et  $E_2$  sont les énergies des faisceaux de génération et de perturbation respectivement. Nous distinguons alors deux cas :

- si  $\ell_1 \neq 0$  :  $w_q \sqrt{\frac{\ell_q}{2}} \approx w_1 \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} \left( 1 - \frac{E_2}{E_1} \left( 1 - \frac{w_2}{w_1} \sqrt{\frac{|\ell_2|}{|\ell_1|}} \right) \right)$  ce qui nous donne pour le waist harmonique  $w_q \approx w_1 \sqrt{\frac{|\ell_1|}{\ell_q}}$  car dans la pratique, nous faisons en sorte d'optimiser le recouvrement spatial des deux faisceaux, *i.e.*  $\frac{w_2}{w_1} \sqrt{\frac{|\ell_2|}{|\ell_1|}} \approx 1$
- si  $\ell_1 = 0$  :  $w_q \sqrt{\frac{\ell_q}{2}} = \frac{E_2}{E_1 + E_2} w_2 \sqrt{\frac{|\ell_2|}{2}}$  et donc  $w_q = \frac{E_2}{E_1 + E_2} w_2 \sqrt{\frac{|\ell_2|}{\ell_q}}$ .

Nous remplaçons enfin dans l'équation (9.5) pour obtenir :

$$\theta_{max}(\lambda_q, \ell_q) = \begin{cases} \frac{\lambda_1}{q\pi w_1} \frac{n_1 \ell_1 + (q - n_1) \ell_2}{\sqrt{2|\ell_1|}} & \text{si } \ell_1 \neq 0 \\ \frac{\lambda_1}{q\pi w_2} \frac{(q - n_1) \ell_2}{\sqrt{2|\ell_2|}} \frac{E_1 + E_2}{E_2} & \text{si } \ell_1 = 0 \end{cases} \quad (9.7)$$

Les simulations numériques de Thierry Auguste montrent que la divergence varie linéairement avec l'ordre de diffraction (figure 9.7).

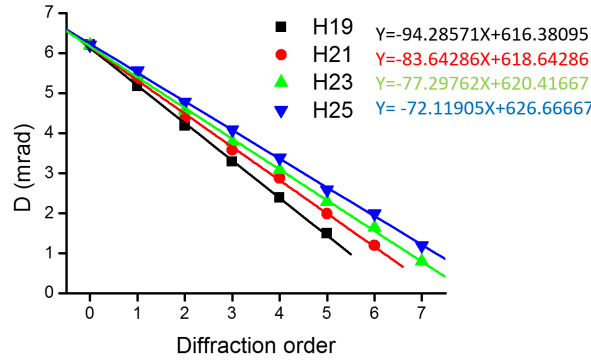


FIGURE 9.7 – Divergence en fonction de l'ordre de diffraction pour les harmoniques 19 à 25 simulées numériquement, dans la configuration où  $\ell_1 = 1$  et  $\ell_2 = -2$ .

Afin de faire apparaître clairement la pente et l'ordonnée à l'origine, nous pouvons mettre l'équation (9.7) sous la forme  $\theta_{max}(\lambda_q, \ell_q) = A + B(q - n_1)$ . Pour ce faire, nous identifions d'abord les termes en  $n_1$  pour trouver :

$$B = \begin{cases} \frac{\lambda_1}{q\pi w_1} \frac{\ell_2 - \ell_1}{\sqrt{2|\ell_1|}} & \text{si } \ell_1 \neq 0 \\ \frac{\lambda_1}{q\pi w_2} \frac{E_1 + E_2}{E_2} \text{sign}(\ell_2) \sqrt{\frac{|\ell_2|}{2}} & \text{si } \ell_1 = 0 \end{cases} \quad (9.8)$$

La figure 9.8 nous permet de vérifier la dépendance en  $1/q$  de la pente  $B$  dans le cas où l'on génère avec  $\ell_1 = 1$  et perturbe avec  $\ell_2 = -2$ .

En soustrayant les termes en  $n_1$ , il nous reste alors :

$$A + Bq = \begin{cases} \frac{\lambda_1}{\pi w_1} \frac{\ell_2}{\sqrt{2|\ell_1|}} & \text{si } \ell_1 \neq 0 \\ \frac{\lambda_1}{\pi w_2} \frac{E_1 + E_2}{E_2} \text{sign}(\ell_2) \sqrt{\frac{|\ell_2|}{2}} & \text{si } \ell_1 = 0 \end{cases} \quad (9.9)$$

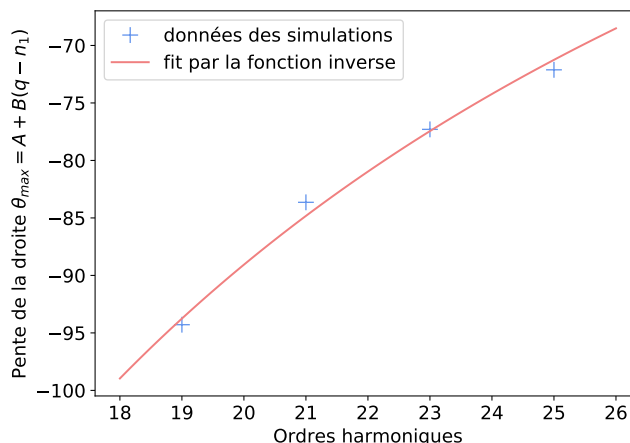


FIGURE 9.8 – Nous reportons ici les valeurs des pentes obtenues pour chaque harmonique sur la figure 9.7 et ajustons ces valeurs par une fonction  $f(q) = a/q$  où  $a$  est le paramètre d'ajustement.

Et nous obtenons donc :

$$A = \begin{cases} \frac{\lambda_1}{\pi w_1} \text{sign}(\ell_1) \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} & \text{si } \ell_1 \neq 0 \\ 0 & \text{si } \ell_1 = 0 \end{cases} \quad (9.10)$$

Sur la figure 9.9, nous confrontons ces formules aux tailles d'anneaux mesurées expérimentalement, dans deux configurations différentes. Nous obtenons un bon accord entre calculs analytiques et expériences, confirmant la valeur de l'hypothèse heuristique que nous avons faite.

Ainsi, l'étude de la divergence des harmoniques nous permet de vérifier que nos harmoniques portent bien la valeur de moment angulaire orbital prédite par le modèle multiphotonique. Il nous reste encore deux aspects à traiter au sujet de ces expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux de Laguerre-Gauss : les interférences entre ordres de diffraction prédites par les simulations numériques, ainsi que l'accord de phase du point de vue du réseau actif.

#### 9.1.4 Confrontation avec les résultats du groupe d'Ottawa et conclusions sur le transfert de moment angulaire orbital aux harmoniques

Le groupe de Paul Corkum à Ottawa (Canada) a également réalisé des expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux portant du moment angulaire orbital, dans le cas à une couleur [Kong et al. 2017]. Ils ont utilisé une méthode de caractérisation différente de Nova Gorica (mesure du front d'onde) et Saclay (divergence des ordres de diffraction), qui consiste à faire interférer l'ordre de diffraction souhaité avec un faisceau harmonique de référence (gaussien).

Les interférences entre deux faisceaux gaussiens donnent les franges habituelles (figure 9.10b), alors que la figure d'interférences entre un faisceau portant du moment angulaire orbital et un faisceau gaussien a une forme de fourche (figures 9.10a-c-d). La différence du nombre de franges de part et d'autre de la singularité donne la valeur (et le signe) de la charge topologique. Les résultats obtenus par ce groupe confirment également la loi de conservation du moment angulaire orbital établie d'après le modèle multiphotonique.

En résumé, les travaux de trois groupes de recherche, utilisant chacun des méthodes de caractérisation différentes, ont permis d'établir que bien que limité, le modèle multiphotonique prédit correctement le transfert de moment angulaire orbital lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux. Nous nous intéresserons plus précisément dans la section 9.2, d'une part aux interférences entre ordres de diffraction, et d'autre part aux rendements harmoniques obtenus lors de ce type d'expériences en étudiant la conservation du front d'onde, obtenue en associant le modèle multiphotonique à notre théorie du réseau actif.

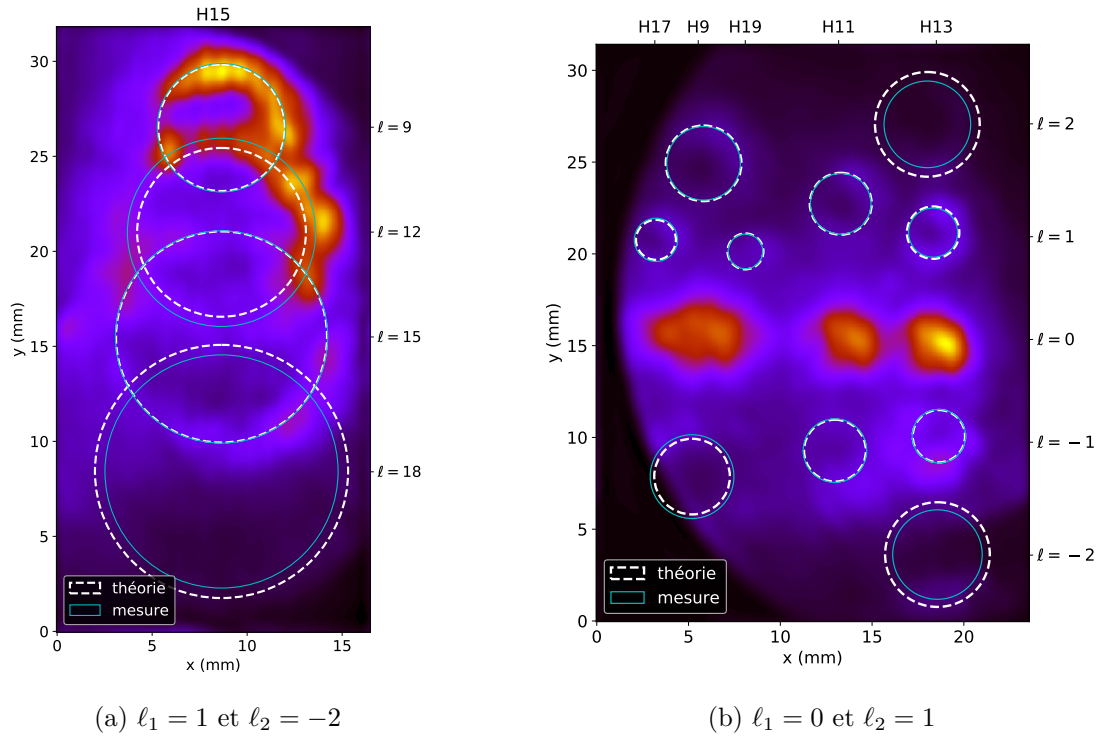


FIGURE 9.9 – Comparaison de l'équation (9.7) aux données expérimentales. Les tailles d'anneaux mesurées et calculées sont respectivement représentées en traits pleins de couleur cyan et en tirets blancs. (a) Ordres de diffraction -1 à +2 (de bas en haut) de l'harmonique 15 dans la configuration  $l_1 = 1$  et  $l_2 = -2$ . (b) Ordres de diffraction -2 à +2 des harmoniques 9, 11, 13, 17 et 19 dans la configuration  $l_1 = 0$  et  $l_2 = 1$ . Les harmoniques 9 à 13 (respectivement 17 et 19) correspondent au premier (respectivement second) ordre de diffraction du réseau en or de notre spectromètre.

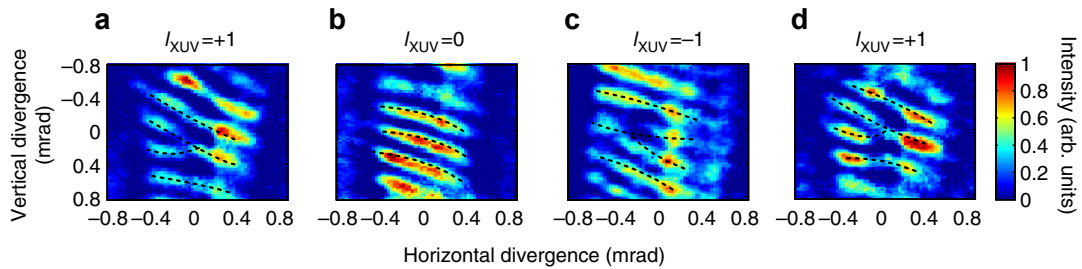


FIGURE 9.10 – Adaptée de la figure 3 de [Kong et al. 2017].

## 9.2 Relations entre ordres de diffraction d'une harmonique donnée

### 9.2.1 Franges d'interférences

Nous avons vu avec la figure 9.5 que les simulations numériques font apparaître des franges d'interférences entre les différents ordres de diffraction d'une harmonique. La présence de telles franges s'explique par le chevauchement de faisceaux de même fréquence se propageant avec un angle entre eux.

Dans le cas le plus simple où la génération est gaussienne et la perturbation porte un moment angulaire orbital de  $\pm 1$ , nous observons sur la figure 9.11 que ces franges sont inclinées par

rapport à la verticale et le sens de cette inclinaison s'inverse lorsque que la charge topologique de la perturbation change de signe. Ceci est dû à la forme hélicoïdale du front d'onde des faisceaux portant du moment angulaire orbital. Nous allons l'expliquer avec la figure 9.12.

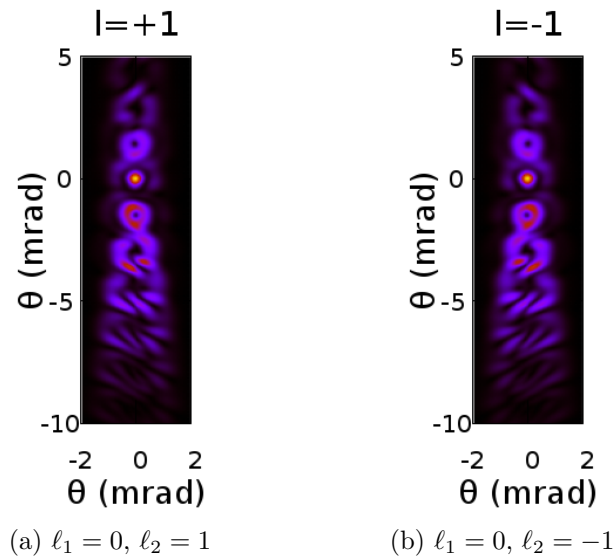


FIGURE 9.11 – Harmonique 27 simulée dans le cas à une couleur pour un angle de 40 mrad entre les deux faisceaux,  $\ell_1 = 0$  et  $\ell_2 = \pm 1$  : effet du signe de la charge topologique sur les franges d'interférences.

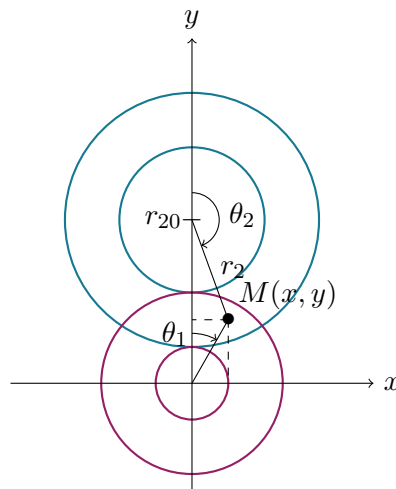


FIGURE 9.12 – Inclinaison des franges d'interférences entre deux ordres de diffraction consécutifs. Les cercles matérialisent les anneaux d'intensité. Nous avons attribué une couleur différente à chaque ordre de diffraction pour plus de lisibilité.

La figure 9.12 représente deux anneaux se chevauchant d'une même harmonique. L'anneau du bas est centré en  $(0, 0)$  et est associé à une charge topologique  $\ell_{q1}$ . L'anneau du haut est centré en  $(0, r_{20})$  et est associé à une charge topologique  $\ell_{q2}$ . Soit  $M(x, y)$  un point dans la zone de recouvrement des deux anneaux. Nous pouvons exprimer ses coordonnées en fonction des paramètres de chaque anneau :

— pour l'anneau du bas :  $\theta_1 = \arctan \frac{x}{y}$

— pour l'anneau du haut : nous avons  $\begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_2 \sin(\pi - \theta_2) \\ r_{20} - r_2 \cos(\pi - \theta_2) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} r_2 \sin \theta_2 \\ r_{20} + r_2 \cos \theta_2 \end{pmatrix}$

ce qui donne  $\theta_2 = \arctan \frac{x}{y - r_{20}}$

Les zones équiphasés vérifient  $\ell_{q1}\theta_1 = \ell_{q2}\theta_2 + p\pi$ ,  $p \in \mathbb{Z}$ . Ces zones se situant le long de l'axe vertical, nous pouvons considérer  $x \ll y$ ,  $r_{20} - y$ . Nous obtenons alors :

$$\ell_{q1} \frac{x}{y} = \ell_{q2} \frac{x}{y - r_{20}} + p\pi \quad (9.11)$$

Faisons à présent l'hypothèse simplificatrice que la zone de recouvrement se situe au voisinage du milieu du segment reliant les centres des deux anneaux :  $y = \frac{r_{20}}{2} + \delta y$ . Par conséquent, en posant  $\Delta\ell = \ell_{q2} - \ell_{q1}$ , nous trouvons :

$$\ell_{q1} \frac{x}{\frac{r_{20}}{2} + \delta y} = -\ell_{q2} \frac{x}{\frac{r_{20}}{2} - \delta y} + p\pi \quad (9.12)$$

$$x \left[ \ell_{q1} \left( \frac{r_{20}}{2} - \delta y \right) + \ell_{q2} \left( \frac{r_{20}}{2} + \delta y \right) \right] = p\pi \left( \frac{r_{20}^2}{4} - \delta y^2 \right) \quad (9.13)$$

$$x [(\ell_{q1} + \ell_{q2}) + \Delta\ell \delta y] = p\pi \frac{r_{20}^2}{4} \quad (9.14)$$

$$x \left( 1 + \frac{\Delta\ell}{\ell_{q1} + \ell_{q2}} \frac{2\delta y}{r_{20}} \right) = p\pi \frac{r_{20}}{2(\ell_{q1} + \ell_{q2})} \quad (9.15)$$

$$x = p\pi \frac{r_{20}}{2(\ell_{q1} + \ell_{q2})} \left( 1 - \frac{\Delta\ell}{\ell_{q1} + \ell_{q2}} \frac{2\delta y}{r_{20}} \right) \quad (9.16)$$

$$x = p\pi \frac{r_{20}}{2(\ell_{q1} + \ell_{q2})} - p\pi \frac{\Delta\ell}{(\ell_{q1} + \ell_{q2})^2} \delta y \quad (9.17)$$

Ceci est l'équation d'une droite légèrement inclinée par rapport à la verticale. Dans la configuration de la figure 9.11a où  $(\ell_1, \ell_2) = (0, 1)$ , nous avons  $\Delta\ell = 1$  : la pente est négative. À l'inverse, dans le cas de la figure 9.11b où  $(\ell_1, \ell_2) = (0, -1)$ , nous avons  $\Delta\ell = -1$  : la pente est alors positive. Ainsi, une inversion du signe de la charge topologique du faisceau de perturbation induit une inversion de l'orientation des franges d'interférences entre deux anneaux successifs.

Intéressons-nous maintenant à un cas un peu plus complexe. Nous avons réussi à observer des franges expérimentalement, en enregistrant des images pendant un seul tir laser, pour une nouvelle combinaison de faisceaux où  $\ell_1 = 1$  et  $\ell_2 = 0$ . La figure 9.13 montre six tirs laser uniques dans cette configuration.

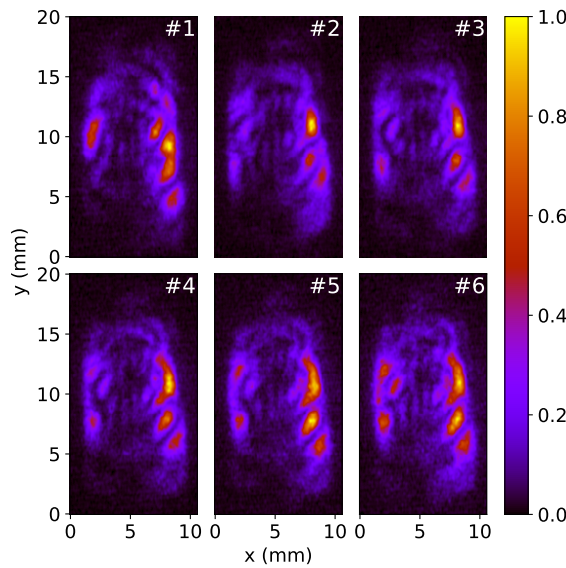


FIGURE 9.13 – Génération  $\ell_1 = 1$  et perturbation  $\ell_2 = 0$  : harmonique 13 enregistrée pour six différents tirs laser uniques.

Bien que le signal soit assez bruité, nous pouvons distinguer des franges d'interférences entre les ordres 0 et 1 d'une part, et entre les ordres 1 et 2 d'autre part. Comme nous pouvons le voir sur la figure 9.14, ces franges se translatent légèrement d'un tir laser à un autre. C'est pourquoi elles se brouillent lorsque nous accumulons plusieurs tirs.

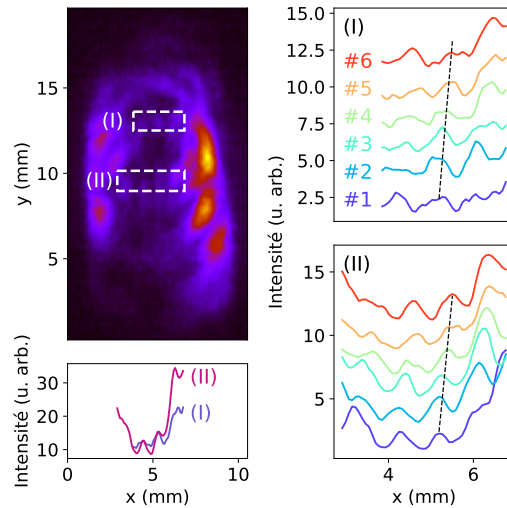


FIGURE 9.14 – Génération  $\ell_1 = 1$  et perturbation  $\ell_2 = 0$ . En haut à gauche : moyenne des six meilleurs tirs. Les deux systèmes de franges encadrés (I) et (II) sont tracés juste en dessous. À droite : systèmes de franges (I) en haut et (II) en bas tracés pour chacun des six meilleurs tirs (avec un décalage vertical pour plus de clarté).

Nous avons mené une étude numérique pour comprendre cette fluctuation tir à tir des systèmes de franges. Nous avons simplement superposé des modes de Laguerre-Gauss d'indices azimutaux qui diffèrent d'une unité et nous les avons positionnés de façon à reproduire au mieux la figure expérimentale. Nous observons sur la figure 9.15 que lorsque l'origine des phases varie, les franges translatent. Expérimentalement, nous pouvons attribuer ce glissement des franges à une instabilité de l'interféromètre, qui allonge très légèrement un bras par rapport à l'autre et modifie donc la phase relative des deux faisceaux au foyer.

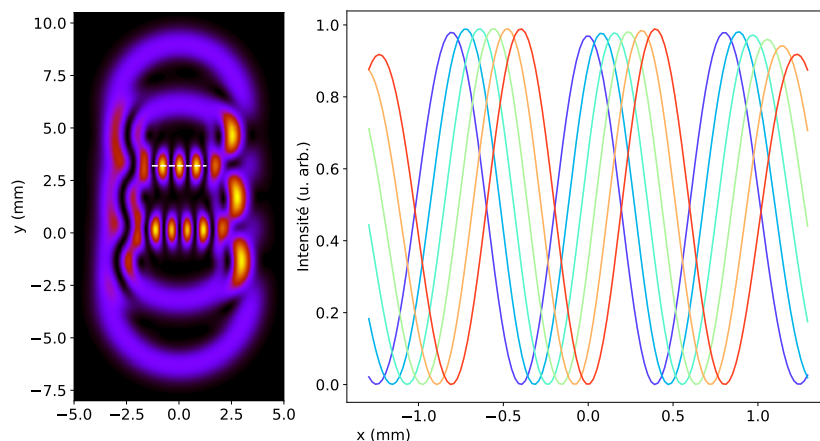


FIGURE 9.15 – Défilement des franges en fonction du délai entre les deux faisceaux. À gauche : simulation numérique de la superposition de modes de Laguerre-Gauss avec  $\Delta\ell = 1$ . À droite : système de franges matérialisé à gauche par la ligne en pointillés, pour des déphasages allant de 0 à  $\pi/2$ .



L'interfrange est le même pour tous les systèmes de franges car il ne dépend que de la différence  $\Delta\ell$  entre les ordres qui interfèrent. Ainsi, lorsque nous passons d'un système à un autre, le nombre de franges peut être différent simplement à cause de la variation de la taille des ordres et donc de la surface de recouvrement des ordres de diffraction.

### 9.2.2 Intensités relatives

Concernant les rendements des différents ordres de diffraction d'une harmonique donnée, nous pouvons noter que :

- toutes les expériences et simulations numériques, que ce soit à Saclay, à Nova Gorica [Article 1] ou encore à Ottawa [Kong et al. 2017], font état d'une génération de somme de fréquences qui domine par rapport à la différence de fréquences
- comme dans le chapitre 7, le régime perturbatif est remis en cause par la figure 9.16 sur laquelle nous observons un ordre 2 plus intense que l'ordre 0 pour les intensités élevées du faisceau de perturbation.

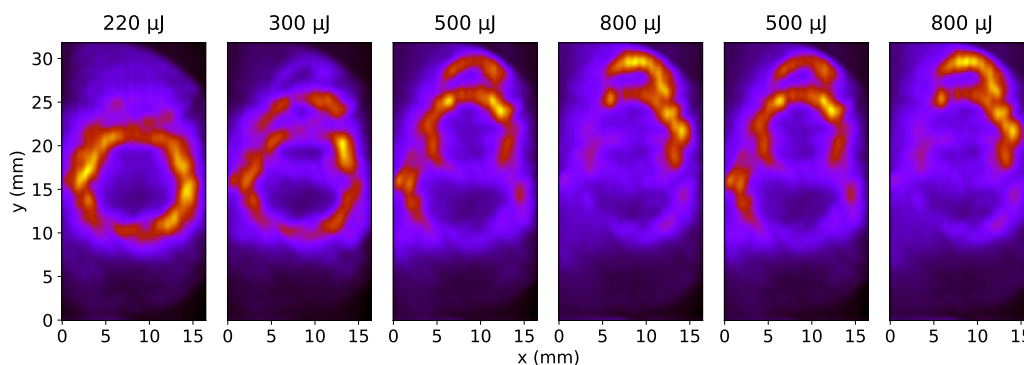


FIGURE 9.16 – Génération  $\ell_1 = 1$  et perturbation  $\ell_2 = -2$  pour des énergies de perturbation croissantes de gauche à droite.

**Réseau actif** Nous pouvons expliquer ces remarques en adaptant notre théorie du réseau actif développée dans le chapitre 8 au cas de faisceaux de Laguerre-Gauss. Le détail des calculs est fourni dans l'annexe D. D'une manière générale, nous obtenons pour le vecteur d'onde local :

$$\vec{k}_s = \vec{k}_1 + \frac{\alpha \left( \alpha + \cos \left( \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell \phi \right) \right)}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos \left( \vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell \phi \right)} \left( \vec{\Delta k} + \frac{\Delta\ell}{r} \vec{e}_\phi \right) \quad (9.18)$$

Il convient à ce stade de comparer les ordres de grandeur de  $\Delta k$  et  $\Delta\ell/r$  : leurs inverses sont respectivement inférieur au micron et de l'ordre de quelques dizaines de microns. Le premier est donc prépondérant par rapport au second. Nous devinons donc que la position des ordres de diffraction en champ lointain sera dictée par le terme selon  $\vec{\Delta k}$  de façon complètement identique au cas gaussien, tandis que le terme en  $\Delta\ell$  induira une petite modulation locale du front d'onde, responsable du profil annulaire de chaque ordre de diffraction. Nous identifions ainsi deux contributions bien distinctes du réseau actif : une partie "gaussienne" qui donne la direction moyenne d'émission des ordres de diffraction, et une partie "Laguerre-gaussienne" qui gouverne le profil spatial (d'intensité et de phase) des ordres de diffraction.

Ceci permet d'expliquer les efficacités de diffraction observées sur la figure 9.16 : le comportement est qualitativement le même qu'avec des faisceaux gaussiens. D'un point de vue un peu plus quantitatif, à énergies de génération et de perturbation égales, nous obtenons des ordres

diffractions moins élevés avec des faisceaux de Laguerre-Gauss qu'avec des faisceaux gaussiens, certainement à cause de la dépendance en  $1/\sqrt{\ell}$  de l'intensité crête des modes de Laguerre-Gauss (diminuant l'éclairement au foyer).

**Modèle multiphotonique** Il est intéressant de noter que le modèle multiphotonique permet lui aussi d'établir cette séparation des contributions "gaussienne" et "Laguerre-gaussienne", renforçant notre propos.

Partons de la conservation du moment linéaire. Dans le cas de faisceaux gaussiens, elle est donnée par l'équation (6.14) que nous rappelons ici :

$$\vec{k}_q = n_1 \vec{k}_1 + n_2 \vec{k}_2 \quad \text{où} \quad \vec{k}_1 = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ k_1 \end{pmatrix}, \quad \vec{k}_2 = \begin{pmatrix} k_2 \sin \theta \\ 0 \\ k_2 \cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{k}_q = \begin{pmatrix} k_q \sin \theta_q \\ 0 \\ k_q \cos \theta_q \end{pmatrix} \quad (9.19)$$

L'angle d'émission harmonique (pour un ordre de diffraction donné) peut donc s'écrire dans le cadre de l'approximation paraxiale :

$$\tan \theta_q = \frac{n_2 k_2 \sin \theta}{n_1 k_1 + n_2 k_2 \cos \theta} \Rightarrow \theta_q \simeq \frac{n_2 k_2 \theta}{n_1 k_1 + n_2 k_2} \quad (9.20)$$

Si les faisceaux portent du moment angulaire orbital, leurs fronts d'onde sont hélicoïdaux. Notons  $(r, \phi)$  les coordonnées polaires décrivant la position dans le faisceau. Les vecteurs d'onde deviennent alors :

$$\vec{K}_1 = \begin{pmatrix} \frac{\ell_1}{r} \cos \phi \\ \frac{\ell_1}{r} \sin \phi \\ k_1 + \frac{1}{2k_1} \frac{\ell_1^2}{r^2} \end{pmatrix} \quad \text{et} \quad \vec{K}_2 = \begin{pmatrix} k_2 \theta + \frac{\ell_2}{r} \cos \phi \\ \frac{\ell_2}{r} \sin \phi \\ k_2 + \frac{1}{2k_2} \frac{\ell_2^2}{r^2} - \frac{\ell_2 \theta}{r} \cos \phi \end{pmatrix} \quad (9.21)$$

et les angles d'inclinaison des fronts d'onde (par rapport à  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ ) valent :

$$\alpha_1 = \frac{\lambda_1 \ell_1}{2\pi r} \quad \text{et} \quad \alpha_2 = \frac{\lambda_2 \ell_2}{2\pi r} \quad (9.22)$$

D'après la conservation du moment linéaire, nous avons :

$$\vec{K}_q = \begin{pmatrix} n_1 \frac{\ell_1}{r} \cos \phi + n_2 k_2 \theta + n_2 \frac{\ell_2}{r} \cos \phi \\ n_1 \frac{\ell_1}{r} \sin \phi + n_2 \frac{\ell_2}{r} \sin \phi \\ n_1 k_1 + n_1 \frac{1}{2k_1} \frac{\ell_1^2}{r^2} + n_2 k_2 + n_2 \frac{1}{2k_2} \frac{\ell_2^2}{r^2} - n_2 \frac{\ell_2 \theta}{r} \cos \phi \end{pmatrix} \quad (9.23)$$

L'angle d'inclinaison du front d'onde est le même quel que soit l'azimut  $\phi$  (il n'est juste pas contenu dans le même plan). Nous pouvons donc nous placer en  $\phi = 0$  pour simplifier le calcul :

$$\vec{K}_q = \begin{pmatrix} n_2 k_2 \theta + \frac{\ell_q}{r} \\ 0 \\ n_1 k_1 + \frac{n_1}{2k_1} \frac{\ell_1^2}{r^2} + n_2 k_2 + \frac{n_2}{2k_2} \frac{\ell_2^2}{r^2} - \frac{n_2 \ell_2 \theta}{r} \end{pmatrix} \quad (9.24)$$

Dans la première ligne, nous avons utilisé la loi de conservation du moment angulaire orbital (9.1) démontrée dans la section précédente.

La direction du vecteur d'onde harmonique est ainsi donnée par :

$$\arctan \left( \frac{\vec{K}_q \cdot \vec{e}_x}{\vec{K}_q \cdot \vec{e}_z} \right) \simeq \frac{n_2 k_2 \theta + \frac{\ell_q}{r}}{n_1 k_1 + n_2 k_2 + \frac{n_1}{2k_1} \frac{\ell_1^2}{r^2} + \frac{n_2}{2k_2} \frac{\ell_2^2}{r^2} - \frac{n_2 \ell_2 \theta}{r}} \quad (9.25)$$

$$\simeq \frac{n_2 k_2 \theta}{n_1 k_1 + n_2 k_2} + \frac{1}{r} \frac{\ell_q}{n_1 k_1 + n_2 k_2} \quad (9.26)$$



Nous identifions d'ores et déjà le premier terme de l'équation (9.26) : il s'agit de l'angle d'émission harmonique  $\theta_q$ . Quant au deuxième terme, en remarquant que  $n_1 k_1 + n_2 k_2 = k_q = 2\pi/\lambda_q$ , nous reconnaissons l'angle d'inclinaison  $\alpha_q$  du front d'onde harmonique (par rapport à la direction d'émission). Autrement dit :

$$\arctan\left(\frac{\vec{K}_q \cdot \vec{e}_x}{\vec{K}_q \cdot \vec{e}_z}\right) = \theta_q + \alpha_q \quad (9.27)$$

Le front d'onde est bien conservé dans nos expériences à deux faisceaux de Laguerre-Gauss et la direction d'émission est totalement découplée de l'inclinaison du front d'onde en spirale due au moment angulaire orbital. Nous pouvons par conséquent tirer les mêmes conclusions que précédemment : les rendements harmoniques sont régis par la partie "gaussienne" et le profil des faisceaux par la conservation du front d'onde.

### 9.3 Conclusion

Concernant la génération d'harmoniques à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss, nous pouvons tirer des conclusions similaires à celles de la partie III avec des faisceaux gaussiens. D'un point de vue structural, le modèle multiphotonique est satisfaisant, mais en termes de rendements harmoniques, le recours au réseau actif s'avère indispensable.

Nous avons montré dans ce chapitre que les deux théories s'accordent sur la conservation du front d'onde, équivalente à celle du moment angulaire orbital qui s'écrit :  $\ell_q = n_1 \ell_1 + n_2 \ell_2$ .

Nous verrons dans le chapitre suivant si ces résultats s'appliquent également au cas du moment angulaire de spin.

## Chapitre 10

# Le moment angulaire de spin dans la génération d'harmoniques à deux faisceaux : mélange de polarisations linéaires et circulaires

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 5, la génération d'harmoniques polarisées circulairement est impossible à partir d'un seul faisceau. Néanmoins, de récents travaux [Fleischer et al. 2014, Kfir et al. 2015, Hickstein et al. 2015, Kfir et al. 2016] ont montré que la production de faisceaux XUV ultra-brefs polarisés circulairement n'était pas réservée aux grandes installations comme les synchrotrons ou les lasers à électrons libres. Ces travaux ont prouvé qu'il était possible d'introduire une règle de conservation du moment angulaire spin dans le modèle multiphotonique décrivant la génération à deux faisceaux.

Dans toutes ces expériences, les deux faisceaux sont de même intensité, l'un de polarisation circulaire gauche et l'autre circulaire droite. La loi de conservation du spin s'écrit :

$$\sigma_q = n_1\sigma_1 + n_2\sigma_2 \quad (10.1)$$

où  $\sigma_1 = \pm 1$  et  $\sigma_2 = \mp 1$  sont les spins des deux faisceaux pilotes. Pour des raisons de conservation de la parité et de valeurs permises du spin d'un photon, on a nécessairement  $n_2 = n_1 \pm 1$ .

La grande majorité des travaux combine un faisceau fondamental avec sa seconde harmonique dans une géométrie colinéaire, en mettant en œuvre soit un interféromètre de type Mach-Zehnder [Fleischer et al. 2014, Kfir et al. 2015], soit la technique du "MAZEL-TOV" [Kfir et al. 2016]. Dans ces expériences à deux couleurs, les harmoniques  $q = 3n + 1$  sont générées avec une certaine polarisation circulaire et les harmoniques  $q = 3n - 1$  avec l'autre polarisation circulaire, tandis que les harmoniques  $q = 3n$  sont interdites (voir la figure 10.1). Très récemment, [Dorney et al. 2017] ont même démontré la possibilité de favoriser l'une ou l'autre des deux polarisations circulaires en jouant sur le rapport d'intensité des deux faisceaux.

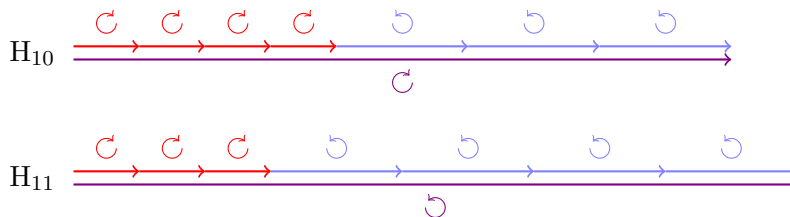


FIGURE 10.1 – Illustration de la loi de conservation du moment angulaire de spin dans le cas à deux couleurs. Les harmoniques 10 et 11 ont des polarisations circulaires de sens opposé et l'harmonique 12 est interdite.

Une expérience à une couleur a également été réalisée par [Hickstein et al. 2015]. Dans ce cas, toutes les harmoniques impaires sont permises et chacune d'entre elles est générée avec les deux polarisations circulaires gauche et droite. Pour séparer spatialement ces deux polarisations, une configuration non-colinéaire est employée (voir la figure 10.2).

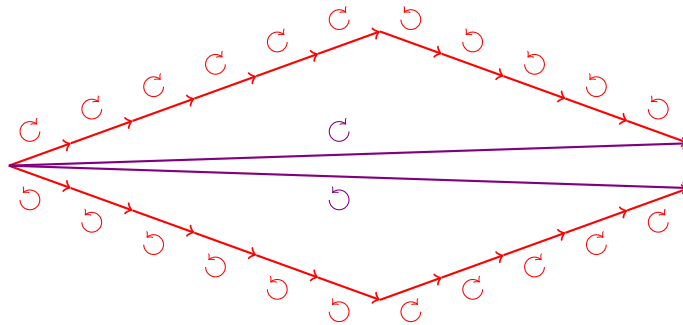


FIGURE 10.2 – Illustration de la loi de conservation du moment angulaire de spin dans le cas à une couleur pour l'harmonique 11.

Il est intéressant de noter à ce stade qu'aucune expérience avec un faisceau intense polarisé linéairement ( $\sigma_1 = 0$ ) et un faisceau perturbatif polarisé circulairement ( $\sigma_2 = \pm 1$ ) n'a été rapportée. Au cours de cette thèse, nous avons souhaité tester cette variante, qui s'inscrit toujours dans le cadre de nos expériences de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires et de même fréquence. Plutôt que d'insérer des lames de phase en spirale dans chacun des bras de notre interféromètre, nous pouvons utiliser des lames demi-ondes et quart d'ondes pour contrôler la polarisation de chaque faisceau. Si nous nous basons sur le modèle multiphotonique (nous avons vu dans le chapitre précédent qu'il était fiable jusqu'à un certain point concernant le moment angulaire orbital), en gardant le faisceau de génération polarisé linéairement et en donnant une polarisation circulaire au faisceau de perturbation, d'après la loi de conservation du moment angulaire de spin précédemment établie, nous ne pourrions absorber ou émettre qu'un seul photon perturbatif et pour chaque harmonique (impaire), seuls les ordres de diffraction  $+1$  et  $-1$  seraient générés.

Comme nous allons le voir dans ce chapitre, ce n'est absolument pas ce que nous avons observé lors de nos expériences. C'est d'ailleurs l'une des raisons principales pour lesquelles nous avons remis en question le modèle perturbatif et donc développé notre théorie du réseau actif. Dans une première série d'expériences, nous avons d'abord modulé l'état de polarisation du champ de perturbation et observé l'impact sur les rendements harmoniques. Le dispositif expérimental ainsi que les résultats obtenus sont présentés dans la section 10.1. Ensuite, nous avons réalisé des mesures de polarimétrie optique afin de vérifier l'état de polarisation des harmoniques. Nous décrivons ces expériences dans la section 10.2. Enfin, dans la section 10.3, nous proposerons une interprétation de ces résultats fondée sur l'étude de l'état de polarisation au foyer de génération.

## 10.1 Modulation de la polarisation du faisceau perturbatif

Le montage expérimental est le même que celui représenté sur la figure 7.1. Nous n'apportons aucune modification au bras de génération de l'interféromètre. Quant au bras de perturbation, nous lui ajoutons une lame quart d'onde suivie d'une lame demi-onde, juste avant la lentille, afin de pouvoir modifier à volonté l'état de polarisation du faisceau.

### 10.1.1 Influence de l'ellipticité de la perturbation

Dans ce qui suit, nous considérerons toujours que la polarisation du faisceau de génération est linéaire verticale. Lorsque la perturbation est dans le même état de polarisation, nous observons une multitude d'ordres diffractés pour chaque harmonique, comme nous l'avons vu dans

le chapitre 7. Si nous appliquons la règle de conservation du moment angulaire de spin dictée par le modèle multiphotonique, alors en passant à une polarisation circulaire pour le faisceau perturbatif nous devrions éteindre tous les ordres de diffraction dont la valeur absolue est supérieure à 1. Nous allons donc nous intéresser à l'évolution du rendement de chaque ordre de diffraction lorsque nous balayons l'ellipticité de la polarisation du faisceau de perturbation.

La lame quart d'onde transforme le champ électrique incident, de polarisation rectiligne verticale, en une onde polarisée elliptiquement. Le grand axe de l'ellipse de polarisation est alors orienté selon l'un des axes neutres de la lame (celui qui forme l'angle le plus petit avec la verticale). Puis, la lame demi-onde nous sert à redresser l'ellipse afin que son grand axe soit vertical. Ainsi, nous pouvons balayer l'ellipticité du faisceau de perturbation tout en gardant le grand axe de l'ellipse vertical. Nous prenons cette précaution car les optiques de notre spectromètre sont partiellement polarisantes (en effet, le réseau en or particulièrement ne réfléchit pas de la même manière les polarisations  $s$  et  $p$ ). La figure 10.3 illustre l'évolution de l'état de polarisation à la traversée de chaque lame biréfringente.

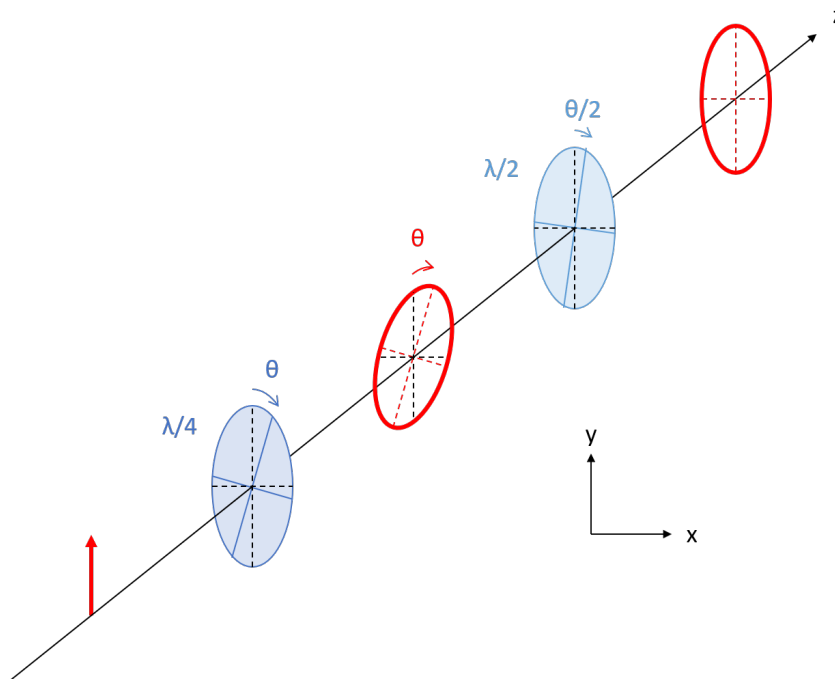


FIGURE 10.3 – Dispositif expérimental permettant de contrôler l'état de polarisation du faisceau de perturbation. En noir : les axes du repère  $(x, y, z)$ . En bleu : les lames biréfringentes et leurs lignes neutres. En rouge : les états de polarisation du laser. La lumière se propage dans le sens des  $z$  croissants.

Dans la pratique, nous veillons à placer les éléments polarisants après le dernier miroir pour éviter une modification de la polarisation par réflexion. Initialement, nous orientons les deux lames pour que l'une de leurs lignes neutres soit verticale. Il en résulte un faisceau polarisé linéairement dans la direction verticale. Nous enregistrons l'image produite sur les MCP. Puis, nous tournons la lame quart d'onde d'un angle  $\theta$  et la lame demi-onde de  $\theta/2$  dans le même sens. L'ellipse de polarisation est ainsi tournée de  $-\theta/2$  et se retrouve donc verticale. L'ellipticité vaut alors  $\tan \theta$  (pour  $\theta$  compris entre 0 et  $45^\circ$ ). Nous enregistrons à nouveau le signal harmonique sur les MCP, et ainsi de suite. Nous effectuons de cette manière un tour complet de la lame quart d'onde.

Nous devons faire attention à l'angle dont nous tournons la lame demi-onde : en effet, à  $45^\circ$ ,  $135^\circ$ ,  $225^\circ$  et  $315^\circ$ , nous devons effectuer un saut de  $45^\circ$ , car après la lame quart d'onde, le grand axe de l'ellipse de polarisation bascule d'un axe neutre à l'autre (voir la figure 10.4). Le tableau

10.1 résume la façon dont nous devons tourner les deux lames lors de nos expériences.

Angle de la lame $\lambda/4$	Angle de la lame $\lambda/2$
$0^\circ < \theta < 45^\circ$	$0^\circ < \theta/2 < 22.5^\circ$
$45^\circ < \theta < 135^\circ$	$67.5^\circ < \theta/2 + 45^\circ < 112.5^\circ$
$135^\circ < \theta < 225^\circ$	$157.5^\circ < \theta/2 + 90^\circ < 202.5^\circ$
$225^\circ < \theta < 315^\circ$	$247.5^\circ < \theta/2 + 135^\circ < 292.5^\circ$
$315^\circ < \theta < 360^\circ$	$337.5^\circ < \theta/2 + 180^\circ < 360^\circ$

TABLE 10.1 – Tableau récapitulatif des angles dont il faut tourner les lames quart d'onde et demi-onde pour faire varier l'ellipticité du faisceau de perturbation tout en gardant le grand axe de l'ellipse vertical.

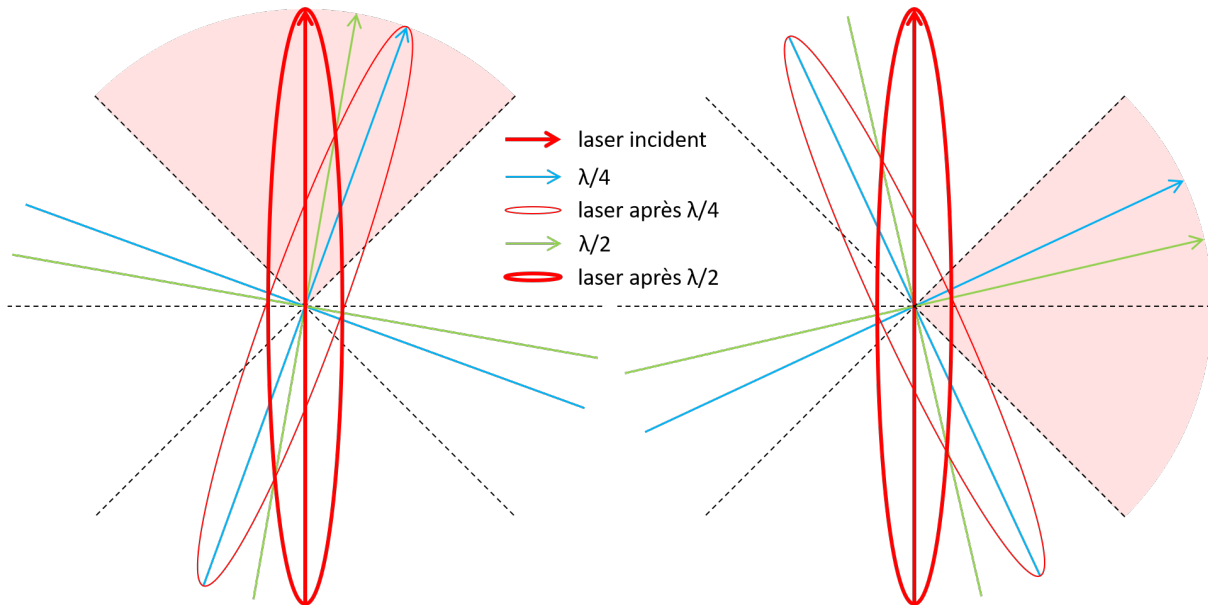


FIGURE 10.4 – Orientation des lames biréfringentes et états de polarisation du champ électrique. Pour  $-45^\circ < \theta < 45^\circ$  (où  $\theta$  est l'angle dont nous tournons la lame quart d'onde), nous devons tourner la lame demi-onde  $\theta/2$  (figure de gauche). Pour  $45^\circ < \theta < 135^\circ$  (figure de droite), il faut faire un saut de  $45^\circ$  avec la demi-onde (nous la tournons donc de  $\theta/2 + 45^\circ$ ).

Pour l'ensemble des spectres harmoniques enregistrés, nous isolons chaque ordre de diffraction et traçons l'évolution de son intensité en fonction de l'orientation de la lame quart d'onde sur la figure 10.5. La tendance qui se dégage de ces courbes est la suivante :

- lorsque la polarisation du faisceau de perturbation est linéaire, les ordres 2 et 3 présentent des maxima d'intensité, tandis que les ordres 0 et  $\pm 1$  montrent des minima
- lorsque la polarisation du faisceau de perturbation est circulaire, l'inverse se produit.

Nous constatons également une légère dissymétrie de la lame quart d'onde : les extrema locaux ne sont pas tout à fait identiques d'un quadrant à l'autre de la lame. C'est pour cette raison que nous lui avons fait faire un tour complet. Ainsi, nous pouvons moyenner les quatre périodes pour obtenir la figure 10.6, qui est graduée en ellipticité de la perturbation et non plus en orientation de la lame quart d'onde (nous ne tenons pas compte du sens de parcours de l'ellipse).

