



HAL
open science

Harmoniques d'ordre élevé portant des moments angulaires entiers ou fractionnaires

Martin Luttmann

► **To cite this version:**

Martin Luttmann. Harmoniques d'ordre élevé portant des moments angulaires entiers ou fractionnaires. Optique [physics.optics]. Université Paris-Saclay, 2023. Français. NNT : 2023UPASP068 . tel-04368929

HAL Id: tel-04368929

<https://theses.hal.science/tel-04368929>

Submitted on 2 Jan 2024

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.

Harmoniques d'ordre élevé portant des
moments angulaires entiers ou
fractionnaires
*High-order harmonics carrying integer or fractional angular
momenta*

Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n° 572, Ondes et matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

Graduate School : Physique. Référent : Faculté des sciences d'Orsay

Thèse préparée au **Laboratoire Interactions, Dynamiques et Lasers (Université Paris-Saclay, CEA, CNRS)**, sous la direction de **Thierry RUCHON**, directeur de recherche, et le co-encadrement de **Pascal SALIÈRES**, directeur de recherche

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 30 Juin 2023, par

Martin LUTTMANN

Composition du jury

Membres du jury avec voix délibérative

Anne L'HUILLIER

Professeure à l'université de Lund, Suède

Présidente

Édouard HERTZ

Maître de conférences (HDR) à l'université Bourgogne
Franche-Comté

Rapporteur & Examineur

Yann MAIRESSE

Directeur de recherche CNRS (CELIA, Talence)

Rapporteur & Examineur

Sophie KAZAMIAS

Professeure à l'université Paris-Saclay

Examinatrice

Étienne BRASSELET

Directeur de recherche CNRS (LOMA, Talence)

Examineur

Fabien QUÉRÉ

Expert scientifique à Unistellar

Examineur

Titre : Harmoniques d'ordre élevé portant des moments angulaires entiers ou fractionnaires

Mots clés : Moment angulaire de la lumière, Optique non-linéaire, Génération d'harmoniques d'ordre élevé, Impulsions attoseconde

Résumé : Dans ce travail, on s'attache à décrire comment le moment angulaire porté par un faisceau laser peut être transféré à un rayonnement dans l'ultraviolet extrême (XUV), par génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE). La GHOE est un processus de champ fort non perturbatif permettant l'obtention d'impulsions lumineuses de durée attoseconde ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). On montre en particulier qu'en prenant pour point de départ les symétries du champ de génération, il est possible de simplifier les lois de conservation en définissant de nouveaux moments angulaires pouvant prendre

des valeurs fractionnaires. On propose également une interprétation de la GHOE comme une interférence entre de multiples canaux photoniques, ce qui nous permet de prédire avec précision les intensités et contenus en modes transverses des harmoniques. Dans un second temps, on étudie l'interaction de faisceaux XUV portant du moment angulaire avec des matériaux magnétiques. On propose le concept de dichroïsme de moment angulaire orbital, ou dichroïsme "hélicoïdal", et on met en évidence une nouvelle forme de couplage spin-orbite optique induit par le magnétisme.

Title : High-order harmonics carrying integer or fractional angular momenta

Keywords : Angular momentum of light, Nonlinear optics, High harmonic generation, Attosecond pulses

Summary : In this work, we study how the angular momentum carried by a laser beam can be up-converted in the extreme ultraviolet (XUV) range, via high harmonic generation (HHG). HHG is a non-perturbative strong field process, allowing to generate light pulses of attosecond duration ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). In particular, we show that by considering the symmetries of the generating field, it is possible to simplify the conservation laws by

defining new kinds of angular momenta that can take fractional values. We also propose an interpretation of HHG as an interference between multiphoton channels, which allows us to accurately predict the intensities and transverse mode content of the harmonics. We observe an orbital angular momentum dichroism, or "helical" dichroism, and unveil a new form of optical spin-orbit coupling induced by magnetism.



HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ PORTANT DES
MOMENTS ANGULAIRES ENTIERS OU
FRACTIONNAIRES

© 2023 Martin Luttmann
All rights reserved
Printed in Paris, 2023

Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies
Alternatives
Direction de la Recherche Fondamentale
Institut Rayonnement Matière de Saclay
Laboratoire Interactions, Dynamique et Lasers
Bâtiment 701 — Orme des Merisiers
91191 Gif-Sur-Yvette Cedex
France

<https://iramis.cea.fr/LIDYL/>

Publications

Les articles suivants ont été publiés au cours de cette thèse, par ordre chronologique.

Article I — In Situ Sub-50-Attosecond Active Stabilization of the Delay Between Infrared and Extreme-Ultraviolet Light Pulses

Martin Luttmann, David Bresteau, Jean-François Hergott, Olivier Tcherbakoff, Thierry Ruchon

Physical Review Applied **15**, 034036 (2021).

DOI : 10.1103/PhysRevApplied.15.034036

url : <https://journals.aps.org/prapplied/abstract/10.1103/PhysRevApplied.15.034036>

Article II — Electromagnetic Theory of Helicoidal Dichroism in Reflection from Magnetic Structures

Mauro Fanciulli, David Bresteau, Mekha Vimal, Martin Luttmann, Maurizio Sacchi, and Thierry Ruchon

Physical Review A **103**, 013501 (2021).

DOI : 10.1103/PhysRevA.103.013501

url : <https://journals.aps.org/pr/abstract/10.1103/PhysRevA.103.013501>

Article III — Pump-Probe Delay Controlled by Laser-dressed Ionization with Isolated Attosecond Pulses

Martin Luttmann, David Bresteau, Thierry Ruchon

European Physical Journal Web of Conferences **255**, 13004 (2021).

DOI : 10.1051/epjconf/202125513004

url : https://www.epj-conferences.org/articles/epjconf/pdf/2021/09/epjconf_eosam2021_13004.pdf

Article IV — Observation of Magnetic Helicoidal Dichroism with Extreme Ultraviolet Light Vortices

Mauro Fanciulli, Matteo Pancaldi, Emanuele Pedersoli, Mekha Vimal, David Bresteau, Martin Luttmann, Dario De Angelis, Primož Rebernik Ribič, Benedikt Rösner, Christian David, Carlo Spezzani, Michele Manfreda, Ricardo Sousa, Ioan-Lucian Prejbeanu, Laurent Vila, Bernard Dieny, Giovanni De Ninno, Flavio Capotondi, Maurizio Sacchi, Thierry Ruchon

Physical Review Letters **128**, 077401 (2022).

DOI : 10.1103/PhysRevLett.128.077401

url : <https://journals.aps.org/prl/abstract/10.1103/PhysRevLett.128.077401>

Article V — Nonlinear Up-conversion of a Polarization Möbius Strip with Half-Integer Optical Angular Momentum

Martin Luttmann, Mekha Vimal, Matthieu Guer, Jean-François Hergott, Antonio Z. Khoury, Carlos Hernández-García, Emilio Pisanty, Thierry Ruchon

Science Advances **9**, eadf3486 (2023).

DOI : 10.1126/sciadv.adf3486

url : <https://www.science.org/doi/10.1126/sciadv.adf3486>

Les articles suivants ont été soumis à la fin de cette thèse, mais ne sont pas encore publiés à cette date.

Article VI — **Photon Pathways and the Non-Perturbative Scaling Law of High Harmonic Generation**

Mekha Vimal, Martin Luttmann, Titouan Gadeyne, Matthieu Guer, Romain Cazali, David Bresteau, Fabien Lepetit, Olivier Tcherbakoff, Jean-François Hergott, Thierry Auguste, Thierry Ruchon

Article VII — **Non-Perturbative Transverse Mode Coupling in High Harmonic Generation**

Martin Luttmann, Mekha Vimal, Matthieu Guer, Titouan Gadeyne, Céline Chapuis, Jean-François Hergott, Thierry Ruchon

Table des matières

<i>Introduction</i>	11
I Le moment angulaire de la lumière	19
1 <i>Le moment angulaire en mécanique et en électromagnétisme classique</i>	21
1.1 Mécanique lagrangienne	21
1.1.1 Principe de moindre action	21
1.1.2 Symétries et quantités conservées	23
1.2 Formalisme hamiltonien	25
1.3 Électromagnétisme classique : énergie, impulsion et moment angulaire de la lumière	26
1.3.1 Équations de Maxwell	26
1.3.2 Équation d'onde et vitesse de la lumière	27
1.3.3 Énergie, flux d'énergie et impulsion du champ électromagnétique	28
1.3.4 Moment angulaire du champ électromagnétique	30
2 <i>Modes du champ électromagnétique portant du moment angulaire</i>	35
2.1 Ondes planes et polarisation	35
2.1.1 Ondes planes du champ électromagnétique	35
2.1.2 Polarisation	36
2.1.3 Moment angulaire porté par une onde plane polarisée circulairement	37
2.2 Équation d'onde paraxiale et modes transverses	39
2.2.1 Modes d'Hermite-Gauss	40
2.2.2 Modes de Laguerre-Gauss	41
2.2.3 Moment angulaire porté par les modes de Laguerre-Gauss	45
2.3 Obtenir des modes transverses portant du moment angulaire dans le domaine visible	47
2.3.1 Masques de phase	47
2.3.2 Réseaux de diffraction	49
2.3.3 Convertisseurs de modes	50
2.3.4 q-plates et métasurfaces	51
2.4 Mesurer le moment angulaire porté par un faisceau de lumière	53
2.4.1 Interférence et diffraction de vortex optiques	53

2.4.2	Conversion de mode	53
2.4.3	Mesure directe du front d'onde	54
3	<i>Séparation entre moments angulaires de spin et orbital et quantification du moment angulaire des photons</i>	57
3.1	Séparation entre moment angulaire de spin et moment angulaire orbital	57
3.2	Quantification du champ électromagnétique : photons	60
3.2.1	Composantes de Fourier du champ dans l'espace réciproque . . .	60
3.2.2	Variables normales et modes du champ électromagnétique	62
3.2.3	Hamiltonien du champ électromagnétique	64
3.2.4	Quantification de la lumière	65
3.3	Les opérateurs moment angulaire	67
3.3.1	Impulsion des photons	67
3.3.2	Spin des photons	69
3.3.3	Moment angulaire orbital des photons dans l'approximation paraxiale	70
3.3.4	Moment angulaire total des photons dans l'approximation paraxiale	71
3.3.5	\hat{S} et \hat{L} ne sont pas de véritables opérateurs moment angulaire . .	71
3.3.6	Expression des opérateurs moment angulaire de la lumière dans une base quelconque et séparation du MAS et du MAO dans l'approximation paraxiale	72
3.4	Un point important : MAS, MAO et symétries de rotation	73
II	La génération d'harmoniques d'ordre élevé : théorie et expériences	75
4	<i>Théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé</i>	77
4.1	Harmoniques d'ordre élevé générées par un atome unique	80
4.1.1	Modèle à trois étapes	80
4.1.2	Traitement quantique de l'atome	85
4.1.3	Phases spectrale et spatiale des harmoniques, impulsions attosecondes	88
4.2	Effets d'accord de phase	91
4.3	Outil de simulation : le modèle du réseau "actif"	92
5	<i>Aspects expérimentaux de la génération d'harmoniques d'ordre élevé</i>	95
5.1	Dispositif expérimental	95
5.1.1	Dispositif de génération d'harmoniques	96
5.2	Mesure de durée des impulsions attoseconde : le RABBIT	101
5.3	Stabilisation interférométrique active : le LIZARD	103
5.3.1	Stabilisation de délais interférométriques	104
5.3.2	Principe, régime de fonctionnement et performances du LIZARD	104

III	Moments angulaires du photon en génération d'harmoniques d'ordre élevé	111
6	<i>Expériences de transfert de moment angulaire orbital vers l'XUV</i>	113
6.1	Transfert de MAO en GHOE	113
6.2	Contrôle du MAO des harmoniques : GHOE à deux faisceaux	119
6.2.1	Résultats expérimentaux	122
6.3	Qu'en est-il des impulsions attosecondes?	126
6.3.1	Intensité spatio-temporelle : les ressorts de lumière	128
6.3.2	Phase spatio-temporelle : MAO dynamique à l'échelle attoseconde	128
7	<i>Expériences de transfert de moment angulaire de spin vers l'XUV</i>	133
7.1	GHOE en polarisation elliptique	133
7.2	GHOE par deux faisceaux de MAS opposés : théorie	135
7.2.1	GHOE avec deux faisceaux monochromatiques de polarisation circulaires croisées	137
7.3	GHOE par deux faisceaux de MAS opposés : expériences	140
7.3.1	Résultats expérimentaux	141
8	<i>Symétries de rotation et moments angulaires optiques fractionnaires</i>	149
8.1	Symétries de rotation des champs paraxiaux et états propres des mo- ments angulaires	150
8.1.1	Le spin est le générateur des rotations du vecteur polarisation . .	150
8.1.2	Le moment angulaire orbital est le générateur des rotations de la dépendance spatiale	151
8.1.3	Le moment angulaire total et ses états propres	153
8.2	Rotations coordonnées, topologies non-triviales et moment angulaire généralisé	153
8.2.1	Rotations coordonnées	153
8.2.2	Rubans de Möbius de polarisation	156
8.2.3	L'opérateur J_γ	159
8.3	Le moment angulaire généralisé en optique quantique	162
9	<i>Moments angulaires fractionnaires en génération d'harmoniques d'ordre élevé</i>	169
9.1	Le MAG porté par les harmoniques	169
9.2	GHOE avec des faisceaux portant du MAG en géométrie non-colinéaire	172
9.2.1	Mesure expérimentale du MAO des faisceaux XUV par interfé- rences en polarisation linéaire	175
9.2.2	Mesure expérimentale du MAO des faisceaux XUV polarisés cir- culairement par focalisation astigmatique	181
9.3	Résultats expérimentaux et conservation du MAG	184
9.4	Le MAG dans le domaine temporel	186
10	<i>La nature non-perturbative de la génération d'harmoniques d'ordre élevé</i>	191
10.1	Modèle de la GHOE à deux faisceaux en termes de photons basé sur les équations du réseau actif	194
10.1.1	Développement binomial du champ harmonique généré par une superposition de deux faisceaux	194

10.1.2	Valeur et signe des termes successifs	196
10.1.3	Interprétation des termes successifs comme des amplitudes de processus multi-photons	197
10.2	Résultats expérimentaux	197
10.2.1	Régime perturbatif par rapport au second faisceau	200
10.2.2	Régime non-perturbatif par rapport au second faisceau : saturation, extinction et oscillation	201
10.3	Couplage non-perturbatif de modes transverses	203
10.3.1	Régime (quasi)perturbatif par rapport au faisceau 2	205
10.3.2	Régime non-perturbatif par rapport au faisceau 2	210
10.3.3	Retour sur le cas de la GHOE avec des modes de LG	213
IV	Magnéto-optique et moment angulaire de la lumière	215
11	<i>Dichroïsme hélicoïdal magnétique en polarisation linéaire</i>	217
11.1	Formalisme de l'effet Kerr magnéto-optique	219
11.1.1	Tenseur de permittivité et coefficients de Fresnel	219
11.1.2	Origine physique des effets magnéto-optiques	221
11.2	Interaction entre un vortex optique et une structure magnétique	222
11.2.1	Dérivation analytique	222
11.2.2	Simulations numériques du DHM	227
11.3	Résultats expérimentaux	230
11.3.1	Paramètres de l'expérience	230
11.3.2	Dichroïsmes hélicoïdaux mesurés	232
11.4	Dichroïsme hélicoïdal magnétique et symétries	235
11.4.1	Moment angulaire, vraie et fausse chiralité	235
11.4.2	Vortex magnétiques et moment torique	237
11.4.3	Interprétation des symétries des images	238
12	<i>Couplage spin-orbite optique induit par les textures magnétiques</i>	241
12.1	Calculs du changement de MAO moyen	242
12.2	Simulations de l'interaction spin-orbite	244
12.2.1	Skymions	244
12.2.2	Calcul de la densité de MAS et de MAO du faisceau réfléchi	245
12.2.3	Résultats de la simulation	246
12.3	Dichroïsme circulaire magnétique sur l'axe	250
	<i>Conclusion et perspectives</i>	255
I	Utilisation de la GHOE comme source de rayonnement portant du MAS ou du MAO	256
II	Perspectives ouvertes par la manipulation de J_γ en GHOE	256
II.I	Le MAG porté par les champs polychromatiques en GHOE	256
II.II	Brisure de la symétrie de rotation du milieu	260
III	Statistique photonique des faisceaux portant un moment angulaire j_γ demi-entier	264
IV	Extensions de l'interprétation multi-photonique de la GHOE	264
V	Moment angulaire et supercontinuum XUV	266

VI Des faisceaux de lumière plus exotiques encore...	267
A Moment angulaire du condensateur cylindrique	271
B Interféromètre utilisé pour la GHOE à deux faisceaux et procédure d'alignement	273
C Solution de l'équation d'invariance 8.12	277
D Déphasage des ordres de diffraction en fonction de celui des faisceaux IR	279
E Expression des modes de Laguerre-Gauss en fonction des modes d'Hermite-Gauss	281
Remerciements	283
Bibliographie	304

Liste des abréviations et acronymes

- MAS : Moment angulaire de spin
MAO : Moment angulaire orbital
MAG : Moment angulaire généralisé
HG : Hermite-Gauss
LG : Laguerre-Gauss
LPS : Lame de phase en spirale
LZS : Lame-zones en spirale
MSL : Modulateur spatial de lumière
GHOE : Génération d'harmoniques d'ordre élevé
XUV : Ultraviolet extrême
RABBIT : Reconstruction of attosecond beatings by interference of two-photons transitions
C-point : Point de polarisation circulaire
RMP : Ruban de Möbius de polarisation
DCM : Dichroïsme circulaire magnétique
DHM : Dichroïsme hélicoïdal magnétique
MOKE : *Magneto-optical Kerr effect*, effet Kerr magnéto-optique

Introduction

Tout comme les objets matériels, la lumière transporte de l'énergie : il suffit de se tourner vers le soleil pour s'en rendre compte. Elle transporte également de la quantité de mouvement, responsable de la pression de radiation dont les effets furent calculés par Maxwell [1].

Le fait que le champ électromagnétique contienne également du moment angulaire est inhérent aux équations de Maxwell. Pourtant, il fallut attendre plus de quarante ans après leur publication pour que Poynting prédise, en 1909, qu'un champ électromagnétique polarisé circulairement porte du moment angulaire, et que ce dernier peut être transmis à la matière [2]. Cette forme de moment angulaire, liée à la nature vectorielle du champ électromagnétique, fut plus tard appelée *moment angulaire de spin* (MAS) dans le cadre de la théorie quantique du rayonnement. En effet, on comprit au cours des années trente qu'en plus d'une énergie $\hbar\omega$ et d'une impulsion $\hbar\mathbf{k}$, où ω et \mathbf{k} sont respectivement la pulsation et le vecteur d'onde, chaque photon d'un faisceau de lumière polarisé circulairement porte un quantum $\pm\hbar$ de spin¹ [7, 8, 9]. Une conséquence de cette propriété est qu'un rayonnement polarisé linéairement contient nécessairement des photons dans un état superposé, avec des contributions équiprobables de spin $+\hbar$ et $-\hbar$. L'effet mécanique du MAS des photons fut mesuré à cette même époque par Beth [10].

L'avènement de la mécanique quantique avait permis de comprendre que le moment angulaire des particules de matière, telles que les électrons, possédait deux contributions : une composante *intrinsèque*, le spin, et une composante *extrinsèque*, le *moment angulaire orbital* (MAO), liée au mouvement de la particule. La question du MAO des photons fut longtemps oubliée, ou ignorée. Pourtant, on savait aussi depuis les années trente que le MAS seul ne peut rendre compte de l'entière des effets dûs au moment angulaire de la lumière, notamment lors des transitions quadrupolaires [11].

Comme on l'établira plus loin, les parties MAS et MAO du champ électromagnétique sont respectivement données par

$$\begin{aligned} \mathbf{S} &= \int \mathbf{E} \times \mathbf{A} \, dV, \\ \mathbf{L} &= \int \sum_i E_i \times (\mathbf{r} \times \nabla) A_i \, dV. \end{aligned} \tag{1}$$

1. La notion de spin du photon est subtile, et a fait l'objet de débats historiques [3]. Le photon étant une particule de masse nulle, on ne peut en fait pas lui associer un "spin" à proprement parler [4], mais une *hélicité*, c'est-à-dire la projection de son moment angulaire sur l'axe de propagation [5, 6]. Dans cette thèse, on utilisera le terme "spin" pour désigner l'hélicité des photons.

Dans ces expressions, \mathbf{E} est le champ électrique, les E_i sont ses trois composantes cartésiennes, \mathbf{A} est la partie transverse du potentiel vecteur, les A_i sont ses trois composantes cartésiennes, et enfin V est le volume considéré. On peut déjà constater que, contrairement à \mathbf{L} , \mathbf{S} ne dépend pas explicitement du vecteur position \mathbf{r} , et donc de l'origine des coordonnées, ce qui justifie son caractère intrinsèque. La séparation du moment angulaire total de la lumière $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ en ses composantes de MAS et de MAO fait encore aujourd'hui l'objet de controverses et de recherches actives car, comme on le verra, \mathbf{L} et \mathbf{S} ne sont pas de *vrais* moments angulaires au sens de la mécanique quantique, bien qu'ils aient une signification physique pertinente [5, 6].

Ce n'est qu'en 1992 que le lien entre le MAO de la lumière et les variations macroscopiques du vecteur d'onde fut définitivement établi par Allen *et al.* [12]. Le MAO est associé à des faisceaux de lumière dont l'amplitude du champ électrique varie avec la coordonnée azimutale φ , dans un repère cylindrique où z est l'axe de propagation. Par exemple, un faisceau dont le profil d'intensité est symétrique par rotation, mais dont le champ électrique est proportionnel à $e^{i\ell\varphi}$, contient des photons possédant un quantum de MAO égal à $\ell\hbar$. Le paramètre ℓ est souvent appelé *charge topologique* du faisceau, et peut prendre des valeurs arbitrairement grandes. On voit cependant qu'il faut nous restreindre aux valeurs entières de ℓ , afin qu'il n'y ait pas de discontinuité de phase dans le faisceau.

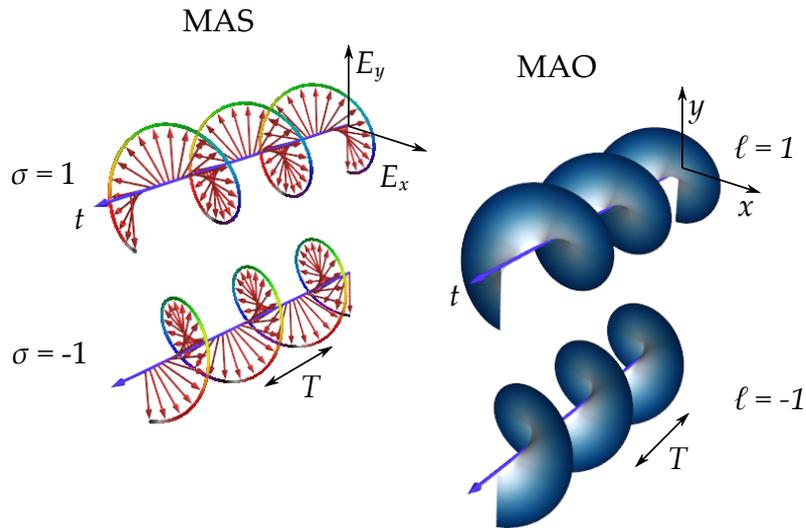


FIGURE 1 – Comparaison entre MAS et MAO. À gauche : des champs électromagnétiques transverse de polarisations circulaires gauche et droite, représentés dans l'espace (E_x, E_y, t) , avec E_x et E_y les deux composantes cartésiennes transverse du champ électrique. Les photons associés à ces champs portent le MAS $\sigma\hbar = \pm\hbar$. À droite : fronts d'onde de faisceaux de lumière portant les MAO $\ell = 1$ et $\ell = -1$, représentés dans l'espace (x, y, t) , et dont l'état de polarisation (circulaire, linéaire, elliptique) est quelconque. Les photons associés à ces faisceaux portent le MAO $\ell\hbar$. T est la période du champ.