Ces résultats semblent valider les prédictions du modèle multiphotonique. Les ordres  $\pm 1$  seraient-ils donc polarisés circulairement lorsque les ordres supérieurs sont éteints ? Nous répondrons à cette question dans la section 10.2.

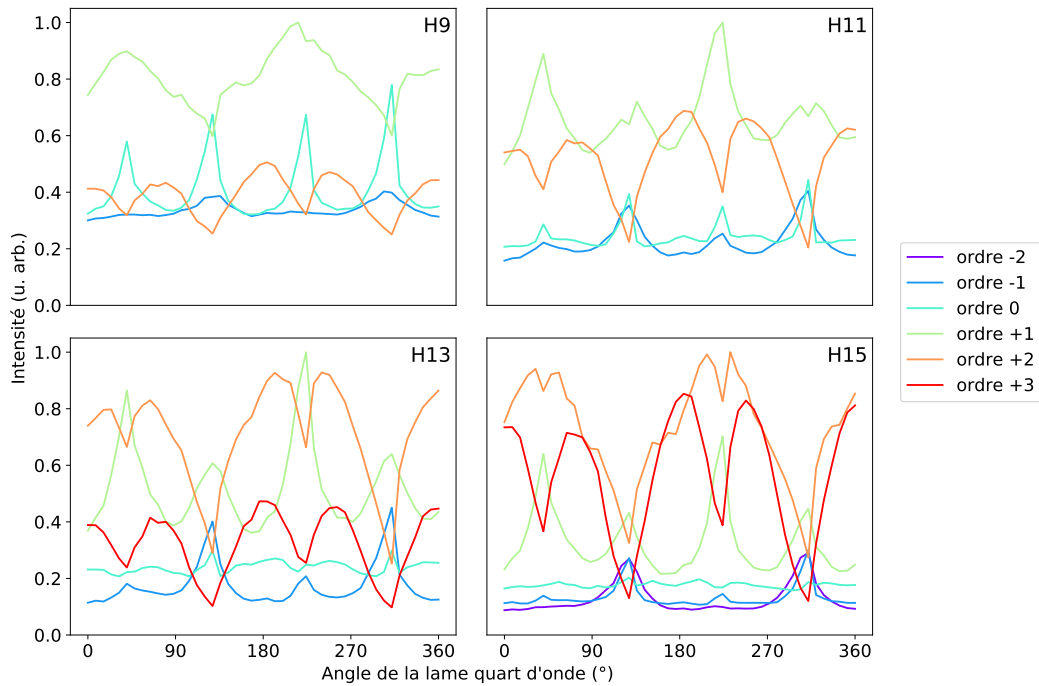


FIGURE 10.5 – Évolution de l'intensité de chaque ordre de diffraction en fonction de l'orientation de la lame quart d'onde, pour les harmoniques 9, 11, 13 et 15. L'énergie de perturbation vaut  $250 \mu\text{J}$ .

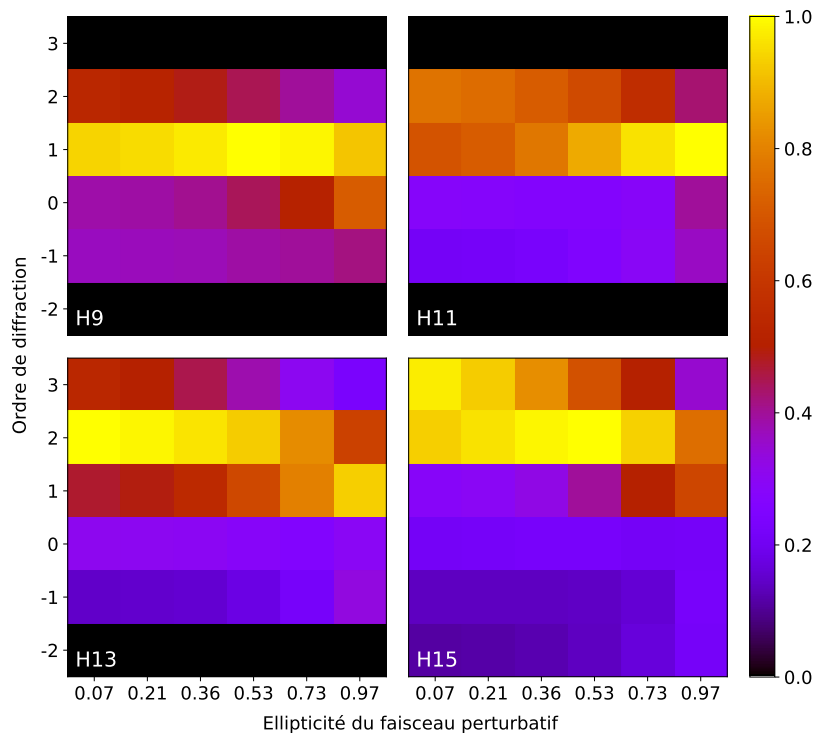


FIGURE 10.6 – Évolution de l'intensité de chaque ordre de diffraction en fonction de l'ellipticité du faisceau de perturbation, pour les harmoniques 9, 11, 13 et 15. Nous ne tenons pas compte ici du signe de l'ellipticité, et réalisons une moyenne des données de chaque quadrant de la lame quart d'onde, superposant ainsi les polarisations elliptiques gauches aux elliptiques droites. L'énergie de perturbation vaut  $250 \mu\text{J}$ .

Mais avant de nous lancer dans les mesures de polarimétrie optique, testons un peu plus notre expérience en augmentant l'énergie de perturbation, de façon à avoir davantage d'ordres diffractés. Les résultats sont consignés sur la figure 10.7. Les ordres 3 et 4 de diffraction présentent bien le comportement attendu, mais nous ne pouvons en dire autant de l'ordre 2 : d'après la conservation du moment angulaire de spin, il devrait s'éteindre lorsque la perturbation est polarisée circulairement, or il est maximal à ce moment, tout comme les ordres 0 et  $\pm 1$ .

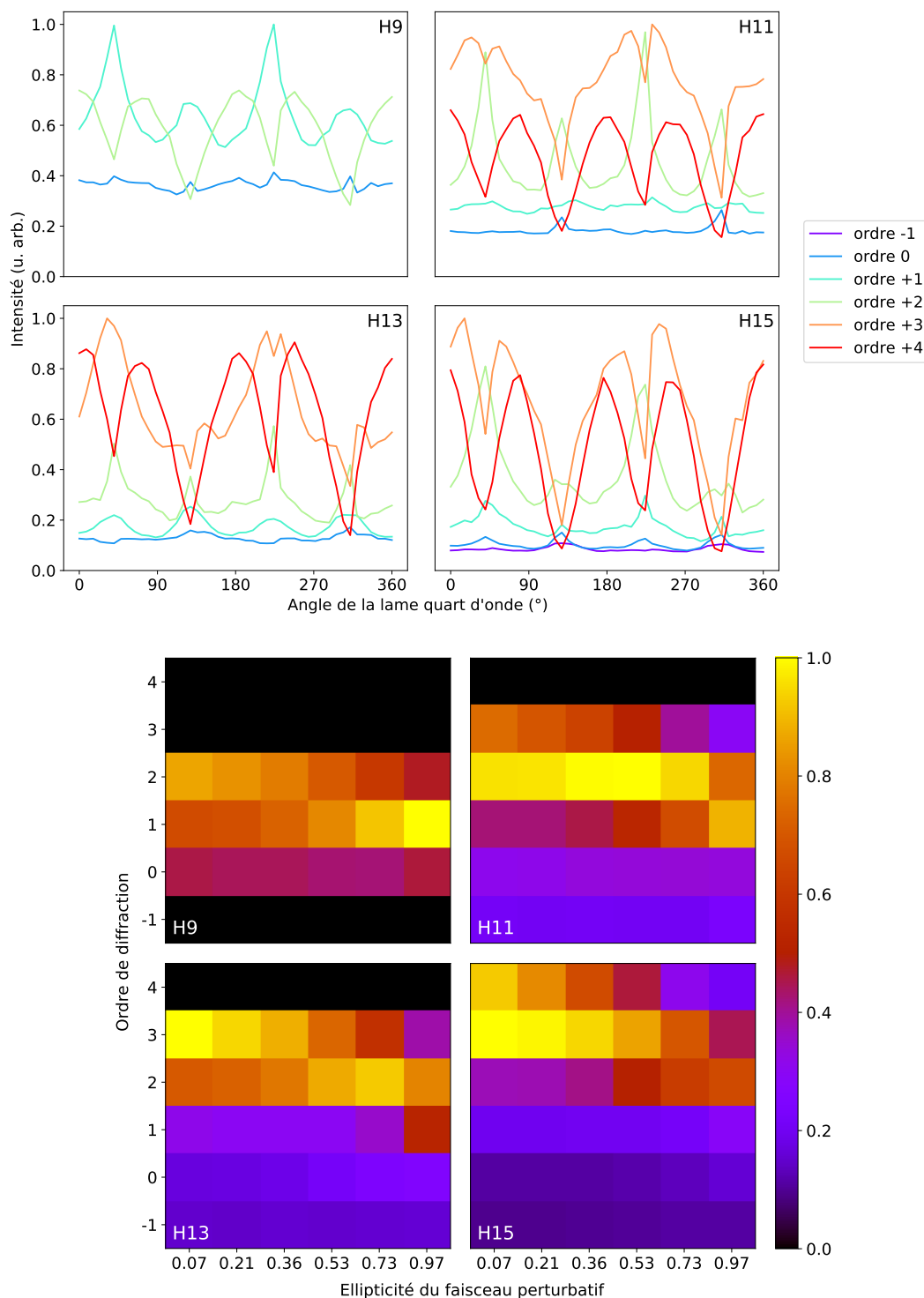


FIGURE 10.7 – Mêmes représentations que les figures 10.5 et 10.6 mais pour une énergie de perturbation de 510  $\mu\text{J}$ .

Ne verrions-nous donc ici qu'un effet d'intensité de la génération d'harmoniques ? Nous devons envisager cette hypothèse car il se pourrait effectivement que le processus de génération d'harmoniques soit tout simplement moins efficace lorsque la polarisation devient elliptique... Et qu'en est-il du transfert de moment angulaire de spin ?

### 10.1.2 Polarisation circulaire : effet de l'énergie de perturbation

Nous réglons à présent la lame quart d'onde de sorte que la polarisation du faisceau de perturbation soit circulaire, puis nous enregistrons les spectres harmoniques obtenus pour différentes énergies de perturbation. Les résultats sont présentés sur la figure 10.8.

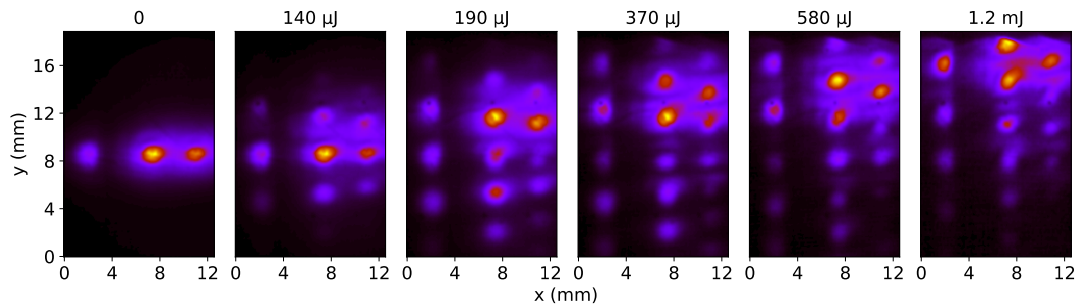


FIGURE 10.8 – Spectres enregistrés pour des énergies de perturbation croissantes de gauche à droite. La génération est polarisée linéairement et la perturbation circulairement.

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 7, nous générons ainsi des ordres de diffraction de plus en plus élevés à mesure que l'énergie augmente. Néanmoins nous n'atteignons pas des ordres aussi grands que lorsque le faisceau est polarisé linéairement. Sauf que les ordres 2 et 3 ne devraient pas exister d'après la loi de conservation du moment angulaire de spin. Le modèle multiphotonique est ainsi fortement remis en cause par cette expérience. Nous en revenons donc encore une fois au fait que la génération d'harmoniques d'ordre élevé est un phénomène de champ fort et qu'il faut par conséquent étudier la structure du champ électrique au foyer pour expliquer les résultats observés.

### 10.1.3 Polarisation linéaire de la perturbation : influence de la direction de polarisation

Intéressons-nous alors à l'état de polarisation du champ électrique résultant de la superposition des deux faisceaux au foyer de génération. Nous avons rappelé dans le chapitre 1 qu'un état de polarisation circulaire peut se décomposer comme la somme de deux polarisations linéaires, l'une verticale et l'autre horizontale, déphasées l'une par rapport à l'autre de  $\pm\pi/2$  selon le sens de rotation. De ce point de vue, en augmentant l'énergie de perturbation (expérience précédente), nous augmentons le poids de la composante horizontale par rapport à la verticale. Nous avons donc ôté la lame quart d'onde du faisceau de perturbation afin d'étudier les rendements harmoniques en fonction de la direction de la polarisation linéaire de la perturbation (la génération restant toujours verticale). Les résultats sont présentés sur les figures 10.9 et 10.10.

Nous observons que de nombreux ordres de diffraction sont présents lorsque la polarisation de la perturbation est verticale, tandis que seul (ou presque) l'ordre 0 subsiste lorsque la polarisation est horizontale. Nous attribuons cela au contraste de la figure d'interférence entre les deux faisceaux infrarouges au foyer : s'ils ont la même polarisation (*i.e.* verticale), le contraste d'intensité est maximal, alors que si les polarisations sont orthogonales entre elles, les deux faisceaux n'interfèrent plus. Dans le premier cas, la profondeur de modulation du réseau actif d'amplitude est maximale et c'est dans cette configuration que nous obtenons les ordres de diffraction les plus élevés. Dans le second cas, il n'y a pas de réseau d'amplitude donc pas d'ordres diffractés pour



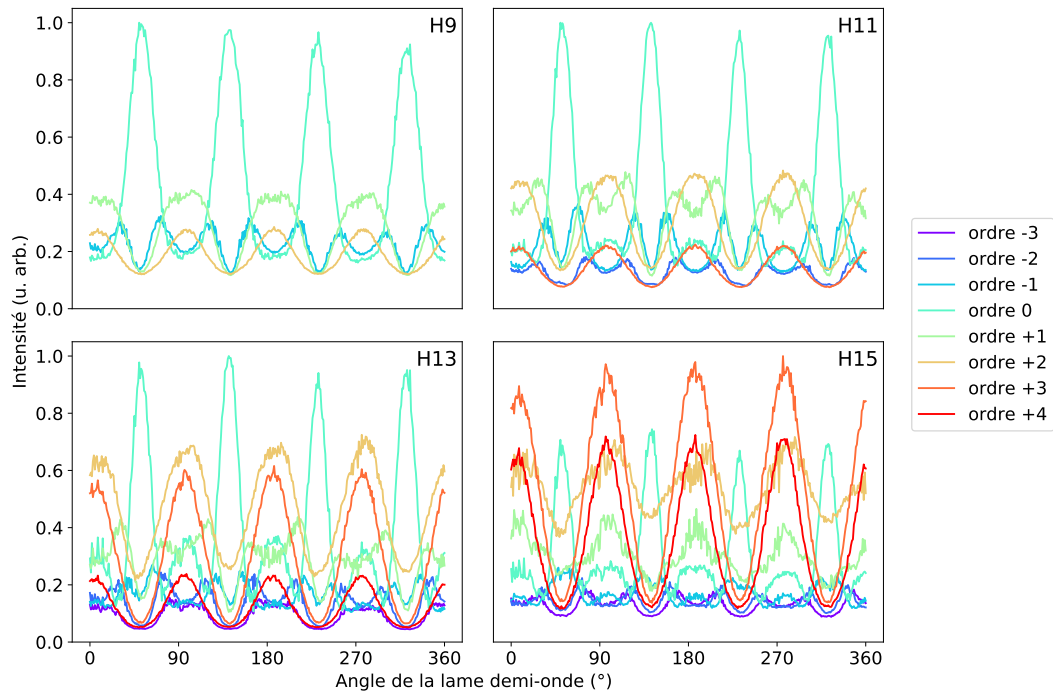


FIGURE 10.9 – Intensité de chaque ordre de diffraction en fonction de l'orientation de la lame demi-onde du faisceau de perturbation, pour les harmoniques 9, 11, 13 et 15. L'énergie de génération vaut 3.6 mJ et celle de perturbation 370  $\mu$ J. La polarisation de la perturbation est verticale (respectivement horizontale) pour un angle de la demi-onde d'environ  $7^\circ$  (respectivement  $52^\circ$ ).

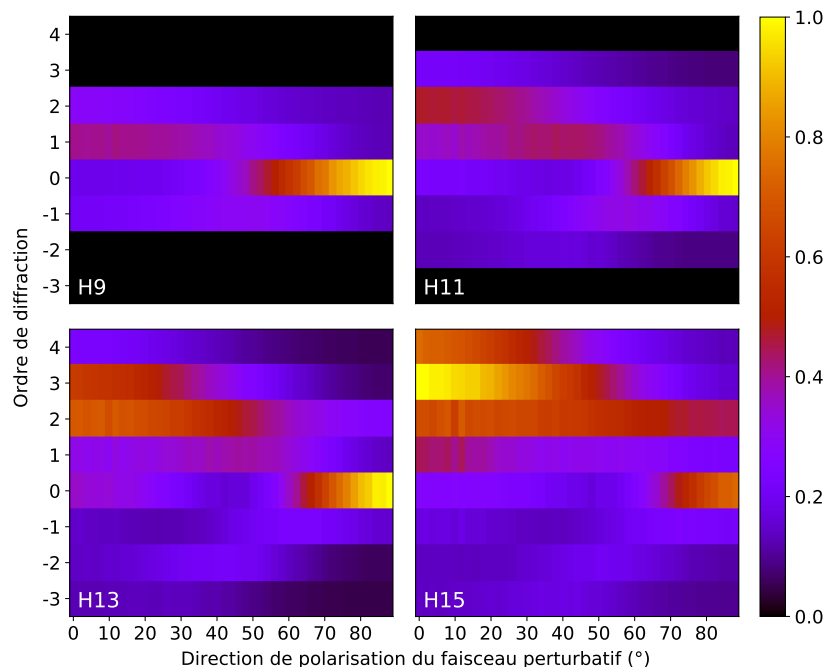


FIGURE 10.10 – Évolution de l'intensité de chaque ordre de diffraction en fonction de la direction de polarisation de la perturbation (par rapport à la verticale), pour les harmoniques 9, 11, 13 et 15. Les données de chaque quadrant de la lame demi-onde sont moyennées.

cette raison. Cependant, à la manière de [Hickstein et al. 2015], nous devons aussi considérer l'existence d'un réseau de polarisation : au foyer, le délai entre les deux faisceaux pilotes n'est pas homogène, et comme la somme de deux polarisations linéaires orthogonales résulte en une polarisation elliptique dont l'ellipticité dépend du retard entre les deux composantes, l'état de polarisation est différent selon la position dans le foyer. Pour nous en convaincre, écrivons le champ électrique infrarouge au foyer :

$$\vec{E}_s = E_1 \left[ e^{i(\omega t - \vec{k}_1 \cdot \vec{r})} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + \frac{E_2}{E_1} e^{i(\omega t - \vec{k}_2 \cdot \vec{r})} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ \sin \theta \end{pmatrix} \right] \quad (10.2)$$

$$= E_1 e^{i\left(\omega t - \frac{\vec{k}_1 + \vec{k}_2}{2} \cdot \vec{r}\right)} \begin{pmatrix} e^{-i\frac{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}{2} \cdot \vec{r}} + \frac{E_2}{E_1} \cos \theta e^{i\frac{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}{2} \cdot \vec{r}} \\ \frac{E_2}{E_1} \sin \theta e^{i\frac{\vec{k}_1 - \vec{k}_2}{2} \cdot \vec{r}} \end{pmatrix} \quad (10.3)$$

où  $\theta$  est l'angle entre la polarisation de perturbation et la polarisation de génération.

Lorsque  $\theta = 0$ , les deux polarisations sont verticales : nous sommes dans le cas du réseau actif décrit dans le chapitre 8 et observons une multitude d'ordres de diffraction.

Quand  $\theta = \pi/2$ , les deux polarisations infrarouges sont orthogonales et le champ électrique total s'écrit alors :

$$\vec{E}_s = E_1 e^{i\left(\omega t - \frac{\vec{k}_1 + \vec{k}_2}{2} \cdot \vec{r}\right)} \begin{pmatrix} e^{i\frac{\vec{\Delta}\vec{k} \cdot \vec{r}}{2}} \\ \frac{E_2}{E_1} e^{-i\frac{\vec{\Delta}\vec{k} \cdot \vec{r}}{2}} \end{pmatrix} \quad (10.4)$$

avec  $\vec{\Delta}\vec{k} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$

Nous avons donc un déphasage de  $\vec{\Delta}\vec{k} \cdot \vec{r}$  entre les deux composantes et leur amplitude relative vaut  $\frac{E_2}{E_1}$ . Ainsi, l'ellipticité de la polarisation dépend de la position dans le foyer. En particulier, si nous mettons la même énergie dans les deux faisceaux, les relations (1.9) et (1.10) donnent simplement une ellipse d'azimut  $\psi = 45^\circ$  et d'ellipticité  $\epsilon = \tan \chi = \tan \frac{\vec{\Delta}\vec{k} \cdot \vec{r}}{2}$ . Le réseau de polarisation obtenu dans ce cas est illustré sur la figure 10.11. Nous avons vu avec la figure 5.10 que l'amplitude du dipôle harmonique (et donc l'efficacité de génération) diminue lorsque l'ellipticité infrarouge augmente. Nous avons alors un réseau d'amplitude dans l'extrême ultraviolet, de forme symétrique (contrairement au réseau échelle). La diffraction a donc principalement lieu dans l'ordre 0. Si les deux champs n'ont pas la même intensité, nous observons en plus une rotation de l'axe principal de l'ellipse, ce qui ne change pas la conclusion.

Finalement, pour des valeurs de  $\theta$  intermédiaires, nous observons une disparition progressive du réseau de phase échelle et l'apparition de plus en plus marquée de ce réseau de polarisation.

## 10.2 Mesures de polarimétrie optique

D'après les résultats précédents, il y a peu de chances que les harmoniques arborent une polarisation circulaire dans les ordres  $\pm 1$  de diffraction, comme prédit par le modèle multiphotonique. En conséquence, nous ne savons que dire de l'état de polarisation des autres ordres de diffraction. C'est pourquoi nous avons modifié notre spectromètre afin de pouvoir mesurer l'état de polarisation des harmoniques par la méthode de "polarimétrie optique" basée sur la

Dimension transverse

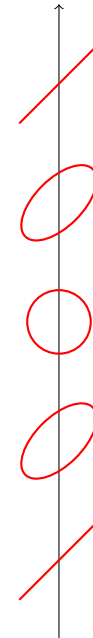


FIGURE 10.11 – Réseau de polarisation au foyer de génération lorsque les deux faisceaux ont la même intensité et des polarisations linéaires orthogonales.

loi de Malus et développée dans la thèse de [Gruson 2015]. Nous emploierons pour ce faire le formalisme de Stokes-Mueller et nous présenterons le principe de cette technique ainsi que les résultats de nos mesures.

### 10.2.1 Paramètres de Stokes

Les paramètres de Stokes permettent de caractériser complètement l'état de polarisation d'une onde lumineuse et ont une signification physique en termes d'intensités. Le premier,  $S_0$ , représente l'intensité totale de l'onde. Quant à  $S_1$ ,  $S_2$  et  $S_3$ , ils correspondent à des différences d'intensités, respectivement sur la base des états rectilignes horizontal et vertical, celle des états rectilignes à  $\pm 45^\circ$  et celle des états circulaires gauche et droit. Nous comprenons alors que c'est le dernier paramètre,  $S_3$ , qui contient l'information sur l'ellipticité de la polarisation.

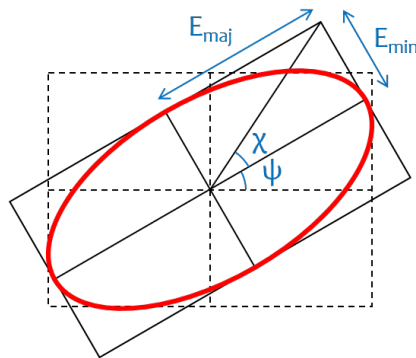


FIGURE 10.12 – Ellipse de polarisation.

La figure 10.12 représente un état elliptique quelconque de polarisation. Nous notons  $E_{maj}$  et  $E_{min}$  les amplitudes du champ électrique selon les composantes majeure (ou grand axe) et mineure (ou petit axe) de l'ellipse respectivement. L'angle  $\psi$  donne l'orientation (ou azimut) de l'ellipse, tandis que l'angle  $\chi$  est relié à l'ellipticité.

Dans le cas d'un rayonnement totalement polarisé ( $S_0^2 = S_1^2 + S_2^2 + S_3^2$ ), les paramètres de Stokes (non normalisés) peuvent être exprimés en fonction des paramètres de l'ellipse :

$$\vec{S} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{maj} + I_{min} \\ (I_{maj} - I_{min}) \cos 2\psi \\ (I_{maj} - I_{min}) \sin 2\psi \\ (I_{maj} + I_{min}) \sin 2\chi \end{pmatrix} \quad (10.5)$$

avec  $I_{maj} = E_{maj}^2$  et  $I_{min} = E_{min}^2$  les intensités selon les axes majeur et mineur de l'ellipse respectivement.

Inversement, nous pouvons donner l'azimut  $\psi$  et l'ellipticité  $\epsilon$  en fonction des paramètres de Stokes :

$$\begin{aligned} \psi &= \frac{1}{2} \arctan \frac{S_2}{S_1} \\ \epsilon &= \tan \chi = \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin \tilde{S}_3 \right) \end{aligned} \quad (10.6)$$

où  $\tilde{S}_3 = S_3/S_0$  est le dernier paramètre de Stokes normalisé.

### 10.2.2 Description du polarimètre

Afin de mesurer expérimentalement les paramètres de Stokes, nous devons disposer d'un polariseur linéaire dans le domaine XUV. Dans cette gamme spectrale, la forte absorption des optiques en transmission nous oblige à travailler exclusivement avec des optiques en réflexion.

Comme dans la thèse de [Gruson 2015], nous utilisons comme dispositif polarisant deux réflexions à (environ)  $45^\circ$  sur un miroir en or. À cet angle d'incidence, le rapport des coefficients de réflexion (en intensité) des composantes  $p$  et  $s$  de polarisation (états de polarisation linéaires respectivement compris dans le plan d'incidence et perpendiculaire à celui-ci), également appelé coefficient d'extinction, passe par un minimum (voir la figure 2.7 de [Gruson 2015]). Pour des raisons d'optimisation de l'espace dans l'enceinte à vide de notre spectromètre, nous préférons réaliser ces deux réflexions sur un seul miroir en or de trois pouces de diamètre. La maîtrise du logiciel de simulation Zemax par Olivier Gobert a été une aide précieuse au moment de la conception du spectromètre. La configuration que nous avons retenue est représentée sur la figure 10.13.

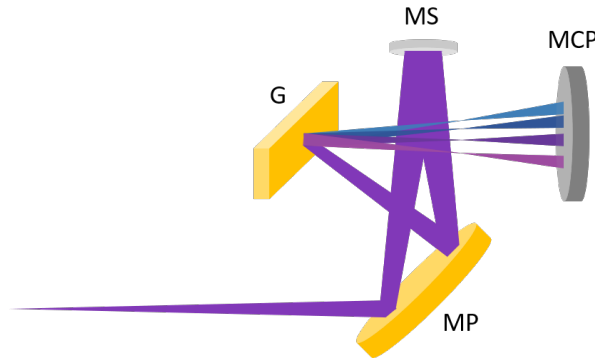


FIGURE 10.13 – Schéma du polariseur XUV. MP : miroir plan en or. MS : miroir sphérique en  $B_4C$  ( $R = 600$  mm). G : réseau en or (700 traits/mm). MCP : galettes de micro-canaux suivies d'un écran de phosphore.

Sur ce schéma, la lumière se propage à partir du foyer de génération en bas à gauche, jusqu'aux galettes de micro-canaux en haut à droite. Comme dans toutes les expériences réalisées au cours de cette thèse, nous disposons d'une motorisation sous-vide nous permettant de modifier l'angle d'incidence sur le réseau en or et ainsi sélectionner les harmoniques que nous souhaitons observer. Dans cette configuration, les foyers (harmoniques et infrarouge) se retrouvent très proches du grand miroir plan, c'est pourquoi nous avons choisi un miroir sphérique en  $B_4C$  de focale un peu plus longue (nous sommes passé d'un rayon de courbure de 500 mm à un rayon de 600 mm) et nous avons pris soin de relever la position du réseau au-delà laquelle le faisceau infrarouge diffracté risque d'endommager le miroir plan.

Nous disposons ainsi d'un analyseur de polarisation linéaire qui est fixe<sup>1</sup>. Afin de réaliser des lois de Malus, nous devons en outre faire tourner la direction de polarisation des harmoniques. Pour ce faire, il suffit d'insérer une lame demi-onde (motorisée en rotation) juste après le miroir de recombinaison de l'interféromètre. En effet, les harmoniques sont générées avec une polarisation dans la même direction que l'infrarouge.

Nous utilisons le formalisme des matrices de Mueller pour établir l'intensité totale transmise par notre polariseur XUV. Considérons l'état de polarisation le plus général en entrée du système, défini par le vecteur de Stokes :

$$\vec{S}_{in} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} \quad (10.7)$$

Nous pouvons décomposer notre dispositif en deux parties : une lame demi-onde (orientée d'un angle  $\theta_{\lambda/2}$ ) suivie d'un ensemble de miroirs partiellement polarisants (incluant les deux

1. Notons que le réseau de diffraction est également en or et contribue donc lui aussi à améliorer le coefficient d'extinction de notre polariseur XUV. Néanmoins, sa contribution est moins importante que celle du miroir car il ne travaille pas à  $45^\circ$ .

miroirs en or et le réseau de diffraction, que nous supposons correctement alignés dans des plans verticaux).

L'état de polarisation en sortie du système global s'écrit :

$$\vec{S}_{out} = M_{pol} M_{\lambda/2} \vec{S}_{in} \quad (10.8)$$

$$= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} R_s + R_p & R_p - R_s & 0 & 0 \\ R_p - R_s & R_s + R_p & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2\sqrt{R_s R_p} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{R_s R_p} \end{bmatrix} \times \quad (10.9)$$

$$\begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 4\theta_{\lambda/2} & \sin 4\theta_{\lambda/2} & 0 \\ 0 & \sin 4\theta_{\lambda/2} & -\cos 4\theta_{\lambda/2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} \quad (10.10)$$

$$= \frac{1}{2} \begin{bmatrix} R_s + R_p & R_p - R_s & 0 & 0 \\ R_p - R_s & R_s + R_p & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2\sqrt{R_s R_p} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\sqrt{R_s R_p} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \cos 4\theta_{\lambda/2} + S_2 \sin 4\theta_{\lambda/2} \\ S_1 \sin 4\theta_{\lambda/2} - S_2 \cos 4\theta_{\lambda/2} \\ -S_3 \end{pmatrix} \quad (10.11)$$

$$= \begin{pmatrix} \frac{R_s + R_p}{2} S_0 + \frac{R_p - R_s}{2} S_1 \cos 4\theta_{\lambda/2} + \frac{R_p - R_s}{2} S_2 \sin 4\theta_{\lambda/2} \\ \dots \\ \dots \\ \dots \end{pmatrix} \quad (10.12)$$

L'intensité totale transmise par le polariseur XUV nous est donnée par le premier paramètre de Stokes, soit :

$$I(\theta_{\lambda/2}) = \frac{R_s + R_p}{2} S_0 + \frac{R_p - R_s}{2} S_1 \cos 4\theta_{\lambda/2} + \frac{R_p - R_s}{2} S_2 \sin 4\theta_{\lambda/2} \quad (10.13)$$

$$= \frac{R_s + R_p}{2} S_0 + \frac{R_p - R_s}{2} \sqrt{S_1^2 + S_2^2} \cos \left( 4\theta_{\lambda/2} - \arctan \frac{S_2}{S_1} \right) \quad (10.14)$$

$$= \frac{(R_s + R_p)(I_{maj} + I_{min})}{2} + \frac{(R_p - R_s)(I_{maj} - I_{min})}{2} \cos (4\theta_{\lambda/2} - 2\psi) \quad (10.15)$$

où  $I_{maj}$  et  $I_{min}$  sont respectivement les intensités des composantes majeure et mineure de l'ellipse de polarisation (autrement dit les intensités selon le grand axe et le petit de l'ellipse respectivement).

### 10.2.3 Calibration du polarimètre

Avant de pouvoir réaliser des mesures de polarimétrie avec notre dispositif, nous devons calibrer les constantes  $R_p$  et  $R_s$  du polariseur XUV. Pour ce faire, nous enregistrons loi de Malus dans le cas où la polarisation des deux faisceaux infrarouges est linéaire verticale. Nous avons ainsi  $I_{min} = 0$  et l'équation (10.15) devient donc :

$$I(\theta_{\lambda/2}) = \frac{(R_s + R_p)I_{maj}}{2} + \frac{(R_p - R_s)I_{maj}}{2} \cos (4\theta_{\lambda/2} - 2\psi) \quad (10.16)$$

Nous ajustons alors les données expérimentales par la fonction suivante :

$$I(\theta_{\lambda/2}) = A_{ref} + B_{ref} \cos (4\theta_{\lambda/2} - 2\psi) \quad (10.17)$$

avec  $A_{ref}$ ,  $B_{ref}$  et  $\psi$  comme variables d'ajustement.

Ceci nous permet de trouver le paramètre  $\Gamma_{ref}$  qui rend compte des réflectivités des optiques :

$$\Gamma_{ref} = \frac{B_{ref}}{A_{ref}} = \frac{R_p - R_s}{R_s + R_p} \quad (10.18)$$

Dans notre expérience de génération d'harmoniques à deux faisceaux, nous calculerons les  $\Gamma_{ref}$  pour chaque ordre de diffraction. En effet, les réflectivités dépendant fortement de l'état de surface des optiques, les  $\Gamma_{ref}$  peuvent varier d'un ordre de diffraction à un autre.

#### 10.2.4 Extraction des paramètres de l'ellipse

Après la lame demi-onde, la polarisation a tourné de  $\theta = 2\theta_{\lambda/2}$ . Nous pouvons réécrire l'intensité transmise par le polariseur de la manière suivante :

$$I(\theta) = A + B \cos(2\theta - 2\psi) \quad (10.19)$$

avec  $A = \frac{(R_s + R_p)(I_{maj} + I_{min})}{2}$  et  $B = \frac{(R_p - R_s)(I_{maj} - I_{min})}{2}$ . Un ajustement des lois de Malus obtenues expérimentalement par la fonction donnée par l'équation (10.19) nous donne directement l'orientation  $\psi$  du grand axe de l'ellipse de polarisation harmonique. L'ellipticité s'exprime quant à elle en fonction des paramètres d'ajustement A et B ainsi que de la constante de calibration  $\Gamma_{ref}$ .

Si l'on suppose que le rayonnement est totalement polarisé, les paramètres de Stokes non normalisés après réflexion sur le polariseur sont :

$$\vec{T} = \begin{pmatrix} T_0 \\ T_1 \\ T_2 \\ T_3^{app} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} I_{0^\circ} + I_{90^\circ} \\ I_{0^\circ} - I_{90^\circ} \\ I_{45^\circ} - I_{-45^\circ} \\ \sqrt{T_0^2 - T_1^2 - T_2^2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 2A \\ 2B \cos 2\psi \\ 2B \sin 2\psi \\ \sqrt{T_0^2 - T_1^2 - T_2^2} \end{pmatrix} \quad (10.20)$$

$$= \begin{pmatrix} (R_s + R_p)(I_{maj} + I_{min}) \\ (R_p - R_s)(I_{maj} - I_{min}) \cos 2\psi \\ (R_p - R_s)(I_{maj} - I_{min}) \sin 2\psi \\ \sqrt{T_0^2 - T_1^2 - T_2^2} \end{pmatrix} \quad (10.21)$$

Nous utilisons généralement les paramètres de Stokes normalisés :

$$\vec{\tilde{T}} = \begin{pmatrix} 1 \\ \frac{T_1}{T_0} \\ \frac{T_2}{T_0} \\ \sqrt{1 - \tilde{T}_1^2 - \tilde{T}_2^2} \end{pmatrix} \quad (10.22)$$

Les "vrais" paramètres de Stokes normalisés (*i.e.* sans l'influence de l'imperfection des polariseurs) sont en fait donnés par  $\vec{\tilde{S}} = \vec{\tilde{T}}/\Gamma_{ref}$  et s'écrivent :

$$\vec{\tilde{S}} = \begin{pmatrix} 1 \\ \tilde{S}_1 \\ \tilde{S}_2 \\ \tilde{S}_3^{app} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ \frac{I_{maj} - I_{min}}{I_{maj} + I_{min}} \cos 2\psi \\ \frac{I_{maj} - I_{min}}{I_{maj} + I_{min}} \sin 2\psi \\ \sqrt{1 - \tilde{S}_1^2 - \tilde{S}_2^2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ \frac{B}{A\Gamma_{ref}} \cos 2\psi \\ \frac{B}{A\Gamma_{ref}} \sin 2\psi \\ \sqrt{1 - \left(\frac{B}{A\Gamma_{ref}}\right)^2} \end{pmatrix} \quad (10.23)$$

Finalement, l'ellipticité apparente (limite haute de l'ellipticité obtenue en supposant que le rayonnement XUV est totalement polarisé) vaut :

$$\epsilon_{app} = \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin \tilde{S}_3^{app} \right) \quad (10.24)$$

$$= \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin \sqrt{1 - \left( \frac{B}{A\Gamma_{ref}} \right)^2} \right) \quad (10.25)$$

### 10.2.5 Résultats de mesures

Nous réalisons notre expérience de génération d'harmoniques avec un faisceau principal polarisé linéairement et un faisceau perturbatif polarisé d'abord linéairement puis circulairement. Notons que le sens de parcours du cercle (droite ou gauche) ne peut être identifié expérimentalement, les axes rapide et lent de la lame quart d'onde n'étant pas distinguables. Nous tournons notre lame demi-onde motorisée de 0 à 360° par pas de 1° et enregistrons le spectre harmonique à chaque étape. En isolant numériquement chaque ordre de diffraction, nous obtenons les lois de Malus illustrées sur la figure 10.14.

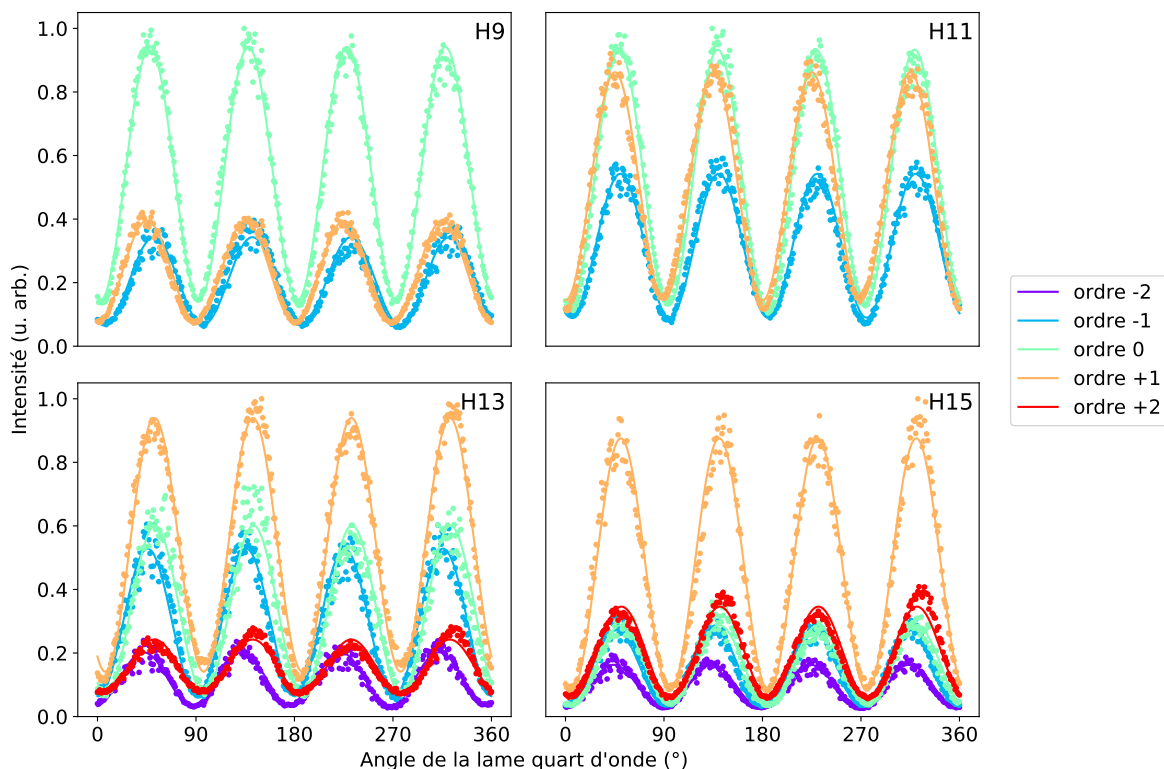


FIGURE 10.14 – Exemple de lois de Malus obtenues. Les données expérimentales sont représentées par des points et les fonctions d'ajustement en traits pleins.

Nous extrayons au préalable les paramètres  $\Gamma_{ref}$  dans le cas où la polarisation du faisceau de perturbation est linéaire, pour ensuite pouvoir calculer les ellipticités lorsqu'elle est circulaire. Les valeurs d'ellipticité obtenues pour chaque ordre de diffraction sont représentées sur les figures 10.15 et 10.16 pour deux énergies de perturbation différentes.

Nous nous sommes d'abord placés dans le cas d'une très faible énergie de perturbation (figure 10.15) afin que les +1 et -1 soient bien intenses. Malgré une incertitude relativement importante au niveau de la calibration de notre polarimètre (nous trouvons des ellipticités comprises entre 0



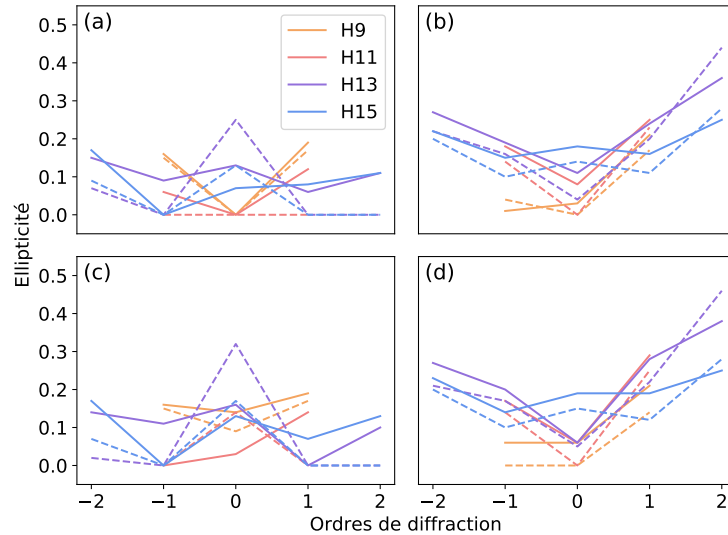


FIGURE 10.15 – Valeurs d'ellipticité obtenues pour une énergie de perturbation de 150  $\mu\text{J}$ . Panneaux (a) et (c) : calibration (polarisation linéaire) réalisée en sommant tous les pixels de chaque ordre de diffraction (a) ou en extrayant l'amplitude d'un ajustement gaussien pour chaque ordre de diffraction (c). Trois balayages ont été effectués, le premier est pris comme référence, le second est tracé en traits pleins et le dernier en pointillés. Panneaux (b) et (d) : résultats obtenus lorsque la perturbation est polarisée circulairement, en sommant (b) ou en ajustant par une gaussienne (d) les ordres de diffraction. Les traits pleins représentent un certain sens de polarisation circulaire et les pointillés l'autre sens.

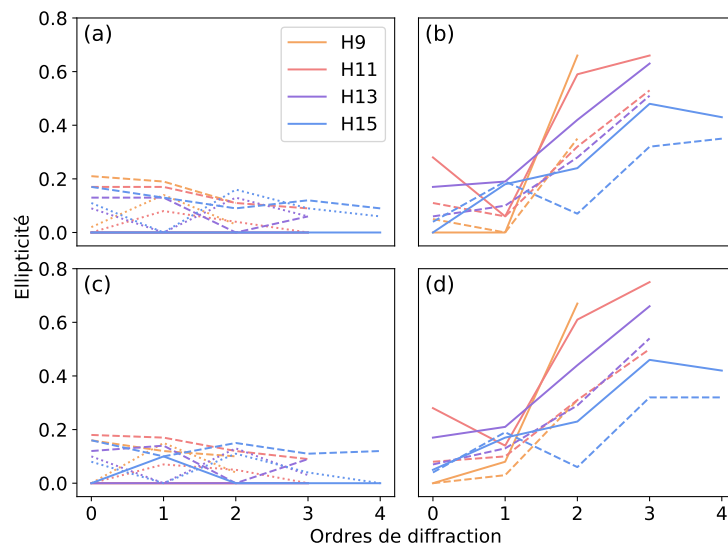


FIGURE 10.16 – Valeurs d'ellipticité obtenues pour une énergie de perturbation de 420  $\mu\text{J}$ . Panneaux (a) et (c) : calibration (polarisation linéaire) réalisée en sommant tous les pixels de chaque ordre de diffraction (a) ou en extrayant l'amplitude d'un ajustement gaussien pour chaque ordre de diffraction (c). Trois balayages ont été effectués, chaque style de trait représente l'un d'entre eux avec pour référence la moyenne des deux autres. Panneaux (b) et (d) : résultats obtenus lorsque la perturbation est polarisée circulairement, en sommant (b) ou en ajustant par une gaussienne (d) les ordres de diffraction. Les traits pleins représentent un certain sens de polarisation circulaire et les pointillés l'autre sens.



et  $\sim 0.15$  en polarisation linéaire), nous pouvons affirmer que les ordres  $\pm 1$  ne sont clairement pas polarisés circulairement comme attendu par le modèle multiphotonique, mais sont soit linéaires soit très faiblement elliptiques.

Nous avons ensuite augmenté l'énergie de perturbation (figure 10.16) afin de générer des ordres de perturbation plus élevés et ainsi pouvoir étudier l'évolution de l'ellipticité en fonction de l'ordre de diffraction. Nous observons une nette augmentation de l'ellipticité avec l'ordre de diffraction. En outre, pour les ordres les plus élevés, nous obtenons des ellipticités harmoniques de l'ordre de 0.7, franchement supérieures à l'ellipticité infrarouge (inférieure à 0.25). Quant à l'ordre 0, il semble polarisé linéairement.

Enfin, nous pouvons extraire de nos lois de Malus l'orientation  $\psi$  du grand axe (ou azimut) de l'ellipse par rapport à la verticale. Les résultats sont présentés sur la figure 10.17. La moyenne et l'écart-type des valeurs de  $\psi$  trouvées par notre fonction d'ajustement dans le cas où la perturbation est polarisée linéairement nous permettent d'estimer respectivement la position de la lame demi-onde pour laquelle un de ses axes neutres est vertical ainsi que l'incertitude des mesures. La figure 10.17 illustre les résultats des mesures réalisées dans le cas où la perturbation est polarisée circulairement (il s'agit des mêmes données que celles dont nous avons extrait les valeurs d'ellipticité juste au-dessus). Nous constatons d'une part que la polarisation de l'ordre 0 est linéaire verticale et d'autre part que le grand axe de l'ellipse s'écarte de la verticale à mesure que l'ordre de diffraction augmente, d'un côté ou de l'autre selon le signe de l'ordre de diffraction. Notons par ailleurs que la polarisation des harmoniques 9 et 11 tourne dans le sens opposé de celle des harmoniques 13 et 15. Dans tous les cas, le signe de  $\psi$  s'inverse lorsque la polarisation (circulaire) de la perturbation change de sens. Sur la figure 10.17b, nous observons un comportement inattendu pour les ordres 0 de l'harmonique 9 et 3 de l'harmonique 11, sans doute dû à une mauvaise détection de ces ordres par notre programme d'analyse.

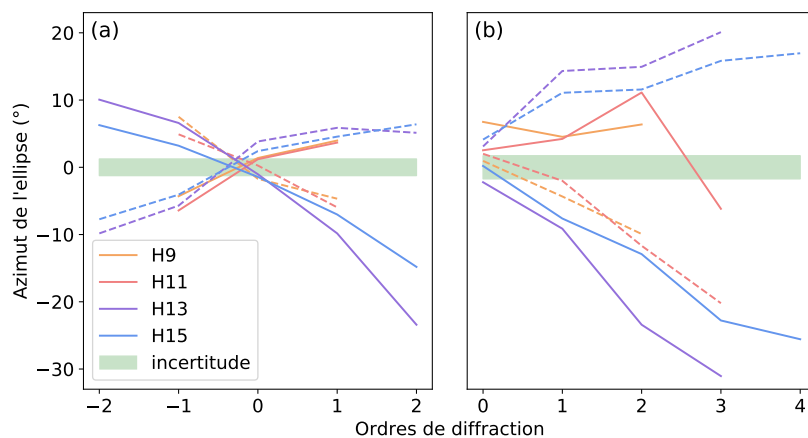


FIGURE 10.17 – Orientation de l'ellipse de polarisation par rapport à l'axe vertical, pour les harmoniques 9 à 15 lorsque le faisceau de génération est polarisé linéairement et celui de perturbation circulairement. L'énergie de perturbation vaut (a) 150  $\mu\text{J}$  et (b) 420  $\mu\text{J}$ . Les traits pleins correspondent à un sens de polarisation (gauche ou droit) de la perturbation, les pointillés à l'autre sens. La bande verte autour de  $\psi = 0$  représente l'incertitude quand à la détermination de l'azimut, calculée comme l'écart-type de l'ensemble des valeurs estimées dans le cas où la perturbation est linéaire.

Pour résumer, lorsque nous générons des harmoniques avec un faisceau principal polarisé linéairement dans la direction verticale et un faisceau perturbatif polarisé circulairement, les harmoniques présentent une polarisation linéaire verticale dans l'ordre 0, puis leur polarisation devient de plus en plus elliptique et inclinée par rapport à la verticale à mesure que l'ordre de diffraction augmente.

### 10.3 Interprétation et conclusions

L'adaptation de notre théorie du réseau actif à ces expériences est assez délicate et toujours en cours. Afin de comprendre les résultats expérimentaux que nous venons de décrire, nous pouvons néanmoins nous appuyer sur les simulations numériques de Thierry Auguste. Nous confronterons également notre interprétation aux configurations bi-circulaires rapportées dans la littérature.