Les faisceaux possédant une phase *hélicoïdale* $\ell\varphi$ sont appelés *vortex optiques*, et l'une des avancées majeures de l'article de 1992 [12] fut de montrer que de tels faisceaux étaient faciles à produire en laboratoire. Dans le domaine visible, des éléments

optiques appropriés, tels que des lames ou des modulateurs de phase, permettent en effet de *sculpter* la phase du faisceau. Les vortex optiques ainsi produits sont robustes, et conservent leurs propriétés en se propageant. Tout comme les polarisations circulaires droite et gauche constituent une base des états de polarisation, tout champ électromagnétique paraxial peut s'écrire comme une combinaison de modes portant des MAO bien définis. Parmi ces familles de modes, les faisceaux de Laguerre-Gauss [12] sont les plus utilisés.

Comme on le voit sur la figure 1, les champs polarisés circulairement et les vortex optiques possèdent un "sens d'enroulement", vers la gauche ou vers la droite. Cette propriété les rend sensibles à la *chiralité* de la matière [13]. Des champs polarisés circulairement sont ainsi utilisés dans des expériences de *dichroïsme circulaire* - où l'on mesure la différence d'absorption entre les MAS ± 1 - dans un grand nombre de systèmes : molécules, matériaux magnétiques, protéines, nanostructures, etc. Les observations de dichroïsmes de MAO restent par contre rares, et constituent un domaine de recherche actif.

Le MAO de la lumière a par contre déjà trouvé des applications dans d'autres domaines [14]. On peut citer les télécommunications, où l'on tire profit du fait que ℓ puisse prendre une infinité de valeurs pour multiplexer une grande quantité de signaux [15, 16]. Les modes de MAO ont ainsi été utilisés pour transmettre des informations de manière robuste dans l'atmosphère [17, 18], dans l'océan [19] ou dans des fibres optiques [20]. Le MAO est également un degré de liberté de choix en optique quantique : il est par exemple possible de générer et caractériser des paires de photons intriqués en MAO [21, 22, 23]. Les vortex optiques permettent aussi de piéger et de manipuler des particules [24] ou des atomes. Là où le MAS met les particules biréfringentes en rotation sur elles-mêmes [25, 26, 27], le MAO les fait tourner autour de l'axe du faisceau [28, 29, 30]. Les vortex optiques sont également utilisés en microscopie par déplétion par émission stimulée (STED) [31, 32, 33]. Enfin, le MAO peut être utile pour mesurer la vitesse de rotation d'objets tournants [34], et a même été envisagé comme un outil de détection de trous noirs en mouvement [35].

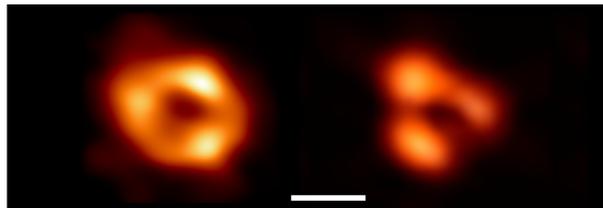


FIGURE 2 – Ressemblance fortuite entre le foyer d'un faisceau portant le MAO $\ell = 1$ après diffraction par une fente triangulaire, et la photographie du trou noir Sagittarius A* par l'Event Horizon Telescope [36]. La barre blanche correspond à environ $100 \mu\text{m}$ dans le premier cas, et environ 60 millions de km dans le second.

Le moment angulaire de la lumière dans l'extrême ultraviolet et à l'échelle de temps attoseconde

Dans l'immense majorité des cas cités plus haut, le MAS ou le MAO est porté par des lasers continus, d'intensités relativement faibles et de longueurs d'onde dans le domaine visible. Depuis une petite dizaine d'années, un important effort de recherche vise

à transposer ces capacités de mise en forme de la lumière à des longueurs d'onde plus courtes, et des temps plus brefs. En effet, des sources de rayonnement polarisé circulairement dans l'ultraviolet extrême (XUV, correspondant à des longueurs d'onde dans l'intervalle 100-10 nm) ou dans les rayons X (longueurs d'onde inférieures à 10 nm), permettent d'accéder à des phénomènes tels que le dichroïsme circulaire magnétique aux seuils des métaux de transition [37], ou le dichroïsme circulaire de photoélectrons [38, 39]. Si, de plus, ce rayonnement se présente sous la forme d'impulsions ultrabrèves, de durée femtoseconde (10^{-15} s) ou attoseconde (10^{-18} s), alors des expériences de dichroïsme résolues en temps deviennent possibles [40].

De même, des impulsions de lumière XUV, de durée femtoseconde ou attoseconde, et portant du MAO sont appelées à jouer un rôle dans un certain nombre d'applications émergentes. On pense naturellement à la possibilité de transférer le MAO aux électrons lors de la photoionisation [41]. On a également cité plus haut le cas de dichroïsmes de MAO, ou dichroïsmes hélicoïdaux, observés par exemple dans des matériaux magnétiques. Ces études gagneraient à être étendues au domaine XUV, car on pourrait alors accéder aux fréquences de résonance des matériaux [42, 43] et sonder la chiralité de molécules à des énergies jusqu'alors hors d'atteinte [44]. En imagerie par diffraction cohérente, les courtes longueurs d'onde XUV, combinées à la présence de MAO, permettent d'accroître la résolution spatiale et la fidélité de reconstruction des échantillons [45, 46, 47].

De tels faisceaux de lumière XUV, portant du MAS ou du MAO, sont générés depuis une petite dizaine d'années sur des synchrotrons [48], des lasers à électrons libres [49], ou bien des lignes de lumière attoseconde basées sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE). C'est ce dernier cas qui va nous intéresser dans cette thèse.

La GHOE est un phénomène optique de champ fort, hautement non linéaire, au cours duquel un faisceau intense de lumière visible ou proche infrarouge est converti, lors de son interaction avec un milieu gazeux, en un rayonnement de spectre très large, situé dans l'XUV [50, 51]. Ce rayonnement est un peigne d'harmoniques de la fréquence du laser de génération. De façon remarquable, la physique non-perturbative de la GHOE, conséquence de la forte déformation du potentiel coulombien des atomes par le champ laser, se traduit par des harmoniques d'ordre élevé émises avec des efficacités similaires. Cette grande largeur spectrale peut mener à l'obtention d'impulsions de durées très brèves, de l'ordre de la centaine d'attosecondes. La GHOE s'explique en considérant un électron externe de l'atome de gaz qui, soumis au champ laser intense, est libéré, accéléré, puis ramené vers l'ion avec lequel il recombine en émettant de la lumière.

Comparé aux grands instruments, tels que les synchrotrons ou les lasers à électrons libres (LEL), la GHOE présente un certain nombre d'avantages. Le premier d'entre eux est la compacité et le coût comparativement faible de la source de rayonnement. Ensuite, la durée attoseconde du rayonnement de GHOE permet des expériences de spectroscopie aux échelles temporelles ultimes, là où les synchrotrons ne permettent d'accéder qu'à des dynamiques plus lentes que la picoseconde². Enfin, l'une des propriétés de la GHOE qui va nous intéresser le plus durant cette thèse est le fait qu'un certain nombre de grandeurs constitutives du champ laser de génération peuvent être

2. Les LEL ont quant à eux longtemps été cantonnés au régime femtoseconde, mais ces dernières années des résolutions attosecondes ont été démontrées, en particulier au LCLS (Stanford) et à FERMI (Trieste).

transmises aux harmoniques : c'est notamment le cas du MAS et du MAO. Bien qu'il soit possible de communiquer du MAO ou du MAS aux harmoniques *a posteriori*, c'est-à-dire en aval de la zone de génération, cela nécessite des éléments optiques fonctionnant dans l'XUV (lames d'ondes en réflexion, lames à zones), difficiles à fabriquer, coûteux, et présentant généralement un taux de transmission faible. Pour cette raison, il sera souvent plus intéressant d'utiliser un faisceau de génération portant du moment angulaire (dans le domaine visible ou proche infrarouge), lequel pourra dans certaines conditions être transféré aux harmoniques, en tirant parti des lois de conservation.

L'étude de la conservation du moment angulaire de la lumière en GHOE a débuté il y a une dizaine d'années [52]. Depuis, le comportement du moment angulaire a été testé dans un grand nombre de situations : avec un [53, 54, 55, 56] ou plusieurs [57, 58, 59, 60, 61] faisceaux de génération porteurs de MAO ; ou des faisceaux de génération portant du MAS [62, 63, 64, 65, 66, 67]. Un nombre plus restreint d'expériences très récentes a mis en œuvre le transfert simultané de MAS et de MAO [68, 69, 70].

Toutes ces expériences³ concordent à affirmer que la GHOE est un processus *paramétrique* vis-à-vis du moment angulaire de la lumière. Les états initial et final de l'atome ayant émis le rayonnement XUV étant identiques, les grandeurs portées par la lumière, dont le MAO et le MAS, ne sont pas transférées à la matière, et sont donc conservées par le champ électromagnétique seul. Dans toutes les publications citées, l'argument avancé pour expliquer les lois de conservation est le suivant. L'émission de l'harmonique d'ordre q est la conséquence de l'absorption d'un nombre q de photons du faisceau de génération, et de l'émission d'un unique photon XUV. Si chacun des photons porte le MAO $l\hbar$, alors un photon de l'harmonique q doit porter le MAO $q\hbar$ pour que le moment angulaire de la lumière soit conservé lors du processus.

Ce genre de considérations multi-photoniques, également appliqué au MAS ou à des mélanges d'ondes, permet de prédire avec succès les moments angulaires des harmoniques générées. Pourtant, ces modèles doivent être abordés avec prudence, et leurs affirmations nuancées. Le caractère non-perturbatif de la GHOE empêche en effet de décrire cette dernière comme un processus non-linéaire impliquant q photons du champ de génération. La recherche d'une description de la GHOE utilisant les outils de la théorie quantique des champs fait l'objet d'intenses recherches [71, 72, 73, 74, 75, 76], et à l'heure actuelle il ne semble pas encore exister de modèle faisant consensus.

Objectifs de la thèse

- 1 — L'un des premiers objectifs de cette thèse sera donc de reproduire les expériences de GHOE avec MAO ou MAS rapportées de la littérature, cette fois-ci en étudiant finement les rendements des différents canaux d'émission et leur contenu en modes transverses. Nous mettrons ainsi en défaut les prédictions des modèles perturbatifs "à q photons IR". De plus, ces expériences nous permettront de générer des harmoniques portant du MAO ou du MAS, ajustables à volonté.
- 2 — Comme évoqué plus haut, au début de cette thèse peu d'expériences avaient cherché à générer des harmoniques portant simultanément du MAS et du MAO. Nous réaliserons une telle expérience, en nous posant la question suivante : la GHOE avec MAS *et* MAO porte-t-elle plus d'information que la somme de ses

3. Exceptée celle de Zürich *et al.* [52], dont les résultats ont depuis été infirmés.

parties, c'est-à-dire la GHOE avec seulement du MAS et la GHOE avec seulement du MAO? Nous désirons établir une description unifiée des champs de lumière paraxiaux dont les degrés MAO et MAS ne sont pas séparables, et utiliser cette description pour simplifier l'analyse de la GHOE dans ce cas.

- 3 — En réponse au point 1, nous souhaitons établir une interprétation de la GHOE traitant cette dernière comme un processus multi-photons paramétrique, et permettant de prédire non seulement les grandeurs portées par les faisceaux XUV (MAS, MAO, impulsion, énergie ...) mais également l'efficacité de leur émission et leur contenu en modes transverses.
- 4 — Enfin, nous nous intéresserons à une application émergente des faisceaux XUV porteurs de moment angulaire : l'étude de textures magnétiques. Nous chercherons à identifier et à mettre en évidence expérimentalement les processus magnéto-optiques où le moment angulaire de la lumière (sous la forme du MAO ou du MAS) est susceptible de jouer un rôle pertinent.

Organisation de ce document

Pour commencer, il nous faudra nous doter des fondamentaux nécessaires à la mise en place et à l'analyse de ces expériences. Pour cela, la partie I de ce manuscrit propose une introduction au moment angulaire de la lumière. Après l'établissement du lien entre moment angulaire et rotations, le chapitre 1 s'intéresse à l'impulsion et au moment angulaire contenu dans un champ électromagnétique classique. Dans le chapitre 2, on introduit l'approximation paraxiale et on calcule le moment angulaire porté par les champs polarisés circulairement, et celui porté par des vortex optiques polarisés linéairement. Le chapitre 3 donne les conditions de validité de la séparation entre MAS et MAO (équation 1), et introduit rigoureusement les photons ainsi que le moment angulaire qu'ils portent. En partie II, on donne les bases théoriques (chapitre 4) et expérimentales (chapitre 5) de la GHOE, en présentant au passage une nouvelle technique de stabilisation d'interféromètres attoseconde.

Une fois ces fondations posées, nous traiterons les trois premiers objectifs en partie III. Le chapitre 6 s'intéresse à la conservation du MAO en GHOE, le chapitre 7 à la conservation du MAS (objectif 1). Avant d'aborder les résultats d'expériences mélangeant MAS et MAO (objectif 2), nous définirons au chapitre 8 une nouvelle quantité : un moment angulaire *généralisé* (MAG), combinaison linéaire du MAS et du MAO, et dont l'introduction est justifiée par les symétries auxquelles obéissent nos champs laser. La pertinence du MAG deviendra apparente lors des expériences présentées au chapitre 9. Enfin, au cours du chapitre 10, nous chercherons à comprendre les rendements de génération et profils transverses des faisceaux harmoniques (objectif 3). Pour cela, nous introduirons une interprétation de la GHOE traitant cette dernière comme une interférence entre de multiples processus multi-photons. Nous testerons ce modèle lors d'expériences de GHOE à deux faisceaux, gaussiens ou structurés.

Enfin, la partie IV s'attachera à l'objectif 4. Dans le chapitre 11, nous étudierons un dichroïsme hélicoïdal magnétique, observé lors de l'interaction entre un vortex optique polarisé linéairement et un vortex de magnétisation. Dans un second temps, au chapitre 12, nous aborderons de façon théorique les couplages MAS/MAO ayant lieu lorsqu'un faisceau de lumière se réfléchit sur une texture magnétique. Une conclusion

et des perspectives clôtureront ce document.

NB — Le lecteur s'apercevra qu'un soin particulier a été apporté à la justification des résultats à partir des principes premiers, en donnant quand c'était possible des exemples et des analogies pour tenter de rendre les choses intuitives. C'est particulièrement le cas dans les parties I et II. Le lecteur familier des notions de moment angulaire de la lumière, ou de GHOE, pourra donc s'informer des principaux résultats (les équations importantes sont encadrées) puis directement se rendre au début de la partie III, où les choses originales commencent. Étant donné que certains résultats présentés dans cette thèse s'appuient sur les propriétés fondamentales du moment angulaire de la lumière (notamment ses liens avec les symétries de rotation, l'approximation paraxiale, et les modes du champ), il nous a paru judicieux de présenter ces dernières en détail. De plus, nous espérons que le lecteur moins familier de ces notions trouvera ces premiers chapitres instructifs.

Première partie

Le moment angulaire de la lumière

Le moment angulaire en mécanique et en électromagnétisme classique

Pour commencer, nous allons établir l'expression de certaines quantités conservées (énergie, impulsion, et moment angulaire) lors de l'évolution d'un système mécanique, à l'aide des outils de la mécanique lagrangienne. Nous démontrerons notamment le lien général entre quantités conservées et symétries. Dans un second temps, nous calculerons les densités d'énergie, d'impulsion et de moment angulaire du champ électromagnétique classique.

1.1 Mécanique lagrangienne

Considérons un système contenant un nombre N de particules. En physique classique, la connaissance de la position et de la vitesse de chaque particule à un temps donné suffit pour calculer l'évolution du système. La particule numérotée n étant repérée par trois nombres (les trois composantes de son vecteur position), $3N$ coordonnées décrivent la configuration des particules à un instant donné, on les note $x_{n,i}(t)$ (i peut prendre 3 valeurs). L'évolution du système peut alors être calculée grâce à la seconde loi de Newton

$$m_n \ddot{x}_{n,i} = F_{n,i}, \quad (1.1)$$

où m_n est la masse de la particule considérée, et $F_{n,i}$ est la projection de la somme des forces s'exerçant sur la particule sur l'un des trois axes.

Pour rendre les notations plus générales, on définit les coordonnées *généralisées* q_i de toutes les particules composant le système, où i varie cette fois de 0 à $3N$. Ces coordonnées peuvent être des positions ou des angles, et on définit également les vitesses généralisées $\dot{q}_i = \frac{dq_i}{dt}$.

1.1.1 Principe de moindre action

On suppose que le système est conservatif, c'est-à-dire que les forces F_i découlent toutes d'un *potentiel*. On suppose alors que le système peut être décrit par une fonction $\mathcal{L}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}, t)$, où \mathbf{q} et $\dot{\mathbf{q}}$ sont des notations concises pour les coordonnées q_i et vitesses \dot{q}_i généralisées. Cette fonction est appelée *lagrangien* du système, et on énonce alors le

principe suivant. Entre les instants t_1 et t_2 , auxquels les particules ont pour coordonnées $\mathbf{q}_{(1)}$ et $\mathbf{q}_{(2)}$, le système évolue de façon à ce que la quantité

$$\mathcal{S} = \int_{t_1}^{t_2} \mathcal{L}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}, t) dt \quad (1.2)$$

ait la plus petite valeur possible [77].

\mathcal{S} est appelée *action*, et le principe ci-dessus est dit de "moindre action". Nous allons à présent montrer que pour un certain choix de lagrangien, ce principe est équivalent à la seconde loi de Newton, et peut donc être choisi comme point de départ pour l'étude de la mécanique classique.

Commençons par établir l'équation à laquelle obéit le lagrangien. Appelons $\mathbf{q}_0(t)$ le chemin pris par le système qui minimise la valeur de \mathcal{S} . Imaginons alors un autre chemin très légèrement différent, $\mathbf{q}_0(t) + \epsilon(t)$. Les deux chemins doivent avoir les mêmes points de départ et d'arrivée, donc $\epsilon(t_1) = \epsilon(t_2) = 0$. Le "mauvais" chemin $\mathbf{q}_0(t) + \epsilon(t)$ mène forcément à une action \mathcal{S} plus grande que le "bon" chemin, mais comme \mathcal{S} atteint un minimum pour $\mathbf{q}_0(t)$ la variation d'action $\delta\mathcal{S}$ entre les deux chemins doit être nulle *au premier ordre*. On a

$$\delta\mathcal{S} = \int_{t_1}^{t_2} \mathcal{L}(\mathbf{q}_0 + \epsilon, \dot{\mathbf{q}}_0 + \dot{\epsilon}, t) dt - \int_{t_1}^{t_2} \mathcal{L}(\mathbf{q}_0, \dot{\mathbf{q}}_0, t) dt, \quad (1.3)$$

variation qui s'écrit également au premier ordre

$$\delta\mathcal{S} = \int_{t_1}^{t_2} \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{q}} \epsilon + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \dot{\epsilon} \right] dt. \quad (1.4)$$

Une intégration par partie du second terme donne alors

$$\delta\mathcal{S} = \int_{t_1}^{t_2} \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{q}} \epsilon dt - \int_{t_1}^{t_2} \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \right) \epsilon dt + \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \epsilon(t) \right]_{t_1}^{t_2}. \quad (1.5)$$

Or $\epsilon(t_1) = \epsilon(t_2) = 0$ donc le terme entre crochet disparaît et on trouve que l'intégrale suivante doit être nulle

$$\delta\mathcal{S} = \int_{t_1}^{t_2} \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{q}} - \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \right) \right] \epsilon dt = 0 \quad (1.6)$$

La fonction $\epsilon(t)$ est quelconque. Ainsi, pour que l'intégrale soit bien nulle pour tous les choix possibles de $\epsilon(t)$, il faut et il suffit que le terme entre crochets soit nul. On obtient alors l'équation de Lagrange pour chaque coordonnée généralisée q_i

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial q_i} - \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \right) = 0 \quad (1.7)$$

On peut alors montrer que si l'on choisit le lagrangien

$$\mathcal{L} = T - V, \quad (1.8)$$

où $T(\dot{\mathbf{q}}) = \sum_i \frac{1}{2} m \dot{q}_i^2$ est l'énergie cinétique et $V(\mathbf{q})$ est l'énergie potentielle du système, alors l'équation de Lagrange 1.7 est équivalente à la seconde loi de Newton 1.1 [78].

On peut noter que l'équation de Lagrange impose à l'action d'atteindre un extremum, mais qu'il ne s'agit pas forcément d'un minimum.

Ici, on a posé en principe fondateur de la mécanique le fait que parmi toutes les évolutions possibles d'un système, seul celui qui minimise \mathcal{S} est physiquement valide. Mais qu'en est-il des autres chemins, ont-ils une importance? On peut répondre par l'affirmative dans le cadre de la mécanique quantique. Dans les années 1940, Richard Feynman proposa une généralisation du principe de moindre action au cas des systèmes quantiques [79]. Les différents chemins possibles sont alors *effectivement* empruntés simultanément par le système. On associe à chaque chemin une amplitude complexe, de sorte que la probabilité finale que le système évolue entre le point de départ et d'arrivée est donnée par le carré d'une somme d'amplitudes, celles associées à certains chemins s'annulant, tandis que d'autres chemins interfèrent constructivement.

Nous allons à présent voir qu'en définissant une symétrie comme une transformation qui ne change pas le lagrangien, on peut établir l'expression des quantités conservées au cours de l'évolution du système.

1.1.2 Symétries et quantités conservées

Symétries

Commençons par introduire la notion de symétrie. Soit \mathbf{g} une transformation affectant les coordonnées généralisées, les transformant en $\mathbf{q}' = \mathbf{g}(\mathbf{q})$. Les vitesses généralisées sont transformées selon $\dot{\mathbf{q}}' = \frac{d\mathbf{g}(\mathbf{q})}{dt}$. \mathbf{g} est une symétrie du système considéré si elle laisse le lagrangien invariant

$$\mathcal{L}\left(\mathbf{g}(\mathbf{q}), \frac{d\mathbf{g}(\mathbf{q})}{dt}\right) = \mathcal{L}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}). \quad (1.9)$$

Dans la suite, on s'intéresse plus particulièrement aux symétries \mathbf{g}_μ dépendant d'un paramètre réel continu μ , et telles que $\mathbf{g}_{\mu=0} = \text{identité}$ et $\mathbf{g}_{\mu_1}\mathbf{g}_{\mu_2} = \mathbf{g}_{\mu_1+\mu_2}$. Les symétries \mathbf{g}_μ forment alors un groupe de symétries.

Théorème de Noether

Nous allons montrer que si \mathbf{g}_μ est une symétrie continue, alors une certaine quantité est conservée au cours du temps. On a par définition

$$\mathcal{L}\left(\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q}), \frac{d\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q})}{dt}\right) = \mathcal{L}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}) \Rightarrow \frac{d}{d\mu}\left(\mathcal{L}\left(\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q}), \frac{d}{dt}\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q})\right)\right) = 0, \quad (1.10)$$

c'est-à-dire

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{q}} \frac{d\mathbf{g}_\mu}{d\mu} + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \frac{d}{d\mu} \left(\frac{d\mathbf{g}_\mu}{dt} \right) = 0. \quad (1.11)$$

On remplace alors le terme $\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}}$ par son expression donnée par l'équation de Lagrange 1.7, et on permute les deux dérivées pour obtenir

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \right) \frac{d\mathbf{g}_\mu}{d\mu} + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \frac{d}{dt} \left(\frac{d\mathbf{g}_\mu}{d\mu} \right) = 0. \quad (1.12)$$

On reconnaît dans cette expression la dérivée temporelle du produit $\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \cdot \frac{d\mathbf{g}_\mu}{d\mu}$, qui est donc bien constant au cours du temps. La quantité

$$I_N = \sum_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \frac{d g_\mu^i}{d\mu} \quad (1.13)$$

est alors une constante du mouvement [77]. Le résultat que nous venons d'obtenir est appelé théorème de Noether [80]. Il s'agit d'un énoncé fondamental très utile dans de multiples domaines de la physique, car il établit le lien entre symétries et quantités conservées. Nous allons l'appliquer à trois exemples de symétries pour comprendre l'origine des conservations de l'impulsion, du moment angulaire et de l'énergie.

Dans les sections qui suivent, nous considérons un système conservatif avec $\mathcal{L}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}) = T(\dot{\mathbf{q}}) - V(\mathbf{q})$ et $T = \sum_i \frac{1}{2} m_i \dot{q}_i^2$.

Translation spatiale et impulsion

Soit \mathbf{u} un vecteur dans l'espace réel. On imagine que notre système est symétrique sous la transformation

$$\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q}) = \mathbf{q} + \mu \mathbf{u}, \quad (1.14)$$

c'est-à-dire par translation dans la direction donnée par \mathbf{u} . Si la symétrie est valable quel que soit \mathbf{u} , cela signifie que notre système évolue dans un espace *homogène*. En effet, \mathcal{L} ne dépend explicitement de \mathbf{q} que par l'énergie potentielle V . Le théorème de Noether nous permet d'affirmer que la quantité suivante

$$P_{\mathbf{u}} = \sum_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \cdot \mathbf{u} \quad (1.15)$$

est conservée au cours du temps. Il s'agit bien entendu de la quantité de mouvement (ou impulsion) totale du système de particules projetée sur \mathbf{u} . Si cela est vrai pour \mathbf{u} quelconque, on trouve que l'impulsion $\mathbf{P} = \sum_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}}$ est conservée.

Invariance par rotation et moment angulaire

Considérons à présent le cas qui va nous intéresser à de nombreuses reprises durant cette thèse : celui d'un système invariant par rotation. Plaçons-nous dans le cas simple d'une unique particule de masse m et de coordonnées cartésiennes $\mathbf{q} = (x, y, z)$. Une rotation autour de l'axe z s'écrit

$$\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q}) = \mathbf{R}_\mu \mathbf{q}, \quad (1.16)$$

avec

$$\mathbf{R}_\mu = \begin{pmatrix} \cos \mu & \sin \mu & 0 \\ -\sin \mu & \cos \mu & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (1.17)$$

la matrice de rotation d'angle μ et d'axe z . On suppose alors que les particules ont une énergie potentielle $V(\mathbf{q})$ invariante par rotation, c'est-à-dire que $V(\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q})) = V(\mathbf{q})$. Le lagrangien ne dépendant pas de l'angle μ , la quantité suivante doit être conservée

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \cdot \frac{d\mathbf{g}_\mu(\mathbf{q})}{d\mu} = \frac{\partial T}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \cdot \frac{d(\mathbf{R}_\mu \mathbf{q})}{d\mu} = \text{constante}. \quad (1.18)$$

En dérivant la matrice de rotation, on obtient la quantité conservée sous la forme

$$\frac{\partial T}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \cdot \mathbf{q} \times \mathbf{u}_z = m \dot{\mathbf{q}} \cdot (\mathbf{q} \times \mathbf{u}_z) = -(\mathbf{q} \times m \dot{\mathbf{q}}) \cdot \mathbf{u}_z = -L_z. \quad (1.19)$$

L_z est la composante selon z du moment angulaire, ou moment cinétique, de la particule par rapport à l'origine. Si on suppose que l'énergie potentielle est également invariante par rotation autour des axes x et y , le moment angulaire (orbital) \mathbf{L} de la particule est conservé au cours du temps.

Invariance dans le temps et énergie

Le cas de l'invariance par translation dans le temps est plus subtil, car jusqu'à présent nous n'avons pas traité le temps comme une coordonnée généralisée mais comme un paramètre à part du lagrangien [77]. Remarquons toutefois que la quantité suivante

$$H = \sum_i \dot{q}_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} - \mathcal{L} \quad (1.20)$$

ne varie pas au cours du temps si \mathcal{L} ne dépend pas *explicitement* du temps [78]. En effet

$$\begin{aligned} \frac{dH}{dt} &= \sum_i \left[\ddot{q}_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} + \dot{q}_i \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \right) \right] - \frac{d\mathcal{L}}{dt} \\ &= \sum_i \left[\ddot{q}_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} + \dot{q}_i \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \right) - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial q_i} \dot{q}_i - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{q}_i} \ddot{q}_i \right] - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial t} \\ &= -\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial t}. \end{aligned} \quad (1.21)$$

La dernière étape du calcul ci-dessus est franchie en utilisant l'équation de Lagrange 1.7. Ainsi, si le lagrangien ne dépend pas explicitement du temps, c'est-à-dire si on a invariance par translation dans le temps, on obtient

$$H = \text{constante}. \quad (1.22)$$

Lorsque H est écrit en fonction de \mathbf{q} et $\dot{\mathbf{q}}$, il est connu sous le nom de *hamiltonien* du système. On l'associe à l'énergie totale (cinétique + potentielle).

1.2 Formalisme hamiltonien

Les équations de Lagrange pour chaque coordonnée généralisée q_i représentent un système de $3N$ équations différentielles d'ordre deux. L'idée de base de la formulation hamiltonienne de la mécanique est de se ramener à un système de $2 \times 3N$ équations d'ordre 1. Pour cela on introduit l'*impulsion généralisée*

$$\mathbf{p} = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}}. \quad (1.23)$$

Afin de préserver l'indépendance des variables \mathbf{q} et $\dot{\mathbf{q}}$, on doit avoir $\frac{\partial p_i}{\partial q_j} = 0$ et $\frac{\partial p_i}{\partial p_j} = \delta_{ij}$, où δ_{ij} est le symbole de Kronecker. Avec cette nouvelle grandeur, l'équation de Lagrange 1.7 devient

$$\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{q}} = \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} \right) = \dot{\mathbf{p}}. \quad (1.24)$$

Le lagrangien dépendant uniquement de \mathbf{q} et $\dot{\mathbf{q}}$, sa variation infinitésimale est

$$d\mathcal{L} = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \mathbf{q}} d\mathbf{q} + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{q}}} d\dot{\mathbf{q}} = \dot{\mathbf{p}} d\mathbf{q} + \mathbf{p} d\dot{\mathbf{q}}. \quad (1.25)$$

En faisant intervenir la dérivée d'un produit dans le second terme, et en réarrangeant, on obtient

$$d(\mathbf{p} \cdot \dot{\mathbf{q}} - \mathcal{L}) = \dot{\mathbf{q}} d\mathbf{p} - \dot{\mathbf{p}} d\mathbf{q}. \quad (1.26)$$

Ainsi, on trouve que le hamiltonien $H = \mathbf{p} \cdot \dot{\mathbf{q}} - \mathcal{L}$ (grandeur introduite plus haut pour calculer l'effet d'une invariance par translation dans le temps) ne dépend lui aussi que de \mathbf{q} et $\dot{\mathbf{q}}$. De plus, la dérivée ci dessus nous donne les deux équations de Hamilton

$$\begin{aligned} \frac{\partial H}{\partial \mathbf{q}} &= -\dot{\mathbf{p}} \\ \frac{\partial H}{\partial \mathbf{p}} &= \dot{\mathbf{q}}. \end{aligned} \quad (1.27)$$

Les variables \mathbf{q} et \mathbf{p} sont dites *canoniquement conjuguées*. Le formalisme de Hamilton de la mécanique est équivalent au formalisme lagrangien, bien que leurs esprits diffèrent : le premier fait apparaître des équations différentielles impliquant H , alors que le second considère les trajectoires entre le point de départ et d'arrivée de façon globale. La mécanique quantique est le plus souvent écrite dans le formalisme de Hamilton, et nous verrons apparaître les deux équations ci-dessus lorsque nous traiterons le champ électromagnétique de manière quantique (voir chapitre 3).

1.3 Électromagnétisme classique : énergie, impulsion et moment angulaire de la lumière

Dans la section précédente, nous avons établi les expressions de l'énergie, de l'impulsion et du moment angulaire d'une assemblée de particules matérielles. Nous allons à présent faire apparaître les mêmes grandeurs pour la lumière.

1.3.1 Équations de Maxwell

Une charge électrique e placée dans un champ électromagnétique subit la force de Lorentz

$$\mathbf{F} = e(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}), \quad (1.28)$$

où \mathbf{E} et \mathbf{B} sont respectivement les champs électriques et magnétiques (qui dépendent de la position et du temps), et où \mathbf{v} est la vitesse de la charge dans le référentiel considéré¹.

1. La force de Lorentz dépend donc du référentiel considéré. La relativité restreinte permet de résoudre ce paradoxe, les champs \mathbf{E} et \mathbf{B} dépendant eux aussi du référentiel choisi.

Les champs \mathbf{E} et \mathbf{B} sont couplés, et obéissent aux quatre équations de Maxwell

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (\text{eq. de Maxwell-Gauss}) \quad (1.29)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B} = 0 \quad (\text{eq. de Maxwell-Thomson}) \quad (1.30)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (\text{eq. de Maxwell-Faraday}) \quad (1.31)$$

$$\nabla \times \mathbf{B} = \mu_0 \left(\mathbf{i} + \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) \quad (\text{eq. de Maxwell-Ampère}) \quad (1.32)$$

ρ et \mathbf{i} sont respectivement les densités de charge et de courant électriques. L'équation de Maxwell-Gauss permet de calculer le champ électrique créé par des charges, tandis que l'équation de Maxwell-Thomson reflète le fait qu'il n'existe pas de charge magnétique. Les équations de Maxwell-Faraday et Maxwell-Ampère font apparaître \mathbf{E} et \mathbf{B} de manière couplée, dès que le champ électromagnétique varie dans le temps. Ces équations furent établies par James Clark Maxwell sous une forme bien moins concise en 1862. On attribue à Heaviside la dérivation de leur forme moderne ci-dessus. Dans cette thèse, nous étudierons la plupart du temps des champs électromagnétiques dans le vide, et on aura donc $\rho = 0$ et $\mathbf{i} = \mathbf{0}$.

1.3.2 Équation d'onde et vitesse de la lumière

Plaçons-nous dans un espace vide de charges et de courants. Nous pouvons combiner les équations 1.31 et 1.32 pour établir l'équation d'onde du champ électromagnétique. Commençons par calculer le rotationnel de l'équation de Maxwell-Faraday

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) = -\nabla \times \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}. \quad (1.33)$$

En utilisant l'identité vectorielle $\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} = -\nabla^2 \mathbf{E} + \nabla (\nabla \cdot \mathbf{E})$, l'équation de Maxwell-Gauss $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$, et enfin l'équation de Maxwell-Ampère donnant le rotationnel de \mathbf{B} , on obtient une équation d'ordre deux où seul \mathbf{E} intervient

$$\boxed{\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0,} \quad (1.34)$$

avec $c = 1/\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$. L'équation ci-dessus est l'équation d'onde (ou équation de D'Alembert) pour le champ électrique. De même, en prenant le rotationnel de l'équation 1.32, on obtient l'équation d'onde du champ magnétique

$$\nabla^2 \mathbf{B} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{B}}{\partial t^2} = 0. \quad (1.35)$$

c est la vitesse de la lumière dans le vide, dont la valeur ne dépend pas du référentiel choisi pour la mesurer. Maxwell, qui est le premier à établir l'équation d'onde du champ électromagnétique, remarque la proximité entre la valeur qu'il obtient pour c et celles mesurées séparément par Hippolyte Fizeau et Léon Foucault une dizaine

d'années plus tôt. Il en conclut que la lumière est probablement constituée d'ondes électromagnétiques².

Si l'on considère des ondes planes, on trouve que les vecteurs \mathbf{k} , \mathbf{E} et \mathbf{B} forment un trièdre direct. On obtient en effet facilement les relations

$$\begin{aligned}\frac{\mathbf{k}}{k} \times \mathbf{E} &= \mathbf{B}, \\ \frac{\mathbf{k}}{k} \times \mathbf{B} &= -\frac{\mathbf{E}}{c}.\end{aligned}\tag{1.36}$$

1.3.3 Énergie, flux d'énergie et impulsion du champ électromagnétique

Considérons la densité locale de charge électrique $\rho(\mathbf{r}, t)$, et la vitesse locale des charges \mathbf{v} . La force subie par un petit volume dV est donnée par $d\mathbf{F} = \rho dV (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B})$. La puissance mécanique reçue par ce petit volume est donc $d\mathbf{F} \cdot \mathbf{v} = \mathbf{i} \cdot \mathbf{E} dV$, ce qui reflète le fait que le champ magnétique ne travaille pas. Ainsi, la densité de puissance reçue par le champ électromagnétique (en W/m^3) est

$$\frac{dP}{dV} = -\mathbf{i} \cdot \mathbf{E}.\tag{1.37}$$

Il s'agit de la puissance que la matière chargée communique à la lumière par effet Joule. Nous allons maintenant établir le bilan local d'énergie du champ électromagnétique, qui dit en substance que la variation d'énergie du champ est due à un flux de puissance et à l'effet Joule. Pour cela, prenons le produit scalaire de l'équation 1.31 avec \mathbf{B} , et le produit scalaire de l'équation 1.32 avec \mathbf{E} , pour obtenir

$$\begin{aligned}\mathbf{B} \cdot \nabla \times \mathbf{E} &= -\mathbf{B} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{2} \mathbf{B}^2 \right) \\ \mathbf{E} \cdot \nabla \times \mathbf{B} &= \mu_0 \left(\mathbf{i} \cdot \mathbf{E} + \epsilon_0 \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \right) = \mu_0 \left(\mathbf{i} \cdot \mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 \mathbf{E}^2 \right) \right).\end{aligned}\tag{1.38}$$

On utilise alors l'identité vectorielle $\mathbf{B} \cdot \nabla \times \mathbf{E} - \mathbf{E} \cdot \nabla \times \mathbf{B} = \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B})$, ce qui donne

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{1}{2} \epsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{2\mu_0} \mathbf{B}^2 \right) + \nabla \cdot \left(\frac{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}{\mu_0} \right) = -\mathbf{i} \cdot \mathbf{E}.\tag{1.39}$$

L'équation ci-dessus, dont le second membre est la puissance apportée par la matière au champ, est bien une équation de conservation locale. Elle fait intervenir la densité d'énergie

$$U = \frac{1}{2} \epsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{2\mu_0} \mathbf{B}^2\tag{1.40}$$

et la densité de flux de puissance (en W/m^2)

$$\mathbf{s} = \frac{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}{\mu_0}.\tag{1.41}$$

2. Il écrit dans son article de 1865 : "The agreement of the results seems to show that light and magnetism are affections of the same substance, and that light is an electromagnetic disturbance propagated through the field according to electromagnetic laws." [1]

L'expression du vecteur \mathbf{s} fut calculée pour la première fois par John Henry Poynting dans un article publié en 1884 [81]. \mathbf{s} est appelé vecteur de Poynting³, et l'équation 1.39 est parfois appelée théorème de Poynting.

Pour une onde électromagnétique transverse, on trouve en utilisant les relations 1.36 que les énergies volumiques dues aux champs électriques et magnétiques sont égales, si bien que $U = \epsilon_0 E^2$ dans ce cas. On trouve également que \mathbf{s} est parallèle au vecteur d'onde \mathbf{k} , sa direction coïncide donc avec la direction de propagation de l'onde. On a alors simplement

$$\mathbf{s} = \frac{\mathbf{E} \times \mathbf{B}}{\mu_0} = \frac{\mathbf{E} \times \frac{\mathbf{k} \times \mathbf{E}}{c}}{\mu_0} = \epsilon_0 c E^2 \frac{\mathbf{k}}{k} = cU \frac{\mathbf{k}}{k}. \quad (1.42)$$

Impulsion du champ électromagnétique

Le champ électromagnétique porte une quantité de mouvement, ou impulsion. Pour obtenir sa densité, il suffit en fait de diviser le vecteur de Poynting par c^2 [83]

$$\mathbf{p} = \frac{\mathbf{s}}{c^2} = \epsilon_0 \mathbf{E} \times \mathbf{B}. \quad (1.43)$$

Le calcul rigoureux peut être effectué en considérant que la variation de la quantité de mouvement de la matière contenue dans un volume V est égale à la résultante des forces de Lorentz dans le volume : $\frac{d\mathbf{p}_{\text{matière}}}{dt} = \int_V (\rho \mathbf{E} + \mathbf{i} \times \mathbf{B}) dV$. En remplaçant ρ et \mathbf{i} par leurs expressions données par les équations de Maxwell, on obtient bien la formule ci-dessus pour l'impulsion par unité de volume [82].

Ainsi, la densité d'impulsion du champ électromagnétique est parallèle au vecteur de Poynting. Pour une onde plane, \mathbf{p} est donc dirigée selon \mathbf{k} , et de façon générale \mathbf{p} et \mathbf{s} sont normaux aux fronts d'onde. Ceci est compatible avec les quanta d'impulsions introduits par Albert Einstein, qui postula en 1905 que le champ électromagnétique est constitué de photons portant chacun une impulsion $\hbar \mathbf{k}$. Notons toutefois que \mathbf{p} peut être non-nul même dans le cas de champs statiques, il suffit que \mathbf{B} et \mathbf{E} ne soient pas parallèles pour que le champ électromagnétique porte une certaine quantité de mouvement.

L'impulsion \mathbf{p} est à l'origine de la *pression de rayonnement*. La lumière est en effet capable de transférer de la quantité de mouvement à la matière, donc d'exercer une pression sur cette dernière. Cet effet, ajouté à celui du *vent solaire*, est par exemple responsable de l'orientation des queues des comètes⁴. Aux longueurs d'onde visibles et éclairagements usuels, cette pression est très faible : un calcul d'ordre de grandeur montre qu'un laser continu de 0.5 mW de puissance, 632 nm de longueur d'onde et dont le faisceau est large de 0.5 mm exerce sur un miroir une pression de l'ordre de 10^{-21} Pa, c'est-à-dire 10^{-26} fois la pression atmosphérique. Cette faible valeur est bien sûr due à la valeur très faible de la constante de Planck. Cependant, l'effet existe et doit être pris en compte dans certaines conditions, par exemple pour prédire les trajectoires des sondes interplanétaires [84], ou dans les expériences de refroidissement d'atomes par laser [85].

3. Notons que dans notre calcul, \mathbf{s} n'apparaît que par sa divergence, ce qui permet d'envisager que le vecteur de Poynting n'est défini qu'à un rotationnel près [82].

4. Une intuition que Kepler avait déjà en 1619!

1.3.4 Moment angulaire du champ électromagnétique

Le fait que le champ électromagnétique possède une quantité de mouvement \mathbf{p} laisse envisager qu'il puisse également posséder un moment angulaire, dont la densité s'écrit par analogie avec les systèmes mécaniques

$$\mathbf{j} = \mathbf{r} \times \mathbf{p} = \mathbf{r} \times \frac{\mathbf{s}}{c^2} = \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}). \quad (1.44)$$

et donc le moment angulaire total du champ électromagnétique dans un volume V est

$$\mathbf{J} = \epsilon_0 \int_V \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) dV. \quad (1.45)$$

Selon ce point de vue, le moment angulaire du champ électromagnétique est simplement dû à la composante azimutale de sa quantité de mouvement [86]. Cette affirmation sera toutefois nuancée au chapitre 3. Comme on va le voir on peut en réalité écrire \mathbf{J} comme une somme de deux termes dont l'un ne dépend pas explicitement de la position \mathbf{r} , et est donc dû uniquement à la structure locale du champ. Ce terme intrinsèque sera associé au moment angulaire de spin (MAS), alors que le second terme correspondra au moment angulaire orbital (MAO).

On peut d'ores et déjà se convaincre de la réalité du moment angulaire du champ électromagnétique en considérant un exemple simple. Essayons d'imaginer un système physique permettant de créer un champ électromagnétique statique tel que $\mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B})$ n'est pas nul. En coordonnées cylindriques (r, φ, z) , cela sera par exemple le cas si le champ électrique \mathbf{E} est partout dirigé selon \mathbf{u}_r , et si le champ magnétique \mathbf{B} est uniforme et dirigé selon \mathbf{u}_z . On aura alors $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ selon \mathbf{u}_φ , donc une quantité de mouvement azimutale. Un tel champ statique peut être obtenu grâce au système représenté figure 1.1.

Il s'agit d'un condensateur composé de deux plaques cylindriques de rayons différents, symétrique par rotation autour de l'axe z et libre de tourner autour de cet axe. On suppose que la hauteur du condensateur est grande devant son rayon. Lorsque le condensateur est chargé (figure 1.1.a), un champ électrique radial s'établit entre les plaques. Plaçons à présent le système au sein d'un champ magnétique \mathbf{B} uniforme, statique et vertical. Dans le condensateur, on obtient alors un vecteur de Poynting \mathbf{s} dirigé selon \mathbf{u}_φ et qui circule autour de l'axe du condensateur. Le champ confiné dans ce dernier doit donc porter du moment angulaire par rapport à l'axe z . Dans un second temps, imaginons qu'on relie les deux plaques par un fil conducteur (figure 1.1.b) afin que le condensateur se décharge. La norme du champ \mathbf{E} va alors diminuer jusqu'à devenir nul, et le moment angulaire du champ tendra donc aussi vers zéro. Par conservation du moment angulaire, le condensateur doit nécessairement être mis en rotation autour de z . Pour nous en convaincre, intéressons-nous aux charges se déplaçant dans le fil au cours de la décharge du condensateur. Elles subissent une force de Lorentz d'origine magnétique dirigée selon \mathbf{u}_φ (flèche verte sur la figure 1.1.b), qui exerce donc un couple mécanique sur le condensateur. On vérifie facilement que le couple mécanique compense bien la perte de moment angulaire du champ lors de la décharge du condensateur (le calcul est donné dans l'annexe A). Ainsi, le champ électromagnétique confiné dans le condensateur contient bien une forme de moment angulaire, qui est transformée en un mouvement de rotation du condensateur lors de sa décharge. Cette

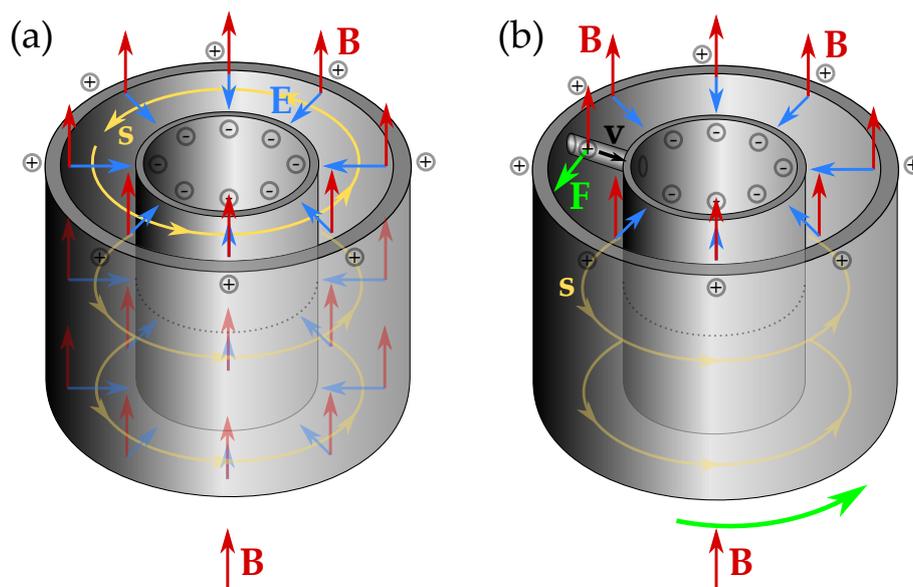


FIGURE 1.1 – (a) Condensateur cylindrique chargé placé dans un champ magnétique externe statique \mathbf{B} orienté selon l'axe du condensateur. Entre les plaques du condensateur, le champ électrique \mathbf{E} est partout radial, si bien que le vecteur de Poynting $\mathbf{s} \propto \mathbf{E} \times \mathbf{B}$ est azimutal et circule autour de l'axe du condensateur. (b) Des charges mises en mouvement dans un fil conducteur reliant les deux plaques subissent une force de Lorentz \mathbf{F} azimutale également. Cela crée un couple tendant à faire tourner le condensateur autour de son axe.

expérience a été réalisée en laboratoire en 1980 [87]. Plutôt que de décharger le condensateur, le moment angulaire du champ était modifié en faisant varier le champ externe \mathbf{B} . Comme prévu, un couple mécanique pouvait alors être mesuré.