#### 10.3.1 Dépolarisation

Les simulations numériques réalisées par Thierry Auguste pour l'harmonique 15 (en génération polarisée linéairement et perturbation polarisée circulairement), prenant en compte la propagation, sont présentées sur les figures 10.18 et 10.19. Nous observons des ellipticités et azimuts très proches de zéro pour les trois ordres de diffraction. Lors de mesures de polarimétrie exposées dans la section 10.2, nous avons supposé le rayonnement harmonique totalement polarisé. Ainsi, les ellipticités obtenues sont en fait des bornes supérieures des véritables ellipticités : en effet, avec une loi de Malus, nous ne pouvons pas distinguer une lumière non polarisée d'une lumière polarisée circulairement. À la différence de nos mesures expérimentales qui donnent donc des ellipticités apparentes, les simulations produites ici fournissent les ellipticités "vraies". Nous en concluons que nos valeurs expérimentales correspondent en fait à de la dépolarisation.

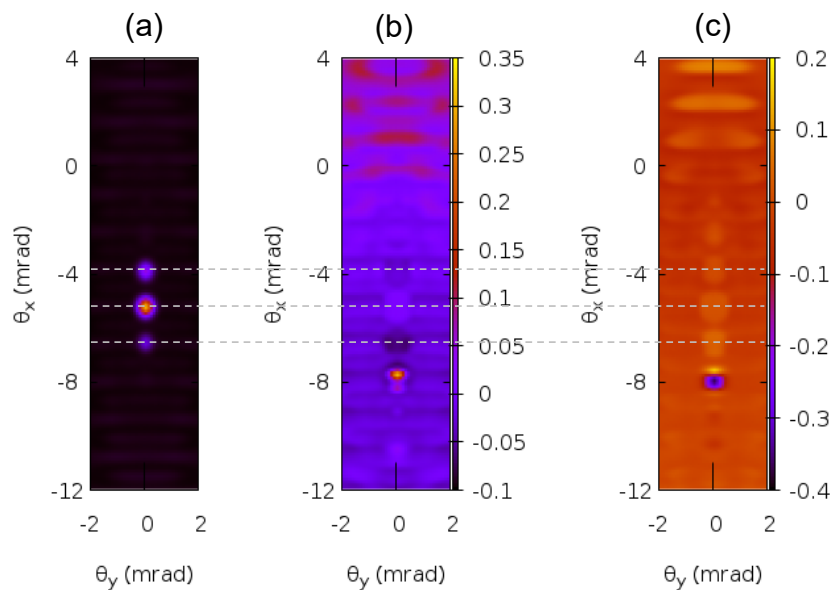


FIGURE 10.18 – Harmonique 15 simulée en génération linéaire et perturbation circulaire. Le rapport d'énergie entre les deux faisceaux est de 1/2. (a) Profil d'intensité en champ lointain. (b) Ellipticité vraie. (c) Orientation de l'ellipse de polarisation.

Nous pouvons trouver des sources de dépolarisation dans la réponse de l'atome unique. Comme nous l'avons déjà mentionné plus haut, le délai entre les deux faisceaux infrarouges n'est pas homogène au foyer (d'où la présence de franges d'interférences). Il en résulte des variations d'intensité et d'ellipticité selon la position dans le foyer. Or, la figure 10.20 montre que la réponse du dipôle :

- dépend fortement de l'intensité et de l'ellipticité
- est différente selon  $x$  et  $y$ .

Ceci génère des ellipticités harmoniques différentes selon la position dans le foyer. Au niveau macroscopique, leur somme en champ lointain peut entraîner une dépolarisation si la phase entre

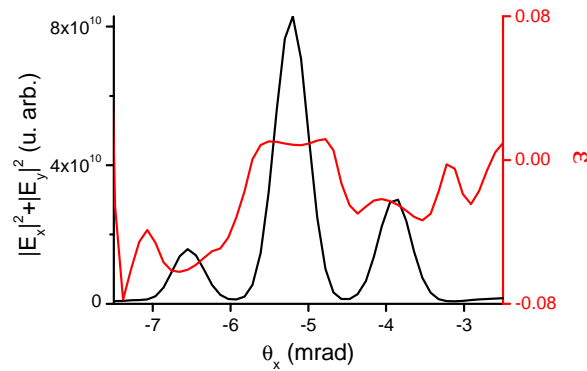


FIGURE 10.19 – Coupes en  $\theta_y = 0$  des deux premières images de la figure 10.18.

les composantes verticale et horizontale varie transversalement, ce qui doit vraisemblablement être le cas ici.

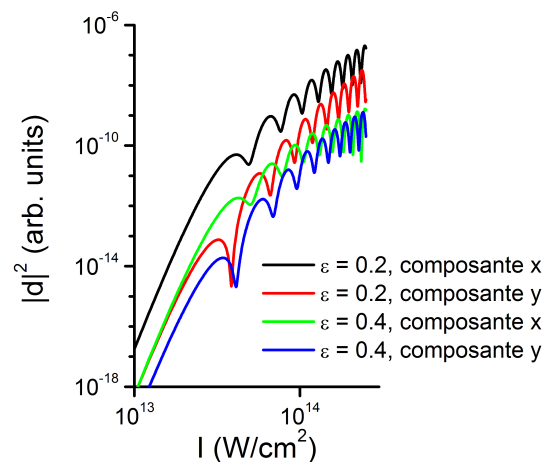


FIGURE 10.20 – Amplitude du dipôle dans les dimensions verticale et horizontale en fonction de l'intensité laser, pour différentes valeurs de l'ellipticité infrarouge. Réponse de l'atome unique calculée par Thierry Auguste pour l'harmonique 15 générée dans l'argon.

De plus, comme nous l'avons vu dans le chapitre 5 (figure 5.9), la divergence n'est pas la même dans les deux directions, ce qui va modifier les poids relatifs des deux composantes de polarisation en champ lointain et donc accentuer le phénomène de dépolarisation.

### 10.3.2 Commentaire sur les cas bi-circulaires démontrés dans la littérature

Dans le cas de la combinaison colinéaire d'un faisceau fondamental avec sa seconde harmonique, polarisés circulairement en sens contraire, le délai entre les deux faisceaux est homogène spatialement et donc la polarisation aussi. Ainsi, il n'y a pas d'effet de dépolarisation<sup>2</sup>. L'état de polarisation résultant de la somme des deux faisceaux est représentée sur la figure 10.21. De par sa forme de trèfle à trois feuilles, il pilote des trajectoires électroniques permettant la génération efficace d'harmoniques polarisées circulairement [Milošević et al. 2000, Kfir et al. 2015].

2. Très récemment, [Barreau et al. 2018] ont montré que certains paramètres expérimentaux, comme le profil spatio-temporel des impulsions, le délai entre les deux faisceaux ou encore le taux d'ionisation du milieu de génération, peuvent engendrer de la dépolarisation s'ils ne sont pas bien contrôlés.

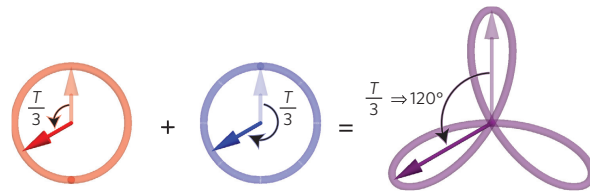


FIGURE 10.21 – État de polarisation du champ bi-circulaire à deux couleurs. Figure extraite de [Kfir et al. 2015].

Dans le cas de la superposition non-colinéaire de deux faisceaux de même fréquence polarisés circulairement en sens contraire, le délai entre les deux faisceaux n'est pas spatialement homogène au foyer. Or nous avons vu dans le chapitre 1 que la somme de deux polarisations circulaires de sens opposé est une polarisation linéaire dont la direction est donnée par le délai entre les deux composantes circulaires. Ainsi, nous avons dans ce cas un réseau de polarisation linéaire au foyer, illustré sur la figure 10.22. Cependant, les composantes verticale et horizontale de la polarisation évoluent respectivement en sinus et cosinus dans la dimension transverse [Hickstein et al. 2015] et sont donc en quadrature de phase quelle que soit la position dans le foyer, c'est pourquoi la polarisation des harmoniques ainsi générées est circulaire et il n'y a pas non plus de dépolarisation.

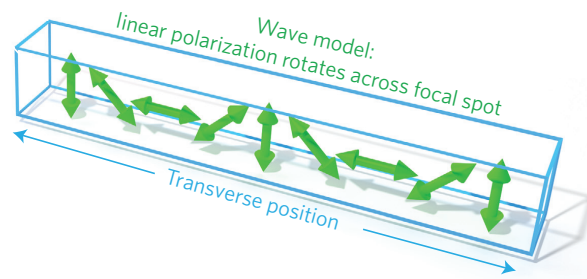


FIGURE 10.22 – Réseau de polarisation linéaire dans le cas bi-circulaire à une couleur. Figure extraite de [Hickstein et al. 2015].

### 10.3.3 Conclusion

La loi de conservation du spin prédite par le modèle multiphotonique s'effondre dans le cas de la génération d'harmoniques à partir d'un faisceau intense polarisé linéairement et d'un faisceau perturbatif polarisé circulairement.

Pour prédire l'état de polarisation des harmoniques (ou un phénomène de dépolarisation), il faut étudier les variations locales de la polarisation au foyer en séparant ses composantes linéaires verticale et horizontale, et voir comment elles se somment au niveau macroscopique. L'accord de phase joue alors un rôle primordial.

Dans le chapitre suivant, nous nous intéresserons à la situation analogue pour le moment angulaire orbital en mélangeant un mode de Laguerre-Gauss  $\ell = \pm 1$  avec un Hermite-Gauss d'ordre 1.



## Chapitre 11

# Analogie entre moments angulaires de spin et orbital : mélanges de faisceaux de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss

Dans le chapitre 9, nous nous sommes intéressés à la génération d'harmoniques à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss. Nous avons démontré que la loi de conservation du moment angulaire orbital qui découle du modèle multiphotonique prédit correctement la charge topologique des harmoniques ainsi générées.

Des expériences analogues en termes de moment angulaire de spin ont également été réalisées dans la littérature. Elles ont permis de vérifier que la loi de conservation du spin décrit convenablement la génération d'harmoniques par deux faisceaux polarisés circulairement en sens contraire.

En revanche, nous avons vu dans le chapitre 10 que le modèle multiphotonique s'effondre lorsque nous mélangeons une polarisation linéaire avec une polarisation circulaire. Pour expliquer cette expérience, nous avons dû décomposer la polarisation circulaire en la somme de deux polarisations linéaires et prendre en compte l'accord de phase.

Ces observations soulèvent la question d'une différence fondamentale entre les deux types de moments angulaires du photon. Or nous savons d'après le chapitre 1 que nous pouvons effectuer le même genre de décomposition pour le moment angulaire orbital : le mode de Laguerre-Gauss ( $\ell = \pm 1, p = 0$ ) peut s'écrire comme la somme des modes d'Hermite-Gauss  $TEM_{01}$  et  $TEM_{10}$  déphasés de  $\pm\pi/2$  selon le signe de la charge topologique.

Nous nous proposons donc d'étudier dans ce chapitre la génération d'harmoniques à partir de la superposition d'un faisceau de Laguerre-Gauss avec un faisceau d'Hermite-Gauss. Afin de nous familiariser avec la génération d'harmoniques à partir de faisceaux d'Hermite-Gauss, nous commencerons dans la section 11.1 par le cas mixte et plus simple (en termes de front d'onde) d'un faisceau gaussien avec un mode  $TEM_{10}$ . Puis nous verrons le cas du mélange de faisceaux de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss d'ordres 1 dans la section 11.2.

### 11.1 Génération d'harmoniques avec des faisceaux d'Hermite-Gauss

Dans la thèse de [Camper 2014], des harmoniques ont été générées à partir d'un faisceau d'Hermite-Gauss  $TEM_{01}$ . Ces travaux soulignent l'influence de la géométrie de focalisation sur les profils harmoniques observés en champ lointain : selon que les harmoniques sont générées en faisceau convergent ou divergent (ce qui correspond à un foyer situé respectivement après

ou avant le jet de gaz), le recouvrement des fronts d'onde des deux lobes du mode  $TEM_{01}$  est respectivement plus ou moins favorable aux interférences entre les deux sources. Pour de fortes défocalisations, le profil harmonique en champ lointain présente deux lobes, plus écartés l'un de l'autre que dans le mode  $TEM_{01}$ , avec quelques franges d'interférences au milieu.

Revenons à la génération d'harmoniques à deux faisceaux. Nous nous pencherons d'abord sur le cas d'un faisceau de génération gaussien et d'une perturbation  $TEM_{10}$ , puis nous nous intéresserons à la configuration inverse. La figure 11.1 présente l'interférence entre ces deux faisceaux au foyer. Du fait du saut de phase de  $\pi$  du mode d'Hermite-Gauss, une frange brillante d'un côté se trouve en face d'une frange sombre de l'autre. Ainsi, nous avons encore une fois une figure en forme de fourche.

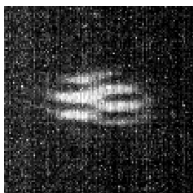


FIGURE 11.1 – Figure d'interférences entre faisceaux infrarouges gaussien et  $TEM_{10}$ .

### 11.1.1 Génération gaussienne et perturbation Hermite-Gaussienne

Commençons par laisser le faisceau de génération gaussien et plaçons la lame de phase  $0 - \pi$  dans le faisceau de perturbation de sorte à créer un mode  $TEM_{10}$  (*i.e.* avec les deux lobes le long de l'horizontale). Nous reculons les lentilles de façon à générer les harmoniques en faisceau divergent afin de minimiser les interférences entre les deux lobes du mode d'Hermite-Gauss. La figure 11.2 présente le profil des harmoniques ainsi générées.

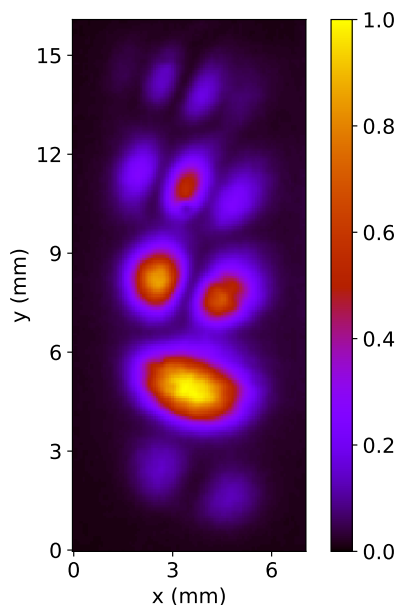


FIGURE 11.2 – Profil d'intensité de l'harmonique 13 obtenue expérimentalement à partir d'une génération gaussienne et d'une perturbation  $TEM_{10}$ .

L'ordre 0 s'apparente à une gaussienne aplatie dans la direction verticale et les ordres supérieurs sont "de type  $TEM_{m0}$ " légèrement inclinés par rapport à l'horizontale. Cette inclinaison vient simplement d'une orientation imparfaite du masque de phase. Sur la figure 11.3, nous

avons tourné l'image de manière à ce que les lobes de chaque ordre de diffraction soient bien sur l'axe horizontal afin de visualiser les coupes des différents ordres le long de cet axe.

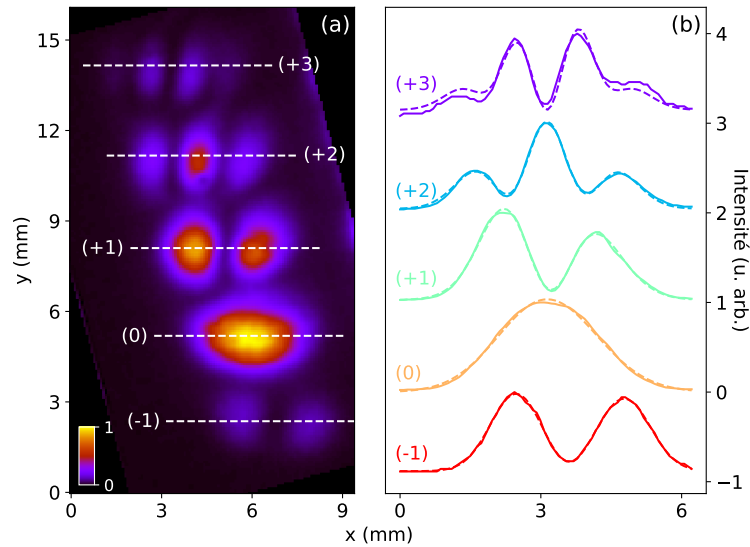


FIGURE 11.3 – Génération gaussienne et perturbation  $TEM_{10}$ . Panneau (a) : spectre sur lequel nous avons matérialisé les différents ordres de diffraction par des pointillés blancs. Panneau (b) : coupes de chaque ordre de diffraction. Pour des raisons de lisibilité, nous avons normalisé et espacé chacune des courbes d'une unité. Les énergies de génération et perturbation valent respectivement 2.4 mJ et 500  $\mu$ J.

Nous observons dans chaque cas un nombre d'annulations d'intensité égal à la valeur absolue de l'ordre de diffraction. Cependant, pour les ordres 2 et 3, les intensités relatives des lobes ne sont pas celles des modes  $TEM_{20}$  et  $TEM_{30}$ . Les modes d'Hermite-Gauss formant une base complète, tout faisceau peut s'écrire comme une somme pondérée de ces modes. De plus, nos ordres de diffraction présentant un profil gaussien dans la dimension verticale, nous pouvons nous restreindre aux modes d'indice nul dans cette direction. Nous décomposons alors chacune de nos coupes sur la base des polynômes d'Hermite en effectuant un ajustement par une fonction du type  $\sum_i a_i H_i(x)$  où les  $a_i$  sont les coefficients complexes de la décomposition et les  $H_i$  sont les polynômes d'Hermite d'ordre  $i$ . Nous permettons le développement jusqu'à l'ordre 3 pour tous les ordres de diffraction. Les résultats sont présentés sur la figure 11.4.

Nous trouvons pour l'ordre 0 un mode gaussien dont nous commenterons la forme un peu plus loin. Pour les ordres  $\pm 1$ , le mode  $TEM_{10}$  est largement dominant (la routine d'optimisation ajoute un peu d'autres ordres et joue sur leurs phases relatives pour reproduire les dissymétries entre les deux lobes dues à diverses imperfections expérimentales). L'ordre 2 de diffraction est constitué des polynômes d'Hermite d'ordres 0 et 2, d'amplitudes relatives équivalentes. L'ordre 3 se compose des polynômes d'ordres 1 et 3 avec des amplitudes comparables. Nous en concluons que les ordres de diffraction ne sont pas des modes d'Hermite-Gauss purs mais une superposition de modes d'ordres inférieurs ou égaux à l'ordre de diffraction et de même parité que l'ordre de diffraction.

Nous avons vu à la fin du chapitre 9 que si nous avons besoin du réseau actif pour expliquer les intensités relatives des différents ordres de diffraction, leur structure spatiale peut être prédite par le modèle multiphotonique. Par ailleurs, le calcul perturbatif développé dans le chapitre 6 fait apparaître un terme du type  $(A_2/A_2^{(0)})^{n_2}$  (où  $A_2$  et  $A_2^{(0)}$  sont le potentiel vecteur et son amplitude du faisceau de perturbation) pour chaque ordre de perturbation  $n_2$ . Dans la configuration qui nous intéresse ici (génération gaussienne et perturbation  $TEM_{10}$ ), le profil spatial de nos ordres de diffraction serait donc donné par le polynôme d'Hermite d'ordre 1 élevé



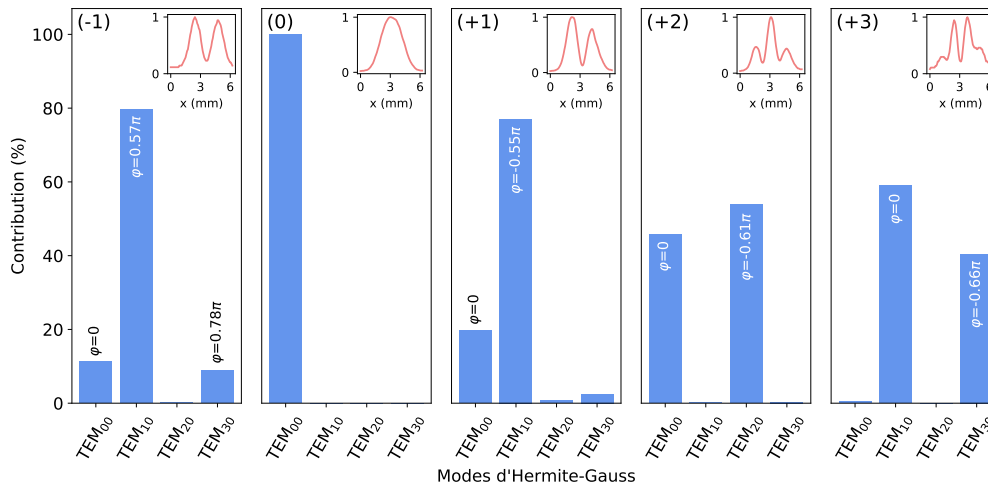


FIGURE 11.4 – Décomposition des ordres de diffraction obtenus expérimentalement sur la base des polynômes d'Hermite. L'amplitude des coefficients complexes de la décomposition est représentée par les barres bleues et la phase correspondante est écrite pour chaque barre. L'encart en haut à droite de chaque panneau rappelle le profil d'intensité de l'ordre de diffraction considéré.

à la puissance  $n_2$ . Or, toute puissance de ce polynôme est une combinaison linéaire de polynômes d'Hermite d'ordres inférieurs ou égaux et de même parité que l'exposant. En particulier, nous avons pour les exposants allant de 0 à 3 :

$$H_1^0 = H_0, \quad H_1^1 = H_1, \quad H_1^2 = H_2 + H_0 \quad \text{et} \quad H_1^3 = H_3 + 3H_1 \quad (11.1)$$

Ces équations permettent de retrouver la règle de parité observée sur la figure 11.4 et sont en assez bon accord avec les coefficients de la décomposition des ordres expérimentaux, compte tenu du caractère approximatif du modèle, des imperfections expérimentales et des incertitudes de la routine d'optimisation.

Il est intéressant de noter que contrairement aux expériences du chapitre 9 où les ordres de diffraction peuvent être raisonnablement assimilés à des modes de Laguerre-Gauss purs, nous avons ici des ordres de diffraction qui sont des combinaisons de modes d'Hermite-Gauss. Leur profil d'intensité est donc susceptible évoluer au fur et à mesure de leur propagation. C'est effectivement ce que nous constatons d'après la figure 11.5, où nous avons implémenté la phase de Gouy à notre décomposition sur la base des modes d'Hermite-Gauss. Comme nous l'avons vu au chapitre 1, cette phase s'écrit  $\phi = (n + 1) \arctan(z/Z_R)$  pour le mode TEM<sub>n0</sub> ( $Z_R$  étant la distance de Rayleigh). Les modes constituant un ordre de diffraction donné interfèrent entre eux et leurs phases relatives évoluent donc au cours de la propagation, impactant notablement le profil d'intensité<sup>1</sup>. En effet, en sortie du milieu générateur, hormis pour l'ordre 0, nous observons seulement deux pics d'intensité dont l'écartement augmente avec l'ordre de diffraction. Au niveau de nos galettes de micro-canaux, les ordres 0 et 1 étant des modes quasi-purs ils se propagent sans se déformer, tandis que les interférences modales pour les ordres 2 et 3 produisent les profils d'intensité observés expérimentalement.

Ces résultats sont en excellent accord avec ceux obtenus par [Hasegawa et Shimizu 1999] lors de la génération de seconde harmonique à partir d'un faisceau d'Hermite-Gauss. Il semble ainsi qu'une théorie perturbative (par rapport au deuxième faisceau) puisse être appliquée ici.

Appuyons-nous donc sur le développement perturbatif de la phase atomique réalisé au chapitre 6 pour expliquer l'origine des phases relatives de notre décomposition sur les polynômes d'Hermite. Si nous ajoutons au calcul la phase de Gouy, donnée par  $(m + n + 1)\pi/2$  pour un mode

1. Nous avons relevé un comportement similaire dans le chapitre 4 avec les modes de Laguerre-Gauss d'indice radial non nul.

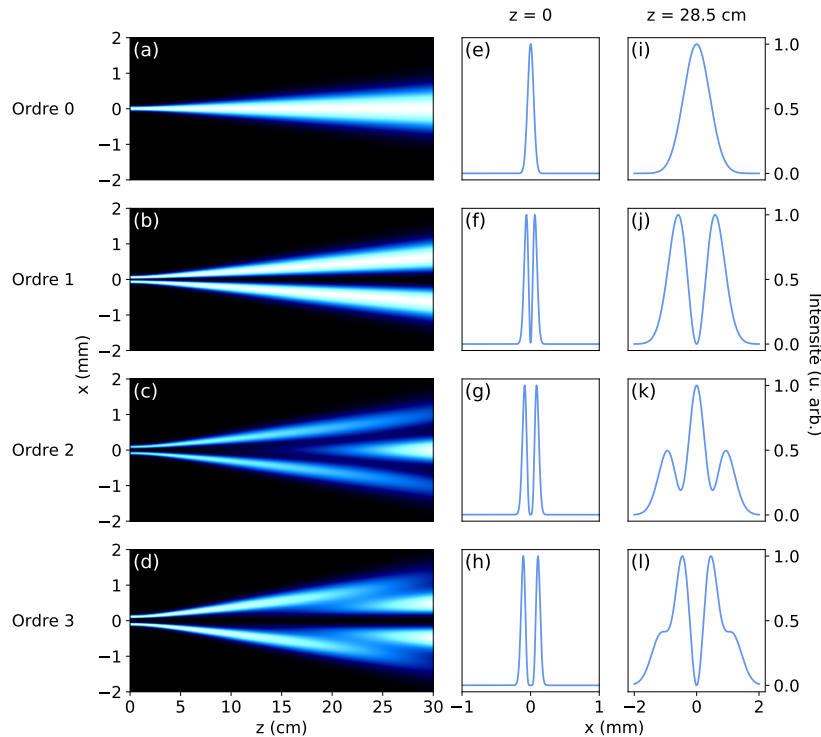


FIGURE 11.5 – Effet de la phase de Gouy sur les profils d’intensité. Panneaux (a) à (d) : propagation numérique des ordres de diffraction calculés à partir de la décomposition en polynômes d’Hermite. Panneaux (e) à (h) : Profils d’intensité au foyer. Panneaux (i) à (l) : profils d’intensité au niveau du détecteur.

$TEM_{mn}$  en champ lointain, l’équation (6.8) comporte alors un terme de phase en  $(2r + 3s)\pi/2$  (dans notre configuration où la génération est gaussienne et la perturbation  $TEM_{10}$ ;  $r$  comptant pour un photon de perturbation et  $s$  pour deux photons, l’un de génération et l’autre de perturbation), dont les valeurs pour les différents canaux conduisant à la génération des trois premiers ordres de perturbation sont données dans le tableau 11.1.

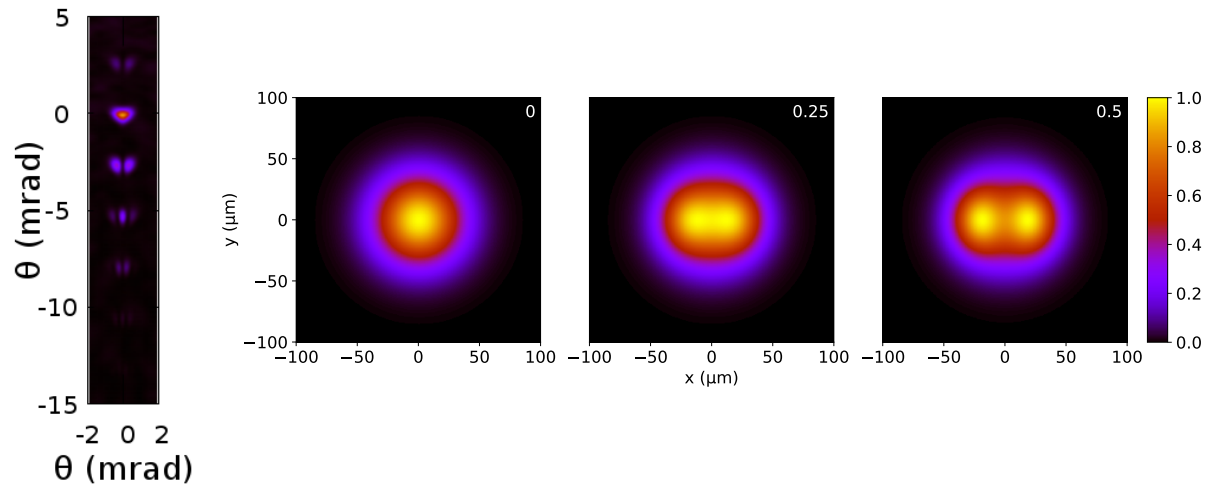
ordre	1		2			3			
$(r, s)$	(0, 1)	(1, 0)	(0, 2)	(1, 1)	(2, 0)	(0, 3)	(2, 1)	(1, 2)	(3, 0)
phase	$\pi/2$	$\pi$	$\pi$	$3\pi/2$	$2\pi$	$3\pi/2$	$2\pi$	$5\pi/2$	$3\pi$

TABLE 11.1 – Phases en champ lointain des différents canaux de génération des ordres 0, 1 et 2 de perturbation, pour une génération gaussienne et une perturbation  $TEM_{10}$ .

Quel que soit l’ordre de perturbation, nous remarquons une différence de phase de  $\pi/2$  entre chaque canal de génération. Tous les canaux ne contribuent pas avec la même importance (le poids de chacun est donné par les fonctions de Bessel dans l’équation (6.8)), mais nous pouvons raisonnablement affirmer que la phase de Gouy augmente avec l’ordre de perturbation. Ceci explique qualitativement (nous tenons uniquement compte de la phase de Gouy dans ce calcul, or d’autres phases interviennent en réalité) l’augmentation des phases relatives avec l’ordre des polynômes sur la figure 11.4.

Enfin, la dernière caractéristique qu’il nous reste à commenter est l’élargissement dans la dimension horizontale de l’ordre 0. Il ne s’agit pas là d’un défaut expérimental puisque nous l’observons également dans les simulations numériques de Thierry Auguste (figure 11.6a), où l’ordre 0 se situe à 0 mrad en ordonnée. Cette déformation provient d’un effet d’intensité de la génération d’harmoniques : comme nous pouvons le voir sur la figure 11.6b, la somme incohérente

d'un faisceau gaussien avec un mode  $TEM_{10}$  forme une zone de haute intensité aplatie dans la dimension verticale (la divergence reste la même dans les deux dimensions).



(a) Simulation (b) Somme incohérente d'un mode gaussien avec un  $TEM_{10}$  au foyer

FIGURE 11.6 – Génération gaussienne et perturbation  $TEM_{10}$ . (a) Harmonique 15 simulée par Thierry Auguste, pour un angle entre les deux faisceaux de 40 mrad. Nous avons une inversion haut/bas par rapport à la figure expérimentale 11.2 car les simulations ne tiennent pas compte des optiques d'imagerie qui renversent les images. (b) Somme incohérente des deux faisceaux infrarouges au foyer, pour différents rapports d'énergie entre les deux faisceaux, indiqués dans les coins en haut à droite.

### 11.1.2 Génération Hermite-Gaussienne et perturbation gaussienne

Intéressons-nous à présent à la configuration inverse de la précédente, c'est-à-dire au cas d'une génération  $TEM_{10}$  et d'une perturbation gaussienne. Les harmoniques générées par cette combinaison présentent un profil d'intensité tel qu'illustré par la figure 11.7.

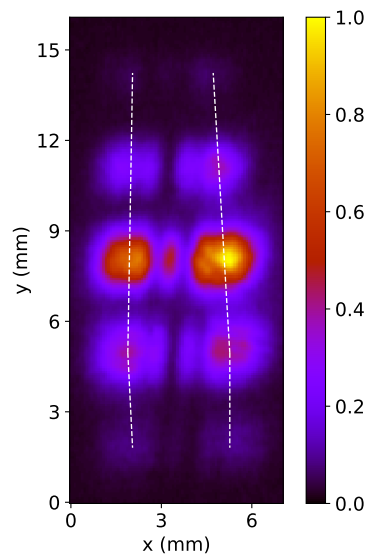


FIGURE 11.7 – Profil d'intensité de l'harmonique 13 obtenue expérimentalement en génération  $TEM_{10}$  et perturbation gaussienne. Les tirets blancs passent par les centres des lobes principaux d'intensité.

Chaque ordre de diffraction présente deux lobes principaux d'intensité avec une ou deux franges d'interférence entre eux. L'ordre 0 se situe à environ 5 mm en ordonnée. Nous observons que l'écart entre les deux lobes diminue lorsque l'ordre de diffraction augmente en valeur absolue. Nous observons le même comportement dans les simulations de Thierry Auguste présentées sur la figure 11.8. Sur cette image, l'intensité maximale d'un ordre de diffraction donné se situe plutôt au niveau des franges centrales. Ceci est sans doute dû à une géométrie de focalisation légèrement différente ou un rapport d'énergie entre les deux faisceaux un peu plus élevé. Cependant, l'écart entre les franges les plus externes diminue bien quand l'ordre de diffraction augmente.

Afin d'expliquer le resserrement des deux lobes externes lorsque l'ordre de diffraction augmente, nous pouvons comme précédemment décomposer les profils d'intensité obtenus expérimentalement sur la base des polynômes d'Hermite. Les résultats pour les ordres 0, 1 et 2 de diffraction sont présentés sur la figure 11.9.

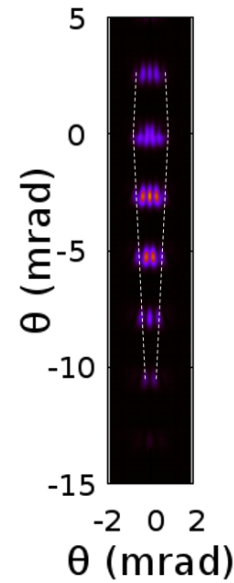


FIGURE 11.8 – Génération  $TEM_{10}$  et perturbation gaussienne. Harmonique 15 simulée par Thierry Auguste, pour un angle entre les deux faisceaux de 40 mrad. Nous avons une inversion haut/bas par rapport à la figure expérimentale 11.7 car les simulations ne tiennent pas compte des optiques d'imagerie qui renversent les images.

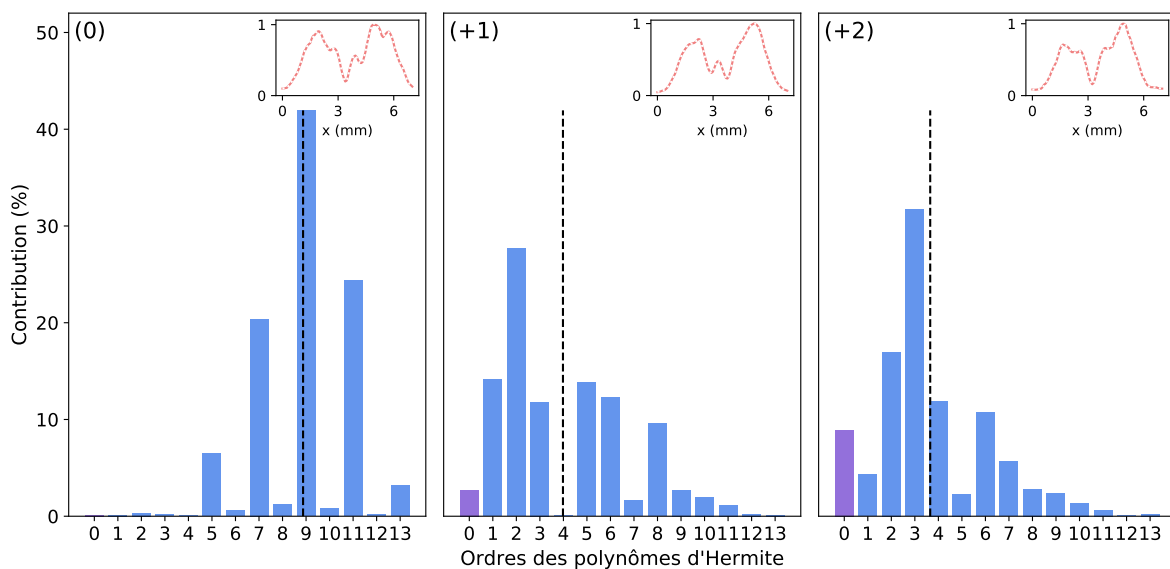


FIGURE 11.9 – Décomposition sur la base des polynômes d'Hermite des ordres de diffraction 0, 1 et 2 obtenus expérimentalement. L'amplitude des coefficients complexes de la décomposition est représentée par les barres (violette pour le mode gaussien et bleues pour les modes d'ordres supérieurs). L'encart en haut à droite de chaque panneau illustre en trait continu rouge le profil d'intensité de l'ordre de diffraction considéré, ainsi que son ajustement par les polynômes d'Hermite en pointillés blancs. Les lignes verticales indiquent la position moyenne des barres.

Nous constatons premièrement que nous ne sommes pas en présence de modes d'Hermite-Gauss purs (de même que pour la configuration précédente), mais d'une superposition de modes  $TEM_{m0}$ . Ensuite, nous remarquons que lorsque l'ordre de diffraction augmente, d'une part la distribution se déplace vers les polynômes d'Hermite d'ordres plus faibles, et d'autre part le poids du mode gaussien devient de plus en plus important, comme si l'on absorbait un photon Hermite-gaussien en moins et un photon gaussien en plus pour passer à l'ordre de diffraction supérieur. Ainsi, plus l'ordre est élevé, plus le profil d'intensité harmonique se rapproche du mode gaussien, c'est-à-dire plus les maxima d'intensité convergent vers le centre.

### 11.1.3 Conclusion

Le mode fondamental gaussien est neutre en termes de symétrie : il appartient aussi bien à la famille des modes d'Hermite-Gauss (solutions en coordonnées cartésiennes de l'équation de propagation) qu'à celle des modes de Laguerre-Gauss (symétrie cylindrique). Ainsi, lors de la génération d'harmonique à partir d'une combinaison d'un mode  $TEM_{10}$  avec un mode gaussien, la structure "de type Hermite-Gauss" est préservée au niveau des harmoniques en champ lointain.

En outre, l'approche perturbative offre une bonne compréhension des profils harmoniques observés : l'ordre 0 présente la même structure que nous obtiendrions avec le faisceau de génération seul, puis l'influence du faisceau de perturbation se fait de plus en plus grande à mesure que l'ordre de diffraction augmente.

## 11.2 Génération d'harmoniques à partir d'un mélange de faisceaux de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss

Étudions maintenant le profil des harmoniques générées à partir d'une superposition d'un mode d'Hermite-Gauss  $TEM_{10}$  et d'un mode de Laguerre-Gauss  $\ell = 1$ . La figure d'interférence entre ces deux faisceaux au niveau du milieu générateur est représentée sur la figure 11.10 et manifeste une dislocation d'ordre 2.

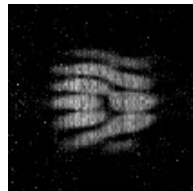


FIGURE 11.10 – Figure d'interférences entre les deux faisceaux infrarouges non-colinéaires, l'un étant un mode  $TEM_{10}$  et l'autre un mode de Laguerre-Gauss  $\ell = 1$ .

Nous nous intéresserons d'abord au cas où le faisceau de génération est Hermite-Gaussien et celui de perturbation Laguerre-Gaussien, puis à la configuration inverse. Dans chacune des configurations, nous chercherons à déterminer si le profil d'intensité des harmoniques ainsi générées se présente comme un mélange des deux symétries ou au contraire si l'une l'emporte sur l'autre (et dans ce cas, laquelle s'impose) comme nous avons pu l'observer pour le moment angulaire de spin dans le chapitre 10 (nous avons vu qu'en présence d'une génération polarisée linéairement, la polarisation circulaire de la perturbation se décompose en ses deux composantes linéaires).

### 11.2.1 Génération Hermite-Gaussienne et perturbation Laguerre-Gaussienne

Commençons par générer avec un faisceau  $TEM_{10}$  et perturber avec un faisceau  $\ell = 1$ . Dans le cadre de notre analogie entre moments angulaires orbital et de spin, cela correspond à nos expériences de génération polarisée linéairement et perturbation polarisée circulairement. La figure 11.11 présente des profils harmoniques similaires à ceux de la figure 11.7, c'est-à-dire

affichant une symétrie de type Hermite-Gauss, mais ici l'écart entre les deux lobes externes d'intensité semble rester constant et l'axe inter-lobes est d'autant plus incliné (par rapport à l'horizontale) que l'ordre de diffraction est élevé. Notons aussi qu'à la différence de la figure 11.7, ici pour les ordres négatifs, l'axe est incliné dans l'autre sens.

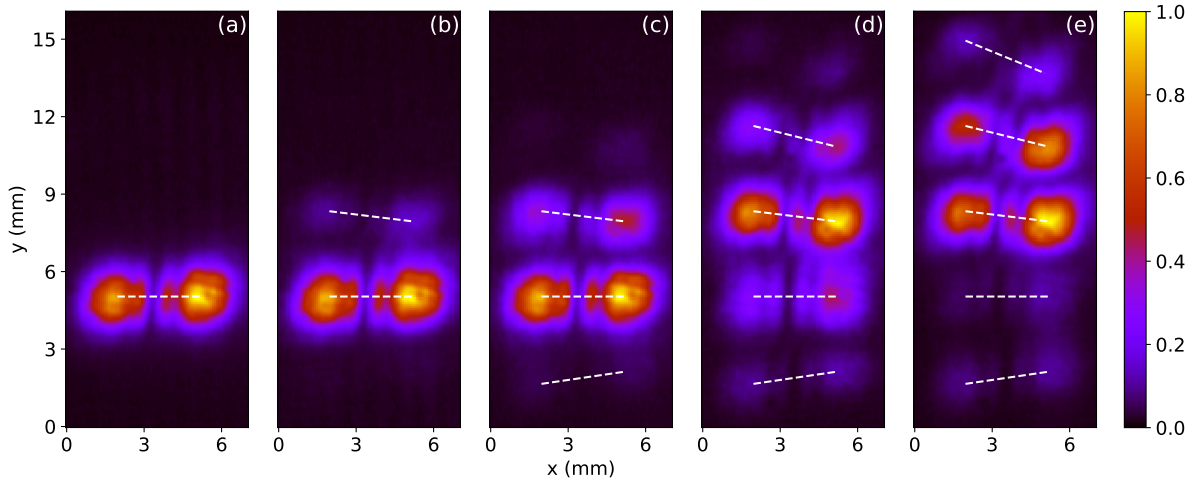


FIGURE 11.11 – Génération  $TEM_{10}$  et perturbation  $\ell = 1$  pour des énergies de perturbation (a) nulle, (b)  $240 \mu\text{J}$ , (c)  $300 \mu\text{J}$ , (d)  $430 \mu\text{J}$  et (e)  $600 \mu\text{J}$ . Les pointillés blancs relient les centres des deux lobes d'un même ordre de diffraction.

Afin de vérifier qu'il ne s'agit pas d'un défaut d'alignement, nous avons retourné la lame de phase en spirale pour inverser le signe de la charge topologique du faisceau de perturbation. Nous observons sur la figure 11.12 que l'inclinaison de l'axe inter-lobes change de sens par rapport à la figure 11.11. C'est donc bien le faisceau de Laguerre-Gauss qui est responsable de cette rotation.

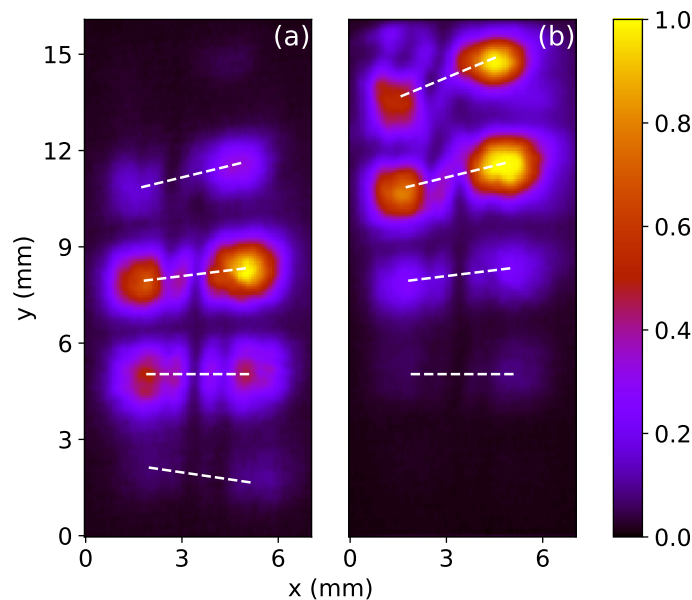


FIGURE 11.12 – Génération  $TEM_{10}$  et perturbation  $\ell = -1$  pour des énergies de perturbation (a)  $500 \mu\text{J}$  et (b)  $1,3 \text{ mJ}$ . Les pointillés blancs relient les centres des deux lobes d'un même ordre de diffraction.



Les simulations numériques de Thierry Auguste confirment nos observations quant à la rotation de l'axe inter-lobes en fonction de l'ordre de diffraction. En revanche, nous remarquons sur la figure 11.13 que les lobes se resserrent lorsque l'ordre augmente. Néanmoins, nous n'observons expérimentalement que les trois premiers ordres de diffraction, et même sur les simulations la variation de l'écart entre les lobes est quasiment imperceptible pour ces ordres-là.

Pour expliquer la rotation des lobes, nous pouvons employer le même raisonnement que nous avons utilisé dans la configuration où la perturbation était gaussienne. Ici, le faisceau de génération impose une symétrie de type Hermite-Gauss ( $TEM_{10}$ ). La perturbation  $\ell = 1$  se décompose alors en une somme de  $TEM_{10}$  (comme la génération) et  $TEM_{01}$ . Ainsi, lorsque l'ordre de diffraction augmente, la composante  $TEM_{01}$  devient plus présente et c'est pour cette raison que le profil harmonique s'oriente de plus en plus vers la verticale. Ceci explique d'ailleurs l'inversion observée sur les simulations numériques pour des ordres très élevés de diffraction. Une autre approche consiste à s'intéresser à l'orientation du front d'onde au niveau des deux zones de haute intensité au foyer. La figure 11.14 montre des gradients de phase opposés entre les deux lobes d'intensité. Ainsi, plus l'ordre de diffraction est élevé, plus l'influence du faisceau de Laguerre-Gauss est importante, et donc plus ces gradients locaux "poussent" la direction d'émission vers le haut pour un lobe et vers le bas pour l'autre, d'où la rotation de l'axe inter-lobes observée sur la figure 11.11. Notons également d'après la figure 11.14 que les gradients s'inversent lorsque l'on change le signe la charge topologique, "poussant" alors l'émission dans l'autre sens, comme constaté expérimentalement. L'expression de cet effet de décalage en termes de vecteurs d'onde n'a pas pu être établie pendant cette thèse.

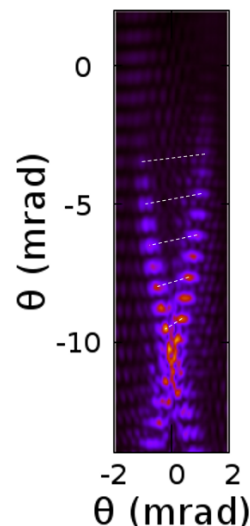


FIGURE 11.13 – Génération  $TEM_{10}$  et perturbation  $\ell = 1$  : harmonique 27 simulée pour un angle entre les deux faisceaux de 20 mrad.

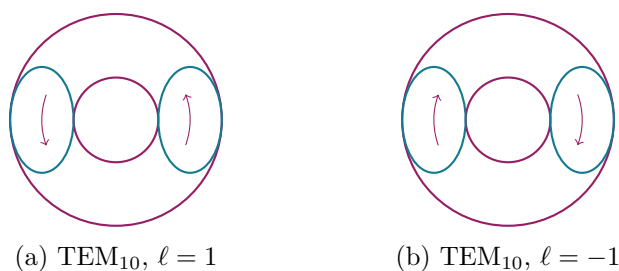


FIGURE 11.14 – Sens de rotation de la phase (flèches) au niveau de chaque lobe d'intensité du foyer lorsque la génération est  $TEM_{10}$  (en bleu) et la perturbation  $\ell = \pm 1$  (en violet).

## 11.2.2 Génération Laguerre-Gaussienne et perturbation Hermite-Gaussienne

Intéressons-nous à présent à la configuration inverse où la génération est un faisceau de Laguerre-Gauss  $\ell = 1$  et la perturbation un faisceau d'Hermite-Gauss  $TEM_{10}$ . La figure 11.15 présente les profils harmoniques obtenus pour six différents tirs lasers uniques. D'une part, nous constatons que les ordres de diffraction observés ont des formes annulaires caractéristiques d'une symétrie de type Laguerre-Gauss. D'autre part, nous pouvons distinguer des franges d'interférences entre ordres de diffraction, comme nous l'avons fait dans le cas d'une génération  $\ell = 1$  avec une perturbation gaussienne (chapitre 9).

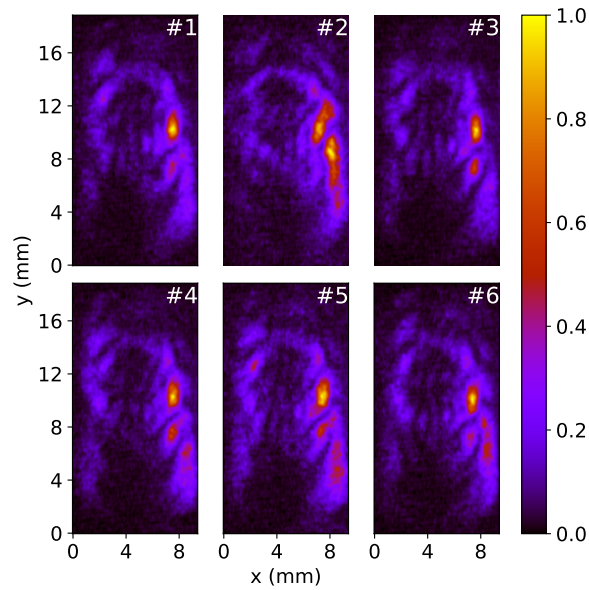


FIGURE 11.15 – Génération  $\ell_1 = 1$  et perturbation  $\text{TEM}_{10}$  pour six différents tirs laser uniques.

La figure 11.16 montre que ces franges se comportent de la même manière que dans le cas d’une perturbation gaussienne : elles se décalent légèrement d’un tir laser à un autre et se brouillent donc lorsque nous accumulons plusieurs tirs.