L'exemple du condensateur cylindrique fait intervenir des champs statiques, et est donc assez éloigné du cas d'une onde électromagnétique. Cependant, nous rencontrons au chapitre suivant des faisceaux de lumière portant du MAO et possédant un vecteur de Poynting ayant une composante azimutale non-nulle et spiralant autour de l'axe du faisceau, exactement comme celui circulant dans le condensateur cylindrique.

Poynting fut le premier à postuler qu'une onde électromagnétique polarisée circulairement porte une forme de moment angulaire indépendante de l'origine des coordonnées⁵, mais déclara avoir peu d'espoir qu'un effet mécanique de ce moment angulaire puisse être mesuré. Pourtant un tel effet fut observé dès 1936 par Beth [10]. Il utilisa un dispositif déjà imaginé par Poynting (figure 1.2). L'expérience - qui constitue une prouesse technique pour l'époque - consiste à mesurer le couple exercé sur une lame demi-onde lorsque cette dernière transforme un faisceau de lumière de polarisation circulaire gauche en un faisceau de polarisation circulaire droite. Comme nous le verrons au chapitre 3, la théorie quantique attribue aux photons des faisceaux entrants et sortants de la lame des valeurs opposées de MAS : $\pm\hbar$. Au passage de chaque photon, un moment angulaire égal en valeur absolue à $2\hbar$ est donc absorbé par la lame. Si cette dernière est suspendue par un fil, un angle de torsion peut être mesuré. Les résultats

5. Il calcule l'effet de ce moment angulaire sur des électrons qui se trouveraient sur le chemin de l'onde, et conclut que son flux doit être p/k , où p est la densité de quantité de mouvement et k le vecteur d'onde [2].

de Beth furent en accord avec les prédictions théoriques.

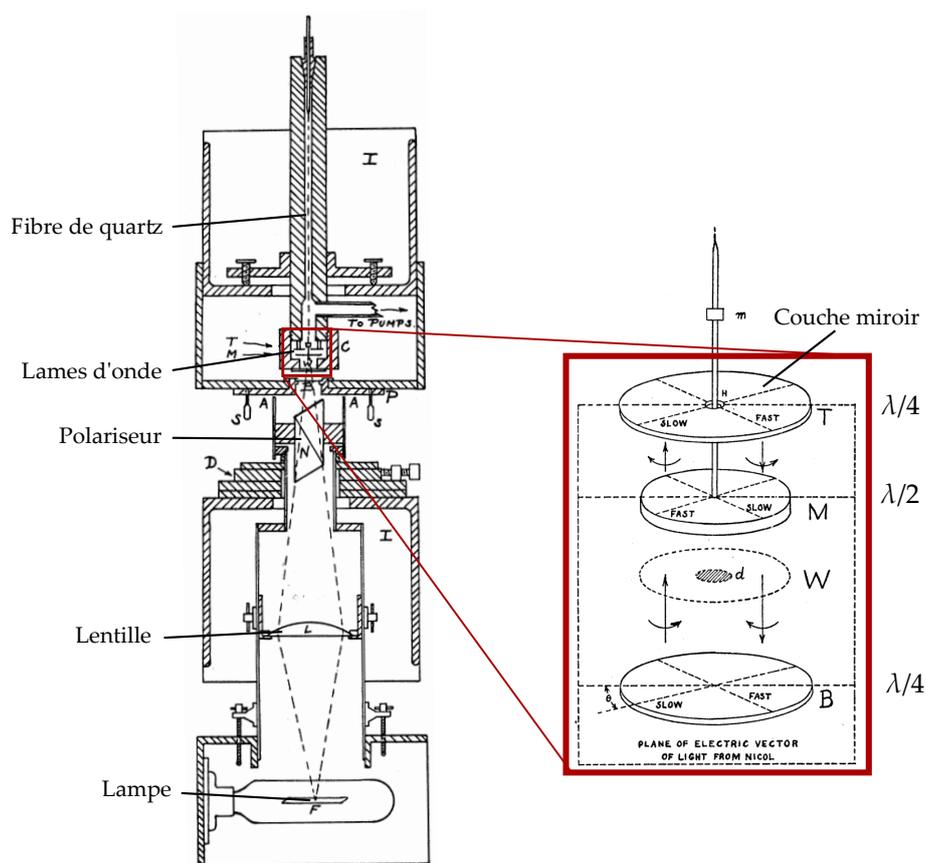


FIGURE 1.2 – Expérience de Beth. La lumière émise par un filament de tungsten chauffé est focalisée par une lentille, polarisée linéairement à l'aide d'un prisme de Nicol, puis circulairement par une première lame quart d'onde ($\lambda/4$). La lumière passe alors par une lame demi-onde ($\lambda/2$) suspendue à une fibre capable de se tordre, et qui renverse le signe du moment angulaire porté par la lumière. Pour maximiser le couple exercé par la lumière sur la lame, le faisceau lumineux est ensuite réfléchi à l'arrière d'une seconde lame quart d'onde, qui agit donc comme une lame demi-onde. Le faisceau réfléchi contribue donc lui aussi à faire tourner la lame demi onde suspendue. Celle-ci est placée sous vide, et le déplacement de ses graduations est observé à travers un télescope. Tiré de l'article de 1936 [10].

Conclusion du chapitre

Nous avons commencé par établir le théorème de Noether, ce qui nous a permis de comprendre que la conservation du moment angulaire est une conséquence de l'invariance par rotation du système considéré. Nous avons ensuite calculé les expressions du moment angulaire, de la quantité de mouvement et de l'énergie contenus dans le champ électromagnétique. En particulier, nous avons vu qu'un champ électromagnétique dont le vecteur de Poynting "circule" autour d'un axe porte un moment angulaire non-nul par rapport à l'axe en question. Nous avons ensuite discuté de l'expérience de Beth, montrant qu'une onde lumineuse de polarisation circulaire porte également du moment angulaire. Dans le chapitre suivant, nous allons calculer le moment angulaire

porté par certaines solutions des équations de Maxwell : les ondes planes polarisées circulairement, et les faisceaux paraxiaux dont le vecteur de Poynting circule autour de l'axe optique. Le premier cas correspond au moment angulaire de spin de la lumière, le second au moment angulaire orbital.

Modes du champ électromagnétique portant du moment angulaire

Le champ électromagnétique obéit à une équation d'onde dont les solutions stationnaires sont appelées *modes*. Dans ce chapitre, on établit l'équation d'Helmoltz du champ électromagnétique, et on cherche des solutions particulières. Dans un second temps, on calcule le moment angulaire associé à ces solutions. Enfin, nous introduisons les techniques expérimentales permettant d'obtenir des modes portant du moment angulaire.

2.1 Ondes planes et polarisation

2.1.1 Ondes planes du champ électromagnétique

On a vu au chapitre précédent qu'en supposant un milieu vide de charges et de courants électriques, on obtient, à partir des équations de Maxwell, l'équation d'onde du champ électrique \mathbf{E}

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = 0. \quad (2.1)$$

Ici, on considère un champ de lumière monochromatique de pulsation ω , et on fait l'hypothèse qu'il peut s'écrire de la façon suivante, en notation complexe

$$\mathbf{E} = \mathcal{E} e^{i\omega t}, \quad (2.2)$$

où \mathcal{E} est un champ électrique pouvant varier spatialement mais ne dépendant pas du temps. En injectant cette expression dans l'équation 2.1, on obtient l'équation d'Helmoltz

$$\boxed{\nabla^2 \mathcal{E} + k^2 \mathcal{E} = 0}, \quad (2.3)$$

avec $k = \omega/c$ la norme du vecteur d'onde \mathbf{k} . La solution la plus simple de cette équation est l'onde plane d'extension infinie

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \Rightarrow \mathbf{E} = \mathcal{E}_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k}\cdot\mathbf{r})}. \quad (2.4)$$

\mathcal{E}_0 est l'amplitude (vectorielle) de l'onde plane, et \mathbf{r} la position. En utilisant l'équation de Maxwell-Gauss, qui stipule qu'en l'absence de charge la divergence du champ

électrique $\nabla \cdot \mathbf{E}$ est nulle, on trouve que le vecteur \mathcal{E}_0 est nécessairement perpendiculaire à \mathbf{k} . Ainsi, l'onde plane est dite *transverse*. Enfin, on obtient le champ magnétique $\mathbf{B} = \mathcal{B}e^{i\omega t} = \mathcal{B}_0 e^{i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$ en utilisant l'équation de Maxwell-Faraday, reliant le rotationnel de \mathbf{E} aux variations temporelles de \mathbf{B} . Dans notre cas elle s'écrit $\nabla \times \mathcal{E} = -i\omega \mathcal{B}$: le champ magnétique est donc perpendiculaire à \mathbf{k} et à \mathcal{E} .

Dans la suite de cette thèse, on s'intéressera la plupart du temps uniquement au champ électrique et pas au champ magnétique de l'onde. La raison est double : la donnée de \mathbf{E} détermine totalement \mathbf{B} , et l'action du champ magnétique sur les particules chargées est négligeable comparée à celle du champ électrique (aux intensités lumineuses et vitesses de charges que nous rencontrerons).

2.1.2 Polarisation

Le champ électrique de l'onde plane est donc confiné dans le plan transverse à la direction de propagation. Comme on va le voir, cela sera également le cas dans l'approximation paraxiale, malgré le fait qu'on considère alors des faisceaux de lumière d'extension transverse finie.

La donnée de la direction du vecteur champ électrique au cours du temps est appelée *état de polarisation* de l'onde. Dans la suite, on parlera indifféremment de "vecteur champ électrique" et "vecteur polarisation". L'état de polarisation correspond à la trajectoire effectuée par l'extrémité de ce vecteur au cours d'un cycle optique. Il peut se décomposer sur la base de deux composantes linéaires. Considérons une onde se propageant selon l'axe z . Dans le plan transverse (x, y) , le champ électrique s'écrit

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_{0x} e^{i\omega t - \phi_x} \\ \mathcal{E}_{0y} e^{i\omega t - \phi_y} \end{pmatrix}. \quad (2.5)$$

Dans le cas général, l'état de polarisation est une ellipse. Si $\phi_x = \phi_y$, la polarisation est linéaire. Si $\phi_x = \phi_y \pm \pi/2$, les axes de l'ellipse sont alignés sur les directions x et y , et si de plus $\mathcal{E}_{0x} = \mathcal{E}_{0y}$, la polarisation devient circulaire. Le signe de la différence $\phi_x - \phi_y = \pm\pi/2$ détermine alors la direction de rotation. Le signe $+$ correspond à une polarisation circulaire droite (CD), et le signe $-$ à une polarisation circulaire gauche (CG). Cette dénomination est purement arbitraire : dans la suite, la plupart du temps, il ne sera pas important de savoir à quelles directions de rotation exactes correspondent les états CG et CD, mais seulement de pouvoir distinguer des polarisations circulaires opposées. Tout comme des polarisations linéaires selon x et y sont orthogonales, le produit scalaire entre un état CG et CD est nul (en prenant soin de prendre le complexe conjugué du second champ dans le produit scalaire).

Les polarisations CG et CD forment une base orthonormée des états de polarisation. Comme on le verra au chapitre 3, un faisceau de lumière CG ou CD porte un moment angulaire de spin bien défini, il pourra donc être pertinent de se placer dans cette base pour quantifier le contenu en moment angulaire du champ. Dans la suite, on écrira un champ électrique polarisé circulairement, de norme 1, sous la forme

$$\mathbf{e}_\sigma = \frac{\mathbf{e}_x + i\sigma\mathbf{e}_y}{\sqrt{2}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ \sigma i \end{pmatrix}, \quad (2.6)$$

où $\sigma = \pm 1$ correspond aux deux états CG et CD, et sera plus loin associé au moment

angulaire de spin (MAS) du champ. \mathbf{e}_x et \mathbf{e}_y désignent des champs électriques linéaires d'amplitude 1 oscillant en phase dans les directions x et y

2.1.3 Moment angulaire porté par une onde plane polarisée circulairement

On a défini au chapitre précédent la densité de moment angulaire du champ électromagnétique. Projetée selon z , elle vaut

$$j_z = \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \cdot \mathbf{u}_z \quad (2.7)$$

Pour une onde plane se propageant selon l'axe z , $\mathbf{E} \times \mathbf{B}$ est orienté selon z , donc $\mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B})$ est perpendiculaire à \mathbf{u}_z , et la quantité ci-dessus semble devoir être nulle. Ceci contredit le fait avéré qu'une onde polarisée circulairement porte du moment angulaire. En réalité, la norme de \mathbf{r} pouvant prendre des valeurs infiniment grandes, on fait face à une indétermination du type $0 \times \infty$, qu'on peut lever par passage à la limite.

Ici, nous présentons une approche proposée par Mansuripur [88] pour calculer j_z . Mansuripur considère quatre ondes planes de même polarisation circulaire, se propageant le long de quatre axes différents faisant chacun un angle θ avec \mathbf{u}_z , et un angle 2θ les uns avec les autres (figure 2.1). L'interférence de ces quatre ondes prend la forme d'un damier de régions lumineuses et sombres. L'idée est de calculer l'intégrale de j_z sur la région centrale (de surface $A_0 = 2\pi^2/(k^2 \sin^2 \theta)$), avant de faire tendre θ vers 0, situation où la région centrale occupe tout l'espace (on n'a alors plus qu'une seule onde, quatre fois plus intense). Le champ résultant de la superposition s'écrit

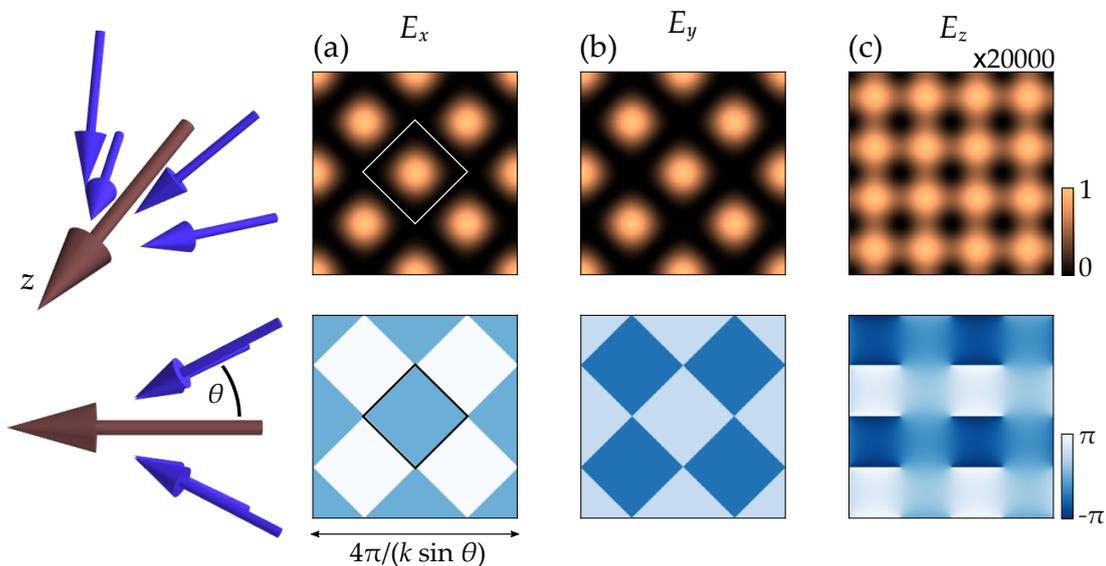


FIGURE 2.1 – A gauche : vecteurs d'onde des quatre ondes planes considérées (bleu) par rapport à l'axe z . (a,b,c) Intensité et phase des composantes E_x , E_y et E_z , respectivement, pour un angle $\theta = 10$ mrad. Les carrés blanc et noir dans (a) indiquent la région de l'espace considérée dans le calcul. Dans chaque carré, la composante E_x est déphasée de $\pi/2$ par rapport à E_y . E_z étant très faible, la polarisation dans chacun des lobes est donc quasi-circulaire.

$$\mathbf{E} = 2E_0 \begin{pmatrix} \cos \theta \cos(kx \sin \theta) + \cos(ky \sin \theta) \\ i\sigma (\cos(kx \sin \theta) + \cos \theta \cos(ky \sin \theta)) \\ -\sin \theta (i\sigma \sin(kx \sin \theta) - \sin(ky \sin \theta)) \end{pmatrix}, \quad (2.8)$$

$$\mathbf{B} = 2\frac{E_0}{c} \begin{pmatrix} -i\sigma (\cos \theta \cos(kx \sin \theta) + \cos(ky \sin \theta)) \\ \cos(kx \sin \theta) + \cos \theta \cos(ky \sin \theta) \\ -\sin \theta (\sin(kx \sin \theta) + i\sigma \sin(ky \sin \theta)) \end{pmatrix}, \quad (2.9)$$

À partir de ces champs, on obtient le vecteur de Poynting $\mathbf{s} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \times \mathbf{B}$. La densité de moment angulaire est donnée par $\frac{1}{c^2} \mathbf{r} \times \mathbf{s}$. En intégrant sur le lobe central, on obtient la densité moyenne

$$\bar{j}_z = \frac{1}{A_0} \int \int_{A_0} dx dy \frac{1}{c^2} \mathbf{r} \times \mathbf{s} \cdot \mathbf{u}_z = 4\sigma \epsilon_0 E_0^2 / \omega. \quad (2.10)$$

De manière remarquable, \bar{j}_z est indépendant de l'angle θ . De plus, on montre facilement que la densité d'énergie du champ $\bar{U} = \frac{1}{2} \epsilon_0 |\mathbf{E}|^2 + \frac{1}{2\mu_0} |\mathbf{B}|^2$ vaut en moyenne sur la frange centrale¹

$$\bar{U} = 4\epsilon_0 E_0^2 \quad (2.11)$$

Ainsi, on a $\bar{j}_z = \sigma \bar{U} / \omega$, égalité qui reste vraie quand θ tend vers 0 [89]. Si l'on applique cette relation pour un photon d'énergie $\hbar\omega$, on trouve bien que chaque photon porte un quantum $\sigma \hbar = \pm \hbar$ de moment angulaire, comme attendu. Nous verrons au chapitre suivant que ce moment angulaire correspond au spin de la lumière.

Un raisonnement plus intuitif encore consiste à calculer l'action d'un champ électrique polarisé circulairement sur une charge ponctuelle [90]. On considère une particule de charge q , dont le mouvement dépend linéairement du champ électrique incident $\mathbf{E} = (1, \sigma i) e^{i\omega t}$. On peut par exemple considérer un électron lié élastiquement à un noyau d'atome, et subissant une force de frottement modélisant l'énergie perdue par rayonnement : le résultat cherché ne dépend en fait pas du choix de la réponse linéaire. En régime stationnaire, la position et la vitesse de la particule sont données par

$$\begin{aligned} \mathbf{r}(t) &= \mathbf{r}_0 e^{i\omega t} \\ \mathbf{v}(t) &= \mathbf{v}_0 e^{i\omega t} = i\omega \mathbf{r}_0 e^{i\omega t}, \end{aligned} \quad (2.12)$$

où \mathbf{r}_0 et \mathbf{v}_0 sont des vecteurs complexes. Dans ce régime, la dissipation par rayonnement est exactement compensée par la quantité d'énergie délivrée par le champ électrique par unité de temps. La moyenne temporelle de cette dernière s'écrit

$$\langle dE/dt \rangle = \frac{1}{2} q \mathcal{R}(\mathbf{v}^* \cdot \mathbf{E}) = \frac{1}{2} q \omega \mathcal{R}(i\mathbf{r}^* \cdot \mathbf{E}), \quad (2.13)$$

où l'on ne considère pas la force magnétique, qui ne travaille pas. De la même façon, le moment angulaire délivré par l'onde par unité de temps est

$$\langle dL_z/dt \rangle = \frac{1}{2} \mathcal{R}(\mathbf{r}^* \times q\mathbf{E}) \cdot \mathbf{u}_z = \frac{1}{2} q \mathcal{R}(i\mathbf{r}^* \cdot \sigma \mathbf{E}). \quad (2.14)$$

En comparant les équations 2.13 et 2.14, on trouve bien $\frac{\langle dL_z/dt \rangle}{\langle dE/dt \rangle} = \frac{\sigma}{\omega}$, comme attendu.

1. Souvenons nous que pour une onde électromagnétique, les densités d'énergie électrique et magnétique sont égales (voir section 1.3.3).

2.2 Équation d'onde paraxiale et modes transverses

Nous allons maintenant étudier des faisceaux de lumière dont le profil transverse varie lentement lors de la propagation. Pour cela, nous revenons à l'équation d'Helmoltz 2.3, et adoptons l'approche de L. W. Davis [91]. L'idée est de considérer non pas le champ électrique \mathbf{E} mais le vecteur potentiel \mathbf{A} . En effet, on peut supposer que \mathbf{A} est partout perpendiculaire à l'axe de propagation z du faisceau (bien que ce ne soit pas strictement le cas pour \mathbf{E}), et on obtient alors une équation d'onde scalaire simple à résoudre.

Considérons le vecteur potentiel suivant, qu'on suppose (sans perte de généralité) pointant dans la direction x : $\mathbf{A} = \kappa(x, y, z)\mathbf{u}_x$, avec κ une fonction scalaire. On suppose que \mathbf{A} décrit une onde se propageant selon l'axe z . On choisit alors la forme

$$\kappa(x, y, z) = u(x, y, z)e^{-ikz} \quad (2.15)$$

Dans cette expression, le terme $u(x, y, z)$ est supposé varier bien plus lentement que e^{-ikz} avec z . En effet, on cherche à décrire un faisceau de lumière dont $u(x, y, z)$ décrit l'évolution du profil au cours de la propagation, évolution qu'on imagine se produire sur une distance bien supérieure à la longueur d'onde. Injectant cette expression dans l'équation d'Helmoltz, on obtient

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) u + \frac{\partial^2}{\partial z^2} u + 2ik \frac{\partial}{\partial z} u = 0 \quad (2.16)$$

L'approximation paraxiale consiste à négliger le second terme de l'équation ci-dessus. En effet, la fonction u varie bien plus lentement selon z que selon x et y , ce qui autorise à négliger le second terme par rapport au premier. De plus, étant donné que u évolue lentement selon z à l'échelle de la longueur d'onde, la dérivée seconde de u selon z sera négligeable comparée à sa dérivée première multipliée par k . On obtient ainsi l'équation d'onde paraxiale

$$\boxed{i \frac{\partial u}{\partial z} = -\frac{1}{2k} \nabla_{\perp}^2 u,} \quad (2.17)$$

où ∇_{\perp}^2 est le laplacien transverse. Cette équation est formellement équivalente à l'équation de Schrödinger d'un système à deux dimensions spatiales, où la coordonnée temporelle a été remplacée par z . Cette correspondance permet d'établir des analogies très fructueuses entre les théories de la mécanique quantique et de l'optique [92].

Enfin, partant du vecteur potentiel \mathbf{A} satisfaisant cette équation, il est possible de calculer \mathbf{E} et \mathbf{B} . \mathbf{A} est relié au champ magnétique selon

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad (2.18)$$

Le potentiel vecteur n'est jamais défini de manière univoque², mais s'accompagne d'une condition de jauge. Dans la jauge de Lorenz, on prend un potentiel scalaire égal à $\phi = ic^2 \nabla \cdot \mathbf{A} / \omega$, et le champ électrique s'écrit alors

$$\mathbf{E} = -\nabla \phi - \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A} = -\nabla \left[\frac{ic^2 \nabla \cdot \mathbf{A}}{\omega} \right] + i\omega \mathbf{A} \quad (2.19)$$

2. On peut en effet toujours lui ajouter le gradient d'une certaine quantité. Le rotationnel d'un gradient étant nul, cela ne change pas la valeur du champ électromagnétique.

2.2.1 Modes d'Hermite-Gauss

Parmi les solutions de l'équation 2.17, on cherche des *modes propres* de la propagation, c'est-à-dire des faisceaux dont le profil d'intensité est invariant (à un redimensionnement global près) selon z . Ils sont aussi appelés modes *transverses* du champ électromagnétique. La focalisation (douce) d'un faisceau de lumière étant équivalente à une transformée de Fourier, ils correspondent aux modes propres de la transformée de Fourier.