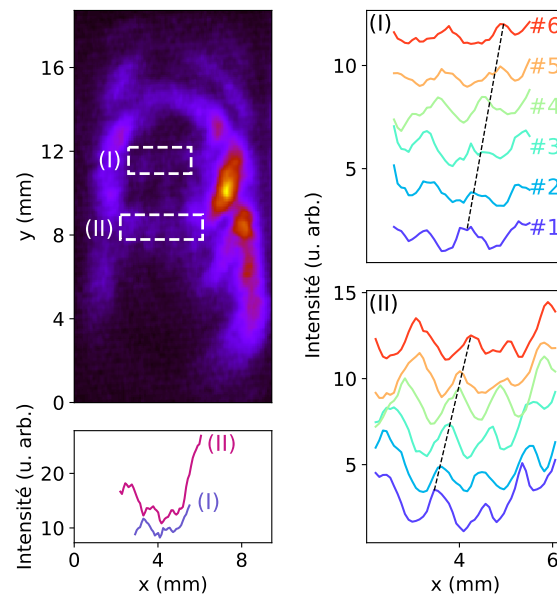


FIGURE 11.16 – Génération  $\ell_1 = 1$  et perturbation  $\text{TEM}_{10}$ . En haut à gauche : moyenne des six meilleurs tirs. Les deux systèmes de franges encadrés (I) et (II) sont tracés juste en dessous. À droite : systèmes de franges (I) en haut et (II) en bas tracés pour chacun des six meilleurs tirs (avec un décalage vertical pour plus de clarté).

Les simulations numériques de Thierry Auguste présentées sur la figure 11.17 confirment nos observations expérimentales. Nous reconnaissons une superposition d’anneaux qui interfèrent entre eux. Le profil obtenu ici est plus complexe que celui des données expérimentales en raison de la présence de trajectoires longues (absentes lors de nos expériences du fait de nos conditions de focalisation) qui interfèrent avec les trajectoires courtes.



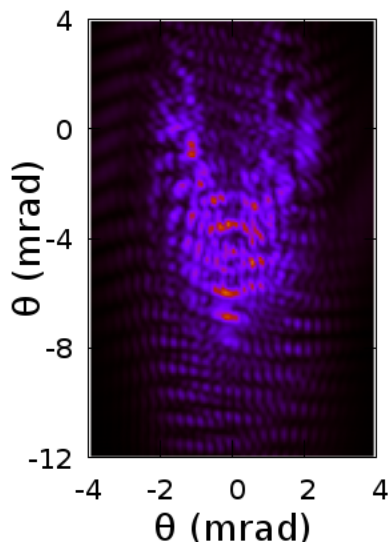


FIGURE 11.17 – Génération  $\ell_1 = 1$  et perturbation  $\text{TEM}_{10}$  : harmonique 21 simulée pour un angle entre les deux faisceaux de 20 mrad.

Par analogie avec le moment angulaire de spin (une polarisation linéaire peut s'écrire comme la somme de polarisations circulaires gauche et droite), nous pensons pouvoir expliquer la structure harmonique observée ici en décomposant le mode d'Hermite-Gauss  $\text{TEM}_{10}$  en la somme de deux modes de Laguerre-Gauss  $\ell = \pm 1$ . Nous nous proposons alors de comparer le cas d'une perturbation gaussienne avec celui d'une perturbation  $\text{TEM}_{10}$  en simulant numériquement (comme nous l'avons fait dans le chapitre 9) une superposition de modes de Laguerre-Gauss :

- dans le cas gaussien (figure 11.18a), l'indice azimutal diminue d'une unité ( $\Delta\ell = -1$ ) lorsque l'ordre de diffraction augmente (nous appliquons la loi de conservation du moment angulaire orbital avec  $\ell_1 = 1$  et  $\ell_2 = 0$ )
- dans le cas Hermite-Gaussien (figure 11.18b), nous superposons deux anneaux par ordre de diffraction, correspondant à deux lois de conservation du moment angulaire orbital, l'une avec  $\ell_1 = 1$  et  $\ell_2 = 1$  (soit  $\Delta\ell = 0$ ), et l'autre avec  $\ell_1 = 1$  et  $\ell_2 = -1$  (soit  $\Delta\ell = -2$ ).

Afin de mieux nous y retrouver, nous avons tracé sur la figure 11.18 les cercles matérialisant le rayon d'intensité maximale pour chaque système d'anneaux. Dans le cas où la perturbation est gaussienne, nous constatons une nette dissymétrie gauche/droite due aux interférences modales, qui se manifeste par des lobes très intenses à l'intersection des bords droits des anneaux alors qu'une ligne ondulée d'intensité nulle se dessine le long du côté gauche des anneaux. Une telle dissymétrie n'apparaît pas dans le cas Hermite-Gaussien.

Par ailleurs, dans cette dernière configuration, les deux systèmes d'anneaux se confondent pour tous les ordres de diffraction du fait de leurs tailles très proches (ils finiraient par se séparer si nous observions des ordres plus élevés en valeur absolue). Sur la figure 11.19, nous avons estimé visuellement et calculé à partir de l'équation (9.7) la taille des anneaux expérimentaux obtenus dans les deux configurations. L'accord entre ces données et les simulations précédentes paraît tout à fait raisonnable. Concernant la présence ou l'absence de dissymétrie gauche/droite évoquée juste avant selon le profil du faisceau de perturbation, il est très délicat de commenter à ce sujet sur les figures expérimentales, en raison d'éventuelles imperfections au niveau des profils spatiaux des faisceaux fondamentaux, du recouvrement de ces deux faisceaux au foyer, ou encore des optiques d'imagerie.

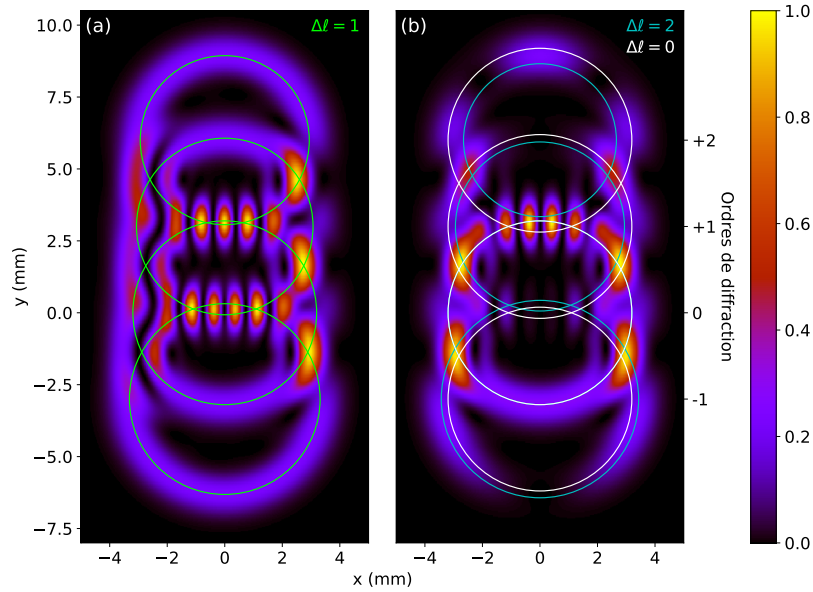


FIGURE 11.18 – Simulation numérique de la superposition des modes de Laguerre-Gauss avec (a)  $|\Delta\ell| = 1$  et (b)  $|\Delta\ell| = 0$  et  $|\Delta\ell| = 2$ , correspondant respectivement à des perturbations gaussienne et  $\text{TEM}_{10}$  (la génération étant  $\ell = 1$ ).

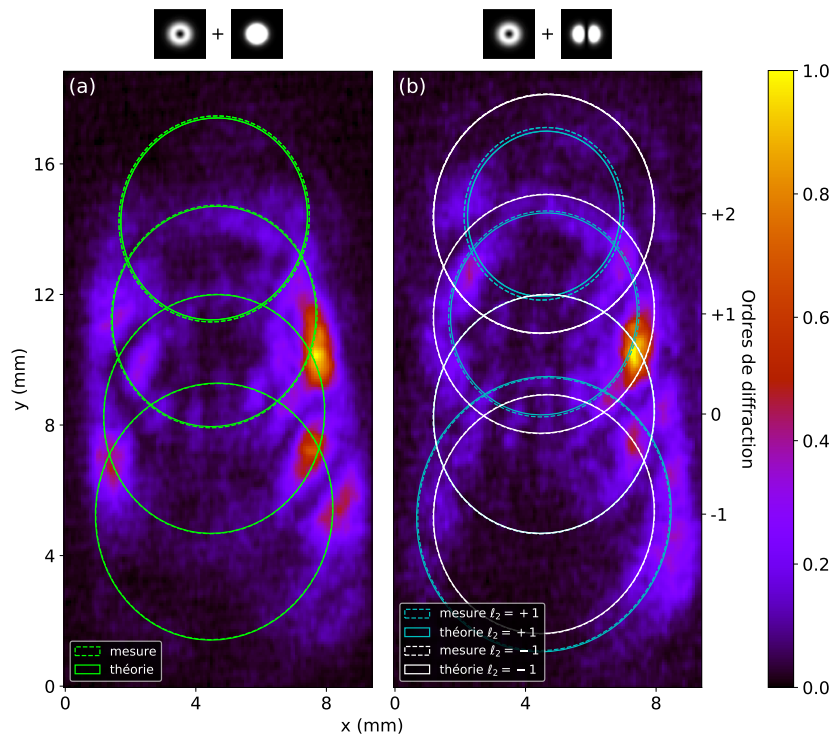


FIGURE 11.19 – Comparaison de la taille des anneaux obtenus expérimentalement entre perturbations gaussienne (a) et Hermite-Gaussienne (b).

Toutefois, nous nous proposons d'étudier de manière plus détaillée les structures d'interférence des bords droits et gauches des anneaux grâce à la figure 11.20, afin de mettre en avant les similitudes entre expériences et simulations d'une part, et les différences entre les deux configurations d'autre part.

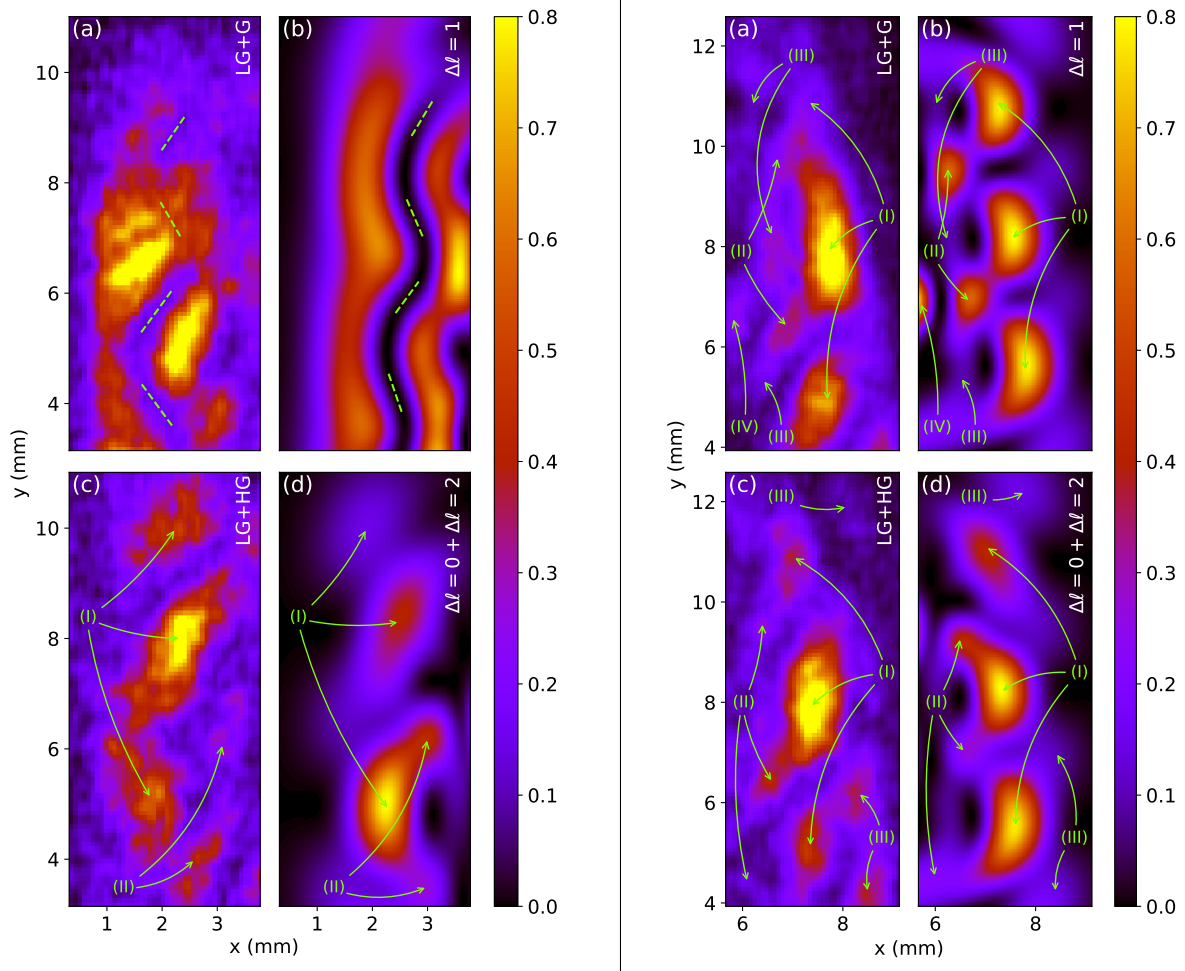


FIGURE 11.20 – Zooms sur les parties gauche (à gauche de la ligne verticale) et droite (à droite de la ligne verticale) des figures expérimentales (a,c) et théoriques (b,d) pour des perturbations gaussienne (a,b) et  $TEM_{10}$  (c,d). Les zones fléchées et numérotées en chiffres romains, ainsi que les traits en pointillés, mettent en évidence les similitudes entre expérience et simulation d’une part, et les différences entre perturbations gaussienne et Hermite-Gaussienne d’autre part.

Sur la partie droite de la figure 11.20, les trois lobes particulièrement intenses du côté droit (I) se retrouvent pour les deux types de perturbation (b,d) et nous parvenons à les reconnaître sur les données expérimentales (a,c). Les lobes secondaires (II) situés juste à gauche des premiers et entre ceux-ci en termes de hauteur, se distinguent également sur les données expérimentales. Dans le cas de la perturbation gaussienne (a,b), une fine frange (III) relie les lobes (II). Elle est beaucoup moins présente lorsque la perturbation est Hermite-Gaussienne. En revanche nous reconnaissons bien dans ce cas (c,d) les lobes les plus externes (III). Cette partie droite de la figure 11.20 met donc en avant plus de similitudes entre simulations et expériences que de différences entre les deux configurations.

Intéressons-nous désormais à la partie gauche des anneaux (partie gauche de la figure 11.20). Cette tranche permet d’illustrer davantage de différences entre perturbations gaussienne et  $TEM_{10}$ . En effet, dans le premier cas (a,b), nous observons une ligne ondulée sombre matérialisée par les tirets qui serpente entre deux lignes lumineuses d’intensité comparables, tandis que dans le second cas (c,d), nous avons trois lobes principaux bien séparés les uns des autres (I) ainsi que des lobes secondaires juste à droite (II) bien identifiables sur l’image expérimentale.

### 11.2.3 Conclusion

Nos expériences mélangeant des faisceaux de Laguerre-Gauss et Hermite-Gauss, appuyées par des simulations numériques, montrent que dans les deux configurations étudiées, le faisceau de génération impose sa symétrie et force de cette manière le faisceau de perturbation à se décomposer sur la base décrivant cette symétrie.

Cette conclusion nous permet de faire l'analogie avec le moment angulaire de spin. Dans le cas d'une génération Hermite-Gaussienne et d'une perturbation Laguerre-Gaussienne, le milieu de génération se comporte vis à vis de la perturbation comme un cristal biréfringent : son anisotropie sépare la polarisation incidente (quelle qu'elle soit) en deux composantes linéaires orthogonales imposées par les axes neutres du cristal. De même, le cas d'une génération Laguerre-Gaussienne et d'une perturbation Hermite-Gaussienne peut être comparé au phénomène d'activité optique, également appelé pouvoir rotatoire ou encore biréfringence circulaire.



# Conclusions et perspectives

Avant cette thèse, des expériences de génération d’harmoniques d’ordre élevé à partir d’un faisceau infrarouge polarisé elliptiquement avaient été réalisées [Antoine et al. 1997]. Leur interprétation reposait principalement sur l’étude du champ générateur dans le cadre du modèle à trois étapes [Strelkov 2006]. Hors résonances, l’ellipticité de la polarisation harmonique reste légèrement inférieure à celle de l’infrarouge. À l’inverse, les expériences de génération d’harmoniques portant du moment angulaire orbital, mises en œuvre à l’aube de cette thèse, ont été décrites via l’approche photonique, par des lois de conservation [Gariépy et al. 2014, Généaux et al. 2016]. Ce modèle a ensuite été appliqué au moment angulaire de spin dans des schémas de génération à deux faisceaux pour démontrer la génération d’harmoniques polarisées circulairement [Kfir et al. 2015, Hickstein et al. 2015, Kfir et al. 2016], dans des cas "purs" (où les deux faisceaux sont polarisés circulairement). Un premier cas "impur", mélangeant une polarisation circulaire avec une elliptique, a été étudié [Fleischer et al. 2014], mais la littérature ne rapporte rien à propos de la configuration associant une polarisation linéaire avec une circulaire. Le tableau 1 dresse le bilan des modèles utilisés pour décrire les expériences de génération d’harmoniques portant du moment angulaire avant cette thèse.

	moment angulaire de spin	moment angulaire orbital
1 faisceau	champ	photons
2 faisceaux	photons (cas purs)	proposition théorique (photons)

TABLE 1 – Résumé des descriptions utilisées jusqu’au début de cette thèse pour les études de génération d’harmoniques d’ordre élevé avec du moment angulaire.

Dans ce tableau apparaissent quelques lacunes, que nous avons explorées au cours de cette thèse. Notons premièrement l’absence de lien entre les deux modèles (étude du champ ou approche photonique) : pourquoi utiliser l’un plutôt que l’autre ? Deuxièmement, le transfert de moment angulaire orbital n’a été envisagé qu’en termes de photons, et le cas à deux faisceaux reste à démontrer expérimentalement. Troisièmement, le transfert de moment angulaire de spin n’a pas été étudié dans le cas mixte combinant une polarisation linéaire avec une circulaire. Par ailleurs, il est important de souligner que les études basées sur le modèle multiphotonique soulèvent des controverses au sujet des rendements harmoniques. Enfin, il n’y a pas eu de comparaison entre les deux types de moment angulaire : est-il possible de les appréhender avec les mêmes modèles ? L’objectif de cette thèse a été de répondre à ces questions.

## La génération d’harmoniques à partir d’un faisceau portant du moment angulaire

Pour ce faire, nous sommes d’abord partis des cas les plus simples. Après nous être dotés dans la partie I des outils théoriques et expérimentaux nécessaires pour aborder les notions de moment angulaire de la lumière et de génération d’harmoniques d’ordre élevé, nous nous sommes penchés dans la partie II sur la génération d’harmoniques à partir d’un seul faisceau portant du moment angulaire, tantôt orbital tantôt de spin.

Le chapitre 3 synthétise les résultats obtenus au sein du groupe lors de la thèse de [Géneaux 2016], sur la conservation du moment angulaire orbital lors de la génération d’harmoniques d’ordre élevé avec un faisceau de Laguerre-Gauss. Ces expériences ont permis de démontrer la loi de transfert du moment angulaire orbital  $\ell_q = q\ell_1$  [Géneaux et al. 2016] et confirment d’une part les prédictions théoriques de [Hernández-García et al. 2013] et d’autre part les conclusions de [Gariépy et al. 2014]. La méthode de caractérisation proposée ici est beaucoup plus simple à mettre en œuvre que les autres techniques rencontrées dans la littérature, puisqu’elle repose uniquement sur une observation du profil d’intensité des harmoniques en champ lointain, et plus particulièrement de la taille relative des anneaux. Elle se base notamment sur le fait que, lors d’un processus non-linéaire, les maxima du champ émis au foyer coïncident avec ceux du champ de génération. Pour la plupart des applications mettant en jeu des faisceaux de Laguerre-Gauss dans l’extrême ultraviolet, il serait intéressant d’avoir une plus grande flexibilité sur la valeur de la charge topologique portée par les harmoniques. La suite logique de ces études a donc été le contrôle du moment angulaire orbital des harmoniques, un travail que nous avons entrepris au cours de cette thèse et que nous avons présenté dans le chapitre 9 de ce manuscrit.

Après nous être focalisés sur l’indice azimutal des modes de Laguerre-Gauss, nous nous sommes intéressés dans le chapitre 4 à leur indice radial. Les résultats obtenus ont été publiés dans l’article 2. L’observation expérimentale d’harmoniques possédant des indices radiaux élevés est possible en jouant sur la position du foyer infrarouge par rapport au jet de gaz. Grâce à des simulations numériques, nous avons mis en évidence les rôles respectifs de la phase atomique et de la non-linéarité de la génération d’harmoniques dans l’enrichissement ou l’appauvrissement du contenu modal des harmoniques. Notons toutefois que dans cette expérience, nous ne pouvons créer des modes XUV purs d’indice radial non nul, ce qui rend notre rayonnement harmonique pour le moment peu propice à des applications ultérieures.

Enfin, dans le chapitre 5, nous avons abordé la génération d’harmoniques avec un faisceau ayant une polarisation elliptique, en suivant les approches des publications antérieures [Antoine et al. 1997, Budil et al. 1993]. Comme eux, nous avons observé que l’efficacité de génération chute rapidement dès que nous augmentons l’ellipticité de l’infrarouge. L’explication de ce phénomène peut être trouvée simplement dans le modèle à trois étapes de la génération d’harmoniques. Lors de l’étape de propagation du paquet d’onde électronique dans le continuum, celui-ci est guidé par le champ laser. Plus la polarisation de ce dernier est elliptique, plus la probabilité que la trajectoire électronique aboutisse à une recombinaison diminue. L’état de polarisation harmonique a néanmoins pu être mesuré dans la littérature pour de faibles ellipticités infrarouges. L’ellipticité harmonique augmente avec celle de l’infrarouge en lui restant légèrement inférieure. Cette expérience est donc loin de permettre la génération d’harmoniques polarisées circulairement. Afin de faire le lien avec les expériences sur le moment angulaire orbital, nous avons proposé une approche statistique pour expliquer qualitativement ces résultats en termes de photons.

Ces premières expériences ont permis de démontrer la possibilité de transférer du moment angulaire de l’infrarouge à l’extrême ultraviolet grâce au processus hautement non-linéaire de génération d’harmoniques d’ordre élevé. Néanmoins, le contrôle du moment angulaire des harmoniques lors de telles expériences s’est avéré très limité. En effet, dans le cas du moment angulaire orbital, nous n’obtenons que certaines valeurs de charge topologique qui sont relativement élevées, du fait de la loi de conservation  $\ell_q = q\ell_1$ . À l’inverse, dans le cas du moment angulaire de spin, les ellipticités harmoniques produites dans une gamme d’intensité acceptable restent très faibles, à cause des trajectoires électroniques défavorables à la recombinaison radiative du paquet d’onde électronique sur son ion parent. Dans les deux cas, les lois de conservation s’appliquent relativement bien (hormis pour l’indice radial) : nous comprenons ainsi pourquoi le modèle multiphotonique est si attrayant pour envisager des expériences plus complexes.



## La génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires

Afin de dépasser les limites mentionnées ci-dessus, nous avons envisagé des schémas de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires. Un objectif de cette thèse a alors été de réaliser et comprendre finement de telles expériences. Nous y sommes parvenus dans le cas le plus élémentaire où les faisceaux ne portent aucun moment angulaire : nous avons exposé dans la partie [III](#) notre cheminement aboutissant à notre théorie du "réseau actif".

Le modèle multiphotonique a longtemps été utilisé pour décrire la génération d'harmoniques à deux faisceaux d'un point de vue paramétrique. Il permet en effet de prévoir de nombreuses caractéristiques de l'émission harmonique en se contentant de dénombrer les photons absorbés dans l'un ou l'autre des faisceaux pilotes, et en appliquant des lois de conservation concernant la parité, l'énergie, le moment linéaire et même le moment angulaire dans certains cas. Ce modèle découle d'un développement perturbatif de la phase atomique dans le cadre de l'approximation de champ fort.

En revanche, nos expériences et simulations numériques de génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires ont fait apparaître une faiblesse importante de cette théorie à propos des rendements harmoniques. Nous avons montré que le régime perturbatif est effectif pour une gamme très limitée du rapport d'énergie entre les deux faisceaux. Dès que l'on augmente l'énergie du faisceau de "perturbation", nous n'observons plus la décroissance du signal harmonique en fonction de l'ordre de perturbation, prédite par [[Bertrand et al. 2011](#)], mais au contraire des ordres élevés plus intenses que les ordres plus bas.

Ceci nous a conduits à proposer un nouveau modèle pour décrire la génération d'harmoniques à deux faisceaux non-colinéaires, que nous avons appelé "réseau actif". Il est basé sur une étude fine de la structure du champ électrique au foyer de génération : les interférences entre les deux faisceaux infrarouges créent un réseau d'intensité et de phase dont les caractéristiques peuvent être reliées à celles du rayonnement en champ lointain. Il permet ainsi de prédire la position, la forme et la taille des ordres de diffraction en champ lointain, ainsi que leurs intensités relatives, en excellent accord avec nos expériences et simulations numériques. Ces résultats ont récemment été publiés dans *Physical Review A* [[Article 3](#)]. Nous pouvons envisager deux axes d'amélioration de ce modèle :

- préciser l'accord de phase en tenant compte de l'extension longitudinale du milieu générateur et en essayant de faire le lien avec les travaux de [[Bahabad et al. 2010](#)] sur le quasi-accord de phase spatio-temporel
- étendre le modèle aux cas de faisceaux "exotiques" (comme ceux utilisés dans la partie [IV](#) de ce manuscrit par exemple).

## Le moment angulaire dans la génération d'harmoniques à deux faisceaux

Nous avons ensuite poursuivi notre objectif principal dans la partie [IV](#), à savoir l'étude du transfert de moment angulaire lors de la génération d'harmoniques à deux faisceaux, dans le but de contrôler les propriétés de polarisation et de front d'onde du rayonnement harmonique. Les tableaux [2](#) et [3](#) résument l'ensemble des configurations étudiées au cours de ces travaux, ainsi que les pages s'y référant dans le présent manuscrit.

Dans le chapitre [9](#), nous avons généré des harmoniques à partir de deux faisceaux de Laguerre-Gauss, dans de nombreuses configurations différentes (second faisceau doublé en fréquence ou non ; différentes combinaisons de charges topologiques). Le moment angulaire orbital des harmoniques a été caractérisé par deux méthodes distinctes. La première consiste en une mesure directe du front d'onde avec un analyseur de front d'onde de Hartmann, permettant la reconstruction du profil de phase harmonique par intégration des vecteurs d'onde mesurés. La seconde est une généralisation de la technique précédemment utilisée pour les expériences à un seul









		Perturbation		
				
Génération		pp. 88-100	pp. 140-144	pp. 104-114
		pp. 144-146	×	pp. 146-148
		pp. 114-115	pp. 148-152	pp. 107-112

TABLE 2 – Combinaisons de modes spatiaux étudiées dans le cadre de la génération d’harmoniques à deux faisceaux.





		Perturbation	
			
Génération		pp. 88-100, 125-127	pp. 120-125, 132-136
		×	pp. 119-120, 136-137

TABLE 3 – Combinaisons d’états de polarisation étudiées dans le cadre de la génération d’harmoniques à deux faisceaux.

faisceau, basée sur la mesure de la divergence des harmoniques. Nous avons ainsi confirmé, en collaboration avec le groupe de Nova Gorica (Slovénie), les prédictions théoriques de [Gariépy et al. 2014] concernant la généralisation de la loi de conservation du moment angulaire orbital lors de la génération d’harmoniques à deux faisceaux :  $\ell_q = n_1\ell_1 + n_2\ell_2$ . Ces résultats ont été publiés dans l’article 1, au même moment que ceux du groupe d’Ottawa (Canada) [Kong et al. 2017] aboutissant aux mêmes conclusions. Notons toutefois que dans ces articles, le modèle multiphotonique a été employé pour décrire les expériences, et ne fournit pas d’explication satisfaisante quant aux rendements harmoniques observés lorsque l’énergie de perturbation devient un peu plus conséquente. Nous avons montré dans ce manuscrit que notre modèle du réseau actif permet d’une part d’établir la conservation du front d’onde (et par conséquent, du moment angulaire orbital) et d’autre part de commenter les rendements, du fait de la séparation entre les contributions "gaussienne" et "Laguerre-gaussienne". Nous avons ainsi démontré la possibilité de contrôler le moment angulaire orbital des harmoniques d’ordre élevé, ouvrant la voie à des applications intéressantes, comme par exemple en microscopie ou encore pour la mesure de dichroïsmes hélicoïdaux.

Au regard de ces conclusions, nous avons ensuite envisagé une nouvelle méthode de génération d’harmoniques polarisées circulairement, fondée sur le modèle multiphotonique. En appliquant une polarisation linéaire au faisceau de génération et une polarisation circulaire au faisceau de perturbation, nous pensions généraliser la règle de conservation du moment angulaire de spin et ainsi obtenir un ordre 0 de diffraction polarisé linéairement et des ordres  $\pm 1$  polarisés circulairement, les autres ordres de diffraction étant interdits. Ce n’est pas du tout ce que nous avons observé dans le chapitre 10. Après avoir constaté expérimentalement l’existence d’ordres supérieurs à 1, nous avons effectué des mesures de polarimétrie optique en adoptant la méthode développée au sein du groupe durant la thèse de [Gruson 2015]. Nous avons alors trouvé des ellipticités harmoniques qui augmentent avec l’ordre de diffraction. Cependant, les simulations numériques ont donné des ellipticités bien plus faibles. Nous avons donc conclu que nous avions en réalité mesuré de la dépolarisation. Cette dernière pourrait venir du fait qu’au foyer nous

avons un réseau d'ellipticité ainsi qu'une intensité spatialement inhomogène (du fait du profil gaussien du faisceau), et la réponse de l'atome unique dépend fortement de ces deux paramètres. Cette piste doit encore être confirmée quantitativement. Enfin, si le modèle multiphotonique "fonctionne" pour les expériences bi-circulaires, c'est soit parce que la polarisation est homogène au foyer (dans le cas à deux couleurs), soit parce que les contributions des atomes uniques se somment de façon cohérente au niveau macroscopique (dans le cas à une couleur). L'adaptation de notre modèle du réseau actif offrirait certainement une meilleure compréhension ainsi qu'une analyse plus quantitative de ces expériences.

Nous nous sommes alors demandé pourquoi les lois de conservation du moment angulaire issues du modèle multiphotonique s'appliquent avec des faisceaux de Laguerre-Gauss et des champs polarisés circulairement en sens contraire, mais pas lorsque nous mélangeons une polarisation linéaire avec une circulaire. Pour répondre à cette question, nous nous sommes appuyés sur une analogie entre moments angulaires orbital et de spin : une polarisation circulaire (respectivement un mode de Laguerre-Gauss  $(\ell, p) = (\pm 1, 0)$ ) s'écrit comme la somme de deux polarisations linéaires orthogonales (respectivement les modes d'Hermite-Gauss TEM<sub>10</sub> et TEM<sub>01</sub>) en quadrature de phase. Nous avons par conséquent réalisé des expériences de génération d'harmoniques à partir de combinaisons de modes de Laguerre-Gauss et d'Hermite-Gauss. Celles-ci sont décrites dans le chapitre 11 et se comprennent relativement bien en adoptant une approche perturbative. Il semble que le faisceau de génération impose sa symétrie au milieu (comme s'il y créait une forme d'anisotropie), et l'effet du faisceau de perturbation devient plus marqué à mesure que l'ordre de diffraction augmente. Ainsi, dans le cas où la génération est Laguerre-gaussienne et la perturbation Hermite-gaussienne, nous ne pouvons appliquer la loi de conservation du moment angulaire orbital en attribuant une charge topologique nulle aux photons de perturbation. Il faut décomposer le mode d'Hermite-Gauss sur la base des modes de Laguerre-Gauss pour expliquer les profils harmoniques observés en champ lointain. Ces résultats, obtenus en toute fin de thèse, mériteraient d'être approfondis par des expériences et simulations supplémentaires afin de mieux comprendre les mécanismes gouvernant la génération d'harmoniques d'ordre élevé avec de telles combinaisons de faisceaux, et donc potentiellement mieux contrôler les caractéristiques de l'émission harmonique. Il serait également intéressant d'envisager la possibilité d'une description statistique comme nous l'avons fait dans le cas à un seul faisceau, afin d'élargir le domaine de validité du modèle photonique.

Ainsi, nous estimons avoir partiellement atteint notre objectif, dans la mesure où :

- nous sommes désormais capables de générer des harmoniques portant un moment angulaire orbital arbitraire
- nous avons proposé une description en termes de champ des expériences sur le moment angulaire orbital, permettant une discussion sur les rendements harmoniques
- nous avons prouvé qu'une méthode pourtant prometteuse, basée sur le modèle multiphotonique, pour produire des harmoniques polarisées circulairement, ne fonctionne pas
- grâce à notre analogie entre les deux types de moment angulaire, nous avons apporté un élément de réponse quant au choix du modèle à utiliser : dans les cas "purs", le modèle multiphotonique est satisfaisant tant que nous ne discutons pas de rendements, mais pour les cas mixtes, la description en champ s'avère plus appropriée.

Il faudrait cependant affiner notre compréhension des expériences mélangeant des faisceaux de symétries différentes (*i.e.* de polarisations linéaire et circulaire, ou bien, par analogie, des modes de Laguerre-Gauss et d'Hermite-Gauss).

Enfin, une perspective intéressante de cette thèse, mettant en jeu l'ensemble des connaissances apportées par ces travaux, serait d'étudier la possibilité d'un couplage spin-orbite optique lors de la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Le moment angulaire total serait conservé, mais nous pourrions avoir une conversion entre moments angulaires de spin et orbital. L'observation d'un tel phénomène requiert des conditions expérimentales particulières. En effet, dans un milieu homogène et isotrope, dans la limite de l'approximation paraxiale, les deux composantes

du moment angulaire peuvent être séparées. En revanche, des couplages spin-orbite optiques ont déjà été démontrés lorsque l'on sort de ce cadre :

- dans des milieux "exotiques", comme des cristaux uniaxes [Brasselet et al. 2009], des milieux présentant un gradient de constante diélectrique [Onoda et al. 2004, Bliokh 2006], ou encore des *Q-plates* [Marrucci et al. 2006]
- en régime de forte focalisation [Zhao et al. 2007] (à ce sujet, il est intéressant de noter que des expériences de génération d'harmoniques d'ordre élevé dans de telles géométries, avec des lasers à hauts taux de répétition, ont récemment été démontrées avec des efficacités photoniques remarquables [Gonzalez et al. 2018]).

De telles études offrirait une meilleure compréhension des propriétés fondamentales de la lumière et de l'échange de couple mécanique avec la matière. Cela ouvrirait par exemple la voie au développement de nouvelles générations de techniques de manipulation optique à l'échelle nanométrique, ou élargirait le champ des études portant sur l'intrication quantique.

# Annexes



## Annexe A

# Terme multiphotonique de la phase atomique

Le dipôle rayonné par l'atome unique s'écrit [Lewenstein et al. 1994] :

$$\vec{x}(t) = -i \int_{-\infty}^t dt_i \int d\vec{p} \vec{d}_{\vec{p}+e\vec{A}(t)}^* e^{i\frac{S(\vec{p},t_i,t)}{\hbar}} \vec{E}(t_i) \cdot \vec{d}_{\vec{p}+e\vec{A}(t_i)} \quad (\text{A.1})$$

$$\text{où } S(\vec{p}, t_i, t) = - \int_{t_i}^t \left( \frac{(\vec{p} + e\vec{A}(t'))^2}{2m} + I_p \right) dt' \quad (\text{A.2})$$

est l'intégrale d'action.

Considérons le cas simple d'une onde plane monochromatique de potentiel vecteur  $\vec{A}(t) = \vec{A}_0 \sin(\omega t)$ . L'équation (A.2) devient :

$$S(\vec{p}, t_i, t_r) = - \int_{t_i}^{t_r} \left( \frac{\vec{p}^2}{2m} + \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{2m} \sin^2(\omega t') + \frac{e\vec{p} \cdot \vec{A}_0}{m} \sin(\omega t') + I_p \right) dt' \quad (\text{A.3})$$

$$= \left( \frac{\vec{p}^2}{2m} + I_p \right) (t_r - t_i) + \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{2m} \int_{t_i}^{t_r} \frac{1 - \cos(2\omega t')}{2} dt' + \frac{e\vec{p} \cdot \vec{A}_0}{m} \int_{t_i}^{t_r} \sin(\omega t') dt' \quad (\text{A.4})$$

$$= \left( \frac{\vec{p}^2}{2m} + I_p \right) (t_r - t_i) + \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{4m} \left( t_r - t_i - \left[ \frac{\sin(2\omega t')}{2\omega} \right]_{t_i}^{t_r} \right) + \frac{e\vec{p} \cdot \vec{A}_0}{m} \left[ \frac{-\cos(\omega t')}{\omega} \right]_{t_i}^{t_r} \quad (\text{A.5})$$

$$= \left( \frac{\vec{p}^2}{2m} + I_p + \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{4m} \right) (t_r - t_i) - \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{4m} \frac{\sin(2\omega t_r) - \sin(2\omega t_i)}{2\omega} - \frac{e\vec{p} \cdot \vec{A}_0}{m} \frac{\cos(\omega t_r) - \cos(\omega t_i)}{\omega} \quad (\text{A.6})$$

Nous utilisons ensuite l'identité de Jacobi-Anger pour exprimer la phase du dipôle (équation (2.14)) :

$$e^{i\phi_q} = e^{i\omega_q t_r - \frac{i}{\hbar} S(\vec{p}, t_i, t_r)} \quad (\text{A.7})$$

$$= e^{i\omega_q t_r - \frac{i}{\hbar} \left( \frac{\vec{p}^2}{2m} + I_p + \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{4m} \right) t_r} \left( \sum_{n=-\infty}^{+\infty} J_n(u) e^{i2m\omega t_r} \right) \left( \sum_{r=-\infty}^{+\infty} i^r J_r(v) e^{ir\omega t_r} \right) \quad (\text{A.8})$$

$$= e^{i\omega_q t_r - \frac{i}{\hbar} \left( \frac{\vec{p}^2}{2m} + I_p + \frac{e^2 \vec{A}_0^2}{4m} \right) t_r} \sum_{n,r} J_n(u) J_r(v) e^{i(2n+r)\omega t_r + ir\frac{\pi}{2}} \quad (\text{A.9})$$

où par souci de simplicité, nous avons omis les termes en  $t_i$ , où  $J_n$  et  $J_r$  sont les fonctions de Bessel de première espèce d'ordres respectifs  $n$  et  $r$ , et où les quantités  $u$  et  $v$  sont définies par :

$$\begin{cases} u = \frac{e^2 \bar{A}_0^2}{8m\hbar\omega} \\ v = \frac{e\vec{p}\cdot\bar{A}_0}{m\hbar\omega} \quad \text{où} \quad |\vec{p}| \simeq \sqrt{2m(\hbar\omega_q - I_p)} \end{cases} \quad (\text{A.10})$$

En insérant l'expression de  $|\vec{p}|$  dans l'équation (A.9), nous obtenons finalement :

$$e^{i\phi_q} = e^{-i\frac{e^2 \bar{A}_0^2}{4m\hbar} t_r} \sum_{n,r} J_n(u) J_r(v) e^{i(2n+r)\omega t_r + ir\frac{\pi}{2}} \quad (\text{A.11})$$

Jusqu'ici, nous avons considéré un seul demi-cycle laser. Étudions à présent comment se somment les événements de demi-cycles successifs, autrement dit comment les événements se produisant entre  $t_i$  et  $t_f$  s'additionnent avec ceux entre  $t_i + T/2$  et  $t_f + T/2$ ,  $T = 2\pi/\omega$  étant la période du laser. Du fait du changement de signe du champ électrique dans l'équation (A.1), le dipôle change également de signe. Et comme mentionné dans [Pedatzur et al. 2015],  $\vec{p}$  change de signe entre deux demi-cycles consécutifs, donc  $v$  aussi. En appliquant alors l'identité  $\forall r \in \mathbb{Z}$ ,  $J_r(-u) = J_{-r}(u) = (-1)^r J_r(u)$ , nous trouvons :

$$\vec{x}_\omega^{sum} \propto e^{-i\frac{e^2 \bar{A}_0^2}{4m\hbar} t_r} \sum_{n,r} J_n(u) J_r(v) e^{i(2n+r)\omega t_r + ir\frac{\pi}{2}} (1 - (-1)^r) \quad (\text{A.12})$$

De manière évidente, les termes de la somme sont nuls si  $r$  est pair, tandis qu'il s'ajoutent constructivement pour les  $r$  impairs. Pour de faibles intensités laser, les termes en  $(2n+r)\omega t_r$  dominant par rapport à  $\frac{e^2 \bar{A}_0^2}{4m\hbar} t_r$ . La génération de l'harmonique  $q$  est ainsi gouvernée par des processus multiphotoniques consistant en l'absorption de  $(2n+r)$  photons fondamentaux. L'ordre harmonique  $q$  étant de même parité que  $r$ , seules les harmoniques impaires sont générées. Enfin, les ordres des fonctions de Bessel mises en jeu sont d'autant plus élevés que l'ordre harmonique est élevé. Puisque les amplitudes de ces fonctions décroissent avec leur ordre, le signal harmonique décroît avec l'ordre harmonique en régime multiphotonique.

## Annexe B

# Ellipticité en fonction de l'orientation de la lame quart d'onde

Considérons un champ incident polarisé linéairement qui va traverser une lame biréfringente introduisant un retard  $\phi$  entre les deux composantes selon ses lignes neutres. Supposons pour simplifier que ces dernières sont orientées dans les directions verticale et horizontale, et notons  $\theta$  le plus petit angle entre la polarisation incidente et l'un des axes neutres.

Nous utilisons le formalisme de Jones pour écrire l'état de polarisation après traversée de la lame à retard :

$$\begin{pmatrix} E_{out,x} \\ E_{out,y} \end{pmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & e^{-i\phi} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} E_{in,x} \\ E_{in,y} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{in,x} \\ E_{in,y} e^{-i\phi} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_0 \cos \theta \\ E_0 \sin \theta e^{-i\phi} \end{pmatrix} \quad (\text{B.1})$$

La polarisation en sortie est donc une ellipse d'équation [Born et Wolf 2003] :

$$\frac{E_{out,x}^2}{E_{in,x}^2} + \frac{E_{out,y}^2}{E_{in,y}^2} - 2 \frac{E_{out,x} E_{out,y}}{E_{in,x} E_{in,y}} \cos \phi = \sin^2 \phi \quad (\text{B.2})$$

que nous avons représentée sur la figure B.1.

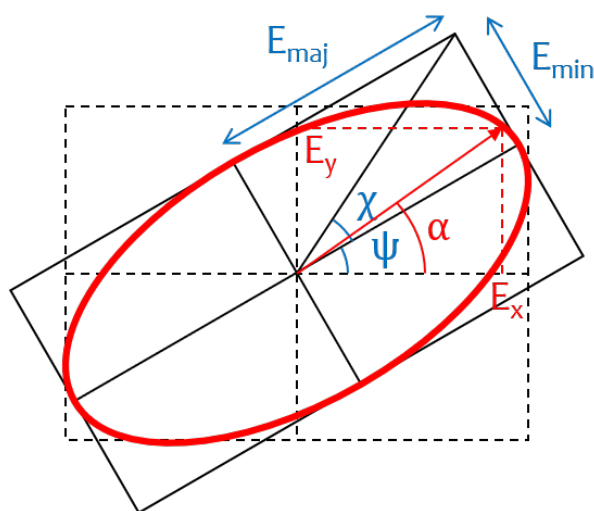


FIGURE B.1 – Ellipse de polarisation. L'angle  $\alpha$  est défini tel que  $\tan \alpha = \frac{E_{in,y}}{E_{in,x}}$ .



L'ellipticité vaut [Born et Wolf 2003] :

$$\epsilon = \tan \chi \tag{B.3}$$

$$= \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin (\sin 2\alpha \sin \phi) \right) \tag{B.4}$$

$$= \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin \left( \sin \left( 2 \arctan \frac{E_{in,y}}{E_{in,x}} \right) \sin \phi \right) \right) \tag{B.5}$$

$$= \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin (\sin (2 \arctan(\tan \theta)) \sin \phi) \right) \tag{B.6}$$

$$= \tan \left( \frac{1}{2} \arcsin (\sin 2\theta \sin \phi) \right) \tag{B.7}$$

Dans le cas d'une lame quart d'onde, le retard  $\phi$  vaut  $\pi/2$ . L'expression de l'ellipticité se simplifie alors et devient :

$$\epsilon = \tan \theta \tag{B.8}$$

## Annexe C

# Démonstration des formules du réseau actif

### C.1 Équation (8.25)

Le vecteur d'onde local est défini par le gradient de la phase :

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{\nabla} \left( \vec{k}_1 \cdot \vec{r} + \varphi(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \right) \quad (\text{C.1})$$

avec  $\varphi(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r})$  donnée par l'équation (8.24). Nous effectuons donc le calcul de la dérivée :

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \frac{1}{1 + \frac{\alpha^2 \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}{(1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}))^2}} \left[ \frac{\alpha \vec{\Delta k} \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}{1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} + \frac{\alpha^2 \vec{\Delta k} \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}{(1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}))^2} \right] \quad (\text{C.2})$$

$$= \vec{k}_1 + \frac{\alpha \vec{\Delta k}}{(1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}))^2 + \alpha^2 \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \left[ (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) + \alpha \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \right] \quad (\text{C.3})$$

$$= \vec{k}_1 + \frac{\alpha (\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}))}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \vec{\Delta k} \quad (\text{C.4})$$

### C.2 Équation (8.30)

Afin d'obtenir l'expression de l'amplitude relative du vecteur d'onde local dans le cas où  $\alpha = 1$ , nous commençons par réécrire l'équation (8.29) de la manière suivante :

$$|\vec{k}_s| = \left| \vec{k}_1 + \frac{\vec{\Delta k}}{2} \right| = \sqrt{k_1^2 + \vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} + \frac{\Delta k^2}{4}} \quad (\text{C.5})$$

Le terme  $\vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k}$  vaut :

$$\vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{k}_1 = -k_1^2 (1 - \cos \theta) = -2k_1^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (\text{C.6})$$

Nous calculons également  $\Delta k^2$  en prenant en compte le fait que  $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2|$  :

$$\vec{\Delta k}^2 = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1)^2 = 2k_1^2 - 2k_1^2 \cos \theta = 4k_1^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (\text{C.7})$$

Nous obtenons alors, pour  $\theta \ll 1$  :

$$|\vec{k}_s| = k_1 \sqrt{1 - 2 \sin^2 \frac{\theta}{2} + \sin^2 \frac{\theta}{2}} = k_1 \sqrt{1 - \sin^2 \frac{\theta}{2}} \simeq k_1 - \frac{k_1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (\text{C.8})$$

Soit finalement :

$$\frac{|\vec{k}_s| - k_1}{k_1} \simeq -\frac{1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (\text{C.9})$$

### C.3 Équation (8.31)

D'une manière générale, nous pouvons écrire de vecteur d'onde local dans le plan ( $xOz$ ) comme suit :

$$\vec{k}_s = \begin{pmatrix} k_s \sin \theta_s \\ k_s \cos \theta_s \end{pmatrix} \quad (\text{C.10})$$

Ainsi, l'angle  $\theta_s$  de ce vecteur d'onde s'exprime :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\vec{k}_s \cdot \vec{e}_x}{\vec{k}_s \cdot \vec{e}_z} \right) \quad (\text{C.11})$$

Dans le cas où  $\alpha = 1$ , cet angle vaut d'après l'équation (8.29) :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\vec{k}_1 \cdot \vec{e}_x + \frac{\Delta \vec{k}}{2} \cdot \vec{e}_x}{\vec{k}_1 \cdot \vec{e}_z + \frac{\Delta \vec{k}}{2} \cdot \vec{e}_z} \right) \quad (\text{C.12})$$

$$= \arctan \left( \frac{\frac{k_2}{2} \sin \theta}{k_1 + \frac{k_2}{2} \cos \theta - \frac{k_1}{2}} \right) \quad (\text{C.13})$$

En tenant compte du fait que  $k_2 = k_1$ , nous obtenons :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\sin \theta}{1 + \cos \theta} \right) \quad (\text{C.14})$$

$$= \arctan \left( \frac{2 \sin \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2}}{2 \cos^2 \frac{\theta}{2}} \right) \quad (\text{C.15})$$

$$= \frac{\theta}{2} \quad (\text{C.16})$$

### C.4 Équation (8.27)

Dans le cas où  $\alpha \ll 1$ , nous effectuons des calculs similaires à ceux de la section C.2 en partant cette fois-ci de l'équation (8.26) :

$$|\vec{k}_s| = \left| \vec{k}_1 + \alpha \overline{\Delta \vec{k}} \cos(\overline{\Delta \vec{k}} \cdot \vec{r}) \right| \quad (\text{C.17})$$

$$= \sqrt{k_1^2 + 2\alpha \vec{k}_1 \cdot \overline{\Delta \vec{k}} \cos(\overline{\Delta \vec{k}} \cdot \vec{r}) + \alpha^2 \Delta k^2 \cos^2(\overline{\Delta \vec{k}} \cdot \vec{r})} \quad (\text{C.18})$$

$$\simeq k_1 \left( 1 - 2\alpha \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos(\overline{\Delta \vec{k}} \cdot \vec{r}) \right) \quad (\text{C.19})$$

Ce qui nous conduit à :

$$\frac{|\vec{k}_s| - k_1}{k_1} \simeq -2\alpha \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos(\overline{\Delta \vec{k}} \cdot \vec{r}) \simeq -\frac{\alpha}{2} \theta^2 \cos(\overline{\Delta \vec{k}} \cdot \vec{r}) \quad (\text{C.20})$$

## C.5 Équation (8.28)

Dans le cas où  $\alpha \ll 1$ , l'angle  $\theta_s$  vaut d'après l'équation (8.26) :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\alpha k_2 \sin \theta}{k_1 - \alpha(k_1 - k_2 \cos \theta) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \right) \quad (\text{C.21})$$

En tenant compte du fait que  $k_2 = k_1$  et  $\alpha \ll 1$ , nous obtenons :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\alpha \sin \theta \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}{1 - \alpha(1 - \cos \theta) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \right) \simeq \alpha \sin \theta \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \quad (\text{C.22})$$

## C.6 Équation (8.33)

Pour  $\alpha$  quelconque, l'amplitude du vecteur d'onde local s'exprime d'après l'équation (8.32) :

$$|\vec{k}_s| = \left| \vec{k}_1 + \frac{\alpha}{1+\alpha} \vec{\Delta k} \right| = \sqrt{k_1^2 + 2 \frac{\alpha}{1+\alpha} \vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} + \frac{\alpha^2}{(1+\alpha)^2} \Delta k^2} \quad (\text{C.23})$$

En utilisant les expressions (C.6) et (C.7), nous obtenons finalement :

$$|\vec{k}_s| = k_1 \sqrt{1 - 4 \frac{\alpha}{1+\alpha} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right) + \frac{\alpha^2}{(1+\alpha)^2} 4 \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right)} \quad (\text{C.24})$$

$$= k_1 \sqrt{1 - \frac{4\alpha}{(1+\alpha)^2} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right)} \quad (\text{C.25})$$

## C.7 Équation (8.34)

D'après les équations (8.32) et (C.11), l'angle du vecteur d'onde local (dans le cas où  $\alpha$  est quelconque) est donné par :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\frac{\alpha}{1+\alpha} k_2 \sin \theta}{k_1 - \frac{\alpha}{1+\alpha} (k_1 - k_2 \cos \theta)} \right) \quad (\text{C.26})$$

Soit, en prenant en compte le fait que  $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2|$  :

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\alpha}{1+\alpha} \times \frac{\sin \theta}{1 - \frac{\alpha}{1+\alpha} (1 - \cos \theta)} \right) \quad (\text{C.27})$$

$$= \arctan \left( \frac{\sin \theta}{\frac{1+\alpha}{\alpha} - (1 - \cos \theta)} \right) \quad (\text{C.28})$$

$$= \arctan \left( \frac{\alpha \sin \theta}{1 + \alpha \cos \theta} \right) \quad (\text{C.29})$$

## C.8 Équation (8.38)

Pour une harmonique  $q$  donné, la phase de l'émission harmonique est égale (à l'accord de phase) à celle de l'infrarouge de génération multipliée par l'ordre harmonique  $q$ , autrement dit (en  $z = 0$  *i.e.* au foyer) :

$$\varphi(x) = q \vec{k}_s \cdot \vec{x} \quad (\text{C.30})$$

Le vecteur d'onde pilote est donné par l'équation (8.32) que nous rappelons ici :

$$\vec{k}_s = \vec{k}_1 + \frac{\alpha}{1 + \alpha} \vec{\Delta k} \quad (\text{C.31})$$

avec  $\vec{\Delta k} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . L'équation (C.30) devient alors :

$$\varphi(x) = q \vec{k}_1 \cdot \vec{x} + q \frac{\alpha}{1 + \alpha} (\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{x} \quad (\text{C.32})$$

D'après la figure 8.6,  $\vec{k}_1$  étant colinéaire à l'axe  $z$ , nous pouvons simplifier ainsi :

$$\varphi(x) = q \frac{\alpha}{1 + \alpha} \vec{k}_2 \cdot \vec{x} \quad (\text{C.33})$$

$$= q \frac{\alpha}{1 + \alpha} \frac{2\pi}{\lambda} x \sin \theta \quad (\text{C.34})$$

où  $\lambda$  et  $\theta$  sont respectivement la longueur d'onde de l'infrarouge et l'angle entre les deux faisceaux pilotes. Enfin, en remplaçant par l'expression de la période du réseau  $\Lambda = \lambda / \sin \theta$  et en posant  $\varphi_0 = \frac{\alpha}{1 + \alpha} \times 2\pi$ , nous obtenons :

$$\varphi(x) = q \times \frac{\alpha}{1 + \alpha} \times 2\pi \times \frac{x}{\Lambda} = q\varphi_0 \frac{x}{\Lambda} \quad (\text{C.35})$$

## Annexe D

# Calcul analytique du vecteur d'onde local dans le cadre du réseau actif pour des faisceaux de Laguerre-Gauss

### D.1 Cas général

La phase du champ analytique est donnée par l'équation (8.24) que nous développons ici en coordonnées cylindriques  $(r, \phi, z)$  dans le cas de faisceaux de Laguerre-Gauss d'indices azimutaux  $l_1$  et  $l_2$  :

$$\varphi(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r}, \Delta \ell) = \arctan \left( \frac{\alpha \sin(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi)}{1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi)} \right) \quad (\text{D.1})$$

$$= \arctan \left( \frac{\alpha \sin(k_1 z (\cos \theta - 1) - k_1 r \sin \theta \cos \phi + \Delta \ell \phi)}{1 + \alpha \cos(k_1 z (\cos \theta - 1) - k_1 r \sin \theta \cos \phi + \Delta \ell \phi)} \right) \quad (\text{D.2})$$

où  $\Delta \ell = l_2 - l_1$ .

Pour obtenir le vecteur d'onde local, il nous suffit d'évaluer le gradient de cette phase. Afin de simplifier le calcul, nous pouvons écrire  $\varphi = f\left(\frac{u}{v}\right)$  avec  $f = \arctan$ ,  $u = \alpha \sin$  et  $v = 1 + \alpha \cos$ . La dérivée se calcule alors de la façon suivante :

$$\varphi' = \left(\frac{u}{v}\right)' \frac{1}{1 + \left(\frac{u}{v}\right)^2} = \frac{u'v - uv'}{v^2} \frac{1}{1 + \left(\frac{u}{v}\right)^2} = \frac{u'v - uv'}{u^2 + v^2} \quad (\text{D.3})$$

Nous calculons ainsi le gradient en coordonnées cylindriques :

$$\nabla_r \varphi = \frac{\partial \varphi}{\partial r} \quad (\text{D.4})$$

$$= \frac{-\alpha k_1 \sin \theta \cos \phi \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi) (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi))}{\alpha^2 \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi) + (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi))^2} - \frac{\alpha^2 k_1 \sin \theta \cos \phi \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi)}{\alpha^2 \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi) + (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi))^2} \quad (\text{D.5})$$

$$= \frac{-\alpha k_1 \sin \theta \cos \phi}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi)} (\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta \ell \phi)) \quad (\text{D.6})$$

$$\nabla_{\phi}\varphi = \frac{1}{r} \frac{\partial\varphi}{\partial\phi} \quad (\text{D.7})$$

$$= \frac{1}{r} \left( \frac{\alpha (\Delta\ell + k_1 r \sin\theta \sin\phi) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi) (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi))}{\alpha^2 \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi) + (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi))^2} + \frac{\alpha^2 (\Delta\ell + k_1 r \sin\theta \sin\phi) \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi)}{\alpha^2 \sin^2(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi) + (1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi))^2} \right) \quad (\text{D.8})$$

$$= \alpha \frac{\frac{\Delta\ell}{r} + k_1 \sin\theta \sin\phi}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi)} (\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi)) \quad (\text{D.9})$$

$$\nabla_z\varphi = \frac{\partial\varphi}{\partial z} \quad (\text{D.10})$$

$$= \frac{\alpha k_1 (\cos\theta - 1)}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi)} (\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi)) \quad (\text{D.11})$$

Nous trouvons donc pour le vecteur d'onde local :

$$\vec{k}_s = \vec{k}_1 + \vec{\nabla}\varphi \quad (\text{D.12})$$

$$= \vec{k}_1 + \frac{\alpha (\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi))}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi)} \left( \vec{\Delta k} + \frac{\Delta\ell}{r} \vec{e}_{\phi} \right) \quad (\text{D.13})$$

Cette dernière équation est bien équivalente à l'équation (C.4) dans les cas où  $\Delta\ell = 0$ .

## D.2 Cas particuliers

Si  $\alpha \ll 1$  (régime perturbatif), nous obtenons :

$$\vec{k}_s = \vec{k}_1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r} + \Delta\ell\phi) \left( \vec{\Delta k} + \frac{\Delta\ell}{r} \vec{e}_{\phi} \right) \quad (\text{D.14})$$

À l'inverse, pour  $\alpha = 1$ , nous trouvons :

$$\vec{k}_s = \vec{k}_1 + \frac{1}{2} \left( \vec{\Delta k} + \frac{\Delta\ell}{r} \vec{e}_{\phi} \right) \quad (\text{D.15})$$

Notons que nous retrouvons bien les résultats du chapitre 8 en prenant  $\Delta\ell = 0$ .

# Bibliographie

- P. Agostini et L. F. DiMauro. The physics of attosecond light pulses. *Reports on Progress in Physics*, 67(6), 2004.
- L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, et J. P. Woerdman. Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes. *Physical Review A*, 45(11), 1992.
- P. Antoine, A. L’Huillier, et M. Lewenstein. Attosecond Pulse Trains Using High-Order Harmonics. *Physical Review Letters*, 77(7), 1996a.
- P. Antoine, A. L’Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, et B. Carré. Theory of high-order harmonic generation by an elliptically polarized laser field. *Physical Review A*, 53(3), 1996b.
- P. Antoine, B. Carré, A. L’Huillier, et M. Lewenstein. Polarization of high-order harmonics. *Physical Review A*, 55(2), 1997.
- R. K. Arora et Z. Lu. Graphical study of Laguerre-Gaussian beam modes. *IEE Proceedings : Microwaves, Antennas and Propagation*, 141(3), 1994.
- A. Bahabad, M. M. Murnane, et H. C. Kapteyn. Quasi-phase-matching of momentum and energy in nonlinear optical processes. *Nature Photonics*, 4 :570–575, 2010.
- Ph. Balcou, P. Salières, A. L’Huillier, et M. Lewenstein. Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces. *Physical Review A*, 55(4), 1997.
- H.-C. Bandulet, D. Comtois, E. Bisson, A. Fleischer, H. Pépin, J.-C. Kieffer, P. B. Corkum, et D. M. Villeneuve. Gating attosecond pulse train generation using multicolor laser fields. *Physical Review A*, 81(013803), 2010.
- G. Barbastathis, C. Sheppard, et S. B. Oh. 2.71 Optics. Massachusetts Institute of Technology : MIT OpenCourseWare, <https://ocw.mit.edu>, Spring 2009.
- L. Barreau, K. Veyrinas, V. Gruson, S. J. Weber, T. Auguste, J.-F. Hergott, F. Lepetit, B. Carré, J.-C. Houver, D. Dowek, et P. Salières. Evidence of depolarization and ellipticity of high harmonics driven by ultrashort bichromatic circularly polarized fields. *Nature Communications*, 9(4727), 2018.
- D. Bauer et P. Mulser. Exact field ionization rates in the barrier-suppression regime from numerical time-dependent Schrödinger-equation calculations. *Physical Review A*, 59(569), 1999.
- V. Yu. Bazhenov, M. V. Vasnietsov, et M. S. Soskin. Laser beams with screw dislocations in their wavefronts. *Journal of Experimental and Theoretical Physics Letters*, 52(8), 1990.
- S. Beaulieu, A. Ferré, R. Généaux, R. Canonge, D. Descamps, B. Fabre, N. Fedorov, F. Légaré, S. Petit, T. Ruchon, V. Blanchet, Y. Mairesse, et B. Pons. Universality of photoelectron



- circular dichroism in the photoionization of chiral molecules. *New Journal of Physics*, 18, 2016.
- M. W. Beijersbergen, L. Allen, H. E. L. O. van der Veen, et J. P. Woerdman. Astigmatic laser mode converters and transfer of orbital angular momentum. *Optics Communications*, 96(1,2,3), 1993.
- M. W. Beijersbergen, R. P. C. Coerwinkel, M. Kristensen, et J. P. Woerdman. Helical-wavefront laser beams produced with a spiral phaseplate. *Optics Communications*, 112(5-6), 1994.
- J. B. Bertrand, H. J. Wörner, H.-C. Bandulet, É. Bisson, M. Spanner, J.-C. Kieffer, D. M. Villeneuve, et P. B. Corkum. Ultrahigh-Order Wave Mixing in Noncollinear High Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 106(023001), 2011.
- R. A. Beth. Mechanical Detection and Measurement of the Angular Momentum of Light. *Physical Review*, 50(2), 1936.
- A. V. Birulin, V. T. Platonenko, et V. V. Strelkov. High-order harmonic generation in colliding beams. *Quantum Electronics*, 26(5), 1996.
- K. Yu. Bliokh. Geometrical Optics of Beams with Vortices : Berry Phase and Orbital Angular Momentum Hall Effect. *Physical Review Letters*, 97(4), 2006.
- C. V. S. Borges, M. Hor-Meyll, J. A. O. Huguenin, et A. Z. Khoury. Bell-like inequality for the spin-orbit separability of a laser beam. *Physical Review A*, 82(033833), 2010.
- M. Born et E. Wolf. *Principles of Optics, Seventh (expanded) Edition*. Cambridge University Press, 2003.
- R. W. Boyd. *Nonlinear Optics, Third Edition*. Academic Press, 2008.
- É. Brasselet, Y. Izdebskaya, V. Shvedov, A. S. Desyatnikov, et W. Krolikowski. Dynamics of optical spin-orbit coupling in uniaxial crystals. *Optics Letters*, 34(7), 2009.
- F. Brizuela, C. M. Heyl, P. Rudawski, D. Kroon, L. Rading, J. M. Dahlström, J. Mauritsson, P. Johnsson, C. M. Arnold, et A. L'Huillier. Efficient high-order harmonic generation boosted by below-threshold harmonics. *Scientific Reports*, 3(1410), 2013.
- J. Brossel, A. Kastler, et J. Winter. Création optique d'une inégalité de population entre les sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental des atomes. *Journal de Physique et Le Radium*, 13(12), 1952.
- K. S. Budil, P. Salières, A. L'Huillier, T. Ditmire, et M. D. Perry. Influence of ellipticity on harmonic generation. *Physical Review A*, 48(5), 1993.
- D. P. Caetano, M. P. Almeida, P. H. Souto Ribeiro, J. A. O. Huguenin, B. Coutinho dos Santos, et A. Z. Khoury. Conservation of orbital angular momentum in stimulated down-conversion. *Physical Review A*, 66(041801), 2002.
- J. Caillat, A. Maquet, S. Haessler, B. Fabre, T. Ruchon, P. Salières, Y. Mairesse, et R. Taïeb. Attosecond Resolved Electron Release in Two-Color Near-Threshold Photoionization of N<sub>2</sub>. *Physical Review Letters*, 106(9), 2011.
- A. Camper. *Spectroscopie de phase multi-dimensionnelle de l'émission attoseconde moléculaire*. PhD thesis, Université Paris-Sud. NNT : 2014PA112024, 2014.

- A. Camper, H. Park, Y. Hang Lai, H. Kageyama, S. Li, B. K. Talbert, C. I. Blaga, P. Agostini, T. Ruchon, et L. F. DiMauro. Tunable mid-infrared source of light carrying orbital angular momentum in the femtosecond regime. *Optics Letters*, 42(19), 2017.
- C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, et F. Laloë. *Mécanique quantique*. Hermann, 1973.
- P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71(1994), 1993.
- J. Courtial, K. Dholakia, L. Allen, et M. J. Padgett. Second-harmonic generation and the conservation of orbital angular momentum with high-order Laguerre-Gaussian modes. *Physical Review A*, 56(5), 1997.
- J. M. Dahlström, A. L'Huillier, et J. Mauritsson. Quantum mechanical approach to probing the birth of attosecond pulses using a two-colour field. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 44(9), 2011.
- A. J. DeMaria, D. A. Stetser, et H. Heynau. Self mode-locking of lasers with saturable absorbers. *Applied Physics Letters*, 8(7), 1966.
- K. Dholakia, N. B. Simpson, M. J. Padgett, et L. Allen. Second-harmonic generation and the orbital angular momentum of light. *Physical Review A*, 54(5), 1996.
- P. Dietrich, N. H. Burnett, M. Ivanov, et P. B. Corkum. High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light. *Physical Review A*, 50(5), 1994.
- B. K. Dinh. *Phase-Matched High Order Harmonic Generation and Applications*. PhD thesis, Centre for Atom Optics and Ultrafast Spectroscopy Faculty of Engineering and Industrial Sciences, 2012.
- K. M. Dorney, J. L. Ellis, C. Hernández-García, D. D. Hickstein, C. A. Mancuso, N. Brooks, T. Fan, G. Fan, D. Zusin, C. Gentry, P. Grychtol, H. C. Kapteyn, et M. M. Murnane. Helicity-Selective Enhancement and Polarization Control of Attosecond High Harmonic Waveforms Driven by Bichromatic Circularly Polarized Laser Fields. *Physical Review Letters*, 119(063201), 2017.
- N. Dudovich, O. Smirnova, J. Levesque, Y. Mairesse, M. Yu. Ivanov, D. M. Villeneuve, et P. B. Corkum. Measuring and controlling the birth of attosecond XUV pulses. *Nature Physics*, 2006.
- H. Eichmann, S. Meyer, K. Riepl, C. Momma, et B. Wellegehausen. Generation of short-pulse tunable xuv radiation by high-order frequency mixing. *Physical Review A*, 50(4), 1994.
- H. Eichmann, A. Egbert, S. Nolte, C. Momma, B. Wellegehausen, W. Becker, S. Long, et J. K. McIver. Polarization-dependent high-order two-color mixing. *Physical Review A*, 51(5), 1995.
- A. Einstein. On the Quantum Theory of Radiation. *Physikalische Zeitschrift*, 18 :121–128, 1917.
- J. L. Ellis, K. M. Dorney, C. G. Durfee, C. Hernández-García, F. Dollar, C. A. Mancuso, T. Fan, D. Zusin, C. Gentry, P. Grychtol, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, et D. D. Hickstein. Phase matching of noncollinear sum and difference frequency high harmonic generation above and below the critical ionization level. *Optics Express*, 25(9), 2017.
- A. Ferré, D. Staedter, F. Burgy, M. Dagan, D. Descamps, N. Dudovich, S. Petit, H. Soifer, V. Blanchet, et Y. Mairesse. High-order harmonic transient grating spectroscopy of SF<sub>6</sub> molecular vibrations. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 47(124023), 2014.

- M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray, et C. Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3), 1988.
- A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, et O. Cohen. Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation. *Nature Photonics*, 8 :543–549, 2014.
- S. V. Fomichev, P. Breger, B. Carré, P. Agostini, et D. F. Zaretsky. Non-collinear high-harmonic generation. *Laser Physics*, 12 :383–388, 2002.
- R. L. Fork, C. H. Brito Cruz, P.C. Becker, et C. V. Shank. Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation. *Optics Letters*, 12(7), 1987.
- S. Fürhapter, A. Jesacher, S. Bernet, et M. Ritsch-Marte. Spiral interferometry. *Optics Letters*, 30(15), 2005.
- M. B. Gaarde, P. Antoine, A. Persson, B. Carré, A. L’Huillier, et C.-G. Wahlström. High-order tunable sum and difference frequency mixing in the XUV region. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 29(5), 1996a.
- M. B. Gaarde, A. L’Huillier, et M. Lewenstein. Theory of high-order sum and difference frequency mixing in a strong bichromatic laser field. *Physical Review A*, 54(5), 1996b.
- G. A. Garcia, L. Nahon, M. Lebech, J. C. Houver, D. Doweck, et I. Powis. Circular dichroism in the photoelectron angular distribution from randomly oriented enantiomers of camphor. *The Journal of Chemical Physics*, 119 :8781–8784, 2003.
- G. Gariepy, J. Leach, K. T. Kim, T. J. Hammond, E. Frumker, R. W. Boyd, et P. B. Corkum. Creating High-Harmonic Beams with Controlled Orbital Angular Momentum. *Physical Review Letters*, 113(153901), 2014.
- R. Généaux. *Le moment angulaire de la lumière en génération d’harmoniques d’ordre élevé*. PhD thesis, Université Paris-Saclay. NNT : 2016SACLS474, 2016.
- R. Généaux, A. Camper, T. Auguste, O. Gobert, J. Caillat, R. Taïeb, et T. Ruchon. Synthesis and characterization of attosecond light vortices in the extreme ultraviolet. *Nature Communications*, 7(12583), 2016.
- A. I. Gonzalez, G. Jargot, P. Rigaud, L. Lavenu, F. Guichard, A. Comby, T. Auguste, O. Soublemontier, M. Bougeard, Y. Zaouter, P. Georges, M. Hanna, et T. Ruchon. Spatio-spectral structures in high harmonic generation driven by tightly focused high repetition rate lasers. *Journal of the Optical Society of America B*, 35(4), 2018.
- M. Granata, C. Buy, R. Ward, et M. Barsuglia. Higher-Order Laguerre-Gauss Mode Generation and Interferometry for Gravitational Wave Detectors. *Physical Review Letters*, 105(231102), 2010.
- O. Granier. La polarisation de la lumière. Physique en CPGE et L1 - L2, [olivier.granier.free.fr/cariboost\\_files/Tr-PC-pola-lumiere-1213.pdf](http://olivier.granier.free.fr/cariboost_files/Tr-PC-pola-lumiere-1213.pdf).
- H. Gross. *Handbook of Optical Systems : Volume 1. Fundamentals of Technical Optics*. Wiley-VCH, 2005.
- V. Gruson. *Polarimétrie harmonique et spectroscopie de photoionisation attoseconde*. PhD thesis, Université Paris-Saclay. NNT : 2015SACLS227, 2015.

- V. Gruson, L. Barreau, Á. Jiménez-Galan, F. Risoud, J. Caillat, A. Maquet, B. Carré, F. Lepetit, J.-F. Hergott, T. Ruchon, L. Argenti, R. Taïeb, F. Martín, et P. Salières. Attosecond dynamics through a Fano resonance : Monitoring the birth of a photoelectron. *Science*, 354(6313), 2016.
- V. Gruson, S. J. Weber, L. Barreau, J.-F. Hergott, F. Lepetit, T. Auguste, B. Carré, P. Salières, et T. Ruchon. Interferometric control of the ellipticity of a femtosecond extreme ultraviolet source. *Journal of the Optical Society of America B*, 35(4), 2018.
- G. Grynberg, A. Aspect, et C. Fabre. *Quantum Optics : From the Semi-classical Approach to Quantized Light*. Cambridge University Press, 2010.
- S. Haessler, W. Boutu, M. Stankiewicz, L. J. Frasinski, S. Weber, J. Caillat, R. Taïeb, A. Maquet, P. Breger, et P. Monchicourt. Attosecond chirp-encoded dynamics of light nuclei. *Journal of Physics B :Atomic, Molecular and Optical Physics*, 43(13), 2009a.
- S. Haessler, B. Fabre, J. Higuët, J. Caillat, T. Ruchon, P. Breger, B. Carré, E. Constant, A. Maquet, E. Mével, P. Salières, R. Taïeb, et Y. Mairesse. Phase-resolved attosecond near-threshold photoionization of molecular nitrogen. *Physical Review A*, 80(1), 2009b.
- S. Haessler, J. Caillat, W. Boutu, C. Giovanetti-Teixeira, T. Ruchon, T. Auguste, Z. Diveki, P. Breger, A. Maquet, B. Carré, R. Taïeb, et P. Salières. Attosecond imaging molecular electronic wavepackets. *Nature Physics*, 6 :200–206, 2010.
- L. Hareli, L. Lobachinsky, G. Shoulga, Y. Eliezer, L. Michaeli, et A. Bahabad. On-the-fly control of high-harmonic generation using a structured pump beam. *Physical Review Letters*, 120(183902), 2018.
- T. Hasegawa et T. Shimizu. Frequency-doubled Hermite-Gaussian beam and the mode conversion to the Laguerre-Gaussian beam. *Optics Communications*, 160 :103–108, 1999.
- H. He, M. E. J. Friese, N. R. Heckenberg, et H. Rubinsztein-Dunlop. Direct Observation of Transfer of Angular Momentum to Absorptive Particles from a Laser Beam with a Phase Singularity. *Physical Review Letters*, 75(5), 1995.
- S. W. Hell et J. Wichmann. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission : stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy. *Optics Letters*, 19(11), 1994.
- E. Hemsing, A. Knyazik, M. Dunning, D. Xiang, A. Marinelli, C. Hast, et J. B. Rosenzweig. Coherent optical vortices from relativistic electron beams. *Nature Physics*, 9 :549–553, 2013.
- C. Hernández-García, A. Picón, J. San Román, et L. Plaja. Attosecond Extreme Ultraviolet Vortices from High-Order Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 111(083602), 2013.
- C. M. Heyl, P. Rudawski, F. Brizuela, S. M. Bengtsson, J. Mauritsson, et A. L’Huillier. Macroscopic Effects in Noncollinear High-Order Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 112(143902), 2014.
- D. D. Hickstein, F. J. Dollar, P. Grychtol, J. L. Ellis, R. Knut, C. Hernández-García, D. Zusin, C. Gentry, J. M. Shaw, T. Fan, K. M. Dorney, A. Becker, A. Jaroń-Becker, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, et C. G. Durfee. Non-collinear generation of angularly isolated circularly polarized high harmonics. *Nature Photonics*, 9 :743–750, 2015.
- R. Hilbig et R. Wallenstein. Narrowband tunable VUV radiation generated by nonresonant sum- and difference-frequency mixing in xenon and krypton. *Applied Optics*, 21(5), 1982.
- J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, et D. M. Villeneuve. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432 :867–871, 2004.

- M. Ivanov, P. B. Corkum, T. Zuo, et A. Bandrauk. Routes to Control of Intense-Field Atomic Polarizability. *Physical Review Letters*, 74(15), 1995.
- C. Jin, J. B. Bertrand, R. R. Lucchese, H. J. Wörner, P. B. Corkum, D. M. Villeneuve, A.-T. Le, et C. D. Lin. Intensity dependence of multiple orbital contributions and shape resonance in high-order harmonic generation of aligned N<sub>2</sub> molecules. *Physical Review A*, 85(1), 2012.
- E. Karimi, R. W. Boyd, P. de la Hoz, H. de Guise, J. Řeháček, Z. Hradil, A. Aiello, G. Leuchs, et L. L. Sánchez-Soto. Radial quantum number of Laguerre-Gauss modes. *Physical Review A*, 89(063813), 2014a.
- E. Karimi, D. Giovannini, E. Bolduc, N. Bent, F. M. Miatto, M. J. Padgett, et R. W. Boyd. Exploring the quantum nature of the radial degree of freedom of a photon via Hong-Ou-Mandel interference. *Physical Review A*, 89(013829), 2014b.
- A. Kastler. Quelques suggestions concernant la production optique et la détection optique d'une inégalité de population des niveaux de quantification spatiale des atomes. Application à l'expérience de Stern et Gerlach et à la résonance magnétique. *Journal de Physique et Le Radium*, 11(6), 1950.
- S. Kazamias et Ph. Balcou. Intrinsic chirp of attosecond pulses : Single-atom model versus experiment. *Physical Review A*, 69(6), 2004.
- S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, S. Sebban, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, et Ph. Balcou. Global Optimization of High Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 90(19), 2003.
- L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, 20(5), 1965.
- O. Kfir, P. Grychtol, E. Turgut, R. Knut, D. Zusin, D. Popmintchev, T. Popmintchev, H. Nembach, J. M. Shaw, A. Fleischer, H. Kapteyn, M. Murnane, et O. Cohen. Generation of bright phase-matched circularly-polarized extreme ultraviolet high harmonics. *Nature Photonics*, 9 : 99–105, 2015.
- O. Kfir, E. Bordo, G. I. Haham, O. Lahav, A. Fleischer, et O. Cohen. In-line production of a bi-circular field for generation of helically polarized high-order harmonics. *Applied Physics Letters*, 108(211106), 2016.
- I. J. Kim, C. Kim, H. Kim, G. Lee, J. Park, D. Cho, et C. Nam. Highly Efficient High-Harmonic Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field. *Physical Review Letters*, 94 (243901), 2005.
- K. T. Kim, C. Zhang, A. D. Shiner, S. E. Kirkwood, E. Frumker, G. Gariepy, A. Naumov, D. M. Villeneuve, et P. B. Corkum. Manipulation of quantum paths for space-time characterization of attosecond pulses. *Nature Physics*, 9 :159–163, 2013.
- I. Kimel et L. R. Elias. Relations Between Hermite and Laguerre Gaussian Modes. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 29(9), 1993.
- K. Klünder, J. M. Dahlström, M. Gisselbrecht, T. Fordell, M. Swoboda, D. Guénot, P. Johnsson, J. Caillat, J. Mauritsson, A. Maquet, R. Taïeb, et A. L'Huillier. Probing Single-Photon Ionization on the Attosecond Time Scale. *Physical Review Letters*, 106(14), 2011.
- F. Kong, C. Zhang, F. Bouchard, Z. Li, G. G. Brown, Ko D. Hyuk, T. J. Hammond, L. Arissian, R. W. Boyd, E. Karimi, et P. B. Corkum. Controlling the orbital angular momentum of high harmonic vortices. *Nature Communications*, 8(14970), 2017.

- M. Krenn, M. Huber, R. Fickler, R. Lapkiewicz, S. Ramelow, et A. Zeilinger. Generation and confirmation of a (100x100)-dimensional entangled quantum system. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 111(17), 2014.
- E. W. Larsen, S. Carlström, E. Lorek, C. M. Heyl, D. Paleček, A. L’Huillier, D. Zigmantas, et J. Mauritsson. Trajectory Resolved High-order Harmonic Generation in Elliptically Polarized Fields in the Presence of Window Resonances. *arXiv*, (1506.08660v1), 2015.
- J. Leach, S. Keen, M. J. Padgett, C. Saunter, et G. D. Love. Direct measurement of the skew angle of the Poynting vector in a helically phased beam. *Optics Express*, 14(25), 2006.
- J. Leach, B. Jack, J. Romero, A. K. Jha, A. M. Yao, S. Franke-Arnold, D. G. Ireland, R. W. Boyd, S. M. Barnett, et M. J. Padgett. Quantum correlations in optical angle-orbital angular momentum variables. *Science*, 329(5992), 2010.
- J. Levesque, Y. Mairesse, N. Dudovich, H. Pépin, J.-C. Kieffer, P. B. Corkum, et D. M. Villeneuve. Polarization State of High-Order Harmonic Emission from Aligned Molecules. *Physical Review Letters*, 99(24), 2007.
- M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier, et P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3), 1994.
- W. Li, X. Zhou, R. Lock, S. Patchkovskii, A. Stolow, H. C. Kapteyn, et M. M. Murnane. Time-resolved dynamics in N<sub>2</sub>O<sub>4</sub> probed using high harmonic generation. *Science*, 322(5905), 2008.
- B. Mahieu, D. Gauthier, M. Perdrix, X. Ge, W. Boutu, F. Lepetit, F. Wang, B. Carré, T. Auguste, H. Merdji, D. Garzella, et O. Gobert. Spatial quality improvement of a Ti :Sapphire laser beam by modal filtering. *Applied Physics B*, 118(1), 2015.
- T. H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, 187(4736), 1960.
- Y. Mairesse. *Génération et caractérisation d’impulsions attosecondes*. PhD thesis, Université Paris-Sud, 2005.
- Y. Mairesse, D. Zeidler, N. Dudovich, M. Spanner, J. Levesque, D. M. Villeneuve, et P. B. Corkum. High-Order Harmonic Transient Grating Spectroscopy in a Molecular Jet. *Physical Review Letters*, 100(143903), 2008.
- Y. Mairesse, J. Higuët, N. Dudovich, D. Shafir, B. Fabre, E. Mével, E. Constant, S. Patchkovskii, Z. Walters, M. Yu. Ivanov, et O. Smirnova. High Harmonic Spectroscopy of Multichannel Dynamics in Strong-Field Ionization. *Physical Review Letters*, 104(21), 2010.
- E. Mansten, J. M. Dahlström, J. Mauritsson, T. Ruchon, A. L’Huillier, J. Tate, M. B. Gaarde, P. Eckle, A. Guandalini, M. Holler, F. Schapper, L. Gallmann, et U. Keller. Spectral Signature of Short Attosecond Pulse Trains. *Physical Review Letters*, 102(083002), 2009.
- L. Marrucci, C. Manzo, et D. Paparo. Optical Spin-to-Orbital Angular Momentum Conversion in Inhomogeneous Anisotropic Media. *Physical Review Letters*, 96(16), 2006.
- H. Mashiko, S. Gilbertson, C. Li, S. D. Khan, M. M. Shakya, E. Moon, et Z. Chang. Double Optical Gating of High-Order Harmonic Generation with Carrier-Envelope Phase Stabilized Lasers. *Physical Review Letters*, 100(103906), 2008.
- J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Gustafsson, A. L’Huillier, K. J. Schafer, et M. B. Gaarde. Attosecond Pulse Trains Generated Using Two Color Laser Fields. *Physical Review Letters*, 97(013001), 2006.

- F. J. McClung et R. W. Hellwarth. Giant Optical Pulsations from Ruby. *Journal of Applied Physics*, 33(3), 1962.
- A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, et C. K. Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *Journal of the Optical Society of America B*, 4(4), 1987.
- J. Mendoza-Hernández, M. L. Arroyo-Carrasco, M. D. Iturbe-Castillo, et S. Chávez-Cerda. Laguerre-Gauss beams versus Bessel beams showdown : peer comparison. *Optics Letters*, 40, 2015.
- D. B. Milošević, W. Becker, et R. Kopold. Generation of circularly polarized high-order harmonics by two-color coplanar field mixing. *Physical Review A*, 61(063403), 2000.
- M. Möller, Y. Cheng, S. D. Khan, B. Zhao, K. Zhao, M. Chini, G. G. Paulus, et Z. Chang. Dependence of high-order-harmonic-generation yield on driving-laser ellipticity. *Physical Review A*, 86(1), 2012.
- K. D. Moll, R. J. Jones, et J. Ye. Output coupling methods for cavity-based high-harmonic generation. *Optics Express*, 14(18), 2006.
- R. Murray, M. Spanner, S. Patchkovskii, et M. Yu. Ivanov. Tunnel Ionization of Molecules and Orbital Imaging. *Physical Review Letters*, 106(17), 2011.
- M. Negro, M. Devetta, D. Faccialá, A. G. Ciriolo, F. Calegari, F. Frassetto, L. Poletto, V. Tosa, et S. Stagira. Non-collinear high-order harmonic generation by three interfering laser beams. *Optics Express*, 22(24), 2014.
- M. Onoda, S. Murakami, et N. Nagaosa. Hall Effect of Light. *Physical Review Letters*, 93(8), 2004.
- A. Ozawa, A. Vernaleken, W. Schneider, I. Gotlibovych, Th. Udem, et T. W. Hänsch. Non-collinear high harmonic generation : a promising outcoupling method for cavity-assisted XUV generation. *Optics Express*, 16(9), 2008.
- M. J. Padgett et L. Allen. The angular momentum of light : optical spanners and the rotational frequency shift. *Optical and Quantum Electronics*, 31(1), 1999.
- G. Pariente et F. Quéré. Spatio-temporal light springs : extended encoding of orbital angular momentum in ultrashort pulses. *Optics Letters*, 40(9), 2015.
- P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, et P. Agostini. Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation. *Science*, 292(5522), 2001.
- J. Peatross, J. L. Chaloupka, et D. D. Meyerhofer. High-order harmonic generation with an annular laser beam. *Optics Letters*, 19(13), 1994.
- O. Pedatzur, G. Orenstein, V. Serbinenko, H. Soifer, B. D. Bruner, A. J. Uzan, D. S. Brambila, A. G. Harvey, L. Torlina, F. Morales, O. Smirnova, et N. Dudovich. Attosecond tunnelling interferometry. *Nature Physics*, 11 :815–819, 2015.
- M. D. Perry et J. K. Crane. High-order harmonic emission from mixed fields. *Physical Review A*, 48(6), 1993.
- T. Pfeifer, L. Gallmann, M. J. Abel, P. M. Nagel, D. M. Neumark, et S. R. Leone. Heterodyne Mixing of Laser Fields for Temporal Gating of High-Order Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 97(163901), 2006.

- W. N. Plick et M. Krenn. Physical meaning of the radial index of Laguerre-Gauss beams. *Physical Review A*, 92(063841), 2015.
- I. Powis. *Advances in Chemical Physics*, chapter Photoelectron Circular Dichroism in Chiral Molecules. Wiley, 2008.
- J. H. Poynting. The wave motion of a revolving shaft, and a suggestion as to the angular momentum in a beam of circularly polarised light. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 82(557), 1909.
- C. V. Raman et S. Bhagavantam. Experimental proof of the spin of the photon. *Indian Journal of Physics*, 6 :353–366, 1931.
- P. Rebernik Ribič, B. Rösner, D. Gauthier, E. Allaria, F. Döring, L. Foglia, L. Giannessi, N. Mahne, M. Manfredda, C. Masciovecchio, R. Mincigrucci, N. Mirian, E. Principi, E. Rousset, A. Simoncig, S. Spampinati, C. David, et G. De Ninno. Extreme-Ultraviolet Vortices from a Free-Electron Laser. *Physical Review X*, 7(031036), 2017.
- T. Roger, J. J. F. Heitz, E. M. Wright, et D. Faccio. Non-collinear interaction of photons with orbital angular momentum. *Scientific Reports*, 3(3491), 2013.
- L. Roos, E. Constant, E. Mevel, Ph. Balcou, D. Descamps, M. B. Gaarde, A. Valette, R. Haroutounian, et A. L’Huillier. Controlling phase-matching of high-order harmonic generation by manipulating the fundamental field. *Physical Review A*, 60(5010), 1999.
- H. Ruf. *Dynamique moléculaire par imagerie attoseconde*. PhD thesis, Université Bordeaux 1, 2012.
- V. D. Salakhutdinov, E. R. Eliel, et W. Löffler. Full-Field Quantum Correlations of Spatially Entangled Photons. *Physical Review Letters*, 108(173604), 2012.
- P. Salières et M. Lewenstein. Generation of ultrashort coherent XUV pulses by harmonic conversion of intense laser pulses in gases : towards attosecond pulses. *Measurement Science and Technology*, 12 :1818–1827, 2001.
- P. Salières, A. L’Huillier, et M. Lewenstein. Coherence Control of High-Order Harmonics. *Physical Review Letters*, 74(19), 1995.
- P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold, W. Becker, D. B. Milošević, A. Sanpera, et M. Lewenstein. Feynman’s Path-Integral Approach for Intense-Laser-Atom Interactions. *Science*, 292(5518), 2001.
- P. Salières, A. Maquet, S. Haessler, J. Caillat, et R. Taïeb. Imaging orbitals with attosecond and Ångström resolutions : toward attochemistry? *Reports on Progress in Physics*, 75(6), 2012.
- K. J. Schafer, B. Yang, L. F. DiMauro, et K. C. Kulander. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Physical Review Letters*, 70(1599), 1993.
- A. L. Schawlow et C. H. Townes. Infrared and Optical Masers. *Physical Review*, 112(6), 1958.
- D. Shafir, H. Soifer, B. D. Bruner, M. Dagan, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, M. Yu. Ivanov, O. Smirnova, et N. Dudovich. Resolving the time when an electron exits a tunnelling barrier. *Nature*, 485 :343–346, 2012.
- A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, 1986.
- W. H. Southwell. Wave-front estimation from wave-front slope measurements. *Journal of the Optical Society of America*, 70(8), 1980.



- V. V. Strelkov. Theory of high-order harmonic generation and attosecond pulse emission by a low-frequency elliptically polarized laser field. *Physical Review A*, 74(1), 2006.
- V. V. Strelkov, A. A. Gonoskov, I. A. Gonoskov, et M. Yu. Ryabikin. Origin for Ellipticity of High-Order Harmonics Generated in Atomic Gases and the Sublaser-Cycle Evolution of Harmonic Polarization. *Physical Review Letters*, 107(4), 2011.
- D. Strickland et G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3), 1985.
- J. Strohaber, M. Zhi, A. V. Sokolov, A. A. Kolomenskii, G. G. Paulus, et H. A. Schuessler. Coherent transfer of orbital angular momentum in multi-order Raman sideband generation. *Optics Letters*, 37(16), 2012.
- K. Sueda, G. Miyaji, N. Miyanaga, et M. Nakatsuka. Laguerre-Gaussian beam generated with a multilevel spiral phase plate for high intensity laser pulses. *Optics Express*, 12(15), 2004.
- A. Tehlar, P. M. Kraus, et H. J. Wörner. Probing electronic dynamics during photochemical reactions. *CHIMIA International Journal for Chemistry*, 67(4), 2013.
- X. M. Tong et C. D. Lin. 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), 2005.
- K. Toyoda, K. Miyamoto, N. Aoki, R. Morita, et T. Omatsu. Using Optical Vortex to Control the Chirality of Twisted Metal Nanostructures. *Nano Letters*, 12(7), 2012.
- M. van Veenendaal et I. McNulty. Prediction of Strong Dichroism Induced by X Rays Carrying Orbital Momentum. *Physical Review Letters*, 98(157401), 2007.
- K. Varjú, Y. Mairesse, B. Carré, M. B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. López-Martens, J. Mauritsson, K. J. Schafer, Ph. Balcou, A. L’Huillier, et P. Salières. Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses. *Journal of Modern Optics*, 52(2-3), 2005.
- C. Vozzi, M. Nisoli, J.-P. Caumes, G. Sansone, S. Stagira, S. De Silvestri, M. Vecchiocattivi, D. Bassi, M. Pascolini, L. Poletto, P. Villoresi, et G. Tondello. Cluster effects in high-order harmonics generated by ultrashort light pulses. *Applied Physics Letters*, 86(11), 2005.
- C. Vozzi, M. Negro, F. Calegari, G. Sansone, M. Nisoli, S. De Silvestri, et S. Stagira. Generalized molecular orbital tomography. *Nature Physics*, 7 :822–826, 2011.
- N. L. Wagner, A. Wüest, I. P. Christov, T. Popmintchev, X. Zhou, M. M. Murnane, et H. C. Kapteyn. Monitoring molecular dynamics using coherent electrons from high harmonic generation. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 103(36), 2006.
- J. Wang, J.-Y. Yang, I. M. Fazal, N. Ahmed, Y. Yan, H. Huang, Y. Ren, Y. Yue, S. Dolinar, M. Tur, et A. E. Willner. Terabit free-space data transmission employing orbital angular momentum multiplexing. *Nature Photonics*, 6 :488–496, 2012.
- S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa, A. Sagisaka, et Y. Kobayashi. Two-Color Phase Control in Tunneling Ionization and Harmonic Generation by a Strong Laser Field and Its Third Harmonic. *Physical Review Letters*, 73(20), 1994.
- H. J. Wörner, J. B. Bertrand, D. V. Kartashov, P. B. Corkum, et D. M. Villeneuve. Following a chemical reaction using high-harmonic interferometry. *Nature*, 466(7306), 2010.
- J. Wu et H. Zeng. Cavity-enhanced noncollinear high-harmonic generation for extreme ultraviolet frequency combs. *Optics Letters*, 32(22), 2007.

- A. M. Yao et M. J. Padgett. Orbital angular momentum : origins, behavior and applications. *Advances in Optics and Photonics*, 3(2), 2011.
- P. Ye, X. He, H. Teng, M. Zhan, S. Zhong, W. Zhang, L. Wang, et Z. Wei. Full Quantum Trajectories Resolved High-Order Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 113(7), 2014.
- X. Zambrana-Puyalto, X. Vidal, et G. Molina-Terriza. Angular momentum-induced circular dichroism in non-chiral nanostructures. *Nature Communications*, 5(4922), 2014.
- A. Zair, M. Holler, A. Guandalini, F. Schapper, J. Biegert, L. Gallmann, U. Keller, A. S. Wyatt, A. Monmayrant, I. A. Walmsley, E. Cormier, T. Auguste, J. P. Caumes, et P. Salières. Quantum Path Interferences in High-Order Harmonic Generation. *Physical Review Letters*, 100(143902), 2008.
- Y. Zhao, J. Scott Edgar, G. D. M. Jeffries, D. McGloin, et D. T. Chiu. Spin-to-Orbital Angular Momentum Conversion in a Strongly Focused Optical Beam. *Physical Review Letters*, 99(7), 2007.
- M. Zürch, C. Kern, P. Hansinger, A. Dreischuh, et Ch. Spielmann. Strong-field physics with singular light beams. *Nature Physics*, 8 :743–746, 2012.



# Publications



## **Article 1 : Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation**

D. Gauthier, P. Rebernik Ribič, G. Adhikary, A. Camper, C. Chappuis, R. Cucini, L. F. Di-Mauro, G. Dovillaire, F. Frassetto, R. Généaux, P. Miotti, L. Poletto, B. Ressel, C. Spezzani, M. Stupar, T. Ruchon et G. De Ninno.

*Nature Communications* **8**, 14971 (2017). DOI : [10.1038/ncomms14971](https://doi.org/10.1038/ncomms14971).

ARTICLE

Received 25 Jan 2017 | Accepted 17 Feb 2017 | Published 5 Apr 2017

DOI: 10.1038/ncomms14971

OPEN

# Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation

D. Gauthier<sup>1</sup>, P. Rebernik Ribič<sup>1</sup>, G. Adhikary<sup>2</sup>, A. Camper<sup>3</sup>, C. Chappuis<sup>4</sup>, R. Cucini<sup>1</sup>, L.F. DiMauro<sup>3</sup>, G. Dovillaire<sup>5</sup>, F. Frassetto<sup>6</sup>, R. Géneaux<sup>4</sup>, P. Miotti<sup>6</sup>, L. Poletto<sup>6</sup>, B. Ressel<sup>2</sup>, C. Spezzani<sup>7</sup>, M. Stupar<sup>2</sup>, T. Ruchon<sup>4</sup> & G. De Ninno<sup>1,2</sup>

Optical vortices are currently one of the most intensively studied topics in optics. These light beams, which carry orbital angular momentum (OAM), have been successfully utilized in the visible and infrared in a wide variety of applications. Moving to shorter wavelengths may open up completely new research directions in the areas of optical physics and material characterization. Here, we report on the generation of extreme-ultraviolet optical vortices with femtosecond duration carrying a controllable amount of OAM. From a basic physics viewpoint, our results help to resolve key questions such as the conservation of angular momentum in highly nonlinear light-matter interactions, and the disentanglement and independent control of the intrinsic and extrinsic components of the photon's angular momentum at short-wavelengths. The methods developed here will allow testing some of the recently proposed concepts such as OAM-induced dichroism, magnetic switching in organic molecules and violation of dipolar selection rules in atoms.

<sup>1</sup>Elettra-Sincrotrone Trieste, Area Science Park, 34149 Trieste, Italy. <sup>2</sup>Laboratory of Quantum Optics, University of Nova Gorica, 5001 Nova Gorica, Slovenia. <sup>3</sup>Department of Physics, The Ohio State University, Columbus, Ohio 43210, USA. <sup>4</sup>LIDYL, CEA, CNRS, Université Paris-Saclay, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France. <sup>5</sup>Imagine Optic, 91400 Orsay, France. <sup>6</sup>Institute of Photonics and Nanotechnologies, CNR-IFN, 35131 Padova, Italy. <sup>7</sup>Laboratoire de Physique des Solides, Université Paris-Sud, CNRS-UMR 8502, 91405 Orsay, France. Correspondence and requests for materials should be addressed to D.G. (email: david.gauthier@elettra.eu) or to G.D.N. (email: giovanni.de.ninno@ung.si).

Angular momentum is a fundamental property of the photon, together with energy and linear momentum. In paraxial conditions, angular momentum may be split into an intrinsic part, the spin angular momentum and an extrinsic part called orbital angular momentum (OAM). Macroscopically, the OAM of light manifests itself in the spatial properties of the light beam and in particular in the shape of its wavefront. The most common light beams carrying OAM display Laguerre-Gaussian modes, which are solutions of the wave equation in the paraxial regime. They show an azimuthal phase dependence  $\exp(-i\ell\phi)$  (refs 1,2), where  $\phi$  is the azimuthal coordinate in the transverse plane and  $\ell$ , called the topological charge, is indexing the mode. This phase shape creates a beam with a helical wavefront, a phase singularity in its centre and a donut-shaped intensity profile. A topological charge  $\ell$  results in an OAM per photon equal to  $\ell\hbar$  (ref. 1).

Laguerre-Gaussian modes, also called optical vortices, have been used in the visible range in many diverse applications. A photon pair can exhibit OAM entanglement<sup>3,4</sup>, which can be exploited in quantum cryptography. The donut-shaped intensity profile of an optical vortex allows bleaching the outer annular part of a sample and, applying stimulated emission depletion microscopy, allows to bypass the diffraction limit in optical microscopy<sup>5,6</sup>. Laguerre-Gaussian modes are also the tool of choice to manipulate particles<sup>7,8</sup> or detect spinning objects<sup>9</sup>. Recently, increasing attention has been devoted to theoretical studies of fundamental interactions involving OAM beams in the extreme-ultraviolet (XUV) spectral range. For example, it was shown that OAM might be transferred to electronic degrees of freedom<sup>10,11</sup>. In ref. 12, it was also theoretically demonstrated that an XUV vortex can induce charge current loops in fullerenes with an associated orbital magnetic moment, which can be controlled by tuning the topological charge of the incident beam. These findings, if confirmed experimentally, could lead to new applications in magnetic switching using structured light.

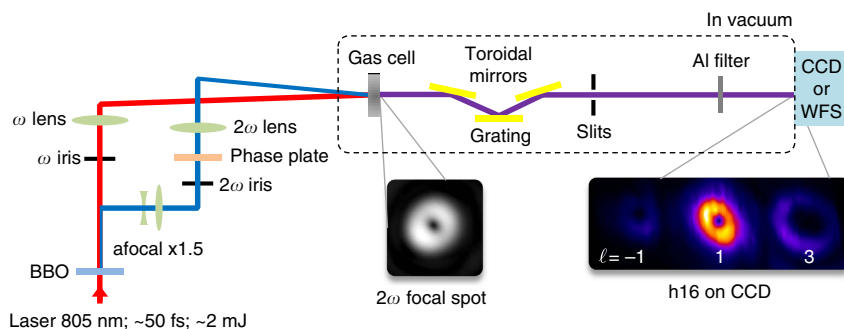
These and other theoretical studies have sparked new experimental developments in the field of intense femtosecond XUV pulse generation. Schemes have been proposed for generating optical vortices using free-electron lasers<sup>13,14</sup>, which are still to be demonstrated. As a table-top and alternative to large-scale instruments, high-harmonic generation (HHG) is based on the frequency up-conversion of a high intensity

femtosecond Vis-IR laser into the XUV range through a highly nonlinear process<sup>15</sup>. Recently, OAM has been studied in the context of HHG in gases. The first experimental work reported on the difficulty of generating optical vortices due to the non-conservation of the OAM during propagation in the gas jet<sup>16</sup>. Subsequent experiments, however, demonstrated the generation of optical vortices carrying a topological charge that is a multiple of the harmonic order<sup>17,18</sup>, in agreement with the expected conservation rule for a single driving beam<sup>19</sup>. Nevertheless, with such experimental schemes, the topological charge could not be tuned independently of the harmonic order. In addition, only high values of the topological charge could be obtained (except in ref. 16), while the controlled generation of XUV beams with low-order topological charge was not yet demonstrated. These two restrictions will severely limit the applicability of the above schemes in most of the recently proposed experiments.

In this article, we report on an alternative scheme to produce optical vortices carrying an arbitrary topological charge for any harmonic order using HHG. Our setup is based on a two-colour wave-mixing arrangement that combines a Gaussian with a frequency doubled Laguerre-Gaussian beam in a gas target, as proposed in ref. 17. To confirm that the generated donut-shaped high harmonics carry OAM we use a Hartmann sensor to measure their wavefronts. We demonstrate that the use of two driving beams allows efficient and robust generation of optical vortices with topological charges from  $\ell = -1$  to  $\ell = 4$ . Moreover, by exploiting the subtle physics principles on which the HHG process relies, we show how to favour the generation of a mode with a particular topological charge. This study provides an experimental verification of the conservation rule for OAM in HHG using two driving beams. Furthermore, our relatively simple setup makes HHG the first light source of femtosecond XUV pulses carrying a controllable amount of OAM.