Parmi les différentes classes de modes transverses, les modes d'Hermite-Gauss (HG) sont les plus connus. Ils apparaissent naturellement dans les cavités laser dont la symétrie des axes verticaux et horizontaux a été brisée. Mathématiquement, on les obtient en cherchant une solution de la forme

$$u(x, y, z) = f(x, z)h(y, z) \quad (2.20)$$

En l'injectant dans l'équation d'onde, on obtient des équations différentielles pour f et h , dont les solutions sont des fonctions d'Hermite-Gauss [93]. Les modes d'Hermite-Gauss sont alors donnés par

$$u_{n,m} = \frac{(2/\pi)^{\frac{1}{4}}}{\sqrt{2^{n+m} n! m!}} \frac{1}{w(z)} H_n\left(\frac{\sqrt{2}x}{w(z)}\right) H_m\left(\frac{\sqrt{2}y}{w(z)}\right) e^{-\frac{x^2+y^2}{w(z)^2}} e^{-i\frac{k(x^2+y^2)}{2R(z)}} e^{i\psi_G(z)}. \quad (2.21)$$

Dans cette expression :

- w_0 est le waist du faisceau (largeur minimale, au foyer).
- $w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}$ est la largeur du faisceau en z , avec $z_R = \pi w_0^2 / \lambda$ la longueur de Rayleigh.
- H_j est le polynôme d'Hermite d'ordre j , dans sa définition des *physiciens*.
- $R(z) = z \left(1 + \left(\frac{z_R}{z}\right)^2\right)$ est le rayon de courbure des fronts d'onde, nul au foyer ($z = 0$) ainsi que pour $z \gg z_R$.
- $\psi_G(z) = (n + m + 1) \tan^{-1}\left(\frac{z}{z_R}\right)$ est la phase de Gouy du faisceau, c'est-à-dire la différence de phase accumulée par l'onde au passage du foyer par rapport à une onde plane. Cette phase dépend des nombres n et m , et varie de $(n + m + 1)\pi/2$ entre le foyer et le champ lointain.

Grâce au préfacteur numérique, ces modes sont normalisés : leur puissance totale vaut 1, quels que soient n et m . La figure 2.2 montre les profils d'intensité et de phase de quelques-uns des premiers modes de HG. On peut noter qu'ils sont identiques aux modes propres de l'oscillateur harmonique quantique à deux dimensions. Comme évoqué plus haut, cela provient du fait que l'équation d'onde est formellement équivalente à l'équation de Schrödinger, et que la courbure quadratique $x^2 + y^2$ des fronts d'onde (due expérimentalement aux miroirs ou lentilles de focalisation) agit comme un potentiel harmonique bi-dimensionnel. On peut d'ailleurs définir un opérateur hamiltonien pour le champ, dont les modes de HG sont des états propres [92], associés aux nombres quantiques $n + m + 1$. On peut montrer que l'ensemble des modes de HG forme une base complète du champ, c'est-à-dire que n'importe quel champ de lumière peut s'écrire comme une somme de modes de HG, avec des coefficients complexes.

Enfin, en observant les profils des modes de HG, on constate que chaque lobe est séparé de ses voisins par un saut de phase de π , c'est-à-dire que le signe du

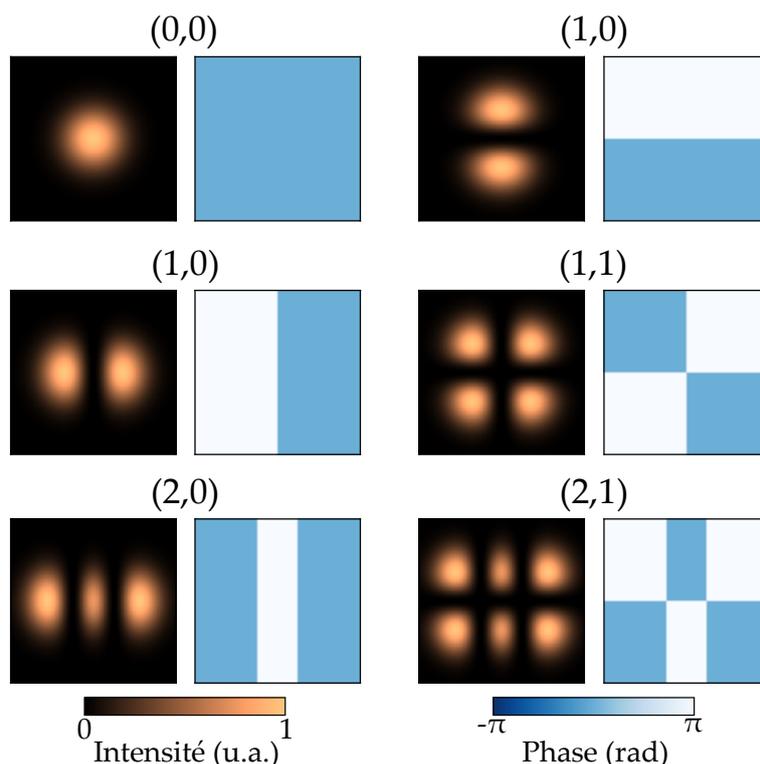


FIGURE 2.2 – Intensité et phase dans le plan transverse au foyer de divers modes de Hermite-Gauss (n, m) . La largeur de chaque image est égale à deux fois le waist du faisceau.

champ s'inverse au passage d'un nœud d'intensité. On remarque aussi que la courbure des fronts d'onde au foyer est nulle partout. Ainsi, on associe aux modes de HG un moment angulaire nul. Nous allons maintenant introduire une autre classe de modes transverses, portant cette fois du moment angulaire.

2.2.2 Modes de Laguerre-Gauss

Cherchons à présent des solutions de l'équation 2.17 en coordonnées cylindriques, sous la forme

$$u(x, y, z) = s(r, z)v(\varphi, z), \quad (2.22)$$

où $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ et $\varphi = \tan^{-1}(y/x)$ sont respectivement le rayon et l'angle azimutal dans le plan transverse. Une forme de champ électrique respectant cette condition est la famille des modes de Laguerre-Gauss (LG), qui s'écrivent [12]

$$u_{\ell,p} = \sqrt{\frac{2p!}{\pi(p+|\ell|)!}} \frac{1}{w(z)} \left(\frac{\sqrt{2}r}{w(z)}\right)^{|\ell|} e^{-\frac{r^2}{w(z)^2}} L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w(z)^2}\right) e^{i\ell\varphi} e^{-i\frac{kr^2}{2R(z)}} e^{i\psi_G(z)}. \quad (2.23)$$

Dans cette expression :

- $w(z)$ et $R(z)$ ont la même définition que pour les modes de HG.
- $L_p^{|\ell|}$ sont les polynômes de Laguerre généralisés.
- $\psi_G(z) = (2p + |\ell| + 1) \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R}\right)$ est la phase de Gouy du mode de LG.

ℓ et p sont respectivement appelés indices azimutal et radial [94]. La figure 2.3 montre quelques modes de LG (ℓ, p). Mis à part (0,0), le mode gaussien, ils prennent la forme d'anneaux d'intensité. Pour $\ell \neq 0$, le centre du faisceau présente un zéro d'intensité, dû au terme en $r^{|\ell|}$, entouré d'un anneau dont la taille croît avec ℓ . Ce zéro d'intensité s'accompagne d'une singularité de phase due au terme azimutal $e^{i\ell\varphi}$, l'angle φ n'étant pas défini en $r = 0$. La variation de la phase autour de cette singularité est responsable du MAO porté par le faisceau. L'effet des indices ℓ et p s'interprète facilement : p contrôle le nombre d'anneaux d'intensité, tandis que ℓ correspond au nombre de sauts de phase de 2π dans le profil transverse.

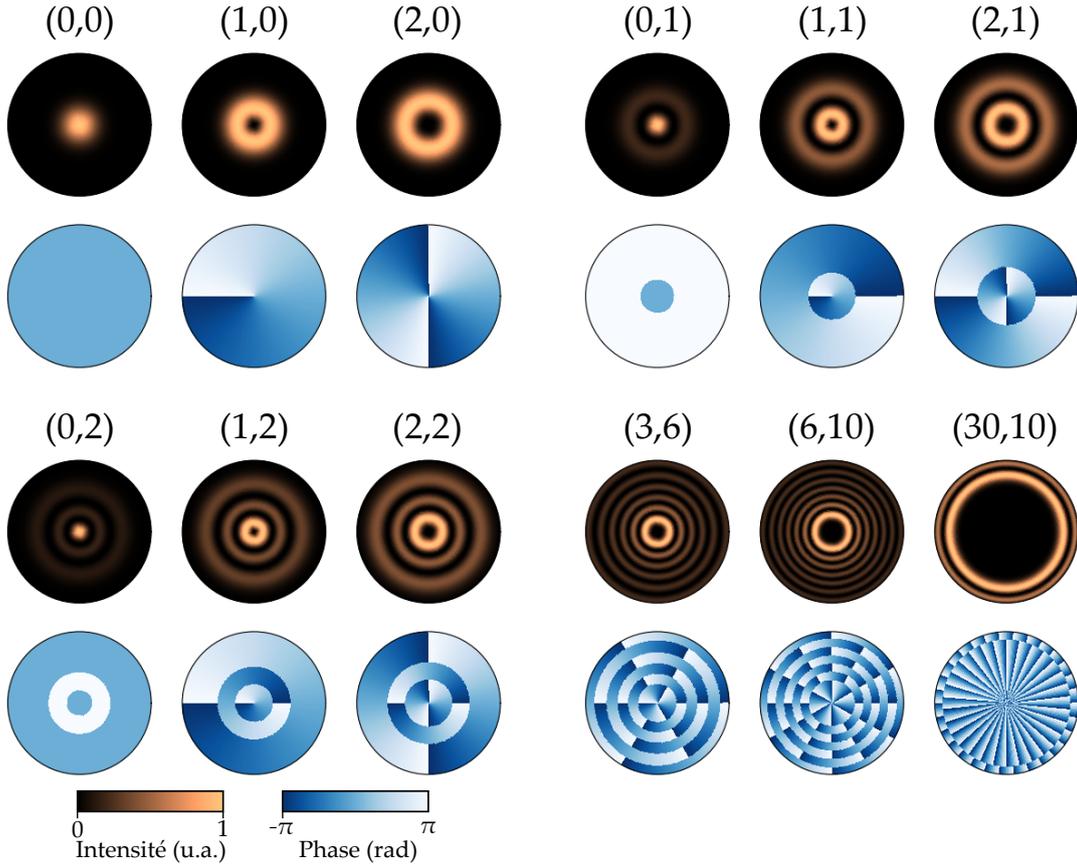


FIGURE 2.3 – Intensité et phase dans le plan transverse au foyer de divers modes de Laguerre-Gauss (ℓ, p). Le diamètre de chaque disque est égal à trois fois le waist du faisceau.

Pour mieux visualiser l'allure de la phase transverse des faisceaux de LG, il est instructif de tracer leurs fronts d'onde. On obtient facilement l'équation de leur surface à partir de l'expression 2.23

$$\ell\varphi - \frac{kr^2}{2R(z)} + (2p + |\ell| + 1) \tan^{-1} \left(\frac{z}{z_R} \right) - kz = \text{constante} \quad (2.24)$$

La figure 2.4 montre quelques-unes de ces surfaces. Les fronts d'onde contiennent un nombre ℓ de surfaces hélicoïdales imbriquées. Sur chacune des images, l'échelle selon l'axe z n'est pas la même, mais augmente avec ℓ . Ainsi, la pente de chaque hélice croît bien avec ℓ . Pour $p = 1$, on observe ℓ hélices additionnelles, déphasées de π par rapport

aux hélices centrales, car le champ change de signe entre chaque anneau d'intensité (figure 2.5).

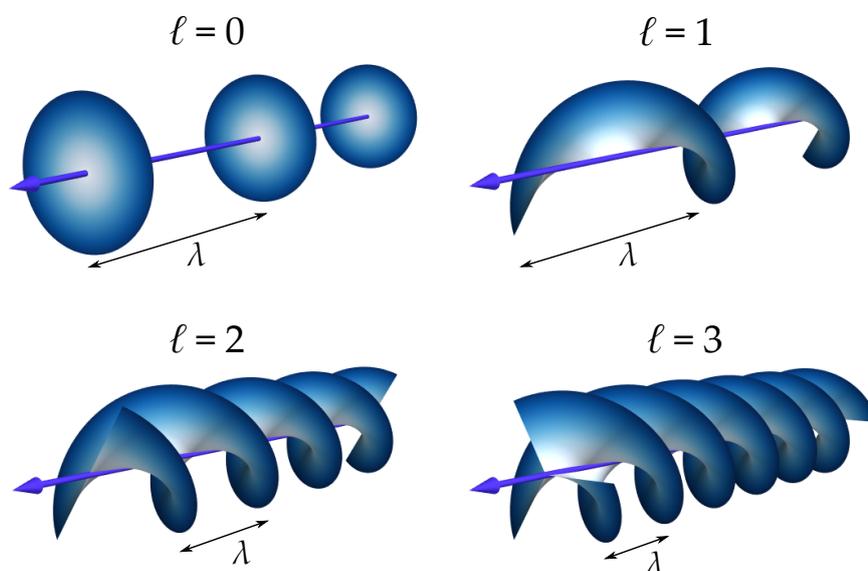


FIGURE 2.4 – Fronts d'ondes de modes de Laguerre-Gauss collimatés, pour différentes valeurs de l'indice azimutal ℓ . La flèche violette indique la direction de propagation z . L'échelle selon z n'est pas la même pour les différentes figures : la longueur d'onde λ est précisée à chaque fois.

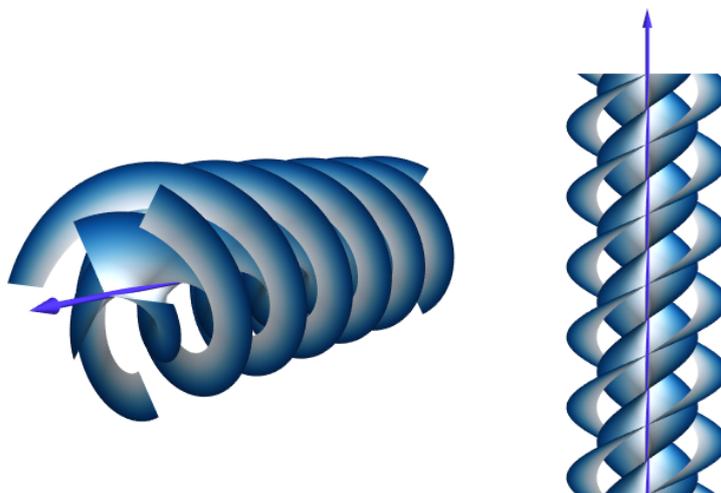


FIGURE 2.5 – Gauche : fronts d'ondes du mode de Laguerre-Gauss $(\ell, p) = (3, 1)$. Droite : projection dans le plan (x, z) .

Tout comme les modes de HG, les modes de LG sont orthogonaux deux à deux et constituent une base du champ. Remarquons toutefois que la décomposition d'un champ sur la base des modes de LG s'effectue pour une valeur donnée de $w(z)$ et $R(z)$. En effet, un mode de LG pur correspondant à la largeur $w(z)$ et à la courbure $R(z)$ s'écrit comme une somme de modes de LG de paramètres $w'(z)$ et $R'(z)$ différents. En pratique, dans la suite de cette thèse, on se placera souvent au foyer du faisceau ou

bien à très grande distance de ce dernier, si bien que la courbure sera négligeable. $w(z)$ sera donc le seul paramètre ajustable pour effectuer la décomposition. Bien entendu, cette remarque est également valable pour une décomposition sur la base des modes de HG, telle que celles effectuées au chapitre 10.

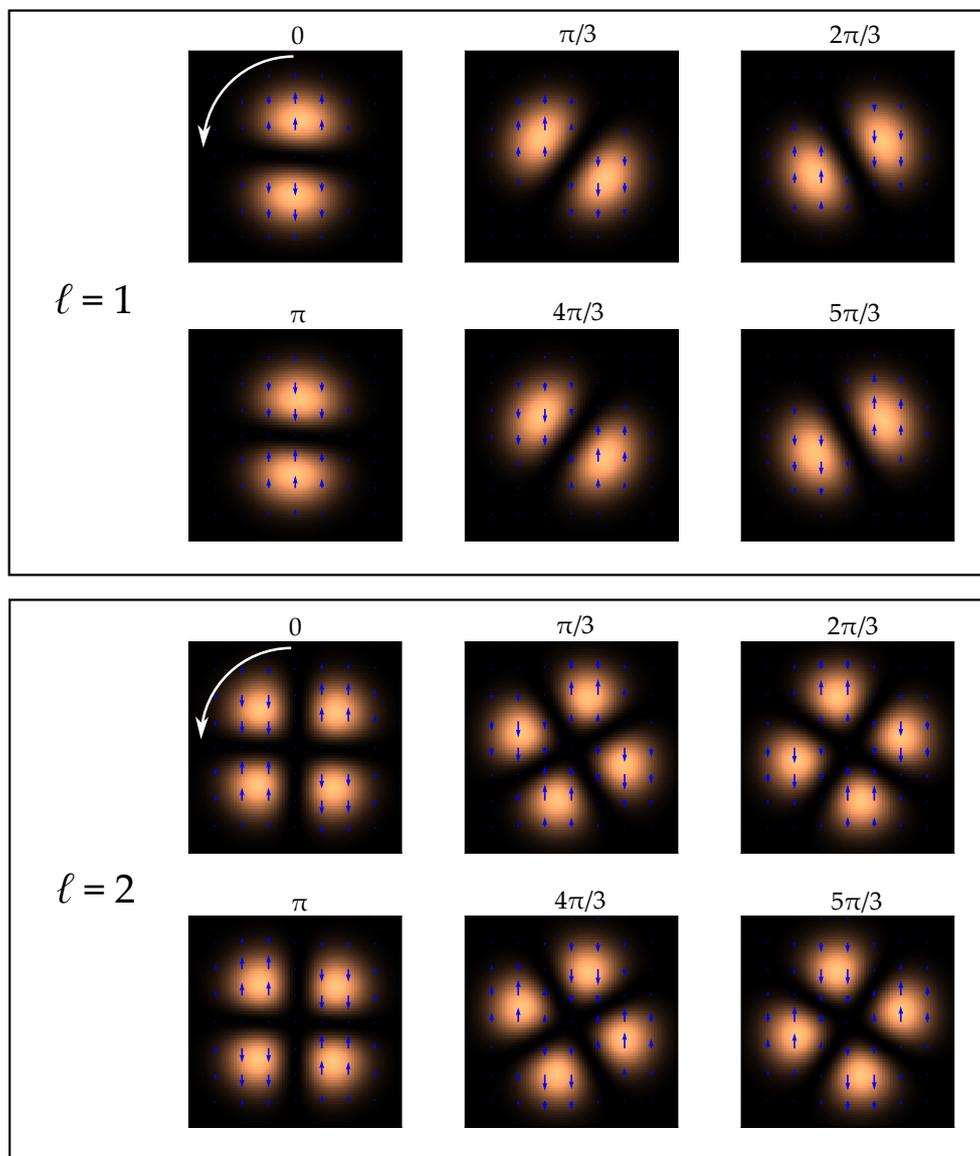


FIGURE 2.6 – Évolution de la norme de la partie réelle du champ (carte de couleur) et du champ électrique instantané (flèches bleues) sur une période, pour les modes de LG $(\ell, p) = (1, 0)$ et $(2, 0)$. La phase de l'onde est indiquée au dessus de chaque image.

Enfin, notons que les modes de LG donnés par l'équation 2.23 sont inchangés lorsqu'on fait varier la coordonnée φ , c'est-à-dire lorsqu'on fait varier l'angle du vecteur position \mathbf{r} . Cela a simplement pour effet d'ajouter une phase globale au champ. La figure 2.6 montre la dynamique de deux faisceaux LG polarisés verticalement, à l'échelle du cycle optique. Dans le plan transverse, le module de leur champ forme un profil à 2ℓ pétales qui tourne au cours du temps, effectuant un tour complet en une durée $\Delta t = \ell T$, où T est la période du champ. Entre deux pétales successifs, le signe du champ électrique s'inverse. Cette invariance des modes de LG par rotation de leur

profil aura de profondes conséquences, nous y reviendrons au chapitre suivant ainsi que plus loin dans ce manuscrit.

2.2.3 Moment angulaire porté par les modes de Laguerre-Gauss

Les faisceaux de LG sont un exemple de *vortex optiques*, c'est-à-dire des faisceaux contenant un zéro d'intensité autour duquel la phase du champ "tourne" (augmente avec φ). Cette terminologie inspirée de l'hydrodynamique fut pour la première fois introduite par Coulet en 1989 [95], sans que le lien soit fait avec une quelconque forme de moment angulaire. Parmi les autres classes de vortex optiques, on compte également les faisceaux de Bessel [96] et de Matthieu [97]. Tous forment des bases du champ, mais les modes de LG sont les plus couramment utilisés.

Nous allons à présent voir comment se manifeste le moment angulaire porté par les modes de LG, et comment le calculer. Bien que l'on puisse trouver des références à un moment angulaire orbital de la lumière dès les années trente [11, 89, 98], il faut attendre 1992 et l'article d'Allen *et al.* [12] pour que le moment angulaire d'un faisceau de lumière (en l'occurrence, les faisceaux de LG) soit calculé rigoureusement, ouvrant la voie à tout un champ de recherche : l'optique des singularités [14]. Nous reprenons ici la démarche de cet article fondateur.

Commençons par remarquer que le vecteur de Poynting \mathbf{s} étant toujours normal au front d'onde local, les fronts d'ondes hélicoïdaux des modes de LG impliquent que \mathbf{s} aura une composante non nulle selon \mathbf{u}_φ , d'autant plus importante que ℓ aura une valeur élevée³. Pour calculer le moment angulaire du faisceau de LG (équation 2.23), partons de sa densité d'impulsion \mathbf{p} , qui s'écrit [12, 99]

$$\mathbf{p} = \frac{1}{c} \left(\frac{rz}{z^2 + z_R^2} |u_{\ell,p}|^2 \mathbf{u}_r + \frac{\ell}{kr} |u_{\ell,p}|^2 \mathbf{u}_\varphi + |u_{\ell,p}|^2 \mathbf{u}_z \right). \quad (2.25)$$

Le vecteur de Poynting \mathbf{s} du mode de LG est alors égal à $c^2 \mathbf{p}$. Il comprend donc trois termes. La première composante, selon \mathbf{u}_r , est liée à un effet de dilatation du faisceau et s'annule en $z = 0$ ou pour un faisceau collimaté (sans courbure, $R(z) = 0$). La deuxième composante est dirigée selon \mathbf{u}_φ et est proportionnelle à ℓ : c'est elle qui va principalement nous intéresser. Enfin, la troisième composante, selon \mathbf{u}_z , est simplement la quantité de mouvement de l'onde dans la direction de propagation z .