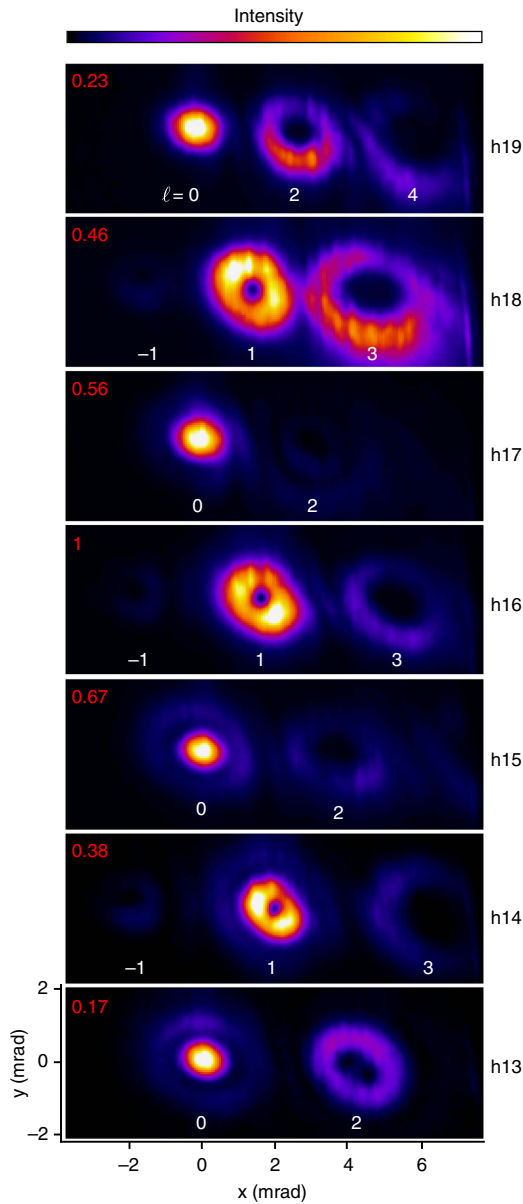
## Results

**The experimental setup.** The experiment is sketched in Fig. 1 and was performed on the CITIUS light source, described in more details elsewhere<sup>20</sup>. A Ti:sapphire laser system (5 kHz repetition rate) provides pulses with a duration of  $\approx 50$  fs and energy of  $\approx 2$  mJ at a central wavelength of 805 nm. The pulses are sent through a 450  $\mu\text{m}$  thick type-I BBO crystal, emitting



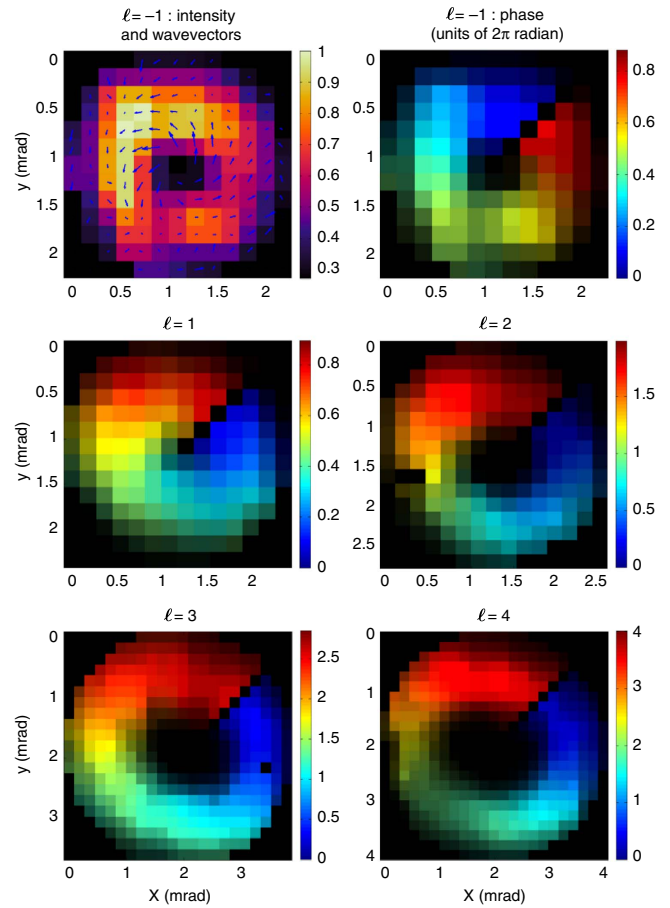
**Figure 1 | Sketch of the experimental setup.** The collimated laser beam (8 mm at  $1/e^2$ ) goes through a BBO crystal before entering a dichroic Mach-Zehnder interferometer in which the beam at 805 nm can be manipulated independently from the one generated after frequency doubling. The spiral phase plate converts the Gaussian beam into a Laguerre-Gaussian mode with  $\ell_{2\omega} = 1$  in the second harmonic ( $2\omega$ ) arm of the interferometer, while the fundamental ( $\omega$ ) beam remains Gaussian. The mirrors and the delay line used to synchronize the two beams are not drawn, nor the half wave plate used to get identical linear polarizations. Both beams are focused with lenses of 75 cm focal length into the generation gas cell ( $\approx 1$  mm length) filled with argon at a pressure of a few tens of mbar. To optimize the focusing geometry, both lenses are placed on translation stages, irises are positioned in both arms and a beam expander ( $\times 1.5$ ) is used in the  $2\omega$  arm. The XUV emission is sent into a monochromator (made of a grating between two toroidal mirrors and slits) before being imaged on an XUV CCD camera or a Hartmann wavefront sensor (WFS) placed in the far-field,  $\approx 1$  m downstream. (Insets) Typical intensity distributions at focus of the  $2\omega$  beam (left) and HHG vortices (right, labelled by their topological charge  $\ell$ ) generated at the 16th order and imaged on the CCD.





**Figure 2 | Far-field intensity patterns from the non-collinear wave-mixing scheme.** Single-shot images for different harmonic orders were acquired using a CCD in identical generating conditions. Each mode is labelled by its topological charge  $\ell$  that also corresponds to the number of absorbed  $2\omega$  photons. For better visualization, images for each harmonic order are shown with the full colour scale (colour bar on top). The integrated signal (top left corner) is normalized to h16. The number of photons incident on the CCD (after the metallic filter) for h16 was around  $7 \times 10^6$ . Note that the angular acceptance of the monochromator (about 10 mrad) limited to three the number of modes that could be detected at once.

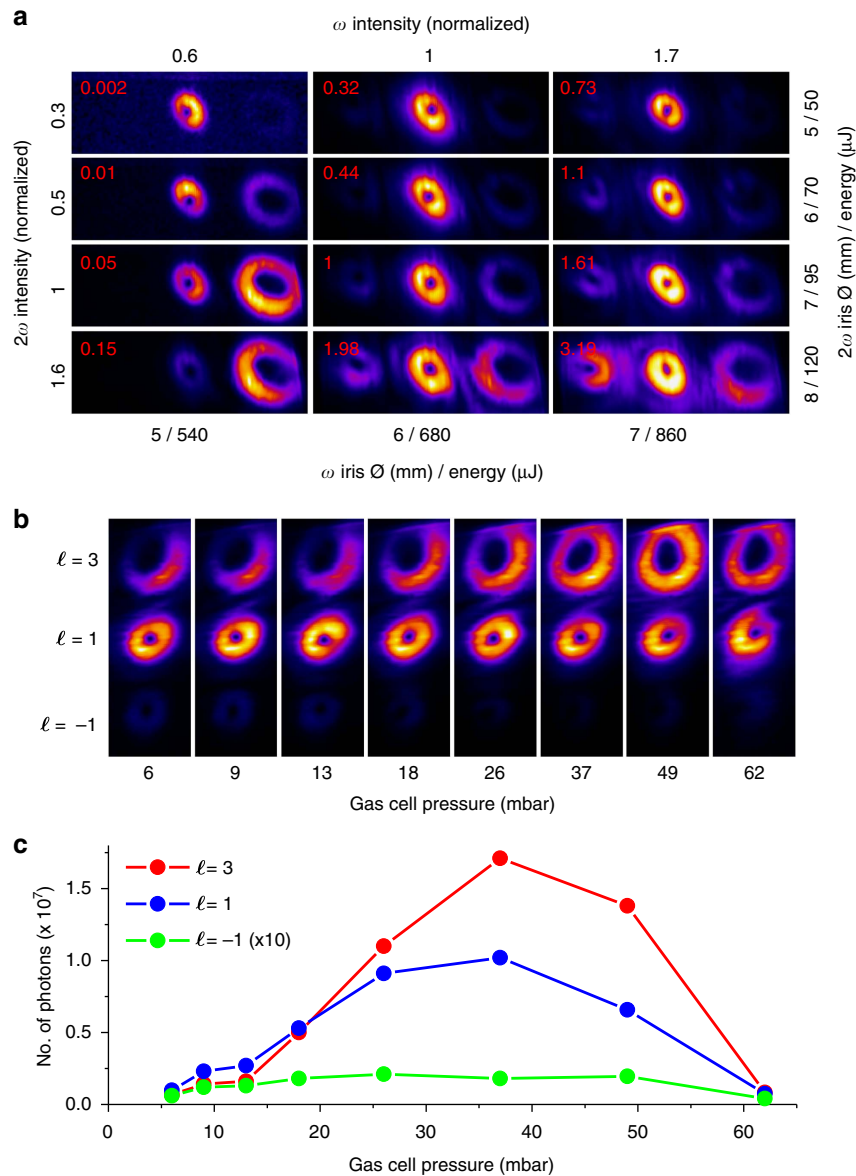
the fundamental ( $\omega$ ) and second harmonic ( $2\omega$ ) beams. The two spectral components are then spatially separated in a Mach-Zehnder-like interferometer equipped with dichroic mirrors. The interferometer is used to manipulate individually the two beams before being focused by two independent lenses into a 1-mm long argon gas cell. In one arm of the interferometer, the  $2\omega$  beam is converted from a Gaussian to a Laguerre-Gaussian mode with  $\ell_{2\omega}=1$ , using a spiral phase plate<sup>21</sup>. No OAM is imparted on the  $\omega$  beam ( $\ell_{\omega}=0$ ). The crossing angle between the two beams in the gas cell can be adjusted by translating the last mirror of each arm. All modes generated at the



**Figure 3 | Intensity and wavefront measurements for several modes carrying various topological charges.** The top-left panel shows the intensity (in arbitrary units) and the local wavevector (arrows) distribution for the  $\ell = -1$  mode of the 16th high-harmonic order emission (h16). The other panels show the measured wavefronts for  $\ell = -1$  and  $\ell = 1$  for h16,  $\ell = 2$  for h19,  $\ell = 3$  for h18 and  $\ell = 4$  for h19 (intensity and wavevector distribution for the latter cases is shown in Supplementary Fig. 1). The intensity is represented by the brightness and the phase (in units of  $2\pi$  radian) by false colours. Black colour indicates pixels that contain no data (intensity lower than the detection threshold or pixels set to zero to enable wavefront reconstruction around the singularity). Note that the different panels have different colour scales. The yield of each individual mode was optimized (see next section), and a crossing angle of 15 mrad was used to guarantee a larger spatial separation between the modes, compared to the one in Fig. 2.

frequency of one particular harmonic order of the fundamental frequency  $\omega$  are isolated out from the other harmonic orders by a monochromator consisting of a grating placed between two toroidal mirrors, which provides an image of the HHG modes at the position of the slits located further downstream. The grating is used in the so-called conical geometry (diffraction in the vertical direction)<sup>22</sup>. The relatively low spectral resolution of the monochromator limits the spatio-spectral distortions (spatial chirp and pulse front tilt) of the imaged harmonic beam. Finally, the intensity distribution and the wavefront are measured in the far field using an XUV CCD or a Hartmann wavefront sensor (WFS) (developed by Imagine Optic, SOLEIL, and Laboratoire d'Optique Appliquée<sup>23</sup>).

**Measurement of the intensity profile.** Figure 2 shows the far-field intensity profile of different harmonic orders obtained



**Figure 4 | Yield of the modes as a function of the intensity and gas pressure for the 16th harmonic.** (a) Evolution of the generated signal as a function of the intensity of the generating beams at focus. The intensity is normalized to an estimated intensity ratio  $I_{2\omega}/I_{\omega}$  of about 18%, with  $I_{\omega} \sim 1.7 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . The intensity is calculated from the measured iris aperture and transmitted energy. The signal is normalized to  $1.7 \times 10^7$  photons per shot on the CCD (top left corner of each image). (b,c) Evolution of the generated signal as a function of the argon pressure in the cell. (c) The curves display the integrated signal for each individual mode.

using an  $\omega$ - $2\omega$  crossing angle of 13 mrad. The spatial axis origin is taken along the propagation axis of the  $\omega$  beam. For each high-harmonic order, we observe the angular distribution (in the horizontal direction) of spatially separated modes. The emission angle of each mode is determined by the non-collinear phase-matching condition, in agreement with the conservation of energy, linear momentum and parity, previously established for HHG in the two-colour configuration<sup>24,25</sup>. It is convenient to use the photon picture to describe the possible pairs  $(n_1, n_2)$  that contribute to the emission of a given high-harmonic order  $q$  (with  $q = n_1 + 2n_2$ ), where  $n_1$  and  $n_2$  refer, respectively, to the number of photons absorbed from the  $\omega$  and  $2\omega$  beams. In particular, parity requires that only the absorption of an odd total number of photons  $n = n_1 + n_2$  can lead to emission. Consequently, in Fig. 2, we observe modes generated from the pairs (19, 0), (15, 2) and (11, 4), contributing to the emission of photons with an energy corresponding to the 19th harmonic order (h19). For h18, the

pairs experimentally observed are (20, -1), (16, 1) and (12, 3). Note that only the fundamental beam is contributing to the generation of the  $(q, 0)$  pair, while generation with the fundamental alone is not allowed for even harmonics. Positive and negative numbers in pairs are related, respectively, to sum- and difference-frequency generation.

The intensity patterns in Fig. 2 are consistent with the conservation of OAM, which has been confirmed by the phase front measurement reported below. This result is in agreement with the theoretical model developed in ref. 17, and demonstrates the transfer of OAM from the generating beams to high harmonics. For a two-colour wave mixing setup, we can generalize the conservation rule for OAM as:

$$\ell = n_1 \ell_{\omega} + n_2 \ell_{2\omega}, \quad (1)$$

where  $\ell$ ,  $\ell_{\omega}$  and  $\ell_{2\omega}$  are the topological charge carried, respectively, by the high-harmonic, the  $\omega$  and the  $2\omega$  beams. In

the present experiment we focus on the case  $\ell_{\omega}=0$  and  $\ell_{2\omega}=1$ , which gives simply  $\ell=n_2$ . Therefore, the topological charge carried by each mode is equal to the number of  $2\omega$  photons absorbed in the process. Consequently, except for pairs with  $n_2=0$ , all modes display a ring-like intensity profile with zero intensity in the centre, characteristic of optical vortices. Moreover, for each harmonic order, the size of the rings increases with the number of absorbed  $2\omega$  photons, consistently with the increase of the topological charge, as demonstrated in ref. 18.

The results in Fig. 2 are representative of the main experimental finding for our generation conditions. For the low harmonic orders, in some cases, the modes in the far field are composed of inner and outer parts. Note that this feature exists for  $\ell=0$  with or without the presence of the  $2\omega$  driving beam. Such spatial profiles can be attributed to the contributions of two different quantum paths to the harmonic emission in combination with propagation effects<sup>26–28</sup>. The second noticeable feature is the spatial distortion of the mode profiles in the far field, which is due to aberrations in the XUV transport optics (monochromator) and to aberrations of the generating beams. Despite significant efforts to reduce such aberrations, a residual astigmatism was still present on the generating beams (visible in the focus of the  $2\omega$  beam, Fig. 1). Aberrations in the generating beams drive aberrations in the HHG emission, which are emphasized by the nonlinear response of the generation process. A residual effect related to this is visible in Fig. 2 at h13 for the  $\ell=2$  mode. When the modes are not fully spatially separated, the far-field intensity pattern also contains interference features.

**Measurement of the wavefront.** To confirm that the observed rings are actual (quasi) Laguerre-Gaussian modes, we performed wavefront measurements using a Hartmann WFS. Some representative results are displayed in Fig. 3. In the top-left panel, one can clearly recognize a spiralling wavevector around a singularity. The magnitude of the wavevector increases when approaching the centre of the beam. These two observations are the signature of an optical vortex. With our convention, we have a left-handed vortex for  $\ell>0$ . The phase maps displayed in the other panels in Fig. 3 were obtained from the integration of the wavevector distribution<sup>29</sup>. To perform the integration around the singularity, we introduced a discontinuity in the data by setting it to zero on a line (at an arbitrary angle) going from the centre (singularity) to the edge of the image (additional information can be found in Supplementary Note 1). A reference wavefront (taken without the spiral phase plate) was used to correct for the phase aberrations due to the monochromator optics. We measured very smooth phases spiralling around the beam propagation axis going from 0 to about  $\ell \times 2\pi$  radians. The small discrepancies in the maximum variation of the phase across the map are attributed to a relatively low sampling of the wavefront. The reported measurements are a direct and unambiguous characterization of the OAM carried by the vortex beams, including its sign. They also demonstrate the possibility of directly measuring helical phase fronts in the XUV spectral range, which will be instrumental in the development of new generation light sources such as free-electron lasers carrying OAM.

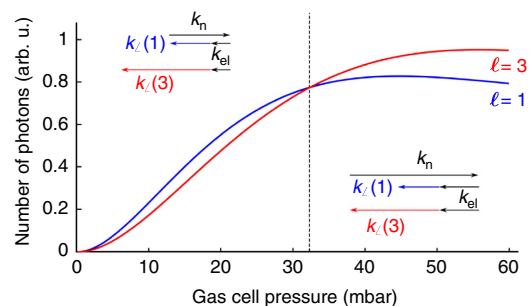
**Yield of the harmonic vortices.** For a given high-harmonic order, the signal is not equally distributed between the modes. This is a known effect in highly non-linear wave mixing<sup>25,30</sup>, due to both the microscopic response of the medium and the macroscopic effects (propagation and phase matching) in HHG.

This property can be exploited to optimize and favour the emission of a specific vortex by modifying the generation conditions. Figure 4 shows the evolution of the generated signal for three modes of the 16th harmonic order, when varying the iris aperture (that is, the transmitted energy) in each arm of the interferometer and the pressure in the gas cell. In Fig. 4a, the iris apertures modify the intensity as well as the size of both beams at focus. These parameters impact the individual atomic response in the gas jet (amplitude and phase of the dipoles), the phase matching conditions, and the propagation and reshaping of the fundamental beams in the medium<sup>31,32</sup>. The intensity ratio of the second harmonic to the fundamental beam ( $2\omega/\omega$ ) was varied from a few percent up to 50%, spanning both perturbative and non-perturbative regimes. The relative intensity of the two colours, which affects the dipole amplitude, is the relevant parameter to explain the evolution of the signal within each mode<sup>25</sup>. This can be understood in terms of the probability that a certain pair  $(n_1, n_2)$  contributes to the emission of a given harmonic. A low  $2\omega/\omega$  intensity ratio favours generation from pairs requiring a low  $n_2$  of photons absorbed from the  $2\omega$  field. On the other hand, a large intensity ratio  $2\omega/\omega$  favours pairs with a high  $n_2$ , particularly when the absolute intensity of the  $\omega$  field is low. Figure 4b,c shows how the gas pressure impacts the yield of different modes. As expected, the yield increases for all modes when the pressure is increased. Surprisingly, at about 20 mbar the  $\ell=3$  mode overcomes the  $\ell=1$  mode. This feature cannot be explained by single atom effects. Including phase matching effects in the analysis of the experiment allows us to find the origin of this unexpected behaviour.

As noted in ref. 30, the peculiarity of the non-collinear scheme is that for an emission where  $\ell=n_2$   $2\omega$  photons are required, the phase matching equation must include an additional crossing term  $k_{\perp}(\ell)$ :

$$k_{\perp}(\ell) = \ell\theta^2 \left( \frac{2\ell}{q} - 1 \right) \frac{\omega}{c}, \quad (2)$$

where  $\theta$  is the crossing angle between the two driving beams and  $c$  is the speed of light. This term adds to the usual contributing terms: the geometrical phase advance, the dipole phase and the neutral and free electron dispersions. The sum of all these terms,  $\Delta k$ , must be zero for the emission to be phase matched. Considering the cases  $\ell=1$  and  $\ell=3$ , we obtain from the above equation  $k_{\perp}(3) < k_{\perp}(1) < 0$ . The quantities to be compensated are negative. For our experimental conditions the neutral dispersion, a positive quantity, is able to compensate for the non-collinear phase mismatch. Remarkably, as the dispersion



**Figure 5 | Calculated yield within the modes.** The yield is calculated for the  $\ell=1$  (blue) and  $\ell=3$  (red) modes as a function of gas pressure (see Methods). The crossing of the two curves is indicated by the vertical dashed line. On the left (right) of this line, the phase matching favours the  $\ell=1$  ( $\ell=3$ ) mode, as shown in the insets.  $k_n$  and  $k_{el}$  are, respectively, the contributions of the neutral and free electron dispersion to the phase matching, and are the only terms that depend on the pressure.



of neutrals increases linearly with pressure, it may favour the emission of the  $\ell = 3$  mode for high pressures.

In Fig. 5, using a simple model implemented with reasonable parameters (see Methods), we reproduce the main feature of Fig. 4c: a quadratic increase of the yield with pressure followed by a saturation at a few tens of millibars, and most remarkably, the overcome of  $\ell = 3$  over  $\ell = 1$  at about 30 mbar pressure. We note that the agreement is only semi-quantitative, as the crossing between the curves occurs at a pressure higher than the one observed experimentally. This can be attributed to uncertainties in several quantities used for the calculation (see Methods). Notice that the method used here describes the phase matching on-axis, that is, along the propagation axis of the HHG beams. It is independent of the spatial structures, and is not specific to vortex beams. Surprisingly, this effect seems to have stayed unnoticed in previous non-collinear HHG studies. In our case, it provides us with an additional knob to favour generation of harmonics with a particular topological charge. We note that, at the optimized gas pressure of 37 mbar, the  $\ell = 3$  vortex has a flux of  $8.5 \times 10^{10}$  photons per second, which is comparable with some synchrotron beamlines in the same spectral range.

## Discussion

The results presented above enhance the capabilities of spatial shaping of HHG light compared to schemes which rely on a single generating beam<sup>33</sup>. Our method can be naturally extended to any combination of generating beams with various spatial properties. Similar wave-mixing schemes have been applied to the generation of circularly polarized high harmonics using two-colour Gaussian beams with various polarization states<sup>34,35</sup>. Combining one of these schemes with the method presented in this work will allow generation of femtosecond HHG pulses with independent control over orbital and spin angular momenta, paving the way towards new fundamental experiments in the field of light-matter interactions.

## Methods

**Model for the non-collinear HHG.** We semi-quantitatively explain the observations of Fig. 4b by a simple model. If reshaping of the fundamental beam through nonlinear dispersion effects in the medium is neglected, the only phase matching terms evolving with pressure are the neutral and free electron dispersions,  $k_n(p)$  and  $k_{el}(p)$ , respectively. For the sake of simplicity, we make the assumption that other terms do not depend on  $\ell$ . With these assumptions, the phase mismatch as a function of the pressure  $p$  for each mode  $\ell$  is:

$$\Delta k(\ell, p) = k_n(p) - k_n(p = 1 \text{ mbar}) + k_{el}(p) - k_{el}(p = 1 \text{ mbar}) + k_z(\ell), \quad (3)$$

where we assume  $\Delta k = 0$  for the  $\ell = 0$  mode at a pressure of 1 mbar. The coherence length is then given by  $L_{\text{coh}} = \pi/\Delta k$ , while the absorption length is  $L_{\text{abs}} = 1/\sigma\rho$ , where  $\sigma$  is the argon cross-section and  $\rho$  is the atomic density. An estimate of the number of XUV photons for each mode can be calculated from these two quantities as<sup>36</sup>:

$$N_{\text{out}} = \rho^2 \frac{4L_{\text{abs}}^2}{1 + 4\pi^2(L_{\text{abs}}^2/L_{\text{coh}}^2)} \left[ 1 + \exp\left(-\frac{L_{\text{med}}}{L_{\text{abs}}}\right) - 2 \cos\left(\frac{\pi L_{\text{med}}}{L_{\text{coh}}}\right) \exp\left(-\frac{L_{\text{med}}}{2L_{\text{abs}}}\right) \right], \quad (4)$$

where  $L_{\text{med}} = 1 \text{ mm}$  is the length of the medium. We evaluate this expression for the  $\ell = 1$  and  $\ell = 3$  modes for our experimental conditions. The atomic and free electron dispersions are calculated as in ref. 37 using an average degree of ionization of 4%. The model is only semi-quantitative due to uncertainties in several quantities, such as the level of ionization, the pressure at which  $\Delta k(\ell = 0) = 0$ , the measurement of the gas pressure in the interaction region, the effective length of the medium and the actual intensity at which HHG occurs. The predictions based on equations (3) and (4) are reported in Fig. 5.

**Data availability.** All relevant data contained in this manuscript are available from the authors.

## References

- Allen, L., Beijersbergen, M. W., Spreeuw, R. J. C. & Woerdman, J. P. Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes. *Phys. Rev. A* **45**, 8185 (1992).
- Padgett, M., Courtial, J. & Allen, L. Light's orbital angular momentum. *Phys. Today* **57**, 35 (2004).
- Mair, A., Vaziri, A., Weihs, G. & Zeilinger, A. Entanglement of the orbital angular momentum states of photons. *Nature* **412**, 313–316 (2001).
- Molina-Terriza, G., Torres, J. P. & Torner, L. Twisted photons. *Nat. Phys.* **3**, 305–310 (2007).
- Jesacher, A., Furrer, S., Bernet, S. & Ritsch-Marte, M. Shadow effects in spiral phase contrast microscopy. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 233902 (2005).
- Hell, S. W. & Wichmann, J. Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission: stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy. *Opt. Lett.* **19**, 780–782 (1994).
- Kuga, T., Torii, Y., Shiokawa, N. & Hirano, T. Novel optical trap of atoms with a doughnut beam. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 47134716 (1997).
- He, H., Friese, M., Heckenberg, N. R. & Rubinsztein-Dunlop, H. Direct observation of transfer of angular momentum to absorptive particles from a laser beam with a phase singularity. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 826–829 (1995).
- Lavery, M. P. J., Speirits, F. C., Barnett, S. M. & Padgett, M. J. Detection of a spinning object using light's orbital angular momentum. *Science* **341**, 537 (2013).
- Picón, A. *et al.* Photoionization with orbital angular momentum beams. *Opt. Exp.* **18**, 3660–3671 (2010).
- Matula, O., Hayrapetyan, A. G., Serbo, V. G., Surzhykov, A. & Fritzsche, S. Atomic ionization of hydrogen-like ions by twisted photons: angular distribution of emitted electrons. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **46**, 205002 (2013).
- Waetzel, J., Pavlyukh, Y., Schaeffer, A. & Berakdar, J. Optical vortex driven charge current loop and optomagnetism in fullerenes. *Carbon* **99**, 439e443 (2016).
- Hemsing, E. *et al.* Coherent optical vortices from relativistic electron beams. *Nat. Phys.* **9**, 549–553 (2013).
- Rebernik Ribič, P., Gauthier, D. & De Ninno, G. Generation of coherent extreme-ultraviolet radiation carrying orbital angular momentum. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 203602 (2014).
- Brabec, T. & Krausz, F. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.* **72**, 545 (2000).
- Zürch, M., Kern, C., Hansinger, P., Dreischiuh, A. & Spielmann, C. H. Strong-field physics with singular light beams. *Nat. Phys.* **8**, 743–746 (2012).
- Gariépy, G. *et al.* Creating high-harmonic beams with controlled orbital angular momentum. *Phys. Rev. Lett.* **113**, 153901 (2014).
- Géneaux, R. *et al.* Synthesis and characterization of attosecond light vortices in the extreme ultra-violet. *Nat. Commun.* **7**, 12583 (2016).
- Hernández-García, C., Picón, A., Román, J. S. & Plaja, L. Attosecond extreme ultraviolet vortices from high-order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **111**, 083602 (2013).
- Grazioli, C. *et al.* CITIUS: an infrared-extreme ultraviolet light source for fundamental and applied ultrafast science. *Rev. Sci. Instrum.* **85**, 023104 (2014).
- Moh, K. J. *et al.* Generation of femtosecond optical vortices using a single refractive optical element. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 091103 (2006).
- Poletto, L. *et al.* Double-configuration grating monochromator for extreme-ultraviolet ultrafast pulses. *Appl. Opt.* **53**, 5879–5888 (2014).
- Mercère, P. *et al.* Hartmann wave-front measurement at 13.4 nm with lambda/120 accuracy. *Opt. Lett.* **28**, 1534–1536 (2003).
- Perry, M. D. & Crane, J. K. High-order harmonic emission from mixed fields. *Phys. Rev. A* **48**, R4051 (1993).
- Bertrand, J. B. *et al.* Ultrahigh-order wave mixing in noncollinear high harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **106**, 023001 (2011).
- Salières, P., L'Huillier, A. & Lewenstein, M. Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
- Balcou, P., Salières, P., L'Huillier, A. & Lewenstein, M. Generalized phase-matching conditions for high harmonics: the role of field-gradient forces. *Phys. Rev. A* **55**, 3204 (1997).
- Merdji, H. *et al.* Macroscopic control of high-order harmonics quantum-path components for the generation of attosecond pulses. *Phys. Rev. A* **74**, 043804 (2006).
- Southwell, W. H. Wave-front estimation from wave-front slope measurements. *J. Opt. Soc. Am.* **70**, 998–1006 (1980).
- Heyl, C. M. *et al.* Macroscopic effects in noncollinear high-order harmonic generation. *Phys. Rev. Lett.* **112**, 143902 (2014).
- Kazamias, S. *et al.* High order harmonic generation optimization with an aperture laser beam. *Eur. Phys. J. D* **21**, 353–359 (2002).
- Boutu, W., Auguste, T., Caumes, J. P., Merdji, H. & Carré, B. Scaling of the generation of high-order harmonics in large gas media with focal length. *Phys. Rev. A* **84**, 053819 (2011).

33. Camper, A. *et al.* High-harmonic phase spectroscopy using a binary diffractive optical element. *Phys. Rev. A* **89**, 043843 (2014).
34. Fleischer, A., Kfir, O., Diskin, T., Sidorenko, P. & Cohen, O. Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation. *Nat. Photon.* **8**, 543–549 (2014).
35. Lambert, G. *et al.* Towards enabling femtosecond helicity-dependent spectroscopy with high-harmonic sources. *Nat. Commun.* **6**, 6167 (2015).
36. Constant, E. *et al.* Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: model and experiment. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1668 (1999).
37. Ruchon, T. *et al.* Macroscopic effects in attosecond pulse generation. *N. J. Phys.* **10**, 025027 (2008).

### Acknowledgements

This work was partially supported by the Bilateral collaboration Slovenia-Commissariat à l'énergie atomique et aux énergies alternatives (CEA, France) 2016–2018, sponsored by the Slovenian Research Agency (ARRS) and by CEA. This work was supported by the French Agence Nationale de la Recherche (ANR) through XSTASE project (ANR-14-CE32-0,010). A.C. and L.F.D. acknowledge support of the US Department of Energy, Office of Science, Office of Basic Energy Sciences under contract DE-FG02-04ER15614.

### Author contributions

D.G., P.R.R., A.C., G.A., G.D.N., B.R., M.S., C.C., R.G., T.R., C.S., R.C., F.F., P.M. and L.P. setup the experiment and collected data. D.G., G.D., R.G., A.C., T.R., P.R.R. and G.D.N. analysed, discussed the results and carried out the numerical simulations. All authors

contributed to the writing of the manuscript. D.G. proposed and designed the experiment. G.D.N. and T.R. supervised the project.

### Additional information

**Supplementary Information** accompanies this paper at <http://www.nature.com/naturecommunications>

**Competing interests:** The authors declare no competing interests.

**Reprints and permission** information is available online at <http://npg.nature.com/reprintsandpermissions/>

**How to cite this article:** Gauthier, D. *et al.* Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation. *Nat. Commun.* **8**, 14971 doi: 10.1038/ncomms14971 (2017).

**Publisher's note:** Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in the credit line; if the material is not included under the Creative Commons license, users will need to obtain permission from the license holder to reproduce the material. To view a copy of this license, visit <http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>

© The Author(s) 2017

## **Article 2 : Radial index of Laguerre-Gaussian modes in high-order-harmonic generation**

R. Généaux, C. Chappuis, T. Auguste, S. Beaulieu, T. T. Gorman, F. Lepetit, L. F. DiMauro et T. Ruchon.

*Physical Review A* **95**, 051801 (2017). DOI : [10.1103/PhysRevA.95.051801](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.051801).

## Radial index of Laguerre-Gaussian modes in high-order-harmonic generation

Romain Gèneaux,<sup>1,\*</sup> Céline Chappuis,<sup>1</sup> Thierry Auguste,<sup>1</sup> Samuel Beaulieu,<sup>2,3</sup> Timothy T. Gorman,<sup>4</sup> Fabien Lepetit,<sup>1</sup> Louis F. DiMauro,<sup>4</sup> and Thierry Ruchon<sup>1</sup>

<sup>1</sup>LIDYL, CEA, CNRS, Université Paris-Saclay, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>Université de Bordeaux CNRS CEA, CELIA, UMR5107, F33405 Talence, France

<sup>3</sup>Institut National de la Recherche Scientifique, J3X 1S2 Varennes, Québec, Canada

<sup>4</sup>Department of Physics, The Ohio State University, Columbus, Ohio 43210, USA

(Received 23 March 2017; published 16 May 2017)

High-order-harmonic generation (HHG) is a tabletop and tunable source of extreme ultraviolet (XUV) light. Its flexibility was lately evidenced by the production of Laguerre-Gaussian (LG) modes in the XUV with a known azimuthal index. Here we investigate the role of the radial index of LG modes in HHG. We show both numerically and experimentally that the mode content of the emitted XUV radiation can be tuned by controlling the weight of the different quantum trajectories involved in the process. The appearance of high-order radial modes is finally linked to the atomic dipole phase of HHG. These results extend the capabilities of shaping the spatial mode of ultrashort XUV pulses of light.

DOI: [10.1103/PhysRevA.95.051801](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.051801)

### I. INTRODUCTION

In many areas of physics, intriguing and unexpected behaviors have been linked to the presence of topological singularities. Optics has its own singularities that occur whenever a quantity such as the phase or the polarization of the electromagnetic field cannot be defined [1]. A preeminent example of such field is that of the Laguerre-Gaussian modes, which possess a phase singularity in their center. They have been used in a plethora of different applications, mainly because they carry a well-defined orbital angular momentum (OAM) [2].

The Laguerre-Gaussian (LG) modes form a complete set of solutions to the paraxial wave equation, and are indexed by two mode numbers, denoted as  $\ell$  and  $p$ , respectively called the azimuthal and radial indexes. These names stem from the fact that along the azimuthal coordinate  $\theta$ , the phase of these modes goes as  $\ell\theta$ , while their radial profile shows  $p + 1$  concentric rings for  $\ell > 0$ .

Until recently, the production of LG modes was mastered only in the visible and infrared spectral range. Three separate works [3–5] recently demonstrated that this could be extended in the extreme ultraviolet (XUV) range using high-order-harmonic generation (HHG) in gases. By focusing an infrared laser in an atomic or molecular target, HHG is able to produce ultrashort pulses of XUV light made of many harmonics of the driving field. The aforementioned works showed that if the driver is a  $(\ell_1, 0)$  LG mode, each emitted high-order harmonic will be a LG mode as well. In particular, it was shown that the azimuthal index of the  $q$ th harmonic,  $\ell_q$ , can be chosen to be unity if the generating medium is long [3], equal to  $q \times \ell_1$  for thinner media [4,5], or tuned to some extent using two generating beams [6,7].

These results open up many possibilities of fundamental studies such as the exchange of OAM in light-matter interactions [8,9]. Moreover, they are an example of refined structuring of the light spatial mode in the XUV, a difficult but promising task [10,11].

Hitherto, none of these studies tackled the question of the radial index,  $p$ , of the generated modes. The situation was long similar in the visible range, where  $p$  has been dubbed the “forgotten quantum number,” before its physical significance was more thoroughly investigated [12,13]. The radial index came to be used in quantum optics, where it enabled producing entangled states of impressively high dimension [14,15]. Even in less fundamental studies it has found several purposes; for instance, modes with high values of  $p$  revealed self-healing properties similar to Bessel beams [16], can overcome the diffraction limit when strongly focused [17], or turned out to be paramount when extreme interferometric stability is needed [18]. Controlling both the  $\ell$  and  $p$  indices in HHG is thus an access road to a full shaping of XUV and ultrashort pulses.

In the present work, we study the role of the radial index in high-order-harmonic generation driven by a Laguerre Gaussian mode (LG-HHG). First, we perform a numerical simulation showing that it is possible to produce multiringed intensity patterns, characteristic of  $p > 0$  modes, by controlling the weights of the quantum trajectories of HHG. We then conduct the experiment, which demonstrates the possibility of continuously going from a single- to a multiringed intensity pattern for the XUV radiation. Finally, we discuss the creation of these  $p > 0$  modes in LG-HHG and track their appearance back to the atomic dipole phase of HHG.

### II. NUMERICAL SIMULATION OF LG-HHG

To realistically describe HHG, the process has to be considered at the microscopic and macroscopic scale. At the single-atom level, the Lewenstein model [19] shows that two different quantum paths can be identified [20], the so-called “short” and “long” trajectories. At the macroscopic scale, the contribution of all atoms in the interaction region must be coherently summed and the resulting emission is governed by the phase-matching conditions. With an usual Gaussian driver, the short (respectively, long) trajectory is better phase matched if the focus of the generating laser is slightly before (respectively, after) the gas medium [20].

When the driving beam is given a Laguerre-Gaussian profile, the microscopic process is not expected to change, for

\*romain.geneaux@cea.fr

if we stay well in the paraxial regime, the beam is still seen as a plane wave at the atomic scale. On the other hand, the transverse profile of a Laguerre-Gaussian mode will influence phase matching. This has been known for a long time for other kinds of non-Gaussian modes, such as truncated-Bessel modes [21,22]. Let us recall the expression of the electric field of the  $(\ell, p)$  LG mode in the  $(r, \theta, z)$  cylindrical coordinates, omitting the normalization constants:

$$E_{\ell,p}(r, \theta, z) = \frac{e^{i\ell\theta}}{w(z)} \left( \frac{r}{w(z)} \right)^{|\ell|} L_p^{|\ell|} \left( \frac{2r^2}{w^2(z)} \right) \times e^{\{-r^2/w^2(z)\} - ik[r^2/2R(z)] - ikz + i(2p+|\ell|+1)\chi(z)}, \quad (1)$$

where  $w(z)$ ,  $R(z)$ , and  $\chi(z)$  are, respectively, the beam waist, wave-front curvature, and Gouy phase, and  $L_p^{|\ell|}$  are the generalized Laguerre polynomials, which are responsible for the multiringed patterns of  $p > 0$  modes.

To understand the interplay between the quantum paths and the  $p$  mode content of HHG, we carry out a numerical simulation of LG-HHG taking into account all aspects of a real experiment, including the propagation of the infrared beam toward and inside the gas target. We consider an incident Gaussian laser beam of 6.25 mm waist and 50 fs duration, numerically propagated through a spiral phase plate, which adds the  $e^{i\theta}$  transverse phase of the  $(1,0)$  LG mode [23]. It is then focused by a 1 m focal length lens in a 500- $\mu\text{m}$ -wide Lorentzian argon gas jet, where high-order harmonics are emitted. The details of the model, which accounts for the full three-dimensional propagation of the beam including dispersion, can be found in Ref. [5]. The calculation is repeated for three different values of  $z_0$ , the position of the laser focus compared to the center of the generating medium. The intensity profiles obtained in the far field are displayed in Fig. 1.

When  $z_0 < 0$ , the intensity pattern shows a single ring, reminiscent of a  $p = 0$  mode. On the contrary, the profile for  $z_0 > 0$  is multiringed. It seems richer in the intermediate  $z_0 = 0$  case. These patterns can be deciphered by looking at the two trajectories separately, which is done by choosing one solution of the saddle-point equations. This yields the profiles presented in the bottom row of Fig. 1. This shows that the short (respectively, long) trajectory contribution shows one (respectively, several) ring(s). Interestingly, phase matching does not appear to be drastically modified by the infrared LG mode, for the selection of one quantum trajectory follows the same behavior as in the Gaussian case. Nevertheless, it is probable that the LG mode modifies finer details of phase matching—such as efficiency as a function of various generation parameters—similarly to what is observed in the visible range [24], but this goes beyond the scope of our study. Finally, the intricate profile of the intermediate  $z_0 = 0$  case appears as the result of quantum path interference, an effect well known in HHG driven by Gaussian beams [25].

### III. EXPERIMENT

#### A. Setup

We now set to measuring the multi-ringed patterns of Fig. 1 experimentally. The experiments were done using the LUCA

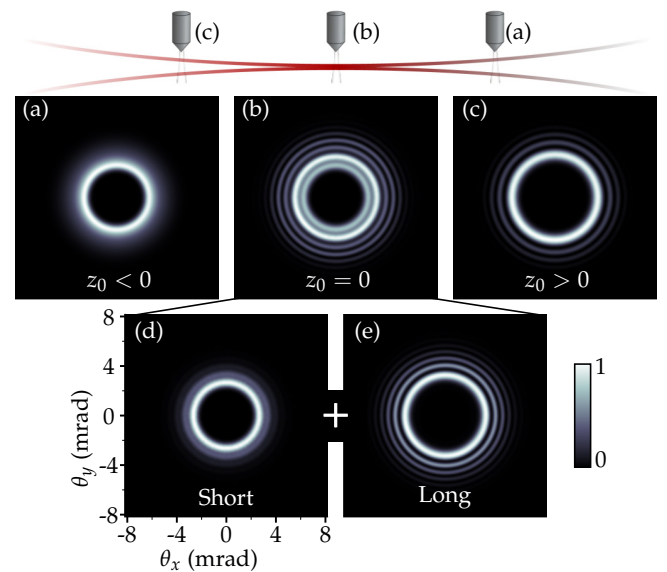


FIG. 1. Contributions of different quantum trajectories in LG-HHG. The intensity of the 21st harmonic in argon is computed in the far field for (a)  $z_0 < 0$ , (b)  $z_0 = 0$ , and (c)  $z_0 > 0$ , where  $z_0$  is the position of the laser focus compared to the gas jet. (d) and (e) show the profile in  $z_0 = 0$  when only the short or long trajectory contribution is selected.

laser server at CEA Saclay, which delivers 30 mJ, 50 fs, 800 nm pulses at 20 Hz. In this rather typical Ti:sapphire laser chain, a hollow core fiber is added right before the compressor, which filters the laser spatial profile and guarantees an almost perfect Gaussian mode [26]. This mode is then converted using a 16-level spiral phase plate (SPP) (SILIOS Technologies), which yields a 77.5% pure  $(1,0)$  Laguerre-Gaussian mode [27]. A 1 m lens (L) focuses the beam into an argon gas jet provided by a piezoelectric-driven valve (Attotech).

The numerical results presented above show that we need to spectrally separate and measure the two-dimensional (2D) spatial transverse profile of the emitted harmonics. To disperse the different harmonics, typical HHG setups use cylindrical gratings which focus each spectral component in one dimension, eventually yielding a spatio-spectral measurement. Clearly, such gratings cannot be employed to image the patterns of Fig. 1. To solve this issue, we opt for a simple and cost-effective design initially proposed in Ref. [28]. Since the spectral resolution needs only to be good enough for the harmonics not to overlap, we use a flat grating of which only a few grooves are illuminated. The complete setup implementing this idea is sketched in Fig. 2(a). First, the harmonic radiation is reimaged by a toroidal mirror (TM) coupled with a silica plate (SP), which filters most of the remaining generation beam. The beam is then reflected off a spherical mirror at a  $10^\circ$  incidence angle. This mirror is treated with a  $\text{B}_4\text{C}$  coating (Fraunhofer Institute), which has a reflectivity higher than 10% in the 30–800 nm spectral range. Close to the focus of this mirror, the beam strikes a flat diffraction grating (600 grooves/mm, Spectrogon) at  $6^\circ$  incidence. The beam therefore illuminates about 200 grooves, reducing dispersion and inducing close to no distortion on



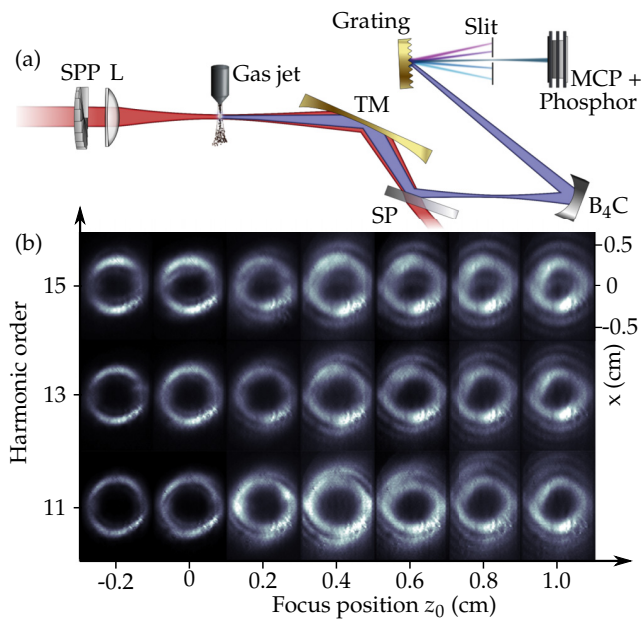


FIG. 2. Measurement of the harmonic intensity profile as a function of the focus position. (a) Experimental setup for LG-HHG and measurement of the 2D spatial profile of several harmonics. The acronyms used for the optical elements are defined in the text. (b) Intensity profiles of harmonics 11–15 when the generating lens is translated over 1.2 cm. The intensity of each harmonic is normalized to 1.  $z = 0$  is known from previous experiments done with Gaussian drivers on this beamline.

the harmonic profiles. The harmonics are finally selected by a slit before being imaged by microchannel plates (MCPs) coupled to a phosphor screen, imaged by a 12-bit CCD camera (Basler). This design does not use any sophisticated optics, resulting in an extremely low cost compared to typical spectrometers used in HHG while minimizing spatio-spectral couplings.

### B. Results

Just as we did numerically, the relative weights of the quantum trajectories are controlled by varying  $z_0$ , which in practice is simply the position of the lens. Figure 2(b) shows the evolution of the intensity profiles of harmonics 11–15 when  $z_0$  is changed over 1.2 cm.

We observe a series of cylindrically symmetric rings, evidence that we indeed measure the spatio-spatial harmonic profiles and not a spatio-spectral convolution. For  $z_0 = -0.2$  cm, the harmonics show only one ring, reminiscent of the short trajectory contribution in Fig. 1. At  $z_0 = 0$ , an additional ring appears inside the former, which can be interpreted as quantum path interferences following the prediction of Fig. 1(b). Then, more divergent concentric rings keep appearing as  $z_0$  is increased. As explained above, these rings are due to the long trajectory of HHG and suggest the generation of  $p > 0$  Laguerre-Gaussian modes. To further strengthen this claim, in the following part, we turn to numerical calculations

to track how additional  $p > 0$  modes could be created in LG-HHG.

### IV. MODAL ANALYSIS OF LG-HHG

As shown in Refs. [13,29],  $p$  is a quantum number associated to an operator acting on the light field, the expression of which is also given in those references. These works show that just as linear momentum is related to translation, or angular momentum to rotation,  $p$  is related to the dilatation along the radial coordinate. Therefore, just as any external torque modifies the angular momentum of a system, any effect affecting the radial dilatation of the beam will modify the  $p$  mode content of the light field. Two such effects can be identified in HHG:

(1) The nonlinearity of HHG: if a process has an order of nonlinearity  $n$ , the emitted field goes as  $E_{\text{out}} = E_{\text{in}}^n$ . Using Eq. (1) we see that if  $E_{\text{in}}$  is a LG mode with  $p > 0$ ,  $E_{\text{out}}$  is not a pure LG mode.

(2) The atomic dipole phase: the spatial phase of the harmonic field varies linearly with the infrared intensity  $I_{\text{IR}}$ . It can be written as  $\phi_{\text{at}}(r, \theta) = \alpha_{\text{traj}} I_{\text{IR}}(r, \theta)$ , where  $\alpha_{\text{traj}}$  is a constant which depends on the quantum trajectory [20]. Here,  $\phi_{\text{at}}(r, \theta)$  will be ring shaped, following the intensity of the driving Laguerre-Gaussian mode.

To study these effects, we adopt a simpler description of HHG, which will allow us to repeat the calculation for a large number of parameters. From now on we neglect all effects due to neutral and plasma dispersion, propagation, and depletion in the gas jet. The gas medium is considered as an infinitely thin atomic plane, where HHG occurs. This approach neglects longitudinal effects and was used in Refs. [30,31]. It is valid as long as we stay away from larger interaction volumes such as the case of Ref. [3].

First, the infrared field is numerically propagated through the SPP and then toward the focus, where it reaches a peak intensity of  $1.2 \times 10^{14}$  W/cm. From this intensity, the ionization rate is computed using the Ammosov-Delone-Krainov formula [32] and the harmonic field is obtained in the strong-field approximation [19]. It is then propagated in the far field and decomposed onto the Laguerre-Gaussian basis. The complex coefficients of this decomposition, denoted as  $c_{\ell, p}$ , give the contribution of the  $(\ell, p)$  LG mode. In Fig. 3, we show separately the result for the two quantum trajectories in the case of the 19th harmonic. Remarkably, we see that the  $(19, 0)$  mode accounts for 98.9% of the short trajectory contribution: the harmonic field is even purer than the driving field itself. This is a result of the high nonlinearity of the process, in which the fainter rings of the  $p > 0$  modes constituting the infrared field do not contribute. We can therefore rule out effect (1) as the source of additional  $p$  modes.

The long trajectory contribution behaves differently. Its modal decomposition shows that the  $(19, 0)$  mode only constitutes 52% of the total emission, which is actually made of a large number of modes with  $p$  ranging from 0 to  $\simeq 30$ . The relative phase of these modes is such that their interference leads to a single ring at focus, but since they have different Gouy phases [see Eq. (1)], the relative phases vary until the distance of propagation reaches the Rayleigh range. As a result, the intensity of the emission shows a multiringed pattern in the

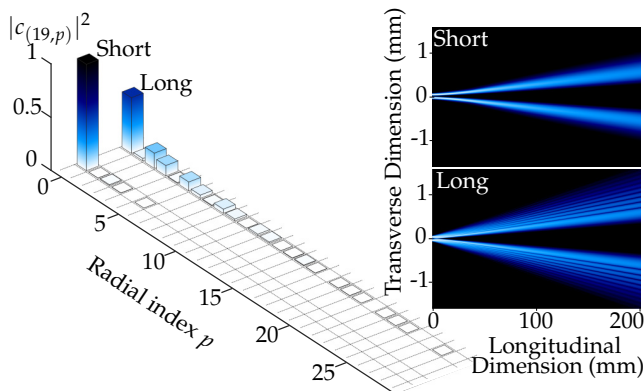


FIG. 3. Modal analysis of quantum trajectories. Left: Coefficients of the decomposition of the electric field of harmonic 19 onto the Laguerre-Gaussian basis for the short and long trajectories. Coefficients for other values of  $\ell_{19}$  are null. Right: Intensity of harmonic 19 for the short and long trajectories upon numerical propagation over 200 mm.

far field, as evidenced in the right panel of Fig. 3. This contrast with the short trajectory can be explained by the atomic dipole phase, which is much stronger for the long quantum path: the proportionality coefficient is typically  $\alpha_{\text{long}} \sim -20 \times 10^{-14}$  cm/W, while  $\alpha_{\text{short}} \sim -1 \times 10^{-14}$  cm/W. We can therefore conclude that the atomic dipole phase  $\phi_{\text{at}}$  allows for a control of the  $p$  mode content of the emission, by tuning the weight of the quantum paths.

Finally, since  $\phi_{\text{at}}$  can be written as  $\phi_{\text{at}}(r, \theta) = \alpha_{\text{traj}} I_{\text{IR}}(r, \theta)$ , it should also be possible to tune the  $p$  mode content by controlling the intensity of the infrared field. We repeat the previous calculation when the peak infrared intensity varies from 1 to  $2.4 \times 10^{14}$  W/cm. Figure 4 shows the  $(\ell = 19, p)$  mode decomposition for each intensity value and each trajectory. We see that even at high intensities, the short trajectory contribution is always strongly dominated by the  $(19, 0)$  mode. On the other hand, the number of  $p$  modes of the long trajectory can be continuously increased by raising the infrared intensity. Another observation is that although modes with high values of  $p$  contribute to the emission, it is nowhere close to a pure  $(\ell, p)$  LG mode. If XUV high-order vortices with high purity are required, other schemes of generation will be needed. For instance, driving HHG directly with a  $p > 0$  infrared beam might lead to interesting mode contents in the XUV, although we have seen that outer rings tend to contribute less due to the nonlinearity of HHG.

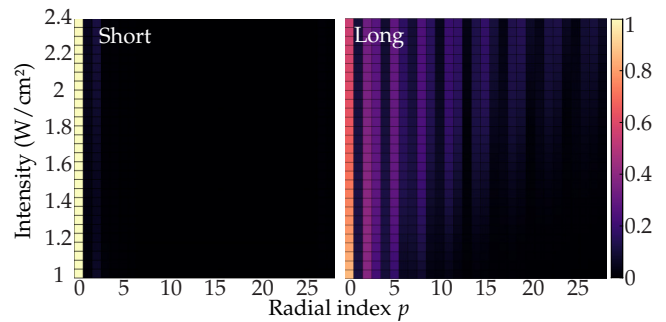


FIG. 4. Mode content as a function of the driving intensity. Coefficients of the decomposition of harmonic 19 when the infrared peak intensity is varied from 1 to  $2.4 \times 10^{14}$  W/cm.

## V. CONCLUSION

In conclusion, we have demonstrated the link between the quantum paths of HHG and the radial index of the emitted extreme ultraviolet vortices. We demonstrated both theoretically and experimentally that controlling the weight of these quantum trajectories produced very different intensity patterns for the harmonic emission. These patterns were then explained by the creation of new  $p$  modes by the atomic dipole phase, a well-known quantity in conventional HHG. First, our work demonstrates that previous experiments of LG-HHG in similar conditions [4,5] measured highly pure  $(\ell_q, 0)$  LG modes and not a superposition of several modes of various radial indexes. Second, we extended these experiments and showed the generation of LG modes in the extreme ultraviolet, this time with high  $p$  values. Additionally to this short wavelength, the emitted radiation shows a rich attosecond time structure, as theoretically investigated in Ref. [33]. The control of this additional quantum number in this attractive spectral and temporal range is a step toward tailoring more complex and refined XUV light sources for fundamental studies and applications.

## ACKNOWLEDGMENTS

We thank A. Camper and Y. Mairesse for fruitful discussion and useful comments on the manuscript. We acknowledge financial support of the French National Research Agency (ANR), through XSTASE (ANR-14-CE32-0010). S.B. acknowledges support from the Vanier Scholarship program. Work by T.T.G. and L.F.D. was supported by the U.S. Department of Energy (DOE), Office of Science, Basic Energy Sciences (BES) under Grants No. DE-SC0012462 and No. DE-FG02-04ER15614, respectively.

- [1] J. Nye and M. Berry, Dislocations in wave trains, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **336**, 165 (1974).
- [2] L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and J. P. Woerdman, Orbital angular momentum of light and the transformation of laguerre-gaussian laser modes, *Phys. Rev. A* **45**, 8185 (1992).
- [3] M. Zürch, C. Kern, P. Hansinger, A. Dreischuh, and C. Spielmann, Strong-field physics with singular light beams, *Nat. Phys.* **8**, 743 (2012).

- [4] G. Gariépy, J. Leach, K. T. Kim, T. J. Hammond, E. Frumker, R. W. Boyd, and P. B. Corkum, Creating High-Harmonic Beams with Controlled Orbital Angular Momentum, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 153901 (2014).
- [5] R. Géneaux, A. Camper, T. Auguste, O. Gobert, J. Caillat, R. Taeib, and T. Ruchon, Synthesis and characterization of attosecond light vortices in the extreme ultraviolet, *Nat. Commun.* **7**, 12583 (2016).

- [6] D. Gauthier, P. Rebernik Ribič, G. Adhikary, A. Camper, C. Chappuis, R. Cucini, L. F. DiMauro, G. Dovillaire, F. Frassetto, R. Géneaux, P. Miotti, L. Poletto, B. Ressel, C. Spezzani, M. Stupar, T. Ruchon, and G. De Ninno, Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation, *Nat. Commun.* **8**, 14971 (2017).
- [7] F. Kong, C. Zhang, F. Bouchard, Z. Li, G. G. Brown, D. H. Ko, T. J. Hammond, L. Arissian, R. W. Boyd, E. Karimi, and P. B. Corkum, Controlling the orbital angular momentum of high harmonic vortices, *Nat. Commun.* **8**, 14970 (2017).
- [8] M. Babiker, C. R. Bennett, D. L. Andrews, and L. C. Dávila Romero, Orbital Angular Momentum Exchange in the Interaction of Twisted Light with Molecules, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 143601 (2002).
- [9] M. van Veenendaal and I. McNulty, Prediction of Strong Dichroism Induced by X Rays Carrying Orbital Momentum, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 157401 (2007).
- [10] A. Camper, T. Ruchon, D. Gauthier, O. Gobert, P. Salières, B. Carré, and T. Auguste, High-harmonic phase spectroscopy using a binary diffractive optical element, *Phys. Rev. A* **89**, 043843 (2014).
- [11] G. Pariente and F. Quéré, Spatio-temporal light springs: Extended encoding of orbital angular momentum in ultrashort pulses, *Opt. Lett.* **40**, 2037 (2015).
- [12] E. Karimi, R. W. Boyd, P. de la Hoz, H. de Guise, J. Řeháček, Z. Hradil, A. Aiello, G. Leuchs, and L. L. Sánchez-Soto, Radial quantum number of laguerre-gauss modes, *Phys. Rev. A* **89**, 063813 (2014).
- [13] W. N. Plick and M. Krenn, Physical meaning of the radial index of laguerre-gauss beams, *Phys. Rev. A* **92**, 063841 (2015).
- [14] V. D. Salakhutdinov, E. R. Eliel, and W. Löffler, Fullfield Quantum Correlations of Spatially Entangled Photons, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 173604 (2012).
- [15] M. Krenn, M. Huber, R. Fickler, R. Lapkiewicz, S. Ramelow, and A. Zeilinger, Generation and confirmation of a (100×100)-dimensional entangled quantum system, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **111**, 6243 (2014).
- [16] J. Mendoza-Hernández, M. L. Arroyo-Carrasco, M. D. Iturbe-Castillo, and S. Chávez-Cerda, Laguerre-gauss beams versus bessel beams showdown: Peer comparison, *Opt. Lett.* **40**, 3739 (2015).
- [17] D. A. Savelyev, S. N. Khonina, and I. Golub, Tight focusing of higher orders laguerre-gaussian modes, *AIP Conf. Proc.* **1724**, 020021 (2016).
- [18] M. Granata, C. Buy, R. Ward, and M. Barsuglia, Higher-Order Laguerre-Gauss Mode Generation and Interferometry for Gravitational Wave Detectors, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 231102 (2010).
- [19] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Theory of high-order harmonic generation by low-frequency laser fields, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- [20] P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Coherence Control of High-Order Harmonics, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3776 (1995).
- [21] M. Nisoli, E. Priori, G. Sansone, S. Stagira, G. Cerullo, S. De Silvestri, C. Altucci, R. Bruzzese, C. De Lisio, P. Villoresi *et al.*, High-Brightness High-Order Harmonic Generation by Truncated Bessel Beams in the Sub-10-fs Regime, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 033902 (2002).
- [22] C. Altucci, R. Bruzzese, C. De Lisio, M. Nisoli, E. Priori, S. Stagira, M. Pascolini, L. Poletto, P. Villoresi, V. Tosa *et al.*, Phase-matching analysis of high-order harmonics generated by truncated bessel beams in the sub-10-fs regime, *Phys. Rev. A* **68**, 033806 (2003).
- [23] M. Beijersbergen, R. Coerwinkel, M. Kristensen, and J. Woerdman, Helical-wavefront laser beams produced with a spiral phaseplate, *Opt. Commun.* **112**, 321 (1994).
- [24] T. Roger, J. J. F. Heitz, E. M. Wright, and D. Faccio, Non-collinear interaction of photons with orbital angular momentum, *Sci. Rep.* **3**, 3491 (2013).
- [25] A. Zaïr, M. Holler, A. Guandalini, F. Schapper, J. Biegert, L. Gallmann, U. Keller, A. S. Wyatt, A. Monmayrant, I. A. Walmsley, E. Cormier, T. Auguste, J. P. Caumes, and P. Salières, Quantum Path Interferences in High-Order Harmonic Generation, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 143902 (2008).
- [26] B. Mahieu, D. Gauthier, M. Perdrix, X. Ge, W. Boutu, F. Lepetit, F. Wang, B. Carré, T. Auguste, H. Merdji, D. Garzella, and O. Gobert, Spatial quality improvement of a ti:sapphire laser beam by modal filtering, *Appl. Phys. B* **118**, 47 (2015).
- [27] K. Sueda, G. Miyaji, N. Miyanaga, and M. Nakatsuka, Laguerre-gaussian beam generated with a multilevel spiral phase plate for high intensity laser pulses, *Opt. Express* **12**, 3548 (2004).
- [28] H. Ruf, Dynamique moléculaire par imagerie attoseconde, Ph.D. thesis, Bordeaux 1, 2012.
- [29] E. Karimi and E. Santamato, Radial coherent and intelligent states of paraxial wave equation, *Opt. Lett.* **37**, 2484 (2012).
- [30] F. Catoire, A. Ferré, O. Hort, A. Dubrouil, L. Quintard, D. Descamps, S. Petit, F. Burgy, E. Mével, Y. Mairesse, and E. Constant, Complex structure of spatially resolved high-order-harmonic spectra, *Phys. Rev. A* **94**, 063401 (2016).
- [31] L. Rego, J. S. Román, A. Picón, L. Plaja, and C. Hernández-García, Nonperturbative Twist in the Generation of Extreme-Ultraviolet Vortex Beams, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 163202 (2016).
- [32] M. Ammosov, N. Delone, and V. Krainov, Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field, *Sov. Phys. JETP* **64**, 1191 (1986).
- [33] C. Hernández-García, J. San Román, L. Plaja, and A. Picón, Quantum-path signatures in attosecond helical beams driven by optical vortices, *New J. Phys.* **17**, 093029 (2015).

### **Article 3 : High-order harmonic generation in an active grating**

C. Chappuis, D. Bresteau, T. Auguste, O. Gobert et T. Ruchon.

*Physical Review A* **99**, 033806 (2019). DOI : [10.1103/PhysRevA.99.033806](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.033806).

**High-order harmonic generation in an active grating**

C. Chappuis, D. Bresteau, T. Auguste, O. Gobert, and T. Ruchon\*

*LIDYL, CEA, CNRS, Université Paris-Saclay, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France*

(Received 12 November 2018; published 4 March 2019)

We study theoretically and experimentally high-order harmonic generation (HHG) using two noncollinear driving fields focused in gases. We show that these two fields form a nonstationary blazed active grating in the generation medium. The intensity and phase structure of this grating rule the far-field properties of the emission, such as the relative amplitude of the diffraction orders. Full macroscopic calculations and experiments support this wave-based picture of the process, complementing and extending its standard “photon” picture. This insight into the HHG process allows us to envision structuration schemes to convert femtosecond lasers to attosecond pulses with increased efficiency.

DOI: [10.1103/PhysRevA.99.033806](https://doi.org/10.1103/PhysRevA.99.033806)**I. INTRODUCTION**

Attosecond pulses are becoming ultimate tools to address ultrafast processes in matter, whether in gases or solids. Using *ex situ* pump-probe schemes like transient absorption and photoionization spectroscopies, they are now used to investigate ultrafast photoionization dynamics in atoms and molecules with attosecond resolution [1,2]. As examples of some very recent progress, time delays in photoionization were identified in both atoms and molecules [3–5]. Auger decays [6] or the buildup of Fano resonances in noble gases were followed in real time [7–9]. The deformation of the atomic potential due to the presence of a strong field was measured [10]. Dynamics of holes following photoionization was followed in amino acids [11]. In solids, energy-dependent time delays of photoemission, including their variation with the angular momentum of the initial state, or of the final state were measured [12–14]. Elastic and inelastic scattering times were identified in dielectric nanoparticles [15]. Dynamics of magnetization could be probed [16]. As a counterpart of these *ex situ* schemes, in which attosecond beams are used downstream from the generation region to probe matter, high-order harmonic generation (HHG) also appears as an efficient tool to interrogate highly nonlinear processes in matter. Here, HHG radiation from a pumped sample is analyzed to probe ultrafast processes at play in a so-called *in situ* approach. In particular, the relative phase of concurrent processes triggered by a strong field has been investigated using various schemes, shedding new light on ultrafast nonlinear processes in atoms and molecules, including chiral molecules and biologically relevant ones [17–27].

Interestingly, for both probing schemes, the use of light-induced gratings has lately been promoted. First, the long-known transient grating spectroscopy has been adapted to harmonic spectroscopy, allowing background-free detection [28]. Here, the generating medium is pumped by two beams forming an interference intensity pattern, while a third beam

generates harmonics at a delayed time. Second, it was shown that generating harmonics with two beams of equal wavelength crossing in the HHG medium allows imparting a great variety of properties to the outgoing high-order harmonics. Here, for a given harmonic number, a series of diffraction orders are observed along the line formed by the difference of the wave vectors of the two beams. This approach, theoretically proposed in Ref. [29], was first experimentally investigated by Bertrand *et al.* [30] and further analyzed by Heyl *et al.* [31]. It was realized that conservation of parity, energy, and linear momentum play a central role to explain the presence or absence of certain channels. In brief, for harmonic  $q$ , its properties are given by the sum of the properties of the  $n$  photons absorbed or stimulated emitted from the first beam and  $m$  photons of the second beam, where  $q = m + n$ . Due to linear momentum conservation, these different channels are spatially separated in the far field and readily identifiable, making attractive sources of tailored attosecond pulses. These conservation rules were extended to the conservation of spin angular momenta and orbital angular momenta when using driving pulses carrying these angular momenta [32–35], and to collinear schemes with beams of different wavelengths. However, a series of questions remains unresolved: should either sum frequency generation or difference frequency generation be favored (SFG or DFG)? Contradictory results are presented in Refs. [30,31] on this question. Why does the yield of some diffraction orders decrease when the perturbation intensity increases? Can it be fully accounted for by phase-matching arguments, generalizing the conclusion of Ref. [31] to nonperturbative cases? In this work, we address theoretically and experimentally these questions by first analyzing the driving field at focus. We predict in a wide range of perturbation levels the location of the dominant diffraction orders. The toy model proposed is tested in Sec. IV against a full theory of HHG and against experimental data in Sec. V. We conclude that, although conservation rules are useful for insights into possible mechanisms, they are insufficient to describe the whole process which, on the contrary is highly dependent on the wavelength scale interferences at focus, in agreement with our toy model.

\*thierry.ruchon@cea.fr



## II. STRUCTURE OF A TWO BEAM FOCUS

Like any nonlinear process, HHG is dramatically influenced by phase matching. In general, the phase-matching condition for harmonic  $q$  reads

$$\Delta\vec{k}_{XUV} = \vec{k}_q - q\vec{k}_1 - \vec{K}, \quad (1)$$

where  $\Delta\vec{k}_{XUV}$  is the phase mismatch that should be minimized for efficient conversion,  $\vec{k}_q$  (respectively,  $\vec{k}_1$ ) is the wave vector of the harmonic (respectively, driving) beam and  $\vec{K}$  is grouping the gradients of the intensity-dependent atomic phase, which is linked to the HHG process at the atomic level, the Gouy phase of the driving beam, and the phases due to the electron and neutral dispersions in the generating medium. This analysis has been extremely successful for understanding spatio-spectral structures of the emitted harmonics driven by a single beam [36,37], and drives the design of efficient generating schemes (see, e.g., [38–43]). Of particular interest are maps of the modulus of  $\Delta\vec{k}_{XUV}$ , which inform us about the dominant generating regions of the gas target, while the direction of  $k_q$  determines the emission direction. This analysis has been generalized to HHG with two noncollinear beams in Ref. [31]. A geometric additional wave vector was identified, and made responsible for the experimental observation that either DFG or SFG may dominate, depending on the focusing parameters [31] or ionization [44]. We here argue that this “macroscopic” approach, which disregards the fine structure of the two-beam focus, is only an approximation limited to weak perturbations. On the contrary, we show that “mesoscopic” aspects, at the wavelength scale, play the central part.

To illustrate this, we plotted in Fig. 1 the intensity map formed by two Gaussian beams of equal angular frequency  $\omega$ , linearly polarized along  $x$  [45], and wave vectors  $\vec{k}_1$  and  $\vec{k}_2$  forming an angle  $\theta$ . The main beam, propagating along the  $z$  axis, has an amplitude  $E_1$ , while the “perturbative” beam has the amplitude  $E_2 = \alpha E_1$ . In the focal volume, the intensity forms the grating of planes parallel to  $(yOz)$  which is found in optics textbooks. More subtle is the structure of the electric field also plotted in Fig. 1. At a given time and in a given transverse plane, the interference pattern is retrieved. However, careful inspection shows that we can no longer associate planes of equal phases parallel to  $(yOz)$  [see the vertical cut along  $(xOz)$  where fringes are pointing slightly downward]. Defining a unique wave vector for the field thus becomes impossible and Eq. (1) should be made local:

$$\Delta\vec{k}_{XUV}(\vec{r}) = \vec{k}_q(\vec{r}) - q\vec{k}_s(\vec{r}) - \vec{K}(\vec{r}), \quad (2)$$

where  $\vec{r}$  is the coordinate vector in the medium and  $\vec{k}_s(\vec{r})$  is the local wave vector associated to the sum of the two driving fields. It should be noted that in previous analysis (e.g., Refs. [36,37]), this “local” form of the phase-matching relation was implicitly used for both  $\vec{k}_q(\vec{r})$  and  $\vec{K}(\vec{r})$ . However, the local form of the driving wave vector was mostly discarded: the general case of spatiotemporal transient phase matching was considered in detail [46,47] but only a few specific practical cases of “guided generation” were demonstrated, taking into consideration the longitudinal variations of the fundamental wave vector [48,49].

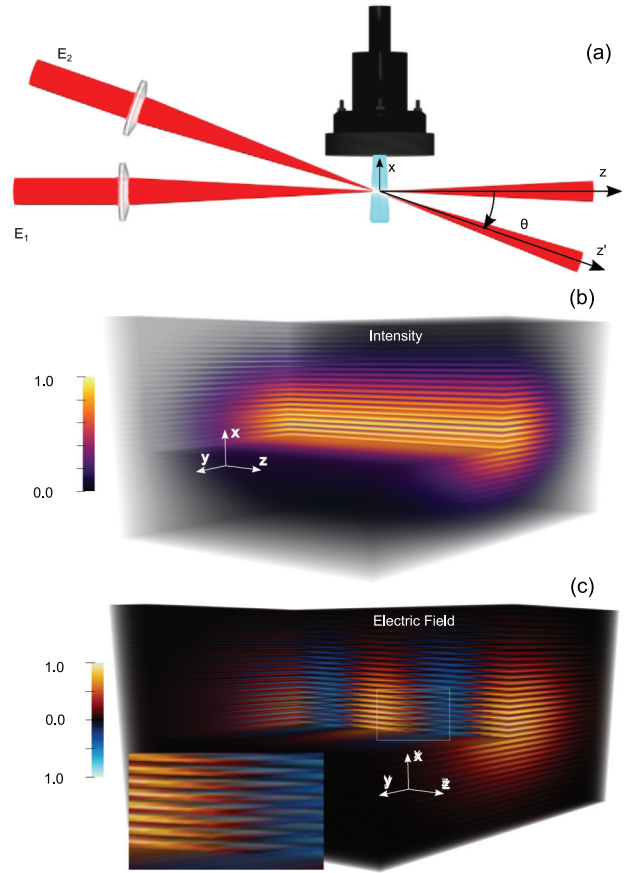


FIG. 1. (a) Schematic of HHG with two noncollinear beams. (b) Intensity map close to focus, when the second beam has an amplitude of 20% compared to the main beam. (c) Corresponding electric field, with a zoom over the white rectangle plotted in the inset. The first beam is propagating along  $z$ , and the second  $z'$ .

### A. Plane continuous waves

#### 1. Analytical signal associated to an interference pattern

To illustrate pedagogically why this spatial dependence should be introduced, we first consider a field with no envelope, either spatially or temporally. The total field in the jet reads

$$E_s = \text{Re}[E_1 e^{i\omega t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} + \alpha E_1 e^{i\omega t - i\vec{k}_2 \cdot \vec{r}}] \quad (3)$$

$$= E_1 \text{Re}[e^{i\omega t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r}} (1 + \alpha e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}})], \quad (4)$$

where the expression in brackets is the analytical signal, denoted  $\tilde{E}_s$ , associated to the real field  $E_s$  and  $\Delta\vec{k} = \vec{k}_2 - \vec{k}_1$ . Cuts of the electric field through the  $(xOz)$  plane are displayed in Figs. 2(a), 2(d) and 2(g) for three amplitudes of the perturbation ( $\alpha = 5\%$ ,  $20\%$ , and  $80\%$ ). The perfect plane waves isoamplitude curves along the  $Ox$  direction are progressively destroyed as the perturbation increases, finally yielding a checkerboard pattern of high-intensity zones, where HHG will occur. This pattern can be decomposed in the form of an analytical signal associated to the real field, yielding the amplitude and phase maps displayed in Fig. 2, second and third columns. We retrieve the usual intensity map of an interference pattern with increasing contrast as  $\alpha$  increases.

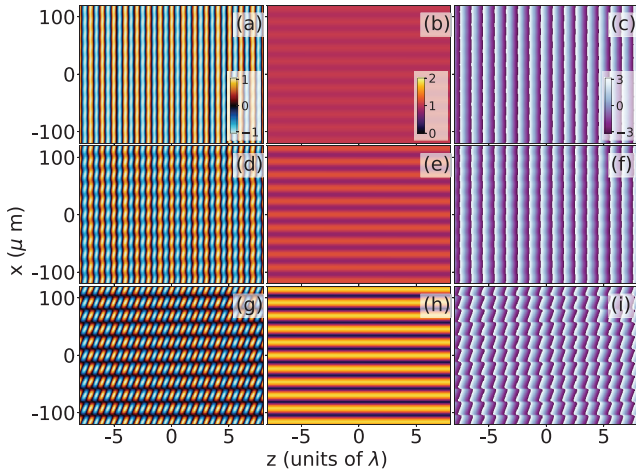


FIG. 2. (a) Left column: electric field at focus resulting from the superposition of two beams making an angle of  $2^\circ$  with relative amplitude of 1:0.05 (top line), 1:0.2 (middle line), and 1:0.8 (bottom line). One beam is horizontal; the second, less intense is coming from the top left of the figure. Middle and right columns: modulus and phase of the associated complex analytical signal. The color bars are the same for all columns.

More interesting for our topic are the phase maps. They show a small modulation along the  $x$  direction, which progressively transforms into a sawtooth pattern. Interestingly, the zones of high amplitude of the analytical signal are associated to a stationary and downward tilted wavefront [see, e.g., Figs. 2(h) and 2(i)]. We can thus anticipate an HHG emission favored downstream, in the direction of SFG.

## 2. Local wave vector

To get more insight, we now derive an expression of the local wave vector. We reorder the last part of Eq. (4) as

$$1 + \alpha e^{-i\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}} = f_m(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) e^{-i\varphi(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \quad (5)$$

with

$$f_m(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) = \sqrt{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}, \quad (6)$$

$$\varphi(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) = \arctan \frac{\alpha \sin(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}{1 + \alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}. \quad (7)$$

We thus get the analytical representation of the composite field

$$\vec{E}_s = E_1 f_m(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) e^{i\omega t - i\vec{k}_1 \cdot \vec{r} - i\varphi(\alpha, \vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}. \quad (8)$$

The local wave vector of the sum of the two fields, denoted  $\vec{k}_s(\vec{r})$ , is given by the spatial gradient of the phase. Some standard algebra leads to [50]

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \vec{\nabla} \varphi = \vec{k}_1 + \frac{\alpha[\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})]}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \vec{\Delta k}. \quad (9)$$

In the  $(xOz)$  plane, we denote  $(k_s, \theta_s)$  the polar coordinates of the wave vector:

$$\vec{k}_s = \begin{bmatrix} k_s \sin \theta_s \\ k_s \cos \theta_s \end{bmatrix}. \quad (10)$$

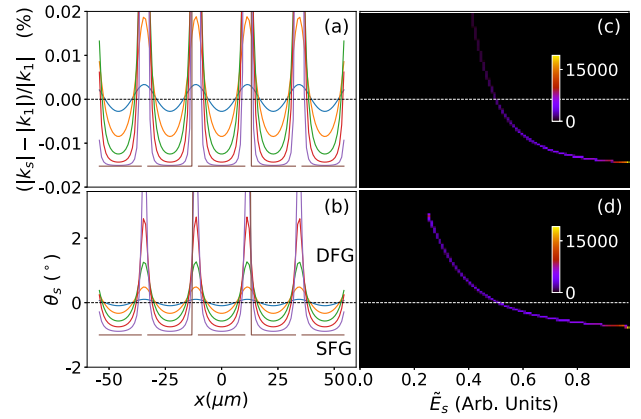


FIG. 3. Wave-vector modulus (a) and angle with respect to horizontal (b) across the transverse direction ( $x$ ) for different ratios of the two fields: 1:0.05 (blue), 1:0.2 (orange), 1:0.4 (green), 1:0.6 (red), 1:0.8 (purple), and 1:1 (brown). The data corresponding to amplitudes of the analytical signal below 10% of its maximum has been discarded. (c),(d) Histograms of the distributions of  $\frac{|k_s| - |k_1|}{|k_1|}$  and  $\theta_s$  for the case of  $\alpha = 0.6$ . Each vertical cut is a histogram for a given field amplitude  $\vec{E}$  giving finally these 2D histograms. The amplitude of the analytical signal  $\vec{E}_s$  has been normalized to 1.

As expected, we find that the initial wave vector is perturbed by an almost orthogonal contribution [along  $\vec{\Delta k}$ , last part of Eq. (9)], with an amplitude that strongly depends on the location in the medium. The relative amplitude of this “active grating” contribution and its angle with respect to the horizontal  $z$  axis are displayed in Figs. 3(a) and 3(b) for a series of  $\alpha$  against the transverse dimension. At very low perturbation levels, both the wave vector amplitude and angle vary sinusoidally against  $x$ . The excursion is perfectly up-down symmetric. However, as soon as the perturbation increases, the spectral content gets richer, finally converging to constant values for  $\alpha = 1$ ,  $\theta_s = \theta/2$  for the angle, and  $|\Delta k_1|/|k_1| \simeq -1.5 \times 10^{-4}$ . The angle is simply the bisector of the two beams, as expected for two equally intense interfering beams. In the following, we first consider this general expression giving the full map of the wave vector in the cases of weak and strong perturbations, before focusing on vertical lines where it is stationary, e.g., at  $x = 0$ .

## 3. Strong perturbation case

In quite a few current schemes, equally strong fields are asked for (e.g., Ref. [32]). To get the wave vector in this case, we set  $\alpha = 1 - \beta$ , with  $\beta \ll 1$  in Eq. (9). We then get

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \frac{\vec{\Delta k}}{2} - \frac{\beta}{1 + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \frac{\vec{\Delta k}}{2}. \quad (11)$$

As a first approximation, the wave vector is determined by the bisector of the two beams, as could be intuited:

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \vec{\Delta k}/2 \quad (\text{for } \alpha = 1, \beta = 0). \quad (12)$$

It is independent of the location in the medium. With this expression, some algebraic manipulations give the following

expressions for the modulus and angle of the local wave vector:

$$\frac{|k_s| - |k_1|}{|k_1|} \simeq -\frac{1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2}, \quad (13)$$

$$\theta_s = \theta/2, \quad (14)$$

which correspond to the values found in Fig. 3 with  $\theta = -2^\circ$ . In the case of perfect symmetry between the two beams, we thus have a homogeneous wavefront throughout the medium. It is tilted with respect to the horizontal axis by half the angle between the two beams. We thus expect all harmonics to be emitted along this direction. These conclusions are drawn from the analysis of the local wave vector in transverse planes. It does not consider the longitudinal dispersions induced by the ionizing medium and the HHG process itself, which, when considering an extension of the medium along  $z$ , are responsible for usual phase-matching effects. However, the variation of the magnitude of the wave vector identified here should also alter the phase-matching conditions in a cascade effect. This last effect had not been considered thus far.

In the case of two beams nonperfectly symmetric, which could be the result of imperfect matching of the energies, spatial or temporal overlaps, the last term in Eq. (11) should be taken into account. Now the wave vector is nonhomogeneous spatially. We thus predict a dispersion of the amplitude and emission direction of the harmonics along several diffraction orders. Also, we note that formula (11) is asymmetric with respect to the bisector. We thus anticipate that positive and negative orders will not be equally strong. This could explain the results observed, for instance, in Ref. [32] (Supplemental Material).

#### 4. Weak perturbation case

The second interesting case, which was investigated in [30,31], is the perturbative case,  $\alpha \ll 1$ . Here

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \alpha \vec{\Delta k} \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}) \quad (\text{for } \alpha \ll 1) \quad (15)$$

with the corresponding modulus and angle of the wave vector

$$\frac{|k_s| - |k_1|}{|k_1|} \simeq -2\alpha \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}), \quad (16)$$

$$\theta_s \simeq \alpha \sin \theta \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}). \quad (17)$$

The wave vector is modulated in both direction and modulus sinusoidally, justifying the “local form” in Eq. (2). HHG being highly nonlinear, the intensity modulation will transfer to a phase spatial modulation affecting phase matching, just as the modulation in amplitude and direction of the wave vector will. Importantly, the modulation is here perfectly symmetrical along the transverse direction. Identical generating volumes thus have wave vectors pointing upward and downward, making no difference between the SFG and DFG amplitudes. We can thus anticipate equally strong positive and negative diffraction orders in the far field.

#### 5. General case and discussion

Such analytical formulas, which are valid everywhere in the medium, cannot be derived easily for intermediate

perturbation levels. However, we can still get insights into the consequences of the modifications of the wave vector by considering its stationary values in the generating volume. Getting back to the microscopic “atomic” level, HHG appears as a three-step process. Close to an extremum of the driving field, a valence electron is tunnel ionized (first step), generating an electronic wave packet (EWP). The EWP, launched in the continuum, is driven away from its ionic core before being pulled back when the field changes sign, about a quarter of a period later (second step: excursion in the continuum). Finally, under specific initial conditions, the EWP may recollide with the ionic core and recombine, emitting its excess of energy as an XUV photon (third step: recombination). The first step is a highly nonlinear effect. Only places where the field is strong will significantly contribute to the far-field amplitude. Moreover, simple computations show that the maximum energy of an emitted photon reads  $E_{\text{cutoff}} = I_p + 3.2U_p$  where  $I_p$  is the ionizing potential of the atom and  $U_p$  the ponderomotive potential of the field, which scales as  $U_p \propto \tilde{E}^2 \lambda_1^2$ . The highest XUV photons can thus only be generated at locations in the medium where the field is strong enough to be authorized by the cutoff law. On the contrary, lower energy photons, lying in the so-called plateau of the spectrum, can be generated by these strong fields, but also weaker fields.

These considerations motivated the plot of the two-dimensional (2D) histograms of Fig. 3. They display the joint probability of given  $(|\vec{k}_s|, \tilde{E}_s)$  and  $(\theta_s, \tilde{E}_s)$ . On these maps, the stronger the color, the more probable the couple of values. In this case, we observe that the highest harmonics, which can only be generated for the highest field amplitudes  $\tilde{E}_s$ , will be generated with a stationary value of the amplitude and inclination angle of the driving wave vector. On the contrary, for the plateau harmonics, which can be generated for many values of  $\tilde{E}_s$ , there will be a spreading of the angles of emission, which is all the wider as the photon energy is low. To be more specific, it appears in Figs. 3(a) and 3(b) that the wave vector is stationary at  $x = 0$ . The wave vector there reads

$$\vec{k}_s(\vec{r} = 0) = \vec{k}_1 + \frac{\alpha}{1 + \alpha} \vec{\Delta k}. \quad (18)$$

It corresponds to a magnitude and angle

$$|\vec{k}_s(\vec{r} = 0)| = |\vec{k}_1| \sqrt{1 - \frac{4\alpha}{(1 + \alpha)^2} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right)}, \quad (19)$$

$$\theta_s = \arctan \frac{\alpha \sin \theta}{1 + \alpha \cos \theta}. \quad (20)$$

The angle  $\theta_s$  is not simply the average of the two wave vectors as could be intuitively guessed. However, it goes smoothly from a linear behavior to its final value  $\theta/2$  as  $\alpha$  increases. As for the magnitude, considering small angles between the two beams we get the expression

$$\frac{|k_s(\vec{r} = 0)| - |k_1|}{|k_1|} \simeq -\frac{2\alpha}{(1 + \alpha)^2} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right). \quad (21)$$

It should be noted that this additional phase mismatch modulation due to the “active grating” is comparable in amplitude to usual phase-matching factors. To give a few orders of magnitude, for an angle of  $2^\circ$  and 10% perturba-



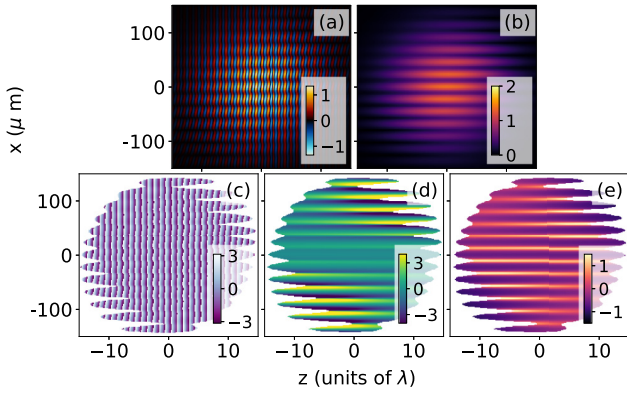


FIG. 4. (a) Electric field at focus resulting from the superposition of two beams making an angle of  $2^\circ$  with relative amplitude of 1:0.4. The two waists are  $100 \mu\text{m}$ , durations of 30 fs,  $\lambda = 800 \text{ nm}$ . (b) Amplitude and (c) phase of the associated analytical signal. (d) Relative amplitude  $[|k_s(\vec{r})| - k_1]$  in  $10^4 \text{ m}^{-1}$  and (e) inclination angle (in degrees) of the local wave vector. For maps (c)–(e) all data corresponding to magnitudes of the analytical signal below 10% of its maximum have been discarded.

tion in amplitude, the wave-vector magnitude is modified by  $\simeq \pm q \times 0.5 \text{ rad/mm}$ , where  $q$  is the harmonic number. It would correspond to a coherence length of  $1/q \text{ mm}$  if alone. As a comparison, the new term found in Ref. [31] has a magnitude of about  $0.2 \text{ rad/mm}$ , and in standard conditions coherence lengths are found on the millimeter or fraction of millimeter scale, with the different terms precisely of the order of a fraction of radian per millimeter (see, e.g., [51,52]). The term we identified here is thus far from negligible, and could even become dominant.

To summarize this first analysis, we identified that the local wave vector of the driving field is strongly modified in both direction and amplitude by the presence of a second beam, which should dramatically affect the global HHG yield and the spatial features of the emission.

### B. Gaussian spatial and temporal profiles

To get a more realistic situation, we now include the spatial and temporal profiles of the beams in the simulations. The conclusions drawn above still hold “locally,” for a given ratio of the fields. However, even in a generating medium of only a few tens of microns long, with waists of the beams of about  $100 \mu\text{m}$ , significant variations of the relative amplitude of the beam occur in the medium. This is made apparent in Fig. 4. As expected, the electric field, magnitude, and phase of the associated analytical signal show patterns very similar to those of Fig. 2, but for overall spatial (along  $x$ ) and temporal (along  $z$ ) envelopes. The most striking feature appears in Figs. 4(d) and 4(e). As in Fig. 3, the main trend is a transverse modulation of the magnitude and angle of the local wave vector. However, there is a left-right and up-down asymmetry appearing. It is naturally due to the varying relative amplitudes of the beams at different locations in the medium. To quantify this asymmetry, we plotted in Figs. 5(a) and 5(b) three lineouts of these maps, along with their 2D

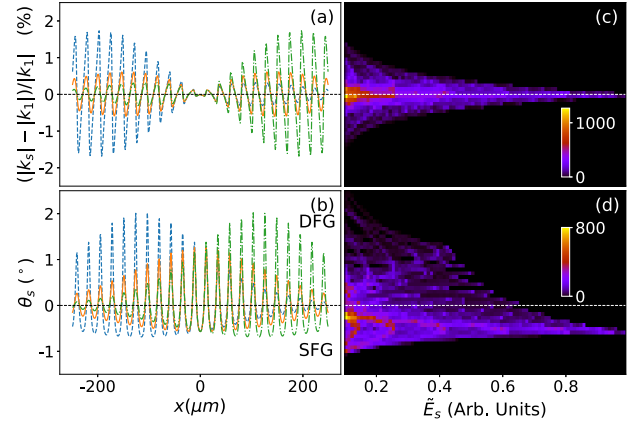


FIG. 5. (a),(b) Cuts through the maps displayed in Figs. 4(d) and 4(e) at  $z = 0$  (orange, solid),  $z = 5 \lambda$  (blue dotted), and  $z = -5 \lambda$  (green, dash-dotted) along the transverse direction. For  $\theta_s$ , negative inclination angle means propagation toward the bottom right of the figure, i.e., SFG processes with our convention. (c),(d) Two-dimensional histograms corresponding to Figs. 4(d) and 4(e), like in Fig. 3.

histograms vs the amplitude of the field. While the central cut is top-bottom symmetric (orange), the two others are mirror images. For instance, for the cut at  $-5 \lambda$  (green), the beam should interfere more at positive  $x$  (the tilted beam comes from the top). Accordingly, the wave vector is slightly modulated and mainly points toward the horizontal at negative  $x$ . It should be noted that the effect is large, reaching 1.5% of excursion for  $|\Delta k|$  and more than  $2^\circ$  for  $\theta_s$ . The 2D histograms show that the distribution of  $|\Delta k|$  remains limited to a few permil, depending on the value of  $\vec{E}_s$  considered. The angle shows an “Eiffel-tower”-like distribution which points toward the stationary angle  $\theta \cdot \alpha / (1 + \alpha)$ , given by Eq. (20). It is interesting to note that the introduction of the envelopes of the field changed the general histograms drastically: whereas a bijection is observed between  $\vec{E}_s$ ,  $|\vec{k}_s(\vec{r})|$ , and  $\theta_s$  for plane waves, here an almost constant value is obtained for  $|\vec{k}_s(\vec{r})|$  and  $\theta_s$ . The only varying parameter is the distribution about this mean value that decreases as  $\vec{E}_s$  increases. Also, the histograms were peaking at high field values in Fig. 3, due to the stationary behavior of the angle and magnitude of the wave vector at the high-field locations in the medium. In the more realistic case considered now, the temporal and spatial envelopes of the fields make low-field magnitudes more probable. As a consequence, histograms are peaking at low-field values.

In Fig. 6, we plotted the same histograms for a series of  $\alpha$ 's. We note that the distribution of  $|\vec{k}_s|$  increases dramatically with  $\alpha$ . We will thus have good phase matching in an ever decreasing volume as  $\alpha$  increases. At the same time, the “Eiffel tower” shape converges to a perfectly symmetric shape about the half angle between the beams, which is expected, but with an ever increasing base. We can thus infer, as a first approximation, that a regular blazed active phase grating is created in the medium, with a phase varying like

$$\varphi_{\text{grating}} \simeq \frac{\alpha}{1 + \alpha} \theta \times k_1 x. \quad (22)$$

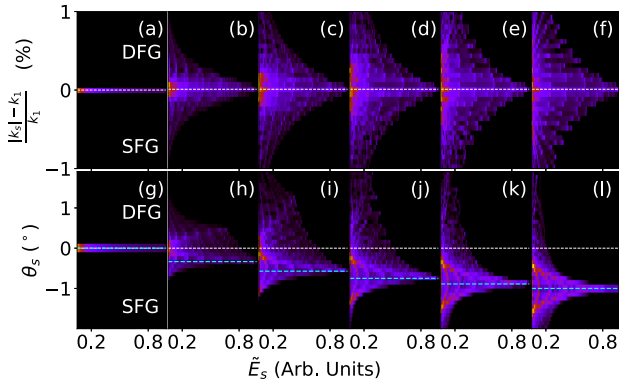


FIG. 6. Same histograms as in Fig. 5 for different ratios ( $\alpha = 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$  from left to right). The light-blue dashed line is at  $\theta_s \cdot \alpha / (1 + \alpha)$ .

This rough approximation of a blazed phase grating will become less and less exact as  $\alpha$  increases for harmonics of the plateau while remaining valid for cutoff harmonics.

### III. HHG BY A FIELD SHOWING A BLAZED PERIODICAL STRUCTURE

Having identified that two interfering beams create a blazed phase grating and a symmetric amplitude grating in the focus area, we now investigate its consequence on the HHG process. We will pay specific attention to the symmetries of the SFG and DFG processes. As a very rough model of HHG, we may simply consider the sum of the contributions over a volume

$$E_q(\vec{r}_{\text{out}}) = \iiint_V e_q(\vec{r}) e^{i\Delta\vec{k}_{\text{XUV}}(\vec{r}) \cdot \vec{r}} d^3\vec{r}, \quad (23)$$

where  $E_q$  is the macroscopic electric field of harmonic  $q$  at location  $\vec{r}_{\text{out}}$  at the exit of the generating medium,  $e_q(\vec{r})$  is the microscopic response at location  $\vec{r}$  inside the medium, and  $\Delta\vec{k}_{\text{XUV}}(\vec{r}) = q\vec{k}_s(\vec{r}) - \vec{k}_q(\vec{r})$  is the “local” phase mismatch. The integration is carried out over the generating gas volume  $V$ , which, for the sake of simplicity, we consider to be infinitely small along the  $z$  direction, thus neglecting longitudinal phase-matching effects.  $e_q(\vec{r})$  is highly nonlinear with the local amplitude of the field. The modulation of the amplitude of the driving field will thus create a series of generating slits, forming a transverse amplitude grating. Importantly, this grating is perfectly symmetric against the transverse axis  $x$  at  $z = 0$ . Through the intensity-dependent response of the atoms to strong fields ( $\phi_{\text{at}} \propto I$ ), it is also a phase grating, which is also  $x$ -wise symmetric at  $z = 0$ . Naturally, off focus, an asymmetry appears versus the  $x$  axis, which will be opposite at symmetrical locations upstream of and downstream from the focal spot. Considering a gas jet located at  $z = 0$ , these two effects thus have an overall symmetry against  $x$ .

Of more interest here is the exponential term. According to the previous section [Eq. (22)] the phase is approximately linear with  $x$ . We thus have a “blazed” phase grating, asymmetric with respect to  $x$ , which gets superimposed on the pattern discussed above. This is true everywhere in the medium, at focus, upstream and downstream: the dominant blaze angle

always has the same sign. To get a toy model based on these considerations, we consider a transverse grating made of a series of Gaussian gates, labeled from  $-n_0$  to  $n_0$ , with a Gaussian envelope, and the linear phase  $\varphi(x) = q\varphi_0 \frac{x}{\Lambda}$  for harmonic  $q$ . In agreement with Eq. (22) we set

$$\varphi_0 = \frac{\alpha}{1 + \alpha} \times 2\pi. \quad (24)$$

The harmonic field at the exit of the generating medium can thus be written

$$E_q(\vec{r}_{\text{out}}) = \left[ G\left(\frac{x}{\delta x}\right) e^{iq\varphi_0(x/\Lambda)} \right] * \left[ \sum_{n=-n_0}^{n_0} \delta\left(\frac{x}{\Lambda} - n\right) G\left(\frac{x}{\Delta x}\right) \right], \quad (25)$$

where  $G$  is the Gaussian function  $G(x) = e^{-x^2}$ ,  $\Lambda$  the periodicity of the grating ( $\Lambda = 2\pi/|k_1 - k_2| = \lambda/\sin\theta$  is the periodicity of the intensity of the sum of the fields),  $\delta x$  the width of each slit, and  $\Delta x$  the width of the envelope. In the Fraunhofer diffraction regime, at distance  $z_{ff}$  from the medium, the amplitude reads

$$E_q(\vec{r}_{ff}) \propto \left\{ G\left[\pi\delta x\left(u - q\frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda}\right)\right] \sum_{n=-n_0}^{n_0} e^{-i2\pi n\Lambda u} \right\} * G(\pi\Delta xu) \quad (26)$$

$$\propto \left\{ G\left[\pi\delta x\left(u - q\frac{\varphi_0}{2\pi\Lambda}\right)\right] e^{-i\pi\Lambda u} \frac{\sin(2\pi n_0\Lambda u)}{\sin(\pi\Lambda u)} \right\} * G(\pi\Delta xu), \quad (27)$$

where  $u = x'/\lambda_q z_{ff}$  with  $x'$  labeling the vertical coordinate at the observation plane and  $\lambda_q = \lambda/q$  the wavelength of harmonic  $q$ . The first Gaussian has an envelope of width

$$w_q = \frac{\lambda_q z_{ff}}{\pi\delta x}, \quad (28)$$

offset by

$$x'_c = \frac{\lambda}{\Lambda} \frac{\varphi_0}{2\pi} z_{ff}. \quad (29)$$

It is multiplied by a function that converges to a series of Dirac peaks as  $n_0$  increases. The location of the  $p$ th Dirac peak is

$$x'(q, p) = p \frac{\lambda}{q\Lambda} z_{ff} = p \frac{|\vec{k}_2 - \vec{k}_1|}{2\pi q} z_{ff}. \quad (30)$$

The intensity profile in the far field thus appears as a series of peaks, equally spaced by  $x'(q, 1)$ , centered around  $x'_c$ , with an amplitude decreasing along a large Gaussian of width  $w_q$ . The peaks correspond to the diffraction orders. The last convolution only transforms the series of Dirac peaks into physical Gaussian finite functions of small width. The last expression in Eq. (30) was interpreted as a conservation law of momentum during a non-linear process [30–32]: the wave vector of the outgoing photon points in the directions corresponding to that of the driving field plus an integer number of the difference of the wave vectors of the two interfering fields. In other words, for a given harmonic  $q$ , a photon picture may be associated to each diffraction order labeled  $p$ , which corresponds to the absorption (or stimulated emission) of  $q-p$  photons of

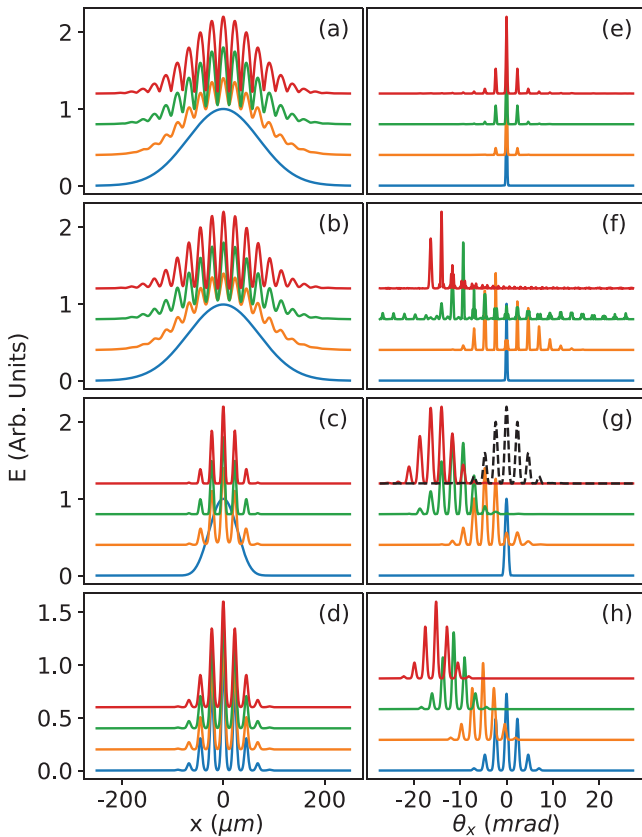


FIG. 7. Intensities at  $z = 0$  (a)–(d) and in the far field (e)–(h) for  $\alpha = 0$  (blue),  $\alpha = 0.2$  (orange),  $\alpha = 0.6$  (green), and  $\alpha = 1.0$  (red). We consider H15. For the sake of visibility the curves are all normalized to 1 and shifted respectively by 0, 0.4, 0.8, and 1.2. (a) and (b) correspond to cuts analogous to the orange curve in Fig. 5(b). (c) is the amplitude of the ionization rate computed with the ADK model. (d) is a toy model corresponding to a series of Gaussian amplitude with periodicity  $\Lambda = 1/\Delta k$ , of width  $\Lambda/5$  with a Gaussian global envelope of width  $60 \mu\text{m}$ . The phase is here set according to Eq. (22). (e)–(h) Amplitudes of the Fourier transforms of (a)–(d). In (e), the phase of the signal is set to zero; in (f) and (g) the phases computed in Fig. 5 are plugged; in (h) we took the analytical formula of Eq. (24). The results are offset by the same quantities and the color code is the same on all plots. The distance is  $z = 0.3 \text{ m}$ . In (g) the black dotted line corresponds to the same as the red, but setting the phase to 0.

the first beam and  $p$  photons from the second beam. However, it should be noted that this “multiphoton” picture has nothing to do with being in a perturbative regime and is much more general. It here appears as a consequence of the quasiperiodicity of the sum of the two fields in the transverse direction.