Le vecteur de Poynting est représenté sur la figure 2.7 pour $\ell = 1$, $p = 0$. Sur cette figure, on considère un faisceau collimaté, ou au foyer. La composante de \mathbf{s} selon \mathbf{u}_r est donc nulle. Grâce à ces images, on comprend bien qu'un tel faisceau va être capable d'entraîner un objet dans un mouvement de rotation autour de l'axe optique, et donc de communiquer du moment angulaire à la matière (figure 2.8). La densité de moment angulaire correspond à $\mathbf{r} \times \mathbf{p}$, ce qui donne

$$\mathbf{j} = -\frac{\ell}{\omega} \frac{z}{r} |u_{\ell,p}|^2 \mathbf{u}_r + \frac{r}{c} \left(\frac{z^2}{z^2 + z_R^2 - 1} \right) |u_{\ell,p}|^2 \mathbf{u}_\varphi + \frac{\ell}{\omega} |u_{\ell,p}|^2 \mathbf{u}_z \quad (2.26)$$

Pour obtenir le moment angulaire total du faisceau (ou *flux* de moment angulaire) \mathbf{J} , il faut intégrer cette quantité sur le plan transverse. Les termes en \mathbf{u}_r et \mathbf{u}_φ étant

3. Cela ressemble fortement au condensateur cylindrique de la figure 1.1.

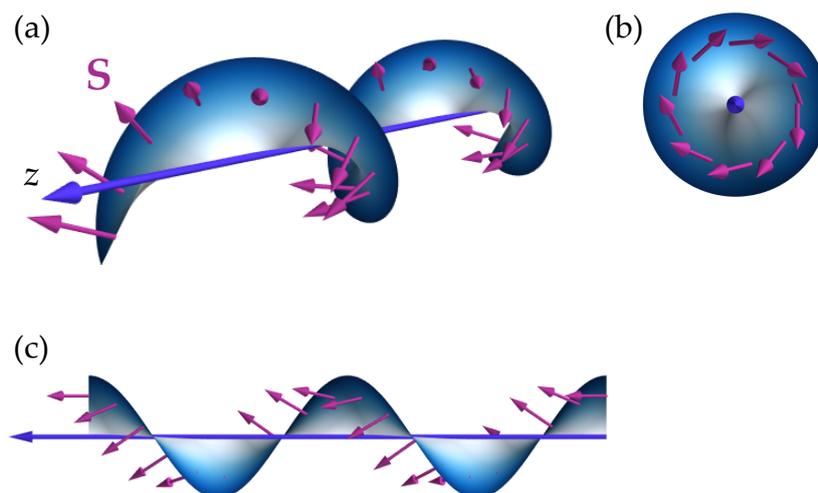


FIGURE 2.7 – (a) Vecteur de poynting (flèches violettes) d'un faisceau de LG $\ell = 1$ collimaté. (b) Vue dans le plan (x, y) . (c) Vue dans le plan (x, z) .

symétriques par rapport à l'axe z , donc d'intégrale nulle, seul le terme proportionnel à \mathbf{u}_z demeure. Ainsi, le ratio du flux de moment angulaire par le flux d'impulsion est $|\mathbf{J}|/|\mathbf{P}| = \ell/k$. En supposant que le mode contient N photons portant la quantité de mouvement $\hbar k$, on obtient bien un moment angulaire de $\ell\hbar$ par photon.

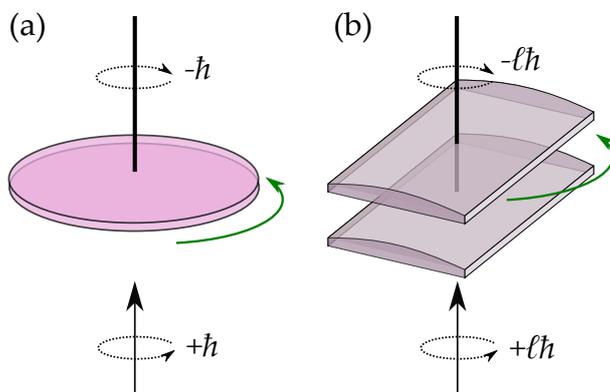


FIGURE 2.8 – (a) Une lame demi-onde suspendue subit un couple lorsqu'elle transforme une polarisation circulaire droite (photons portant un moment angulaire \hbar), en une polarisation circulaire gauche (photons portant un moment angulaire $-\hbar$). (b) De la même façon, une paire de lentilles cylindriques suspendue subit un couple lorsqu'elle transforme un mode de LG d'indice azimutal ℓ (photons portant un moment angulaire $\ell\hbar$), en un mode d'indice $-\ell$ (photons portant un moment angulaire $-\ell\hbar$). Adapté de [12].

On vient donc de montrer que les modes de LG polarisés linéairement portent du moment angulaire, dont l'origine semble assez différente de celle du moment angulaire porté par une onde plane polarisée circulairement. Nous verrons au chapitre suivant comment obtenir une séparation entre les deux formes de moment angulaire, *intrinsèque* et *extrinsèque*. Une dérivation plus rigoureuse du moment angulaire porté par les photons sera également proposée, faisant appel au formalisme de la mécanique

quantique.

2.3 Obtenir des modes transverses portant du moment angulaire dans le domaine visible

Dans cette section, nous résumons brièvement les différentes techniques permettant de communiquer du moment angulaire à un faisceau laser. En ce qui concerne le spin de la lumière, on considère que le lecteur est familier des lames biréfringentes permettant de moduler l'état de polarisation du champ. Dans cette thèse, on utilisera notamment des lames demi ou quart d'onde, imposant respectivement un déphasage de π ou $\pi/2$ entre les deux composantes du champ selon les axes ordinaire et extraordinaire de la lame. Une lame demi-onde (ou " $\lambda/2$ ") crée une image miroir du champ incident : si l'axe de la lame est vertical, une polarisation incidente à 45° est basculée de -90° , tandis qu'une polarisation circulaire droite devient circulaire gauche (figure 2.9). Une lame quart d'onde (ou " $\lambda/4$ ") permet de modifier l'ellipticité de la polarisation. Ces transformations s'accompagnent d'un déphasage global dépendant de l'angle de la lame.

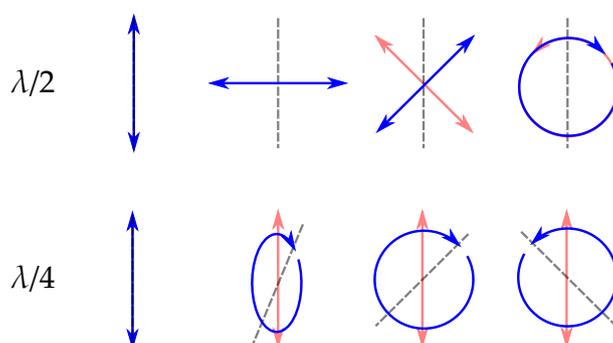


FIGURE 2.9 – Effet d'une lame demi-onde et quart d'onde sur diverses polarisations incidentes. L'état de polarisation incident est représenté en rouge, celui transmis en bleu. L'axe rapide de la lame est indiqué par la ligne pointillée.

Pour obtenir des modes transverses portant un MAO non nul, il faut structurer le faisceau spatialement. Les cavités laser possédant généralement des miroirs sphériques, elles ont naturellement tendance à produire un mode laser gaussien. Lorsque les miroirs de la cavité ne sont pas parfaitement parallèles, des modes de HG d'ordres supérieurs peuvent être obtenus. Il est par contre plus difficile d'obtenir des modes de LG. Nous détaillons ici quelques-unes des techniques utilisées pour convertir (avec plus ou moins de succès) un faisceau gaussien en un faisceau de LG.

2.3.1 Masques de phase

Lames de phase en spirale

Intuitivement, on peut deviner que si l'on impose la phase transverse $\ell\varphi$ à un faisceau gaussien, on devrait obtenir un faisceau portant du moment angulaire orbital. Une façon de faire est d'utiliser une lame de verre dont l'épaisseur varie avec l'angle

azimutal, si bien qu'elle impose une rampe de phase azimutale de hauteur $2\ell\pi$. En notant n l'indice du verre à la longueur d'onde λ considérée, l'épaisseur de la lame s'écrit

$$h(\varphi) = h_0 + \frac{\lambda\ell}{n-1} \frac{\varphi}{2\pi}. \quad (2.27)$$

Une lame de la sorte est appelée "lame de phase en spirale" (LPS). Comme on peut le voir sur la figure 2.10, la LPS dévie les rayons lumineux incidents (normaux à la lame) différemment selon le point d'impact. L'angle (petit) entre la surface de la lame et le rayon incident est en tout point donné par $\sim \frac{1}{r} \frac{dh(\varphi)}{d\varphi} = \frac{\lambda\ell}{2\pi r(n-1)}$. La loi de Snell-Descartes donne alors $\alpha \sim \ell/(kr)$ pour l'angle que le rayon transmis fait avec l'axe optique. En comparant avec l'expression 2.25 que nous avons calculé pour le vecteur de Poynting d'un mode de LG, on constate qu'il s'agit exactement de l'angle que ce dernier fait avec l'axe z .

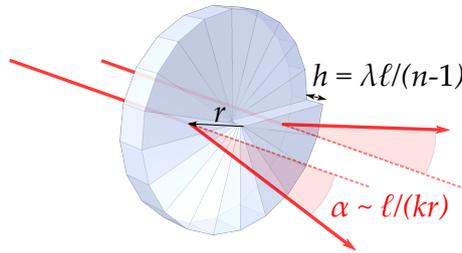


FIGURE 2.10 – Réfraction de deux faisceaux incidents par une lame de phase en spirale. Image de la LPS : JozumBjada.

Nous ne pouvons toutefois pas espérer que les LPS nous fournissent des modes de LG idéaux. En effet, si elle impose bien le terme $e^{i\ell\varphi}$, le profil d'intensité juste après la LPS est celui d'un faisceau gaussien. Le champ résultant est donc une somme de modes de LG, qui changera donc lors de la propagation. On peut montrer que les modes peuplés ont bien tous l'indice azimutal ℓ cherché, mais des indices radiaux p variés. Une autre limitation est d'ordre technique. Dans du verre à $\lambda = 800$ nm, la variation totale d'épaisseur de la lame est seulement de l'ordre de 3 microns, il est difficile de fabriquer une surface de verre parfaitement hélicoïdale à une telle échelle. Ainsi, les LPS réelles comprendront plutôt un certain nombre de marches, et ressembleront à des escaliers en colimaçon. Dans cette thèse, on utilisera une LPS à 16 marches fabriquée par Silios technologies.

La figure 2.11 montre une simulation de l'effet de notre LPS sur un faisceau incident gaussien. Après focalisation, on obtient bien un anneau d'intensité et une phase hélicoïdale (figure 2.11.b). Le mode de LG $(\ell, p) = (1, 0)$ est largement dominant, à hauteur de 80% (figure 2.11), ce qui représente un taux de conversion satisfaisant. Notons toutefois que lors des expériences on utilisera souvent un diaphragme pour contrôler le diamètre du faisceau, ce qui fera empirer le peuplement de modes d'indices p supérieurs (l'indice azimutal n'est par contre pas affecté). Une autre limitation fondamentale de l'efficacité des LPS est due à leur chromaticité (elles sont conçues pour fonctionner à une longueur d'onde précise). Dans nos expériences, nous utiliserons une LPS pour sculpter la phase d'impulsions IR de durée femtoseconde, dont la largeur spectrale est de quelques dizaines de nm. L'effet de la chromaticité sera assez peu marqué.

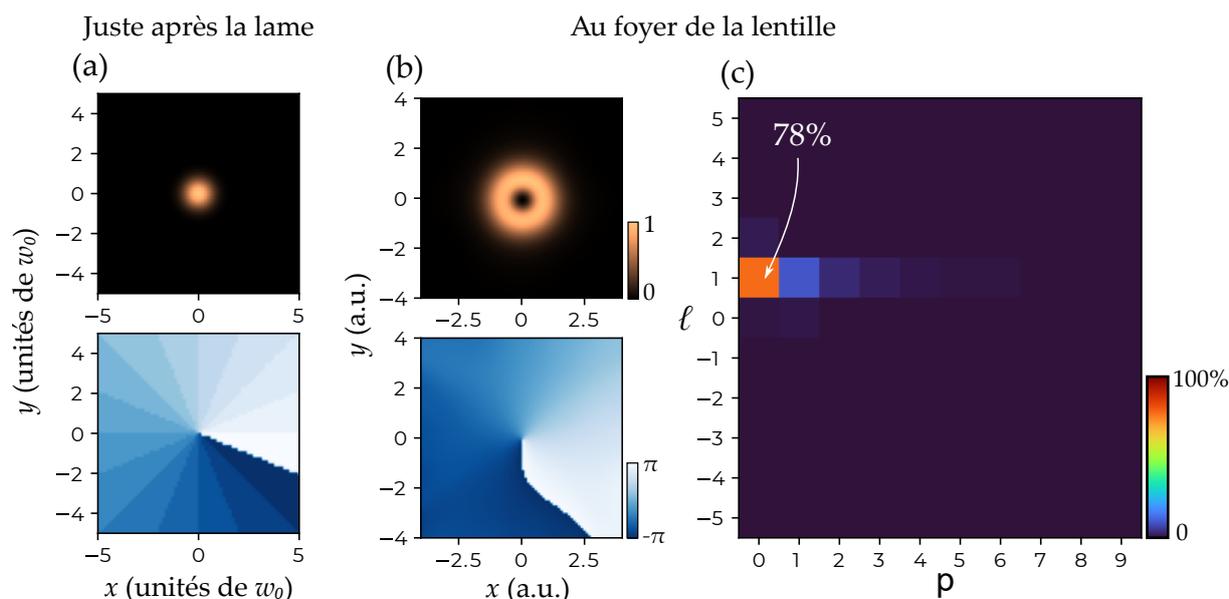


FIGURE 2.11 – Simulation de l'effet d'une LPS à 16 marches. (a) Intensité et phase du faisceau collimaté juste après la LPS. (b) Foyer du faisceau après focalisation par une lentille convergente. (c) Décomposition du faisceau obtenu sur la base des modes de LG.

Modulateur spatial de lumière

Une autre façon d'imposer le terme de phase $e^{i\ell\varphi}$ à un faisceau incident est d'utiliser un modulateur spatial de lumière (MSL). Il s'agit de matrices de cristaux liquides nématiques contrôlées électriquement. Contrairement à une LPS, un MSL est la plupart du temps utilisé en réflexion. L'application d'un champ électrique induit une rotation moyenne des molécules de la matrice, et modifie localement l'indice de réfraction. Ce genre de système permet d'obtenir des modes de LG de très grande qualité [100], en modifiant parfois simultanément la phase et l'intensité de la lumière.

Comparé à une LPS, le principal avantage du MSL est sa flexibilité : avec un seul appareil, on peut imposer une grande variété de profils de phase ou d'intensité au faisceau incident. De plus, les MSL sont capables de fonctionner selon les modèles sur une plage spectrale importante. Toutefois, ils ne sont a priori pas (encore) capables de soutenir une intensité laser importante sur de longues durées. Puisque nous utiliserons des faisceaux laser très intenses pour les expériences de GHOE, nous leur préférons les LPS.

2.3.2 Réseaux de diffraction

Des faisceaux portant du MAO peuvent également être obtenus par *holographie*. En holographie, la figure d'interférence entre un faisceau objet et un faisceau de référence peut être "lue" par un troisième faisceau, permettant ainsi de reconstruire le front-d'onde du faisceau objet. Dans notre cas, le faisceau objet est un vortex optique, et le faisceau de référence est gaussien. Au croisement de ces deux faisceaux, la figure d'interférence prend la forme d'un réseau "fourchu" : au centre de l'image, une frange d'interférence se divise en plusieurs franges (on parle de *dislocation* du réseau). Si l'on fabrique un réseau de diffraction reproduisant cette figure, et qu'on l'illumine

avec un faisceau gaussien, les différents ordres de diffractions porteront du moment angulaire. Plus précisément la charge topologique de l'ordre de diffraction numéro p ⁴ vaut $\ell^{(p)} = p\ell_{\text{réseau}}\ell_i$, où $\ell_{\text{réseau}}$ est la charge du réseau (correspondant au nombre de franges supplémentaires apparaissant au niveau de la dislocation) et ℓ_i est celle du faisceau incident. De tels réseaux de diffraction furent imprimés sur des films

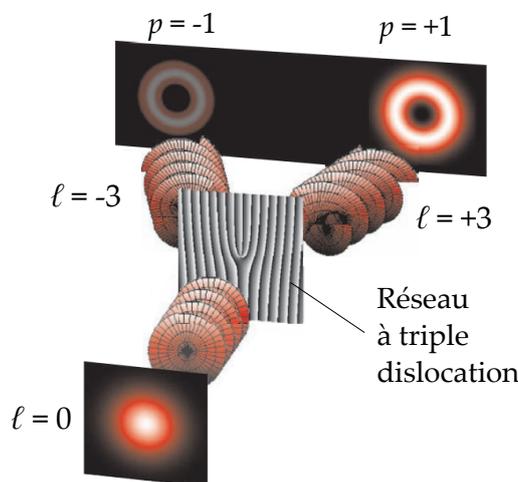


FIGURE 2.12 – Diffraction d'un faisceau gaussien par un réseau à dislocation triple. Les ordres de diffractions ± 1 portent les MAO ± 3 . Adapté de [101]

photographiques dès 1990 [102, 103]. Aujourd'hui, ils sont couramment générés par lithographie à faisceau d'électrons [104] ou bien grâce à des MSL pouvant sculpter le champ en amplitude ou en phase [105]. Récemment, des réseaux de diffraction fourchus obtenus dans des glaces de spin ont été utilisés pour communiquer du MAO à des faisceaux de rayons X [106].

Dans la même veine, on peut utiliser la figure d'interférence entre un vortex optique et une onde sphérique pour fabriquer des lames-zones en spirale, capables de focaliser et communiquer du MAO à un faisceau incident gaussien [107]. Cette technique sera utilisée au chapitre 11 pour convertir en vortex le faisceau d'un laser à électrons libres.

Le principal problème soulevé par ces éléments optiques diffractifs est la dispersion de l'énergie du faisceau incident dans une multitude de modes (les ordres de diffraction), ce qui diminue grandement la puissance disponible en sortie pour chaque vortex optique. En GHOE, nous allons voir qu'il est primordial de disposer d'une intensité laser suffisamment élevée, ce qui empêche l'utilisation de réseaux de diffraction pour obtenir un faisceau fondamental portant du MAO.

2.3.3 Convertisseurs de modes

Les modes de HG formant une base complète du champ, on peut écrire n'importe quel mode de LG comme une somme de modes de HG, et réciproquement. La décomposition du mode de LG $(\ell, p) = (\ell, 0)$ fait intervenir des modes de HG d'indices inférieurs ou égaux à $2p + \ell$ (annexe E). Le cas le plus simple est celui du mode de LG $(1, 0)$ qui s'exprime comme la somme de deux modes de HG $(n, m) = (1, 0)$ et $(0, 1)$,

4. Il ne faut pas confondre ordre de diffraction p et indice radial p .

déphasés de $\pi/2$, c'est-à-dire

$$\mathcal{L}\mathcal{G}_{1,0} = \frac{1}{\sqrt{2}}\mathcal{H}\mathcal{G}_{1,0} + i\frac{1}{\sqrt{2}}\mathcal{H}\mathcal{G}_{0,1}. \quad (2.28)$$

Or on peut également montrer que

$$\mathcal{H}\mathcal{G}_{1,0}^{45} = \frac{1}{\sqrt{2}}\mathcal{H}\mathcal{G}_{1,0} + \frac{1}{\sqrt{2}}\mathcal{H}\mathcal{G}_{0,1}, \quad (2.29)$$

où $\mathcal{H}\mathcal{G}_{1,0}^{45}$ désigne le mode de HG (1,0) basculé de 45° autour de l'axe optique. Ainsi, si l'on dispose du mode $\mathcal{H}\mathcal{G}_{1,0}^{45}$, on peut obtenir le mode de LG (1,0) en déphasant ses deux composantes de $\pi/2$. Un tel déphasage a lieu lorsque le faisceau est focalisé par un système *astigmatique*, c'est-à-dire focalisant différemment les dimensions verticales et horizontales du champ, qui ont alors des phases de Gouy différentes. C'est par exemple le cas des lentilles cylindriques qu'utilise le convertisseur de modes de la figure 2.13 [108]. Une première lentille focalise la dimension verticale, et une lentille de même focale recollimate le faisceau après le foyer. On peut montrer que pour obtenir un déphasage de $\pi/2$ les deux lentilles doivent être séparées de $\sqrt{2}f$, où f est la focale des lentilles. Contrairement aux LPS et aux réseaux de diffraction, ce système a pour

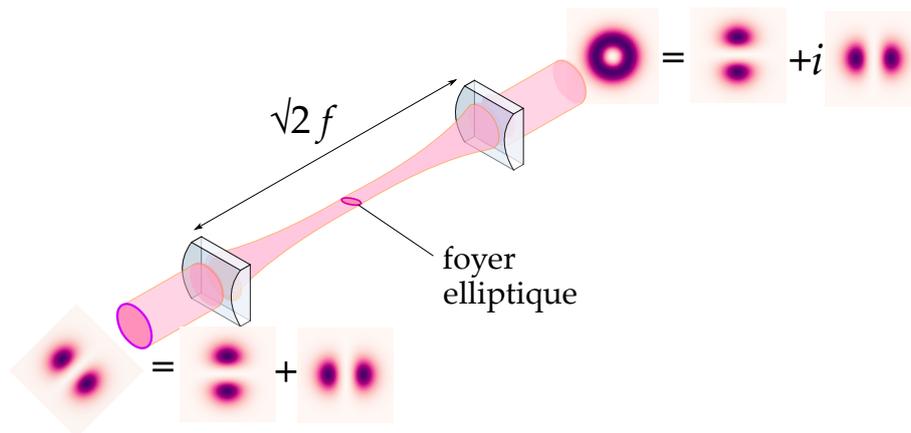


FIGURE 2.13 – Conversion d'un mode de HG $(n, m) = (1, 0)$ en un mode de LG $(\ell, p) = (1, 0)$.

avantage de fournir un mode de LG pur. Cependant, il faut tout de même disposer d'un mode de HG pur en entrée. L'autre inconvénient est l'apparition d'un foyer dans l'air. Pour des impulsions laser très intenses, cela est synonyme de création d'un plasma et d'une forte dégradation de la qualité du faisceau, c'est pourquoi un tel convertisseur de modes n'est pas adapté à nos expériences.

2.3.4 q-plates et métasurfaces

Plus récemment, on a vu émerger de nouveaux éléments optiques permettant de synthétiser des modes transverses portant du MAO. En 2006 fut proposé le concept de q-plate, un élément optique exploitant le couplage entre les moments angulaires de spin et orbital de la lumière [109, 110]. De tels couplages ont notamment lieu lorsque la

lumière se propage dans un milieu à la fois anisotrope (tel qu'une lame biréfringente) et non-homogène (tel qu'une LPS). Les q-plates combinent ces deux propriétés de manière contrôlée : ce sont des lames biréfringentes dont l'orientation des axes varie avec l'angle azimutal φ .

Pour comprendre, imaginons une lame demi-onde (c'est-à-dire imposant un déphasage de π entre les composantes ordinaire et extraordinaire), dont les axes font un angle $\alpha(\varphi)$ avec l'axe x , tel que

$$\alpha(\varphi) = Q\varphi, \quad (2.30)$$

où Q est le paramètre constitutif de la q-plate. La matrice de Jones de la q-plate est donc donnée par

$$\mathbf{M}(\varphi) = \mathbf{R}(\alpha(\varphi)) \cdot \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \cdot \mathbf{R}(-\alpha(\varphi)) = \begin{pmatrix} \cos 2\alpha(\varphi) & \sin 2\alpha(\varphi) \\ \sin 2\alpha(\varphi) & -\cos 2\alpha(\varphi) \end{pmatrix}, \quad (2.31)$$

avec $\mathbf{R}(\alpha)$ la matrice de rotation d'angle α autour de l'axe optique. Pour un champ incident gaussien polarisé circulairement, qu'on écrit $\mathbf{E} = (1, \sigma i)$, le champ transmis par la q-plate vaut

$$\mathbf{E}' = \mathbf{M}(\varphi) \cdot \mathbf{E} = \begin{pmatrix} 1 \\ -\sigma i \end{pmatrix} e^{i\sigma 2Q\varphi} \quad (2.32)$$

Le champ transmis est donc polarisé circulairement, mais en sens contraire, et possède la phase hélicoïdale correspondant au MAO $\ell = 2\sigma Q$. Le MAS du faisceau incident contrôle donc la charge topologique ℓ du faisceau transmis. Au cours de l'interaction entre le champ et la q-plate, le MAS d'un photon a varié de $-2\sigma\hbar$, tandis que son MAO a varié de $2\sigma Q\hbar$. La q-plate a donc encaissé une quantité de moment angulaire égale à $-2\sigma(Q - 1)\hbar$ au passage de chaque photon. La figure 2.14 montre l'effet d'une q-plate correspondant à $Q = 1/2$.

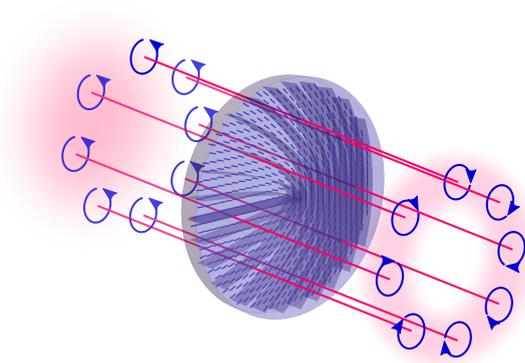


FIGURE 2.14 – Un faisceau incident gaussien, polarisé circulaire gauche, est converti en un faisceau portant le MAO $\ell = 1$, polarisé circulaire droite. La phase locale de l'onde est indiquée par la position des flèches bleues. *Image de la q-plate : JozumBjada.*

Ces dernières années, le couplage MAO/MAS a également été exploité dans la conception de métasurfaces [111]. Il s'agit d'optiques bi-dimensionnelles composées de nano-éléments de taille comparable ou inférieure à la longueur d'onde, capables de modifier localement la polarisation ou la phase de l'onde.