The main point here is that the dominant diffraction order is ruled by the grating depth  $\varphi_0$  and is independent of the harmonic order  $q$ .  $q$  only enters into the spacing of the comb of diffraction orders. This is confirmed in the plots displayed in Fig. 7. Taking a cut at  $z = 0$ , whatever  $\alpha \neq 0$ , if the phase is not taken into account we get a series of peaks centered about zero [Figs. 7(a) and 7(e)]. If the phase is considered, the peaks are all the more offset as  $\alpha$  increases [Figs. 7(b) and 7(f)]. HHG being a highly nonlinear process, especially through the

field-driven tunnel ionization constituting the first step of the process, the slits should be fewer and thinner than the oscillations of the electric field. As a very rough approximation of this effect, the HHG signal can be estimated proportional to the tunnel ionization rate at any time. We estimated it using the Amonosov-Delone-Krainov (ADK) formula [53] [Figs. 7(c) and 7(g)], keeping in mind that it is rigorously valid only for continuous fields. We get only a few half periods ( $\simeq 5$ ) contributing, with widths of a fraction of the field’s half period. The consequence in the far field is a smoother profile of the harmonic orders, which still shows a shift toward SFG. This behavior is very well reproduced by the toy model exposed above [Fig. 7(d): Eq. (25); Fig. 7(h): its Fourier transform], enlightening the role of the modulation depth of the phase in the relative intensities of the diffraction orders.

#### IV. FULL QUANTUM MODEL OF HHG IN AN ACTIVE GRATING

To be more quantitative, we performed full numerical simulations based on the solution of the nonadiabatic, three-dimensional (3D) paraxial wave equation (PWE), in Cartesian geometry. The source term in the PWE is given by the solution of the Schrödinger equation, in the strong-field approximation (SFA) [54]. The PWE is solved for each spectral component, using a finite-difference method [19], on a  $512 \times 512 \times 200 \mu\text{m}^3$  spatial grid and a 100-fs time interval, for  $513 \times 513 \times 41$  points in space and 4096 in time. This leads to a spatial step of  $1 \mu\text{m}$  along the transverse dimensions [ $(x, y)$  coordinates] and  $5 \mu\text{m}$  in the propagation direction (along the  $z$  axis). The time step is  $2.4 \times 10^{-2}$  fs, which is about  $1/100$ th of the optical period of the driving fields. We consider two Gaussian beams of  $100 \mu\text{m}$  waist at focus, i.e., 39 mm Rayleigh range. The temporal intensity profiles have  $\sin^4$  shapes of 50 fs full width at half maximum. Both beams are focused in the middle of a  $100\text{-}\mu\text{m}$  thin slab of argon gas, where they spatiotemporally overlap, following the setup depicted in Fig. 1. The two beams cross each other with a 20 mrad angle. The total peak intensity at focus is  $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , whatever  $\alpha$ , and the density of atoms is  $3.0 \times 10^{17} \text{ atoms/cm}^3$ . Transverse cuts of the harmonic fields amplitudes and phases are displayed in Figs. 8(a) and 8(b) for H15, which is in the plateau and H27, which falls in the cutoff for this intensity. As expected, both H15 and H27 show a series of peaks spaced by the period of the active grating (the shape of the driving field is displayed in a dashed line). They are located on the highest intensity spots of the driving interference field. It is purely symmetric about  $x = 0$ . In addition, H15 is strongly modulated. This is due to interferences between the long and short trajectories for harmonics lying in the plateau. As a support of our analytical model described above, the phase of the harmonics shows a sawtooth pattern. A linear fit of the phase about the locii of highest intensities gives the corresponding blaze angle,  $\partial\varphi/\partial x$ . It is displayed against the perturbation ratio  $\alpha$  for H15 in Fig. 8(c) and against the harmonic order for  $\alpha = 0.25$  in Fig. 8(d). The determination of  $\partial\varphi/\partial x$  depends on the “groove” considered in the active grating. We displayed the values obtained for four peaks, showing significant dispersion, along with their mean value. Although we did not investigate it further, this

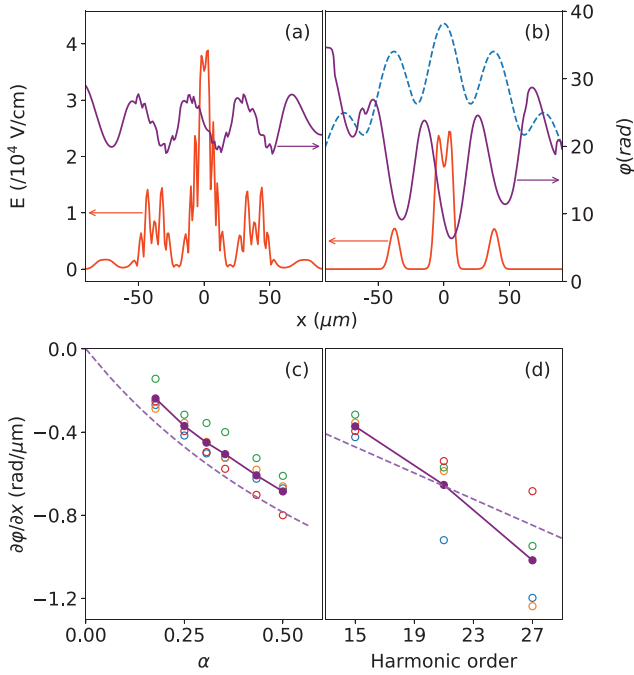


FIG. 8. Top line: Amplitude (orange) and phase (purple) of harmonic 15 (a) and harmonic 27 (b) at the exit of the generating medium calculated with the model described in Sec. IV versus the transverse direction  $x$ . The left (respectively, right) scale is used for amplitude (respectively, phase) for both panels. In panel (b), the amplitude of the driving field is displayed as a dashed line. It is offset by  $2 \times 10^8$  V/cm and divided by  $10^4$ . Bottom line: Values of the derivative of the phase against  $x$ . In both plots various colors are results taken for successive maxima of the XUV field (blue:  $x \simeq -40$   $\mu\text{m}$ ; orange:  $x \simeq 0$ ; green:  $x \simeq 40$   $\mu\text{m}$ ; red:  $x \simeq 80$   $\mu\text{m}$ ). The mean value is displayed in purple. (c) Variation of the blaze angle against the field ratio for harmonic  $q = 15$ . The dashed line is the analytical formula given by Eq. (24). (d) Variation of the blaze angle against the harmonic number for  $\alpha = 0.25$ .

dispersion is probably reminiscent of the variations of the  $\alpha$  ratios within the focus, as identified in Fig. 5. However, the trend in Fig. 8(c) follows reasonably the prediction of our toy model [Eq. (24) displayed as a dashed line]. It should be noted that here, there is no adjustable parameter on the model. The fact that the result is slightly offset upward is a consequence of the distribution of wave-vector angles above the limit value in Fig. 5(d), especially for harmonics of the plateau that can be generated with field amplitudes below the peak amplitude. The same conclusions hold for the expected linearity of the harmonic-dependent blaze angle [Fig. 8(d)], further supporting our interpretation of the origin of the offset dominant diffraction orders. These full calculations validate our analytical approach exposed in Sec. III.

To go further, we propagated the harmonic fields toward the far field using the Fresnel propagator. Four intensity maps are displayed in Fig. 9, corresponding to the two same harmonics 15 (left column) and 27 (right column), and a weak (top line) and strong perturbation (second line) ( $\alpha = 0.18$  and  $\alpha = 0.5$ ). As anticipated with the analytical model, the harmonics show a series of diffraction orders, more sparse

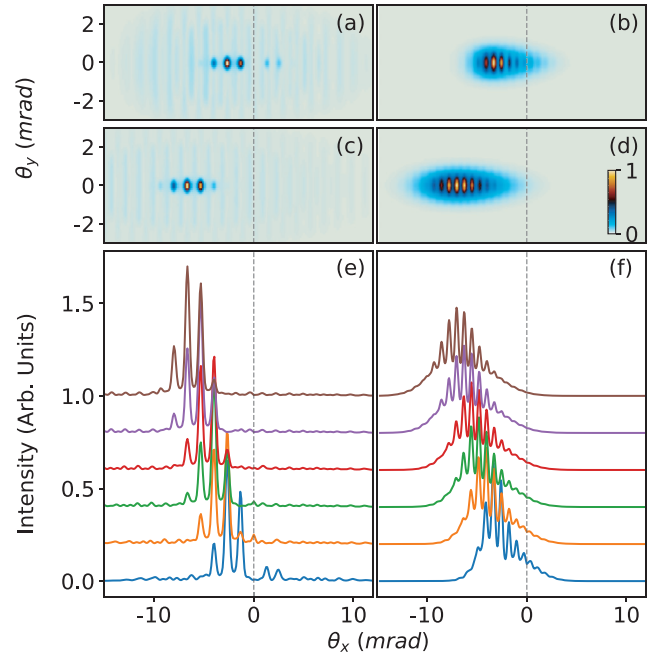


FIG. 9. Color maps of the intensities in the far field of harmonics 15 [(a),(c)] and 27 [(b),(d)] for perturbations  $\alpha = 0.18$  [(a),(b)] and  $\alpha = 0.5$  [(c),(d)]. All maps are individually normalized and the color maps are set equal. Cuts of the harmonic intensities 15 (e) and 27 (f) at  $\theta_y = 0$  for  $\alpha = 0.18$  (blue, no offset),  $\alpha = 0.25$  (orange, offset = 0.2),  $\alpha = 0.31$  (green, offset = 0.4),  $\alpha = 0.35$  (red, offset = 0.6),  $\alpha = 0.43$  (purple, offset = 0.8), and  $\alpha = 0.5$  (brown, offset = 1.0). The successive cuts are offset by 0.2 for the sake of visibility. The intensities of H15 are divided by 2 to share the y axis with H27.

for H15 than H27, below a global envelope. They are all the more shifted toward the SFG side as  $\alpha$  is set stronger. This is even more evident in Figs. 9(e) and 9(f) where six values of  $\alpha$  are used. The similarity of this figure with Fig. 7(h) is striking. The locations of the dominant peaks even fit fairly well. It should be noted that a slight left-right asymmetry appears, especially for low perturbation values on H27. This is probably a consequence of the extension of the medium along  $z$ , which yields such a slight asymmetry of the field. Whereas opposite areas located upstream of and downstream from the focus are just mirror images about the  $x$  axis for the driving field when no gas is inserted, this is no longer the case when reshaping of the fundamental is authorized, nor when harmonics are propagated in differently ionized absorbing media. More careful examination of these “volume” effects are left for further studies, the agreement being already extremely promising.

## V. EXPERIMENTAL TEST OF THE THEORY

We tested the conclusions of these analyses performing experiments on LUCA laser in Saclay. It is a Ti:sapphire femtosecond laser based on chirped pulse amplification. It delivers pulses of  $\simeq 40$  mJ energy, 60 fs FWHM duration, at a repetition rate of 20 Hz. It was split into two equal parts which were passed through adjustable attenuators before



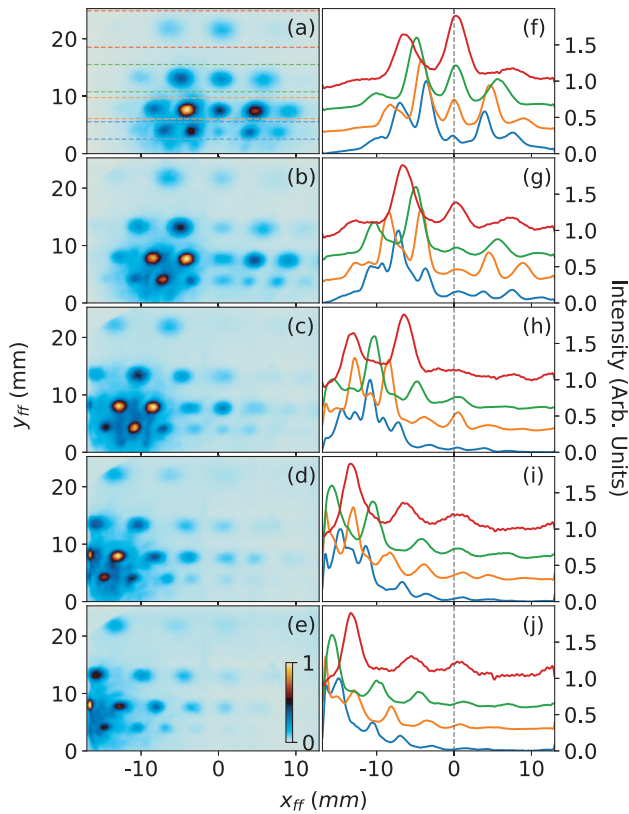


FIG. 10. Left column: Experimental images on the detector for five levels of perturbation [ $\alpha \lesssim 0.15$ ,  $\alpha = 0.25$ ,  $\alpha = 0.38$ ,  $\alpha = 0.50$ , and  $\alpha = 0.66$  from (a) to (e)]. Here  $\theta = 1^\circ$ . All images are normalized to 1, and share the same color map. The vertical axis is the direction of the dispersion of the detector grating, while the horizontal axis is the direction of dispersion of the “active” grating. Right column: Lineouts corresponding to the sums between the dashed lines displayed in panel (a), for H9 (red, offset = 0.9), H11 (green, offset = 0.6), H13 (orange, offset = 0.3), and H15 (blue, no offset). All curves are normalized and offset by 0.3 for the sake of visibility.

being focused in an argon gas jet by two identical lenses of 1 m focal length. The main beam carried 2.3 mJ, while the second was adjusted during the experiment to scan  $\alpha$ . The two beams were linearly polarized vertically and crossed with an adjustable angle in the HHG medium. We focused both beams as close as possible to the gas jet along  $z$ . The harmonics generated were collected on a low dispersion grating [55], before being detected on microchannel plates (MCPs) coupled to a phosphor screen imaged on a CCD camera. The images displayed in Fig. 10 were averaged over 500 shots. Harmonic numbers were calibrated using the theoretical dispersion of the grating [56]. A given harmonic shows at a given  $y$ , while the divergence of the harmonics is imaged along the  $x$  dimension [57]. The left side of the image is cut due to the size of our MCP set.

We clearly observed the spreading of the harmonics into several orders. While both negative and positive orders coexist for low perturbation values, the profiles are quickly deported toward the left of the figure, corresponding to the SFG region. This is all the more the case as  $\alpha$  increases (from top to

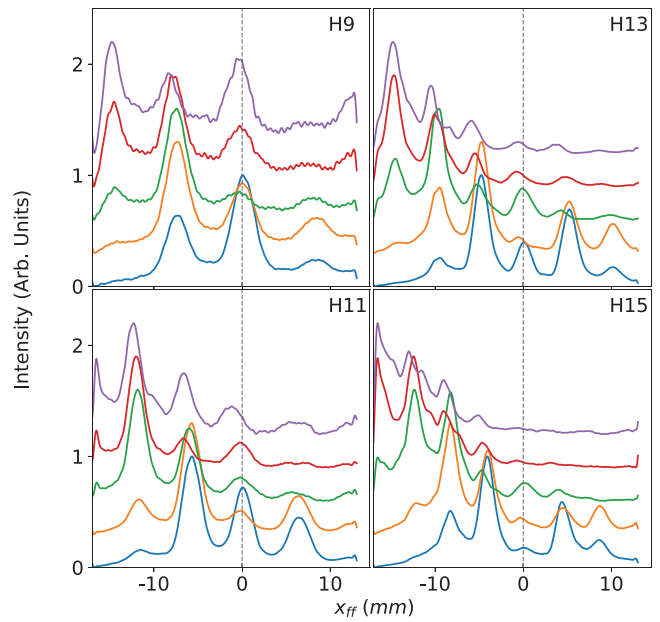


FIG. 11. Lineouts of experimental images similar to those of Fig. 10, but for an angle  $\theta = 1.2^\circ$ . Each panel corresponds to a given harmonic and all curves are normalized to 1 and progressively offset by 0.3. Different colors correspond to perturbation levels of  $\alpha \lesssim 0.15$  (blue, no offset),  $\alpha = 0.25$  (orange, offset = 0.3),  $\alpha = 0.38$  (green, offset = 0.6),  $\alpha = 0.50$  (red, offset = 0.9), and  $\alpha = 0.66$  (mauve, offset = 1.2). The dashed vertical line is set at the location of the direct harmonics.

bottom). Interestingly, there are not many more orders appearing as  $\alpha$  increases. This is a result predicted by our toy model, where the number of diffraction orders visible is set by the width of the large Gaussian given in Eq. (28), and confirmed by the full computations. As expected, the progressive shift is compatible with Eq. (29). In particular, the lineouts displayed on the right show, for a given panel, the diffraction orders of all harmonics peaking at about the same  $x$  location [e.g., about  $-10$  mm for Fig. 11(h)]. This location is progressively shifting from Fig. 11(f) to Fig. 11(j) as the slope of the phase grating is increased by increasing the perturbation intensity [increase of  $\alpha$  in Eq. (24)]. We also retrieve a prediction of Eq. (30): diffraction orders are getting denser as  $q$  increases, which is evident in Fig. 11. Finally, we note that a slight left-right asymmetry (e.g., green curve, H13, Fig. 11). This is compatible with the full computations but not the toy model. We believe that it is the result of volume effects.

Finally, we tested the formula of the toy model, Eq. (29), which predicts the position of the dominant order. We define

$$\theta_{\text{Norm}} = \frac{x'_c}{z_{ff}} \frac{1}{\sin \theta} \frac{1 + \alpha}{\alpha}, \quad (31)$$

which is the direction of propagation of the harmonics ( $\frac{x'_c}{z_{ff}}$ ) normalized by the perturbation and angle-dependent factor of Eq. (29). Once corrected from the magnification of our spectrometer, it should be equal to 1 whatever the harmonic, angle, and perturbation value. We plotted in Fig. 12 the corresponding measurements and theoretical predictions of the SFA model extracted from Figs. 9–11. The error bars here

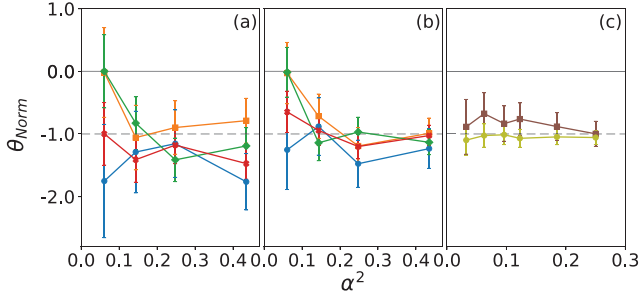


FIG. 12. Normalized position of the dominant diffraction order as a function of the perturbation energy normalized to the energy in the main beam [ $\alpha^2 = (E_2/E_1)^2$ ]. Experimental values for angles  $\theta = 13$  mrad (a) and  $\theta = 17$  mrad (b), and theoretical values for  $\theta = 20$  mrad (c). Each color/symbol corresponds to one harmonic [for (a),(b) H9: blue circles, H11: orange squares, H13: green diamonds, H15: red crosses; for (c) H15: brown squares, H27: light-green circles]. The dashed line is the analytical prediction according to Eq. (31), taking into account all magnification coefficients of our grating.

correspond to half the periodicity of the diffraction orders. The agreement is very good considering the simplicity of the toy model and the fact that no adjustable parameter is available. Except for the first point which suffers from high uncertainty, the normalized angle of propagation is rather constant whatever the harmonic and the perturbation level. It is close to the predicted value. It should be noted that, as a source of uncertainty, we could not perfectly control the overlap in time and space of the two beams for each point.

## VI. CONCLUDING CONSIDERATIONS

With the ever increasing control of high-power femtosecond lasers over the years, the availability of multiple beams to perform extreme nonlinear optics has been developing at an extremely rapid pace. Many schemes have been employed, either using a single wavelength or several wavelengths, a single polarization or different polarizations, a Gaussian beam or beams carrying orbital angular momenta, in collinear or non-collinear geometries, with even counterpropagating waves. In the vast majority of these studies, a photonic picture was put forward to interpret the results. As a consequence, “selection rules” were derived. They surely reveal which channels may exist. However, they do not say anything about possible yields of the concurrent nonlinear processes allowed. Getting back to the very nature of high-order harmonic generation process, which is a strong field effect and not a multiphoton process, we here exposed an analysis of the process at the “mesoscopic” spatial scale, corresponding to several wavelengths. In the specific and simple case of two linearly polarized pulses with identical wavelengths crossing at an angle in the HHG medium, we solved an emerging controversy about the yield of the sum vs different frequency generation processes: SFG processes are dominant over DFG as soon as the ratio between the fields exceeds 10%–20%. We retrieve the “*photonic picture*” as a consequence of the quasiperiodicity of the interference pattern in the transverse direction. The excellent agreement of our toy model, full quantum computation, and experiment confidently form the basis for future work

targeting some of the cases listed above, where the polarizations, wavelengths, angles of crossing, and orbital angular momenta may be varied.

Finally, we point out that the analysis drawn above may have extremely rich applications in the two usual approaches used to probe attosecond dynamics. First, it provides a framework to analyze the amplitudes of high harmonics in high-order harmonic spectroscopies. It offers an improved understanding of the relative yields covering the perturbative to the nonperturbative regimes. Second, it offers the tools to design the driving field at focus in order to efficiently generate specific harmonics with given properties to be used *ex situ*. In particular, we may envision tailoring the shape of the grating grooves, in phase and amplitude, to generate efficiently a given harmonic, or a set of them. As a more general outlook, a connection to the very thorough and general framework proposed by Bahabad *et al.* should be built (e.g., [46,58]), together with the incorporation of temporal “grooves” as proposed in the attosecond lighthouse schemes [59–61] and the noncollinear optical gating scheme [62,63]. This series of outlooks suggest that this work may open new avenues for the investigation of highly nonlinear processes and the synthesis of smart XUV femtosecond and attosecond pulses.

## ACKNOWLEDGMENTS

We acknowledge Christoph Heyl for his careful reading and his help to improve the manuscript. We also are delighted to thank Henri Vincenti for his help in the parallelization of the nonadiabatic 3D code. Financial support from the Agence Nationale pour la Recherche (under Contracts No. ANR11-EQPX0005-ATTOLAB and No. ANR-14-CE32-0010-Xstase), the LABEX PALM (ANR-10-LABX-0039-PALM), and the Région Ile-de-France (under Contract No. SESAME-2012-ATTOLITE) is gratefully acknowledged.

## APPENDIX: DERIVATION OF THE MAIN FORMULA

### 1. Derivation of Eq. (9)

The local wave vector is defined as the gradient of the phase:

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{\nabla}[k_1\vec{r} + \varphi(\alpha, \Delta\vec{k} \cdot \vec{r})] \quad (\text{A1})$$

with  $\varphi(\alpha, \Delta\vec{k} \cdot \vec{r})$  given by Eq. (7). We thus have

$$\begin{aligned} \vec{k}_s(\vec{r}) - \vec{k}_1 &= \frac{1}{1 + \frac{\alpha^2 \sin^2(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})}{[1 + \alpha \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})]^2}} \\ &\times \left[ \frac{\alpha \vec{\Delta}k \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})}{1 + \alpha \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})} + \frac{\alpha^2 \vec{\Delta}k \sin^2(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})}{[1 + \alpha \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})]^2} \right] \quad (\text{A2}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &= \frac{\alpha \vec{\Delta}k}{[1 + \alpha \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})]^2 + \alpha^2 \sin^2(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})} \\ &\times \{ [1 + \alpha \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})] \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}) + \alpha \sin^2(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r}) \} \quad (\text{A3}) \end{aligned}$$

$$= \frac{\alpha[\alpha + \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})]}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\Delta\vec{k} \cdot \vec{r})} \vec{\Delta}k. \quad (\text{A4})$$

## 2. Derivation of Eq. (11)

Using  $\beta = 1 - \alpha$  with  $\beta \ll 1$  in Eq. (9), we get, up to first order in  $\beta$ ,

$$\vec{k}_s(\vec{r}) = \vec{k}_1 + \frac{\alpha[\alpha + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})]}{1 + \alpha^2 + 2\alpha \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \vec{\Delta k} \quad (\text{A5})$$

$$= \vec{k}_1 + \frac{(1 - \beta)[(1 - \beta) + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})]}{1 + (1 - \beta)^2 + 2(1 - \beta) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \vec{\Delta k} \quad (\text{A6})$$

$$\simeq \vec{k}_1 + \frac{(1 - \beta)[1 + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})] - \beta \vec{\Delta k}}{1 - \beta + (1 - \beta) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \frac{\vec{\Delta k}}{2} \quad (\text{A7})$$

$$\simeq \vec{k}_1 + \frac{\vec{\Delta k}}{2} - \frac{\beta}{(1 - \beta)[1 + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})]} \frac{\vec{\Delta k}}{2} \quad (\text{A8})$$

$$\simeq \vec{k}_1 + \frac{\vec{\Delta k}}{2} - \frac{\beta}{1 + \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \frac{\vec{\Delta k}}{2}. \quad (\text{A9})$$

## 3. Derivation of Eq. (13)

The magnitude of the wave vector corresponding to the sum of the two driving field reads, in the case of strong perturbation:

$$|\vec{k}_s| = \left| \vec{k}_1 + \frac{\vec{\Delta k}}{2} \right| \quad (\text{A10})$$

$$= \sqrt{k_1^2 + \vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} + \frac{\Delta k^2}{4}} \quad (\text{A11})$$

with

$$\vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1) \cdot \vec{k}_1 \quad (\text{A12})$$

$$= -k_1^2(1 - \cos \theta) \quad (\text{A13})$$

$$= -2k_1^2 \sin^2 \frac{\theta}{2} \quad (\text{A14})$$

and, taking into account  $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2|$ ,

$$\vec{\Delta k}^2 = (\vec{k}_2 - \vec{k}_1)^2 \quad (\text{A15})$$

$$= 2k_1^2 - 2k_1^2 \cos \theta \quad (\text{A16})$$

$$= 4k_1^2 \sin^2 \frac{\theta}{2}. \quad (\text{A17})$$

We thus get, for small  $\theta$ ,

$$|\vec{k}_s| = k_1 \sqrt{1 - 2 \sin^2 \frac{\theta}{2} + \sin^2 \frac{\theta}{2}} \quad (\text{A18})$$

$$= k_1 \sqrt{1 - \sin^2 \frac{\theta}{2}} \quad (\text{A19})$$

$$\simeq k_1 - \frac{k_1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2}. \quad (\text{A20})$$

Finally,

$$\frac{|\vec{k}_s| - k_1}{k_1} \simeq -\frac{1}{2} \sin^2 \frac{\theta}{2}. \quad (\text{A21})$$

## 4. Derivation of Eq. (16)

Derivations similar to those of Sec. III yield

$$|\vec{k}_s| = |\vec{k}_1 + \alpha \vec{\Delta k} \cos(\Delta k \cdot \vec{r})| \quad (\text{A22})$$

$$= \sqrt{k_1^2 + 2\alpha \vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} \cos(\Delta k \cdot \vec{r}) + \alpha^2 \Delta k^2 \cos^2(\Delta k \cdot \vec{r})} \quad (\text{A23})$$

$$\simeq k_1 \left( 1 - 2\alpha \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos(\Delta k \cdot \vec{r}) \right) \quad (\text{A24})$$

Which yield

$$\frac{|\vec{k}_s| - k_1}{k_1} \simeq -2\alpha \sin^2 \frac{\theta}{2} \cos(\Delta k \cdot \vec{r}) \quad (\text{A25})$$

$$\simeq -\frac{\alpha}{2} \theta^2 \cos(\Delta k \cdot \vec{r}). \quad (\text{A26})$$

## 5. Derivation of Eq. (17)

From Eq. (15), the angle of the wave vector associated to the sum of the two fields is

$$\theta_s = \arctan \frac{\alpha k_2 \sin \theta}{k_1 - \alpha(k_1 - k_2 \cos \theta) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}. \quad (\text{A27})$$

Taking into account that  $k_2 = k_1$  and  $\alpha \ll 1$ , we get

$$\theta_s = \arctan \frac{\alpha \sin \theta \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})}{1 - \alpha(1 - \cos \theta) \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r})} \quad (\text{A28})$$

$$\simeq \alpha \sin \theta \cos(\vec{\Delta k} \cdot \vec{r}). \quad (\text{A29})$$

## 6. Derivation of Eq. (19)

The magnitude of the wave vector corresponding to the sum of the two driving field reads, in the case of weak perturbation:

$$|\vec{k}_s| = \left| \vec{k}_1 + \frac{\alpha}{1 + \alpha} \vec{\Delta k} \right| \quad (\text{A30})$$

$$= \sqrt{k_1^2 + 2 \frac{\alpha}{1 + \alpha} \vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k} + \frac{\alpha^2}{(1 + \alpha)^2} \Delta k^2}. \quad (\text{A31})$$

Using the expression derived in Sec. III for  $\vec{k}_1 \cdot \vec{\Delta k}$  and  $\Delta k^2$  we get

$$|\vec{k}_s| = k_1 \sqrt{1 - 4 \frac{\alpha}{1 + \alpha} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right) + \frac{\alpha^2}{(1 + \alpha)^2} 4 \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right)} \quad (\text{A32})$$

$$= k_1 \sqrt{1 - \frac{4\alpha}{(1 + \alpha)^2} \sin^2 \left( \frac{\theta}{2} \right)}. \quad (\text{A33})$$

## 7. Derivation of Eq. (20)

The angle of the wave vector associated to the sum of the two fields is

$$\theta_s = \arctan \frac{\frac{\alpha}{1 + \alpha} k_2 \sin \theta}{k_1 - \frac{\alpha}{1 + \alpha} (k_1 - k_2 \cos \theta)}. \quad (\text{A34})$$

Taking into account  $|\vec{k}_1| = |\vec{k}_2|$ ,

$$\theta_s = \arctan \left( \frac{\alpha}{1 + \alpha} \frac{\sin \theta}{1 - \frac{\alpha}{1 + \alpha} (1 - \cos \theta)} \right) \quad (\text{A35})$$

$$= \arctan \left( \frac{\sin \theta}{\frac{1 + \alpha}{\alpha} - (1 - \cos \theta)} \right) \quad (\text{A36})$$

$$= \arctan \left( \frac{\alpha \sin \theta}{1 + \alpha \cos \theta} \right). \quad (\text{A37})$$

- [1] F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, and M. Nisoli, Advances in attosecond science, *J. Phys. B* **49**, 062001 (2016).
- [2] L. Gallmann, I. Jordan, H. J. Wörner, L. Castiglioni, M. Hengsberger, J. Osterwalder, C. A. Arrell, M. Chergui, E. Liberatore, U. Rothlisberger, and U. Keller, Photoemission and photoionization time delays and rates, *Struct. Dyn.* **4**, 061502 (2017).
- [3] M. Schultze, M. Fiess, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, S. Neppl, A. L. Cavalieri, Y. Komninos, Th. Mercouris, C. A. Nicolaides, R. Pazourek, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdorfer, A. M. Azzeer, R. Ernstorfer, R. Kienberger, U. Kleineberg, E. Goulielmakis, F. Krausz, and V. S. Yakovlev, Delay in photoemission, *Science* **328**, 1658 (2010).
- [4] M. Isinger, R. J. Squibb, D. Busto, S. Zhong, A. Harth, D. Kroon, S. Nandi, C. L. Arnold, M. Miranda, J. M. Dahlström, E. Lindroth, R. Feifel, M. Gisselbrecht, and A. L'Huillier, Photoionization in the time and frequency domain, *Science* **358**, 893 (2017).
- [5] J. Vos, L. Cattaneo, S. Patchkovskii, T. Zimmermann, C. Cirelli, M. Lucchini, A. Kheifets, A. S. Landsman, and U. Keller, Orientation-dependent stereo Wigner time delay and electron localization in a small molecule, *Science* **360**, 1326 (2018).
- [6] K. Hütten, M. Mittermair, S. O. Stock, R. Beerwerth, V. Shirvanyan, J. Riemensberger, A. Duensing, R. Heider, M. S. Wagner, A. Guggenmos, S. Fritzsche, N. M. Kabachnik, R. Kienberger, and B. Bernhardt, Ultrafast quantum control of ionization dynamics in krypton, *Nat. Commun.* **9**, 719 (2018).
- [7] M. Kotur, D. Guénot, Á. Jiménez-Galán, D. Kroon, E. W. Larsen, M. Louisy, S. Bengtsson, M. Miranda, J. Mauritsson, C. L. Arnold, S. E. Canton, M. Gisselbrecht, T. Carette, J. M. Dahlström, E. Lindroth, A. Maquet, L. Argenti, F. Martín, and A. L'Huillier, Spectral phase measurement of a Fano resonance using tunable attosecond pulses, *Nat. Commun.* **7**, 10566 (2016).
- [8] V. Gruson, L. Barreau, Á. Jiménez-Galan, F. Risoud, J. Caillat, A. Maquet, B. Carré, F. Lepetit, J.-F. Hergott, T. Ruchon, L. Argenti, R. Taïeb, F. Martín, and P. Salières, Attosecond dynamics through a Fano resonance: Monitoring the birth of a photoelectron, *Science* **354**, 734 (2016).
- [9] C. Cirelli, C. Marante, S. Heuser, C. L. M. Petersson, Á. Jiménez Galán, L. Argenti, S. Zhong, D. Busto, M. Isinger, S. Nandi, S. Maclot, L. Rading, P. Johnsson, M. Gisselbrecht, M. Lucchini, L. Gallmann, J. Marcus Dahlström, E. Lindroth, A. L'Huillier, F. Martín, and U. Keller, Anisotropic photoemission time delays close to a Fano resonance, *Nat. Commun.* **9**, 955 (2018).
- [10] D. Kiesewetter, R. R. Jones, A. Camper, S. B. Schoun, P. Agostini, and L. F. DiMauro, Probing electronic binding potentials with attosecond photoelectron wavepackets, *Nat. Phys.* **14**, 68 (2017).
- [11] F. Calegari, D. Ayuso, A. Trabattoni, L. Belshaw, S. De Camillis, S. Anumula, F. Frassetto, L. Poletto, A. Palacios, P. Decleva, J. B. Greenwood, F. Martín, and M. Nisoli, Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses, *Science* **346**, 336 (2014).
- [12] R. Locher, L. Castiglioni, M. Lucchini, M. Greif, L. Gallmann, J. Osterwalder, M. Hengsberger, and U. Keller, Energy-dependent photoemission delays from noble metal surfaces by attosecond interferometry, *Optica* **2**, 405 (2015).
- [13] F. Siek, S. Neb, P. Bartz, M. Hensen, C. Strüber, S. Fiechter, M. Torrent-Sucarrat, V. M. Silkin, E. E. Krasovskii, N. M. Kabachnik, S. Fritzsche, R. Díez Muiño, P. M. Echenique, A. K. Kazansky, N. Müller, W. Pfeiffer, and U. Heinzmann, Angular momentum-induced delays in solid-state photoemission enhanced by intra-atomic interactions, *Science* **357**, 1274 (2017).
- [14] Z. Tao, C. Chen, T. Szilvasi, M. Keller, M. Mavrikakis, H. Kapteyn, and M. Murnane, Direct time-domain observation of attosecond final-state lifetimes in photoemission from solids, *Science* **353**, 62 (2016).
- [15] L. Seiffert, Q. Liu, S. Zherebtsov, A. Trabattoni, P. Rupp, M. C. Castrovilli, M. Galli, F. Süßmann, K. Wintersperger, J. Stierle, G. Sansone, L. Poletto, F. Frassetto, I. Halfpap, V. Mondes, C. Graf, E. Rühl, F. Krausz, M. Nisoli, T. Fennel, F. Calegari, and M. F. Kling, Attosecond chronoscopy of electron scattering in dielectric nanoparticles, *Nat. Phys.* **13**, 766 (2017).
- [16] O. Kfir, S. Zayko, C. Nolte, M. Sivis, M. Möller, B. Hebler, S. S. P. Kanth Arekapudi, D. Steil, S. Schäfer, M. Albrecht, O. Cohen, S. Mathias, and C. Ropers, Nanoscale magnetic imaging using circularly polarized high-harmonic radiation, *Sci. Adv.* **3**, eao4641 (2017).
- [17] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pépin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum, and D. M. Villeneuve, Tomographic imaging of molecular orbitals, *Nature (London)* **432**, 867 (2004).
- [18] S. Haessler, J. Caillat, W. Boutu, C. Giovanetti-Teixeira, T. Ruchon, T. Auguste, Z. Diveki, P. Breger, A. Maquet, B. Carré, R. Taïeb, and P. Salières, Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets, *Nat. Phys.* **6**, 200 (2010).
- [19] A. Camper, T. Ruchon, D. Gauthier, O. Gobert, P. Salières, B. Carré, and T. Auguste, High-harmonic phase spectroscopy using a binary diffractive optical element, *Phys. Rev. A* **89**, 043843 (2014).
- [20] A. Ferré, A. E. Boguslavskiy, M. Dagan, V. Blanchet, B. D. Bruner, F. Burgy, A. Camper, D. Descamps, B. Fabre, N. Fedorov, J. Gaudin, G. Geoffroy, J. Mikosch, S. Patchkovskii, S. Petit, T. Ruchon, H. Soifer, D. Staedter, I. Wilkinson, A. Stolow, N. Dudovich, and Y. Mairesse, Multi-channel electronic and vibrational dynamics in polyatomic resonant high-order harmonic generation, *Nat. Commun.* **6**, 5952 (2015).
- [21] D. Baykusheva, S. Brennecke, M. Lein, and H. J. Wörner, Signatures of Electronic Structure in Bircircular High-Harmonic Spectroscopy, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 203201 (2017).
- [22] P. M. Kraus, O. I. Tolstikhin, D. Baykusheva, A. Rupenyan, J. Schneider, C. Z. Bisgaard, T. Morishita, F. Jensen, L. B. Madsen, and H. J. Wörner, Observation of laser-induced electronic structure in oriented polyatomic molecules, *Nat. Commun.* **6**, 7039 (2015).
- [23] B. D. Bruner, Z. Mašín, M. Negro, F. Morales, D. Brambila, M. Devetta, D. Faccialà, A. G. Harvey, M. Ivanov, Y. Mairesse, S. Patchkovskii, V. Serbinenko, H. Soifer, S. Stagira, C. Vozzi, N. Dudovich, and O. Smirnova, Multidimensional high harmonic spectroscopy of polyatomic molecules: detecting sub-cycle laser-driven hole dynamics upon ionization in strong mid-IR laser fields, *Faraday Discuss.* **194**, 369 (2016).
- [24] A. Ferré, H. Soifer, O. Pedatzur, C. Bourassin-Bouchet, B. D. Bruner, R. Canonge, F. Catoire, D. Descamps, B. Fabre, E. Mével, S. Petit, N. Dudovich, and Y. Mairesse, Two-Dimensional Frequency Resolved Optomolecular Gating of



- High-Order Harmonic Generation, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 053002 (2016).
- [25] F. McGrath, A. S. Johnson, D. R. Austin, P. Hawkins, D. Wood, L. Miseikis, E. R. Simpson, M. Castillejo, R. Torres, S. Parker, T. Siegel, and J. P. Marangos, An apparatus for quantitative high-harmonic generation spectroscopy in molecular vapours, *Rev. Sci. Instrum.* **88**, 103108 (2017).
- [26] J. P. Marangos, Development of high harmonic generation spectroscopy of organic molecules and biomolecules, *J. Phys. B* **49**, 132001 (2016).
- [27] R. Cireasa, A. E. Boguslavskiy, B. Pons, M. C. H. Wong, D. Descamps, S. Petit, H. Ruf, N. Thiré, A. Ferré, J. Suarez, J. Higuier, B. E. Schmidt, A. F. Alharbi, F. Légaré, V. Blanchet, B. Fabre, S. Patchkovskii, O. Smirnova, Y. Mairesse, and V. R. Bhardwaj, Probing molecular chirality on a sub-femtosecond timescale, *Nat. Phys.* **11**, 654 (2015).
- [28] Y. Mairesse, D. Zeidler, N. Dudovich, M. Spanner, J. Levesque, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, High-Order Harmonic Transient Grating Spectroscopy in a Molecular Jet, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 143903 (2008).
- [29] A. V. Birulin, V. T. Platonenko, and V. V. Strelkov, High-order harmonic generation in colliding beams, *Quantum Electron.* **26**, 377 (1996).
- [30] J. B. Bertrand, H. J. Wörner, H.-C. Bandulet, É. Bisson, M. Spanner, J.-C. Kieffer, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, Ultrahigh-Order Wave Mixing in Noncollinear High Harmonic Generation, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 023001 (2011).
- [31] C. M. Heyl, P. Rudawski, F. Brizuela, S. N. Bengtsson, J. Mauritsson, and A. L'Huillier, Macroscopic Effects in Non-collinear High-Order Harmonic Generation, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 143902 (2014).
- [32] D. D. Hickstein, F. J. Dollar, P. Grychtol, J. L. Ellis, R. Knut, C. Hernández-García, D. Zusin, C. Gentry, J. M. Shaw, T. Fan, K. M. Dorney, A. Becker, A. Jarof-Becker, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, and C. G. Durfee, Non-collinear generation of angularly isolated circularly polarized high harmonics, *Nat. Photonics* **9**, 743 (2015).
- [33] A. Fleischer, O. Kfir, T. Diskin, P. Sidorenko, and O. Cohen, Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation, *Nat. Photonics* **8**, 543 (2014).
- [34] D. Gauthier, P. Rebernik Ribič, G. Adhikary, A. Camper, C. Chappuis, R. Cucini, L. F. DiMauro, G. Dovillaire, F. Frassetto, R. Géneaux *et al.*, Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation, *Nat. Commun.* **8**, 14971 (2017).
- [35] F. Kong, C. Zhang, F. Bouchard, Z. Li, G. G. Brown, D. H. Ko, T. J. Hammond, L. Arissian, R. W. Boyd, E. Karimi, and P. B. Corkum, Controlling the orbital angular momentum of high harmonic vortices, *Nat. Commun.* **8**, 14970 (2017).
- [36] P. Balcou, P. Salieres, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces, *Phys. Rev. A* **55**, 3204 (1997).
- [37] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, and P. Agostini, Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1668 (1999).
- [38] A. Paul, R. A. Bartels, R. Tobey, H. Green, S. Weiman, I. P. Christov, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and S. Backus, Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light, *Nature (London)* **421**, 51 (2003).
- [39] W. Boutu, T. Auguste, O. Boyko, I. Sola, Ph. Balcou, L. Binazon, O. Gobert, H. Merdji, C. Valentin, E. Constant, E. Mével, and B. Carré, High-order-harmonic generation in gas with a flat-top laser beam, *Phys. Rev. A* **84**, 063406 (2011).
- [40] J. Rothhardt, M. Krebs, S. Hädrich, S. Demmler, J. Limpert, and A. Tünnermann, Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime, *New J. Phys.* **16**, 033022 (2014).
- [41] S. Hädrich, M. Krebs, A. Hoffmann, A. Klenke, J. Rothhardt, J. Limpert, and A. Tünnermann, Exploring new avenues in high repetition rate table-top coherent extreme ultraviolet sources, *Light: Sci. Appl.* **4**, e320 (2015).
- [42] C. M. Heyl, C. L. Arnold, A. Couairon, and A. L'Huillier, Introduction to macroscopic power scaling principles for high-order harmonic generation, *J. Phys. B* **50**, 013001 (2016).
- [43] A. Inés Gonzalez, G. Jargot, P. Rigaud, L. Lavenu, F. Guichard, A. Comby, T. Auguste, O. Sublemontier, M. Bougeard, Y. Zaouter, P. Georges, M. Hanna, and T. Ruchon, Spatio-spectral structures in high harmonic generation driven by tightly focused high repetition rate lasers, *J. Opt. Soc. Am. B* **35**, A6 (2018).
- [44] J. L. Ellis, K. M. Dorney, C. G. Durfee, C. Hernández-García, F. Dollar, C. A. Mancuso, T. Fan, D. Zusin, C. Gentry, P. Grychtol, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, and D. D. Hickstein, Phase matching of noncollinear sum and difference frequency high harmonic generation above and below the critical ionization level, *Opt. Express* **25**, 10126 (2017).
- [45] Throughout the article, we consider linear polarizations along  $y$  and there are no (weak) longitudinal fields along  $z$ .
- [46] A. Bahabad, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, Quasi-phase-matching of momentum and energy in nonlinear optical processes, *Nat. Photonics* **4**, 570 (2010).
- [47] A. Bahabad, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn, Manipulating nonlinear optical processes with accelerating light beams, *Phys. Rev. A* **84**, 033819 (2011).
- [48] X. Zhang, A. L. Lytle, T. Popmintchev, X. Zhou, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, and O. Cohen, Quasi-phase-matching and quantum-path control of high-harmonic generation using counterpropagating light, *Nat. Phys.* **3**, 270 (2007).
- [49] P. Sidorenko, M. Kozlov, A. Bahabad, T. Popmintchev, M. Murnane, H. Kapteyn, and O. Cohen, Sawtooth grating-assisted phase-matching, *Opt. Express* **18**, 22686 (2010).
- [50] The main formulas of this section are derived in the Appendix.
- [51] L. Roos, E. Constant, E. Mevel, Ph. Balcou, D. Descamps, M. B. Gaarde, A. Valette, R. Haroutounian, and A. L'Huillier, Controlling phase-matching of high-order harmonic generation by manipulating the fundamental field, *Phys. Rev. A* **60**, 5010 (1999).
- [52] B. K. Dinh, Phase-matched high order harmonic generation and applications, Ph.D. thesis, Centre for Atom Optics and Ultrafast Spectroscopy Faculty of Engineering and Industrial Sciences, 2012.
- [53] X. M. Tong and C. D. Lin, Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime, *J. Phys. B* **38**, 2593 (2005).
- [54] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Theory of high-order harmonic generation by low-frequency laser fields, *Phys. Rev. A* **49**, 2117 (1994).
- [55] H. Ruf, Dynamique moléculaire par imagerie attoseconde, Ph.D. thesis, Université de Bordeaux I, 2012.

- [56] R. Géneaux, Le moment angulaire de la lumière en génération d'harmoniques d'ordre élevé, Ph.D. thesis, Université Paris-Saclay, 2016.
- [57] Experimentally, the  $y$  axis was horizontal, while the  $x$  axis was vertical.
- [58] L. Hareli, L. Lobachinsky, G. Shoulga, Y. Eliezer, L. Michaeli, and A. Bahabad, On-the-Fly Control of High-Harmonic Generation Using a Structured Pump Beam, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 183902 (2018).
- [59] K. T. Kim, C. Zhang, T. Ruchon, J.-F. Hergott, T. Auguste, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and F. Quéré, Photonic streaking of attosecond pulse trains, *Nat. Photonics* **7**, 651 (2013).
- [60] F. Quéré, H. Vincenti, A. Borot, S. Monchocé, T. J. Hammond, K. T. Kim, J. A. Wheeler, C. Zhang, T. Ruchon, T. Auguste, J. F. Hergott, D. M. Villeneuve, P. B. Corkum, and R. Lopez-Martens, Applications of ultrafast wavefront rotation in highly nonlinear optics, *J. Phys. B* **47**, 124004 (2014).
- [61] T. Auguste, O. Gobert, T. Ruchon, and F. Quéré, Attosecond lighthouses in gases: A theoretical and numerical study, *Phys. Rev. A* **93**, 033825 (2016).
- [62] C. M. Heyl, S. N. Bengtsson, S. Carlström, J. Mauritsson, C. L. Arnold, and A. L'Huillier, Noncollinear optical gating, *New J. Phys.* **16**, 052001 (2014).
- [63] M. Louisy, C. L. Arnold, M. Miranda, E. W. Larsen, S. N. Bengtsson, D. Kroon, M. Kotur, D. Guénot, L. Rading, P. Rudawski, F. Brizuela, F. Campi, B. Kim, A. Jarnac, A. Houard, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L'Huillier, and C. M. Heyl, Gating attosecond pulses in a noncollinear geometry, *Optica* **2**, 563 (2015).

**Titre :** Génération d'harmoniques d'ordre élevé à deux faisceaux portant du moment angulaire

**Mots-clés :** génération d'harmoniques d'ordre élevé, moment angulaire de spin, polarisation, moment angulaire orbital, front d'onde, modes de Laguerre-Gauss, réseau de diffraction

**Résumé :** La génération d'harmoniques d'ordre élevé est un processus d'interaction lumière-matière hautement non-linéaire permettant la synthèse d'impulsions sub-femtosecondes, dites attosecondes ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ). Mes travaux de thèse portent sur l'étude du transfert de moment angulaire lors de ce processus, afin de contrôler les caractéristiques spatiales et de polarisation du rayonnement émis dans l'extrême ultraviolet. Comme pour la matière, le moment angulaire de la lumière peut être séparé en une composante de spin, associée à l'état de polarisation du faisceau, et une composante orbitale, reliée à la forme du front d'onde. La maîtrise complète du moment angulaire des harmoniques nécessite de recourir à des schémas de génération à deux faisceaux non-colinéaires, créant un réseau de diffraction dans le milieu générateur. Nous avons montré que, bien que les règles de transfert obéissent à des lois de conservation du moment angulaire, la description fine du phénomène requiert une analyse précise du champ laser dans le milieu de génération. Ces travaux ouvrent des perspectives de mise en forme avancée des impulsions attosecondes.

**Title :** Generation of high-order harmonics from two beams carrying angular momentum

**Keywords :** high harmonic generation, spin angular momentum, polarization, orbital angular momentum, wavefront, Laguerre-Gaussian modes, diffraction grating

**Abstract :** High-order harmonic generation is a highly nonlinear laser-matter interaction process which allows the synthesis of sub-femtosecond pulses, also called attosecond ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ) pulses. My PhD is centered around the study of angular momentum transfer during this process, in order to control spatial and polarization features of the radiation which is emitted in the extreme ultraviolet. As for matter, the angular momentum of light can be divided into a spin component, associated with the beam's polarization, and an orbital component, related to the shape of the wavefront. The control of high harmonics' angular momentum requires generating schemes involving two crossing beams, thus creating a diffraction grating in the generating medium. We have shown that, although the transfer rules obey conservation laws of the angular momentum, the fine description of the phenomenon requires an accurate analysis of the laser field in the generation medium. This work opens the road for advanced shaping of attosecond pulses.