Grâce aux q-plates et aux métasurfaces, on peut donc facilement inverser le signe du MAO d'un faisceau, en jouant simplement sur la polarisation incidente. Cependant, les deux degrés de liberté sont couplés. Dans cette thèse, on aura souvent besoin de contrôler simultanément la polarisation et le MAO du faisceau, c'est pourquoi nous utiliserons plutôt des lames d'onde suivies de LPS.

Nous verrons au chapitre 12 qu'un formalisme similaire à celui décrivant les q-plate peut-être établi dans le cas des interactions entre des faisceaux de lumière et des matériaux magnétique structurés spatialement. Comme pour les q-plates, nous observerons des couplages MAS/MAO.

2.4 Mesurer le moment angulaire porté par un faisceau de lumière

Contrairement aux modes de HG, dont les indices n et m s'obtiennent simplement en comptant le nombre de lobes d'intensité dans les deux dimensions du plan transverse, l'indice azimutal ℓ d'un mode de LG n'est pas facilement lisible dans le profil d'intensité. L'information relative au MAO étant contenue dans la phase transverse de l'onde, on peut souvent remonter au MAO en faisant interférer le faisceau avec un faisceau de référence, ou en le faisant diffracter sur un obstacle.

2.4.1 Interférence et diffraction de vortex optiques

La plupart des techniques utilisées pour communiquer du MAO à un faisceau de lumière ont leur pendant en détection. Ainsi, en faisant interférer le faisceau à caractériser avec un faisceau gaussien, on obtient un réseau d'intensité avec une fourche dont le nombre de dislocations donne la charge topologique ℓ du faisceau (voir 2.3.2) si les deux faisceaux sont non-colinéaires ; et une spirale d'intensité dont le nombre de branches correspond aussi à ℓ , si les deux faisceaux sont colinéaires. Nous utiliserons au chapitre 9 une méthode similaire dans le cas de vortex obtenus par GHOE : nous ferons interférer deux vortex et aurons ainsi accès à la somme de leurs MAO respectifs.

Une méthode diffractive couramment utilisée consiste à placer sur le trajet du faisceau une ouverture triangulaire ou rectangulaire, de taille similaire au diamètre du mode. Au foyer d'une lentille, l'intensité transverse prend la forme d'un réseau de lobes triangulaire [112]. En notant le nombre N de lobes sur chaque côté du triangle, la valeur absolue du MAO du faisceau incident est donnée par $|\ell| = N - 1$, et le signe de ℓ par l'orientation de la figure (figure 2.15). La diffraction sur des réseaux annulaires a également été proposée comme méthode de mesure du MAO [114].

2.4.2 Conversion de mode

On peut également obtenir la valeur de ℓ par conversion de modes transverses. On a vu à la section 2.3 comment un système astigmatique peut convertir un mode de HG en un mode de LG. En utilisant ce principe en sens inverse, on peut remonter aux indices d'un faisceau LG (ℓ, p) inconnu en le convertissant - partiellement ou totalement - en le mode de HG d'indices $(n, m) = (\ell + p, p)$ basculé de 45° [115, 116]. Dans le domaine visible, il suffit de placer une lentille cylindrique [117], ou simplement

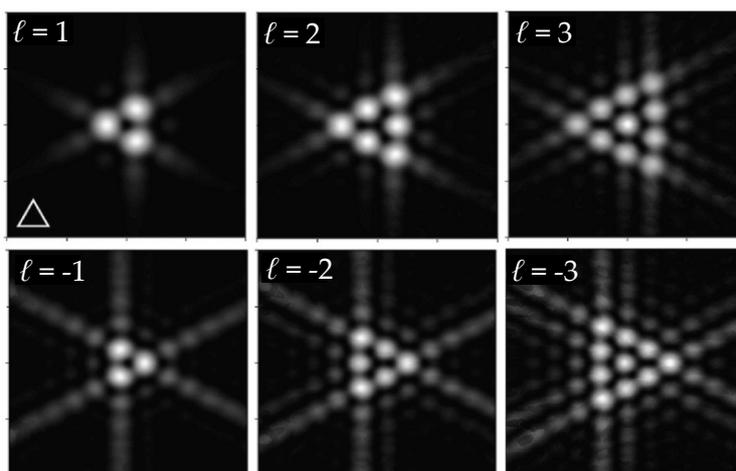


FIGURE 2.15 – Figures de diffraction obtenues pour des faisceaux de LG d’indices azimutaux variés, après passage dans une ouverture triangulaire. Le triangle blanc montre l’orientation de la fente. Tiré de [113]

une lentille mince en incidence *non-normale*, sur le trajet du faisceau pour introduire l’astigmatisme nécessaire à la conversion de modes. Pour des harmoniques d’ordre élevé, cela sera beaucoup plus difficile à cause du fait que les optiques en transmission sont proscrites aux longueurs d’ondes auxquelles nous travaillerons. Nous serons cependant en mesure de caractériser le MAO des harmoniques par conversion de mode à l’aide d’un miroir sphérique astigmatique.

2.4.3 Mesure directe du front d’onde

Si les techniques de détection évoquées ci-dessus donnent bien la charge topologique du faisceau, elles ne constituent pas une véritable mesure de la phase spatiale du faisceau. Une telle mesure est rendue possible par senseurs de fronts d’onde de type Shack-Hartmann, constitués d’une matrice de micro-lentilles convergentes et d’une caméra CCD et capables d’échantillonner la phase du faisceau. Avec une onde incidente plane, chaque lentille focalise la lumière sur son axe, et on observe donc sur le capteur un réseau de foyers régulièrement espacés. Si le front d’onde incident est déformé, ou possède une phase hélicoïdale, la position de chaque foyer permet d’échantillonner la phase spatiale du faisceau [118].

Conclusion du chapitre

Nous avons établi l’équation d’onde du champ électromagnétique, et obtenu des solutions sous forme d’ondes planes possédant différents états de polarisation : on a montré que les ondes polarisées circulairement portaient du moment angulaire, contrairement à celles polarisées linéairement. On a ensuite posé le cadre de l’approximation paraxiale, et obtenu des modes propres du champ portant du moment angulaire orbital (modes de LG) ou non (modes de HG). On a pu constater dans ce cas que la présence de MAO était liée non pas à l’état de polarisation, mais à la composante azimutale du vecteur de Poynting.

Dans un second temps, on a résumé les différentes techniques utilisées pour obtenir des modes portant du moment angulaire. La plupart de ces techniques ont pour point commun d'être restreintes au domaine visible. Par exemple, les lames d'onde ainsi que les LPS - et toutes les optiques en transmission - sont inutilisables aux longueurs d'ondes XUV. Pour cette raison, nous chercherons au cours de cette thèse comment transférer le moment angulaire porté par des faisceaux IR intenses aux harmoniques obtenues par GHOE, afin de disposer de sources de rayonnement de moment angulaire contrôlable à volonté.

Dans le chapitre qui suit, nous allons introduire de manière rigoureuse les deux formes de moment angulaire de la lumière, avant d'adopter une approche quantique pour justifier le fait qu'il est licite de parler de MAS ou de MAO pour des photons individuels. La notion de mode, introduite plus haut, prendra alors toute son importance.

Séparation entre moments angulaires de spin et orbital et quantification du moment angulaire des photons

Dans ce chapitre, nous cherchons à identifier deux contributions distinctes au moment angulaire de la lumière : une partie intrinsèque, associée au MAS et indépendante des coordonnées, et une partie extrinsèque dépendant explicitement de \mathbf{r} et associée au MAO. On commencera par calculer ces grandeurs classiquement, et par un simple argument géométrique on comprendra qu'elles ne peuvent pas être considérées comme des moments angulaires au sens strict. Ensuite, on prendra le temps d'introduire la notion de photon, ainsi que les opérateurs quantiques MAS et MAO agissant sur le champ électromagnétique quantifié.

Le lecteur pressé pourra dans un premier temps lire uniquement les sections 3.1 et 3.4, et simplement s'informer des principaux résultats (équations encadrées) de la section 3.3. Ces fondamentaux seront nécessaires pour aborder les chapitres 8, 9 et II, ainsi que le chapitre 12.

3.1 Séparation entre moment angulaire de spin et moment angulaire orbital

Nous suivons dans cette section la démarche de Van Enk *et al.* [5]. On a vu au chapitre 1 que le moment angulaire d'un champ électromagnétique classique contenu dans un volume V s'écrit

$$\mathbf{J} = \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}). \quad (3.1)$$

Les équations de Maxwell en l'absence de charges et de courant électrique étant invariantes par rotation autour de n'importe quel axe, \mathbf{J} est conservé au cours du temps. Considérons, comme au chapitre précédent (voir section 2.2) un potentiel vecteur transverse $\mathbf{A} = \mathbf{A}^\perp$, tel que $\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}^\perp$, et décomposons le champ électrique selon ses parties transverse et longitudinale : $\mathbf{E} = \mathbf{E}^\perp + \mathbf{E}^\parallel$. En effectuant une intégration par partie, on peut montrer que le moment angulaire se ré-écrit

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}^\perp + \mathbf{J}^\parallel, \quad (3.2)$$

avec

$$\begin{aligned} \mathbf{J}^{\parallel} &= \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{r} \times (\mathbf{E}^{\parallel} \times \mathbf{B}) = \int_V d^3\mathbf{r} \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{A}^{\perp}) = 0, \\ \mathbf{J}^{\perp} &= \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{r} \times (\mathbf{E}^{\perp} \times \mathbf{B}) = \epsilon_0 \sum_{j=x,y} \int_V d^3\mathbf{r} E_j^{\perp} (\mathbf{r} \times \nabla) A_j^{\perp} + \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{E}^{\perp} \times \mathbf{A}^{\perp}, \end{aligned} \quad (3.3)$$

où ρ est la densité de charge électrique, qui vaut zéro ici. La première contribution au moment angulaire est donc nulle, reste la seconde, \mathbf{J}^{\perp} . On définit donc le moment angulaire total sous la forme décomposée suivante, établie pour la première fois par Darwin [11] et Humblet [89].

$$\boxed{\mathbf{J} = \epsilon_0 \sum_{j=x,y,z} \int_V d^3\mathbf{r} E_j^{\perp} (\mathbf{r} \times \nabla) A_j^{\perp} + \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{E}^{\perp} \times \mathbf{A}^{\perp}} \quad (3.4)$$

Notons que \mathbf{J} ainsi défini est fonction du vecteur potentiel \mathbf{A} , ce qui à première vue paraît gênant car la valeur de ce dernier dépend du choix de la jauge. Cependant, ici on a considéré que \mathbf{A} était transverse, et il s'avère que \mathbf{A}^{\perp} ne dépend pas de la jauge choisie. \mathbf{J} est donc bien un invariant de jauge.

Il est tentant d'associer le premier terme de \mathbf{J} au MAO, et le second au MAS, et d'écrire

$$\boxed{\begin{aligned} \mathbf{L} &= \epsilon_0 \sum_{j=x,y,z} \int_V d^3\mathbf{r} E_j^{\perp} (\mathbf{r} \times \nabla) A_j^{\perp} \\ \mathbf{S} &= \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{E}^{\perp} \times \mathbf{A}^{\perp} \end{aligned}} \quad (3.5)$$

En effet, \mathbf{L} dépend explicitement du vecteur position \mathbf{r} , alors que \mathbf{S} ne dépend que du champ. Dans la suite de ce chapitre nous allons adopter un formalisme quantique, et voir sous quelles conditions une telle séparation est en effet possible. Dans le cas général, les deux quantités ci-dessus ne peuvent pas constituer des *vrais* moments angulaires. On peut dès à présent s'en apercevoir en considérant les transformations normalement générées par les opérateurs moment angulaire. Pour cela, on définit le vecteur $\boldsymbol{\theta}$, dont la direction spécifie l'axe de rotation, et la norme l'angle de rotation. On suppose que ce dernier est petit. Si \mathbf{S} et \mathbf{L} étaient véritablement des moments angulaires de spin et orbital, alors ils devraient respectivement générer les rotations suivantes du champ électrique [6]

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &\rightarrow \mathbf{E} + \boldsymbol{\theta} \times \mathbf{E} \\ \mathbf{E} &\rightarrow \mathbf{E} - \boldsymbol{\theta} \cdot (\mathbf{r} \times \nabla) \mathbf{E}, \end{aligned} \quad (3.6)$$

Nous reviendrons plus en détail sur ces transformations au chapitre 10. La difficulté vient du fait qu'en général, les champs électriques obtenus par ces transformations possèdent une composante parallèle au vecteur d'onde, et donc violent la première équation de Maxwell (équation 1.29) [119]. En effet :

$$\begin{aligned} \nabla \cdot (\mathbf{E} + \boldsymbol{\theta} \times \mathbf{E}) &= -\boldsymbol{\theta} \cdot \frac{d}{dt} \mathbf{B}, \\ \nabla \cdot (\mathbf{E} - \boldsymbol{\theta} \cdot (\mathbf{r} \times \nabla) \mathbf{E}) &= \boldsymbol{\theta} \cdot (\nabla \times \mathbf{E}) = \boldsymbol{\theta} \cdot \frac{d}{dt} \mathbf{B}. \end{aligned} \quad (3.7)$$

Ces deux expressions ne sont en général pas nulles, ainsi les champs obtenus à l'issue de la rotation ne sont pas physiquement valides. Par contre, comme les deux termes ci-dessus ont des valeurs opposées, les deux transformations appliquées l'une après l'autre donnent bien un champ électrique de divergence nulle. On verra que le moment angulaire total de la lumière \mathbf{J} est bien un vrai moment angulaire, générateur des rotations de la dépendance spatiale et du vecteur champ électrique autour de n'importe quel axe (voir figure 3.1).

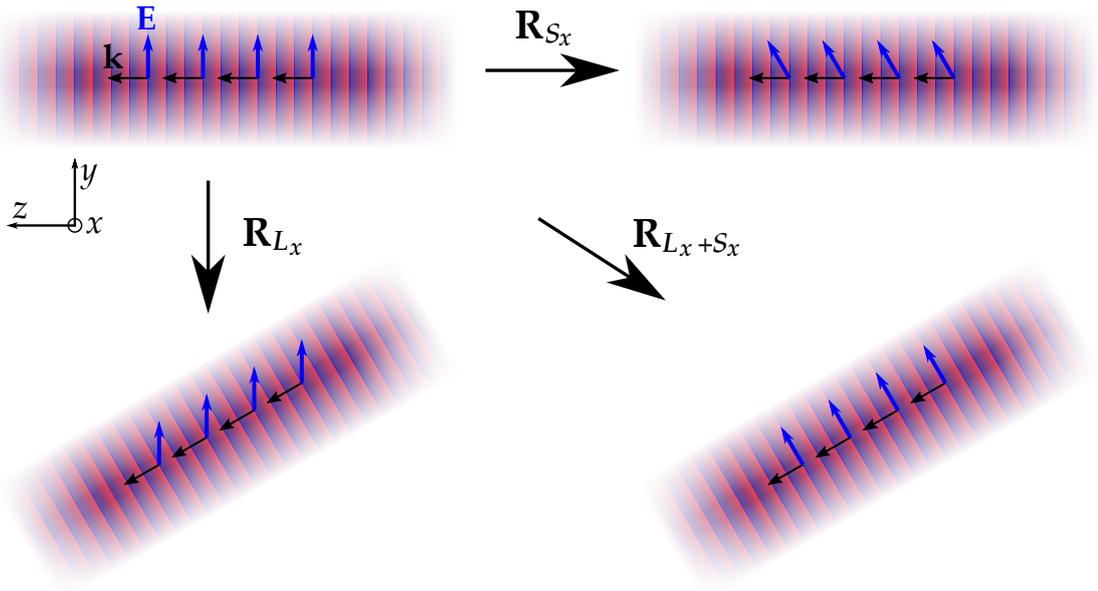


FIGURE 3.1 – Illustration des transformations générées par les parties spin et MAO du moment angulaire de la lumière. On considère un faisceau de lumière dont les fronts d'ondes sont plans, se propageant selon l'axe z , et polarisé linéairement selon y . Une rotation du champ électrique autour de l'axe x , générée par la composante S_x du spin, ou bien une rotation des variations spatiales du champ, générée par la composante L_x du MAO, ne donnent pas des faisceaux valides physiquement car le champ électromagnétique obtenu n'est pas transverse. Par contre, la rotation générée par $S_x + L_x$ fait pivoter le faisceau dans son ensemble autour de l'axe x . Les trois composantes du moment angulaire totale de la lumière génèrent donc bien des rotations valides autour des trois axes.

Ces considérations mettent en évidence la difficulté de définir des moments angulaires intrinsèque et extrinsèque pour la lumière, mais ne signifie pourtant pas que le MAS et le MAO de la lumière ne sont pas physiques. Nous verrons que les opérateurs associés génèrent en effet les transformations suivantes

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &\rightarrow \mathbf{E} + (\boldsymbol{\theta} \times \mathbf{E})^\perp \\ \mathbf{E} &\rightarrow \mathbf{E} - [\boldsymbol{\theta} \cdot (\mathbf{r} \times \nabla)\mathbf{E}]^\perp, \end{aligned} \quad (3.8)$$

qui donnent bien un champ électromagnétique tel que $\nabla \cdot \mathbf{E} = 0$ et $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$.

Dans la suite de ce chapitre, nous allons adopter le formalisme de la seconde quantification pour obtenir les opérateurs quantiques associés au MAS et au MAO tels

que définis par l'équation 3.5. Ceci va nous permettre de montrer que chaque photon porte un quantum de MAS et de MAO, tout comme il porte le quantum d'énergie $\hbar\omega$ et le quantum d'impulsion $\hbar\mathbf{k}$. Le fait que \mathbf{L} et \mathbf{S} ne sont pas de vrais moments angulaires apparaîtra sous la forme d'une violation des règles de commutation normalement associées aux opérateurs moment angulaire quantiques.

3.2 Quantification du champ électromagnétique : photons

3.2.1 Composantes de Fourier du champ dans l'espace réciproque

Notre approche est celle de Aspect et Grangier [120]. On considère un cube de côté L et de volume V , bien plus grand que le système considéré¹. On définit les composantes de Fourier du champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ en calculant son produit scalaire avec des ondes planes

$$\tilde{\mathbf{E}}_n(t) = \frac{1}{V} \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) e^{i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}}. \quad (3.9)$$

Inversement, le champ électrique s'écrit en fonction de ces composantes selon

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_n \tilde{\mathbf{E}}_n(t) e^{-i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}}. \quad (3.10)$$

Dans ces équations, l'indice n est une abréviation pour $n = (n_x, n_y, n_z)$. Ces trois nombres définissent les 3 composantes du vecteur d'onde \mathbf{k}_n :

$$(\mathbf{k}_n)_* = n_* \frac{2\pi}{L}, \quad (3.11)$$

avec $* = x, y, z$. L'espace des vecteurs \mathbf{k}_n est appelé *espace réciproque*, et les $\tilde{\mathbf{E}}_n(t)$ sont les composantes du champ électrique dans cet espace. Elles dépendent uniquement du temps t .

Décomposer le champ dans l'espace réciproque a pour avantage de transformer les opérateurs différentiels des équations de Maxwell en relations algébriques. Le tableau suivant résume cette correspondance.

Espace direct	Espace réciproque
$\mathbf{E}(\mathbf{r})$	$\tilde{\mathbf{E}}_n$
$\mathbf{E}(\mathbf{r})^*$	$\tilde{\mathbf{E}}_{-n}$
$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r})$	$-i\mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{E}}_n$
$\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r})$	$-i\mathbf{k}_n \times \tilde{\mathbf{E}}_n$

(3.12)

Grâce à cela, et en utilisant l'orthogonalité des ondes planes, on peut transformer les deux premières équations de Maxwell (1.29 et 1.30), en l'absence de charges et de courants, en

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{E}}_n &= 0, \\ \mathbf{k}_n \cdot \tilde{\mathbf{B}}_n &= 0. \end{aligned} \quad (3.13)$$

1. L'idée est de calculer des grandeurs ne dépendant pas de L , afin qu'elles restent finies lorsque $L \rightarrow +\infty$. Au contraire, si l'on étudie l'électrodynamique quantique dans des cavités, L correspond véritablement à la largeur de la cavité.

Ainsi, les vecteurs $\tilde{\mathbf{E}}_n$ et $\tilde{\mathbf{B}}_n$ sont bien perpendiculaires à \mathbf{k}_n , ce qui est la définition d'un champ *transverse*. $\tilde{\mathbf{E}}_n$ appartient donc à un espace bi-dimensionnel, décrit par deux vecteurs de base $\epsilon_{n,s=1,2}$ normaux a priori arbitraires : il pourra s'agir, selon les cas, de la base (réelle) des polarisations linéaires, ou de celle (complexe) des états circulaires. Chaque composante de l'espace réciproque dépend donc de quatre nombres, qu'on abrège avec l'indice $\eta = (n_x, n_y, n_z, s)$, où $s = 1, 2$. On définit alors l'indice opposé $-\eta = (-n_x, -n_y, -n_z, s)$ comme celui décrivant une onde plane se propageant dans la direction opposée à \mathbf{k}_n , mais ayant le même état de polarisation. Le champ électrique dans l'espace direct s'écrit donc finalement

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\eta} \epsilon_{\eta} \tilde{E}_{\eta}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}}. \quad (3.14)$$

Dans la suite, il sera pratique de noter le champ magnétique sur une autre base de vecteurs transverses ϵ'_{η} tels que $\epsilon'_{\eta} = -\frac{\mathbf{k}_{\eta}}{k_{\eta}} \times \epsilon_{\eta}$, avec $k_{\eta} = |\mathbf{k}_{\eta}|$. On écrit alors

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\eta} \epsilon'_{\eta} \tilde{B}_{\eta}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}}. \quad (3.15)$$

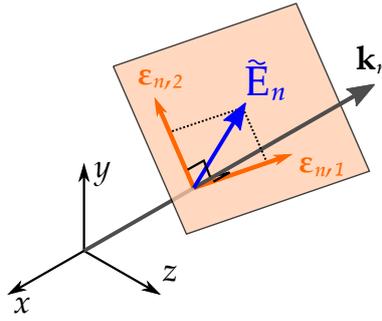


FIGURE 3.2 – Les vecteurs normaux $\epsilon_{n,1}$ et $\epsilon_{n,2}$ (orange) sont contenus dans un plan perpendiculaire au vecteur d'onde \mathbf{k}_n dans l'espace réciproque. La composante de Fourier du champ électrique $\tilde{\mathbf{E}}_n$ (bleu) se trouve également dans ce plan, et peut donc être exprimée en fonction de $\epsilon_{n,1}$ et $\epsilon_{n,2}$. Notons qu'ici on a représenté des vecteurs aux composantes réelles, mais en général $\epsilon_{n,1}$ et $\epsilon_{n,2}$ sont complexes afin de pouvoir représenter les polarisations circulaires droite et gauche. Adapté de [120].

On a vu au cours du chapitre précédent que le champ électromagnétique peut s'exprimer en fonction d'un potentiel scalaire ϕ et d'un potentiel vecteur \mathbf{A} , selon

$$\begin{aligned} \mathbf{B} &= \nabla \times \mathbf{A} \\ \mathbf{E} &= -\nabla \phi - \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A} \end{aligned} \quad (3.16)$$

Ici, on choisit la jauge de Coulomb, telle que

$$\nabla \cdot \mathbf{A} = 0. \quad (3.17)$$

\mathbf{A} est donc lui aussi transverse et il peut s'écrire sous la même forme que l'équation 3.14

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\eta} \epsilon_{\eta} \tilde{A}_{\eta}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}}, \quad (3.18)$$

On peut alors aisément calculer le champ magnétique correspondant en utilisant les règles de correspondance

$$\begin{aligned}\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \\ &= \sum_{\eta} -i\mathbf{k}_{\eta} \times \epsilon_{\eta} \tilde{A}_{\eta}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}}\end{aligned}\quad (3.19)$$

En égalisant les expressions 3.15 et 3.19, on trouve

$$\tilde{B}_{\eta}(t) = ik_{\eta} \tilde{A}_{\eta}(t). \quad (3.20)$$

Grâce au choix de la jauge de Coulomb, on peut utiliser $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ au lieu de $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$, les deux étant liés par une relation très simple.

3.2.2 Variables normales et modes du champ électromagnétique

La dynamique du champ électromagnétique est donnée par les équations de Maxwell-Faraday et de Maxwell-Ampère (1.31 et 1.32). Dans notre formalisme de l'espace réciproque, ces équations deviennent

$$\begin{aligned}ik_{\eta} \tilde{E}_{\eta}(t) &= -\frac{d}{dt} \tilde{B}_{\eta}(t), \\ ik_{\eta} \tilde{B}_{\eta}(t) &= -\frac{1}{c^2} \frac{d}{dt} \tilde{E}_{\eta}(t).\end{aligned}\quad (3.21)$$

Les solutions de cette paire d'équations couplées impliquent des fonctions oscillant aux fréquences $\pm\omega_{\eta}$, avec $\omega_{\eta} = ck_{\eta}$. En injectant l'expression 3.20, on obtient le système suivant

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt} \tilde{A}_{\eta}(t) &= -\tilde{E}_{\eta}(t), \\ \frac{d}{dt} \tilde{E}_{\eta}(t) &= \omega_{\eta}^2 \tilde{A}_{\eta}(t).\end{aligned}\quad (3.22)$$

Variables normales

A ce stade, il est intéressant de constater que la dynamique du champ ne contient pas de couplage entre des composantes correspondant à différentes valeurs de η . On a donc bien décomposé le champ en des composantes ayant des évolutions indépendantes. Pour obtenir deux équations découplées et résoudre le système, on introduit les quantités $\omega_{\eta} \tilde{A}_{\eta} \pm i\tilde{E}_{\eta}$, sous la forme de deux *variables normales* :

$$\begin{aligned}\alpha_{\eta} &= \frac{1}{2\mathcal{E}_{\eta}^{(1)}} (\omega_{\eta} \tilde{A}_{\eta} - i\tilde{E}_{\eta}) \\ \beta_{\eta} &= \frac{1}{2\mathcal{E}_{\eta}^{(1)}} (\omega_{\eta} \tilde{A}_{\eta} + i\tilde{E}_{\eta}),\end{aligned}\quad (3.23)$$

où $\mathcal{E}_{\eta}^{(1)}$ est une constante réelle dont la valeur sera fixée plus loin. Avec ces nouvelles variables, le système 3.22 se réduit à

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt} \alpha_{\eta} + i\omega_{\eta} \alpha_{\eta} &= 0, \\ \frac{d}{dt} \beta_{\eta} - i\omega_{\eta} \beta_{\eta} &= 0,\end{aligned}\quad (3.24)$$

dont les solutions sont

$$\begin{aligned}\alpha_\eta(t) &= \alpha_\eta(0)e^{-i\omega_\eta t}, \\ \beta_\eta(t) &= \beta_\eta(0)e^{+i\omega_\eta t}.\end{aligned}\quad (3.25)$$

En inversant les relations 3.23, on trouve l'évolution temporelle des composantes de Fourier du champ

$$\begin{aligned}\tilde{A}_\eta(t) &= \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta}(\alpha_\eta(t) + \beta_\eta(t)), \\ \tilde{E}_\eta(t) &= i\mathcal{E}_\eta^{(1)}(\alpha_\eta(t) - \beta_\eta(t)).\end{aligned}\quad (3.26)$$

L'évolution de la composante η du champ électromagnétique est donc déterminée par les quatre variables réelles que sont les parties réelles et imaginaires de α_η et β_η . Cependant les paires de variables $(\mathcal{R}(\alpha_\eta), \mathcal{I}(\alpha_\eta))$ et $(\mathcal{R}(\beta_\eta), \mathcal{I}(\beta_\eta))$ obéissent à deux dynamiques indépendantes. Nous allons à présent voir comment utiliser les variables normales pour exprimer le champ comme une somme de *modes normaux*.

Modes normaux

Grâce aux deux expressions ci-dessus et aux décompositions 3.14 et 3.15, le champ électromagnétique s'écrit

$$\begin{aligned}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &= \sum_\eta \epsilon_\eta \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta} (\alpha_\eta(t) + \beta_\eta(t)) e^{-i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}}, \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_\eta \epsilon_\eta \mathcal{E}_\eta^{(1)} (\alpha_\eta(t) - \beta_\eta(t)) e^{-i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}}.\end{aligned}\quad (3.27)$$

Utilisons à présent le fait que les champs étant réels, on a $\tilde{A}_{-\eta} = \tilde{A}_\eta^*$ et $\tilde{E}_{-\eta} = \tilde{E}_\eta^*$. Injectant ces relations dans l'expression de α_η (3.23), on trouve $\beta_\eta^*(t) = \alpha_{-\eta}(t)$. Cela permet de simplifier l'expression des champs, et donne après quelques lignes de calcul

$$\begin{aligned}\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &= \sum_\eta \epsilon_\eta \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta} \left(\alpha_\eta(t) e^{-i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}} + \alpha_\eta^*(t) e^{i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}} \right), \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_\eta \epsilon_\eta \mathcal{E}_\eta^{(1)} \left(\alpha_\eta(t) e^{-i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}} - \alpha_\eta^*(t) e^{i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}} \right), \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \frac{i}{c} \sum_\eta \epsilon'_\eta \mathcal{E}_\eta^{(1)} \left(\alpha_\eta(t) e^{-i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}} - \alpha_\eta^*(t) e^{i\mathbf{k}_\eta \cdot \mathbf{r}} \right).\end{aligned}\quad (3.28)$$

Il est important de comprendre que les ondes planes choisies ici pour effectuer la décomposition ne sont pas les seuls modes normaux possibles. Par exemple, il peut être très utile d'utiliser plutôt une base de modes normaux transverses paraxiaux, tels que les modes de HG ou de LG. De la même manière, nous n'avons jusqu'ici pas spécifié l'expression des vecteurs polarisation ϵ_η : ils peuvent a priori s'écrire dans n'importe quelle base bi-dimensionnelle. Nous écrirons plus loin des expressions plus générales pour les observables, en termes de modes normaux quelconques.

3.2.3 Hamiltonien du champ électromagnétique

L'énergie du champ électromagnétique dans le volume V considéré s'écrit (chapitre 1)

$$H = \frac{\epsilon_0}{2} \int_V d^3\mathbf{r} \left(\mathbf{E}^2(\mathbf{r}, t) + c^2 \mathbf{B}^2(\mathbf{r}, t) \right). \quad (3.29)$$

On peut injecter dans cette équation les expressions 3.28 pour \mathbf{E} et \mathbf{B} . Les champs mis au carré vont donner des termes croisés entre des modes d'indices η différents, qui auront des contributions opposées. Après quelques lignes de calcul, on trouve

$$H = 2\epsilon_0 V \sum_{\eta} \left(\mathcal{E}_{\eta}^{(1)} \right)^2 |\alpha_{\eta}|^2. \quad (3.30)$$

Ainsi, l'énergie de la lumière est simplement la somme des énergies associées à chaque mode normal, sans terme croisé.

Variables conjuguées pour un mode du champ

Considérons un mode unique, d'indice η . En vertu de l'équation précédente, son énergie est

$$H_{\eta} = 2\epsilon_0 V \left(\mathcal{E}_{\eta}^{(1)} \right)^2 |\alpha_{\eta}|^2 \quad (3.31)$$

De plus, en prenant les parties imaginaires et réelles de l'équation d'évolution de α_{η} 3.24, il vient

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \mathcal{R}(\alpha_{\eta}) &= \omega_{\eta} \mathcal{I}(\alpha_{\eta}), \\ \frac{d}{dt} \mathcal{I}(\alpha_{\eta}) &= -\omega_{\eta} \mathcal{R}(\alpha_{\eta}). \end{aligned} \quad (3.32)$$

On peut alors facilement montrer que ces deux équations prennent la forme d'équations de Hamilton (voir équations 1.27)

$$\begin{aligned} \frac{dQ_{\eta}}{dt} &= \frac{\partial H_{\eta}}{\partial P_{\eta}}, \\ \frac{dP_{\eta}}{dt} &= -\frac{\partial H_{\eta}}{\partial Q_{\eta}}, \end{aligned} \quad (3.33)$$

avec H_{η} donné par 3.31 et

$$\begin{aligned} Q_{\eta} &= \sqrt{\frac{4\epsilon_0 V}{\omega_{\eta}}} \mathcal{E}_{\eta}^{(1)} \mathcal{R}(\alpha_{\eta}), \\ P_{\eta} &= \sqrt{\frac{4\epsilon_0 V}{\omega_{\eta}}} \mathcal{E}_{\eta}^{(1)} \mathcal{I}(\alpha_{\eta}), \end{aligned} \quad (3.34)$$

qui sont appelées variables canoniques conjuguées. A l'aide de ces variables, nous pouvons enfin quantifier le champ électromagnétique.

3.2.4 Quantification de la lumière

On va désormais associer aux variables $Q_\eta(t)$ et $P_\eta(t)$ des opérateurs hermitiens ne dépendant pas du temps \hat{Q}_η et \hat{P}_η ², qui obéissent aux relations de commutation canoniques :

$$\begin{aligned} [\hat{Q}_\eta, \hat{P}_{\eta'}] &= \hat{Q}_\eta \hat{P}_{\eta'} - \hat{P}_{\eta'} \hat{Q}_\eta = i\hbar \delta_{\eta\eta'}, \\ [\hat{Q}_\eta, \hat{Q}_{\eta'}] &= [\hat{P}_\eta, \hat{P}_{\eta'}] = 0, \end{aligned} \quad (3.35)$$

où $\delta_{\eta\eta'}$ est le symbole de Kronecker. On introduit également l'opérateur \hat{a}_η , associé à l'amplitude $\alpha_\eta(t)$ des modes normaux. Il n'est pas hermitique : $\hat{a}_\eta \neq \hat{a}_\eta^\dagger$. Rappelons nous que la constante $\mathcal{E}_\eta^{(1)}$ avait été laissée libre. Pour obtenir des relations de commutation simples pour \hat{a}_η , on choisit³

$$\mathcal{E}_\eta^{(1)} = \sqrt{\frac{\hbar\omega_\eta}{2\epsilon_0 V}}, \quad (3.36)$$

ce qui donne

$$\begin{aligned} \hat{a}_\eta &= \frac{1}{\sqrt{2\hbar}} (\hat{Q}_\eta + i\hat{P}_\eta), \\ \hat{a}_\eta^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2\hbar}} (\hat{Q}_\eta - i\hat{P}_\eta), \\ [\hat{a}_\eta, \hat{a}_{\eta'}^\dagger] &= \delta_{\eta\eta'}, \\ [\hat{a}_\eta, \hat{a}_{\eta'}] &= 0. \end{aligned} \quad (3.37)$$

Les relations de commutation ci-dessus sont identiques à celles des opérateurs création et annihilation de l'oscillateur harmonique quantique. Ceci provient du fait que l'énergie du champ électromagnétique s'écrit comme le carré de son amplitude, à la manière de l'énergie potentielle d'un oscillateur harmonique. Dans la suite, on supposera que le lecteur est familier du formalisme quantique de l'oscillateur harmonique, et on appliquera ses conclusions au champ électromagnétique.

Hamiltonien du champ quantifié

Le hamiltonien classique H (équation 3.30) s'écrit en fonction des variables conjuguées selon

$$H = \frac{1}{2} \sum_\eta \omega_\eta (Q_\eta^2 + P_\eta^2). \quad (3.38)$$

On lui associe donc l'opérateur quantique

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \sum_\eta \omega_\eta (\hat{Q}_\eta^2 + \hat{P}_\eta^2). \quad (3.39)$$

2. Les variables classiques dépendaient pourtant du temps. Dans la formulation de Schrödinger de la mécanique quantique, les opérateurs ne dépendent pas du temps, ce sont les états quantiques qui évoluent.

3. On peut interpréter l'expression de $\mathcal{E}_\eta^{(1)}$ en remarquant qu'il s'agit de l'amplitude d'une onde classique de fréquence ω_η , dont l'énergie intégrée sur le volume V serait $\hbar\omega_\eta$, c'est-à-dire l'énergie d'un photon unique dans le mode η . Cela justifie la notation choisie pour cette constante.

En utilisant les opérateurs \hat{a}_η et \hat{a}_η^\dagger , l'hamiltonien prend une forme simple :

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \sum_{\eta} \hbar\omega_{\eta} \left(\hat{a}_{\eta} \hat{a}_{\eta}^{\dagger} + \hat{a}_{\eta}^{\dagger} \hat{a}_{\eta} \right) = \sum_{\eta} \hbar\omega_{\eta} \left(\hat{a}_{\eta}^{\dagger} \hat{a}_{\eta} + \frac{1}{2} \right). \quad (3.40)$$

Cette expression est celle du hamiltonien décrivant une assemblée d'oscillateurs harmoniques quantiques découplés.

Photons

Nous utilisons ici le formalisme introduit par Dirac pour résoudre le problème de l'oscillateur harmonique quantique. Dirac définit l'opérateur \hat{N}_η tel que

$$\hat{N}_\eta = \hat{a}_\eta^\dagger \hat{a}_\eta \Rightarrow \hat{H} = \sum_{\eta} \hbar\omega_{\eta} \left(\hat{N}_\eta + \frac{1}{2} \right). \quad (3.41)$$

\hat{N}_η est bien entendu hermitique, et correspond donc à une observable. On peut montrer à l'aide des règles de commutation 3.37 que les valeurs propres de \hat{N}_η sont les entiers positifs ou nul. On les note n_η , et les vecteurs propres correspondants sont notés $|n_\eta\rangle$. Ils sont appelés *états nombres*, pour une raison qui sera expliquée plus loin, et forment une base des états du champ dans le mode η .

Cherchons à présent les états propres du hamiltonien \hat{H} . Puisque \hat{N}_η et $\hat{N}_{\eta'}$ commutent, les états propres de \hat{H} sont les produits tensoriels des états $|n_\eta\rangle$, qu'on notera $|n_1, n_2, n_3, \dots\rangle$. On a alors :

$$\hat{H} |n_1, n_2, n_3, \dots\rangle = \left[\sum_{\eta} \hbar\omega_{\eta} \left(n_{\eta} + \frac{1}{2} \right) \right] |n_1, n_2, n_3, \dots\rangle. \quad (3.42)$$

Les opérateurs \hat{a}_η et \hat{a}_η^\dagger agissent sur les états nombres selon

$$\begin{aligned} \hat{a}_\eta |n_\eta\rangle &= \sqrt{n_\eta} |n_\eta - 1\rangle \text{ si } n_\eta > 0, \\ \hat{a}_\eta |n_\eta = 0\rangle &= 0, \\ \hat{a}_\eta^\dagger |n_\eta\rangle &= \sqrt{n_\eta + 1} |n_\eta + 1\rangle. \end{aligned} \quad (3.43)$$

L'état fondamental du champ électromagnétique correspond à des entiers n_η tous nuls. On le note par souci de simplicité $|0\rangle = |n_1 = 0, n_2 = 0, n_3 = 0, \dots\rangle$. Il vérifie

$$\hat{H} |0\rangle = \left[\sum_{\eta} \frac{\hbar\omega_{\eta}}{2} \right] |0\rangle, \quad (3.44)$$

et possède donc l'énergie $E_{|0\rangle} = \sum_{\eta} \frac{\hbar\omega_{\eta}}{2}$ ⁴. D'après 3.43, tout état $|n_1, n_2, n_3, \dots\rangle$ peut être obtenu à partir de l'état fondamental par application successive des opérateurs \hat{a}_η^\dagger .

4. Si l'on suppose que les ω_η peuvent prendre des valeurs arbitrairement élevées, on trouve que cette énergie est infinie. Pourtant, l'énergie ainsi que les fluctuations du champ électromagnétique quantifié de l'état $|0\rangle$ ont des effets réels et observables, tels que la force de Casimir. Il est possible de calculer ces effets grâce à une procédure de *renormalisation*, inventée en 1947 par Schwinger, Feynman et Tomonaga.

Comparé à l'état fondamental, l'état $|n_1, n_2, n_3, \dots\rangle$ possède donc une énergie supplémentaire égale à $\sum_{\eta} n_{\eta} \hbar \omega_{\eta}$. Tout se passe donc comme si, dans un tel état, chaque mode η du champ était peuplé d'un nombre n_{η} de particules d'énergie $\hbar \omega_{\eta}$, tandis que l'état fondamental ne contient pas de particules et correspond donc au *vide*. Les particules en question sont les excitations élémentaires du champ électromagnétique : les *photons*⁵.

Les opérateurs \hat{a}_{η} et \hat{a}_{η}^{\dagger} respectivement diminuent et augmentent le nombre de photons dans le mode η d'une unité, ce qui explique pourquoi ils sont appelés opérateurs annihilation et création. L'opérateur $\hat{N}_{\eta} = \hat{a}_{\eta}^{\dagger} \hat{a}_{\eta}$ correspond à l'observable⁶ quantique *nombre de photons* dans le mode η , et $\sum_{\eta} \hat{N}_{\eta}$ est l'opérateur donnant le nombre total de photons dans le volume V . Le fait que le mode η puisse être peuplé d'une quantité arbitraire de photons fait immédiatement tomber ces derniers dans la catégorie des *bosons*, les particules de spin entier.

3.3 Les opérateurs moment angulaire

3.3.1 Impulsion des photons

Selon la base de modes normaux choisie pour la décomposition, les photons peuvent avoir d'autres propriétés "bien définies", c'est-à-dire d'autres opérateurs que \hat{H} et \hat{N}_{η} dont les $|n_1, n_2, n_3, \dots\rangle$ sont états propres. Par exemple, la base des ondes planes monochromatiques que nous avons utilisée jusqu'à présent est appropriée pour obtenir une expression simple de l'opérateur impulsion.

Calculons l'impulsion du champ dans cette base [120]. On sait que l'impulsion du champ électromagnétique s'écrit

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{E} \times \mathbf{B}. \quad (3.45)$$

Utilisons alors les décompositions 3.28 de \mathbf{E} et \mathbf{B} sur la base des ondes planes, qu'on écrit ici en différenciant les indices des modes :

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_{\eta} \epsilon_{\eta} \mathcal{E}_{\eta}^{(1)} \left(\alpha_{\eta}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}} - \alpha_{\eta}^*(t) e^{i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}} \right), \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \frac{i}{c} \sum_{\eta'} \epsilon'_{\eta'} \mathcal{E}_{\eta'}^{(1)} \left(\alpha_{\eta'}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta'} \cdot \mathbf{r}} - \alpha_{\eta'}^*(t) e^{i\mathbf{k}_{\eta'} \cdot \mathbf{r}} \right). \end{aligned} \quad (3.46)$$

5. Un état nombre $|n_{\eta}\rangle$ est, en pratique, très difficile à obtenir. En effet, comment être sûr que le mode η contient *exactement* n photons, et pas $n + 1$ par exemple? Les états $|n_{\eta}\rangle$ ne sont en fait pas représentatifs du champ délivré par un laser, car on peut montrer qu'ils correspondent à une phase indéterminée (en mécanique quantique, nombre de particules et phase sont deux grandeurs conjuguées). Inversement, le champ électrique d'une cavité laser peut être décrit par des états quantiques dits "quasi-classiques", ou "cohérents". Ce sont des superpositions d'états nombre, qui ne sont donc pas états propres du hamiltonien. La valeur moyenne du champ électrique d'un état cohérent dans le mode η oscille sinusoidalement à la fréquence ω_{η} , comme le ferait un champ électromagnétique classique [120].

6. Cette quantité peut en effet être mesurée par un compteur de photons, après avoir isolé le mode η .

L'impulsion s'écrit donc

$$\mathbf{P} = -\epsilon_0 \sum_{\eta} \sum_{\eta'} \frac{\mathcal{E}_{\eta}^{(1)} \mathcal{E}_{\eta'}^{(1)}}{c} \boldsymbol{\epsilon}_{\eta} \times \boldsymbol{\epsilon}'_{\eta'} \int_V d^3 \mathbf{r} \left[\alpha_{\eta}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}} - \alpha_{\eta}^*(t) e^{i\mathbf{k}_{\eta} \cdot \mathbf{r}} \right] \cdot \left[\alpha_{\eta'}(t) e^{-i\mathbf{k}_{\eta'} \cdot \mathbf{r}} - \alpha_{\eta'}^*(t) e^{i\mathbf{k}_{\eta'} \cdot \mathbf{r}} \right] \quad (3.47)$$

On se convainc facilement que les seuls termes de la somme donnant une intégrale non-nulle sont ceux pour lesquels $\eta = \eta'$ ou $\eta = -\eta'$, si bien que

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 V \sum_{\eta} \frac{(\mathcal{E}_{\eta}^{(1)})^2}{c} \left[2\boldsymbol{\epsilon}_{\eta} \times \boldsymbol{\epsilon}'_{\eta} |\alpha_{\eta}|^2 - \boldsymbol{\epsilon}_{\eta} \times \boldsymbol{\epsilon}'_{-\eta} (\alpha_{\eta} \alpha_{-\eta} + \alpha_{\eta}^* \alpha_{-\eta}^*) \right] \quad (3.48)$$

Puis, on utilise le fait que $\boldsymbol{\epsilon}_{\eta} \times \boldsymbol{\epsilon}'_{\eta} = \frac{\mathbf{k}_{\eta}}{k_{\eta}}$ et que $\boldsymbol{\epsilon}_{\eta} \times \boldsymbol{\epsilon}'_{-\eta} = -\frac{\mathbf{k}_{\eta}}{k_{\eta}}$ pour obtenir

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 V \sum_{\eta} \frac{(\mathcal{E}_{\eta}^{(1)})^2}{c} \frac{\mathbf{k}_{\eta}}{k_{\eta}} \left[2|\alpha_{\eta}|^2 + (\alpha_{\eta} \alpha_{-\eta} + \alpha_{\eta}^* \alpha_{-\eta}^*) \right] \quad (3.49)$$

Dans la somme ci-dessus, le terme $\alpha_{\eta} \alpha_{-\eta} + \alpha_{\eta}^* \alpha_{-\eta}^*$ a la même valeur pour η et $-\eta$, mais étant donné que $\mathbf{k}_{-\eta} = -\mathbf{k}_{\eta}$, ce terme ne contribue pas à la somme. On a donc finalement

$$\mathbf{P} = 2\epsilon_0 V \sum_{\eta} \frac{(\mathcal{E}_{\eta}^{(1)})^2}{c} \frac{\mathbf{k}_{\eta}}{k_{\eta}} |\alpha_{\eta}|^2 = \sum_{\eta} \hbar \mathbf{k}_{\eta} |\alpha_{\eta}|^2 \quad (3.50)$$

L'opérateur quantique associé à l'impulsion dans la base des ondes planes est donc

$$\hat{\mathbf{P}} = \sum_{\eta} \hbar \mathbf{k}_{\eta} \hat{a}_{\eta}^{\dagger} \hat{a}_{\eta} = \sum_{\eta} \hbar \mathbf{k}_{\eta} \hat{N}_{\eta}. \quad (3.51)$$

Ainsi, les états propres de l'hamiltonien $|n_1, n_2, n_3, \dots\rangle$ sont aussi états propres de $\hat{\mathbf{P}}$:

$$\hat{\mathbf{P}} |n_1, n_2, n_3, \dots\rangle = \left[\sum_{\eta} n_{\eta} \hbar \mathbf{k}_{\eta} \right] |n_1, n_2, n_3, \dots\rangle. \quad (3.52)$$

Tout se passe donc comme si le mode η était peuplé de photons portant non seulement le quantum d'énergie $\hbar\omega_{\eta}$ mais aussi le quantum d'impulsions $\hbar\mathbf{k}_{\eta}$.

Ici nous touchons du doigt une propriété fondamentale, qui est que les propriétés associées aux photons dépendent de la base choisie pour décomposer le champ. En un sens, la notion de mode est donc plus fondamentale que celle de photon. Pour établir une expression utile du moment angulaire porté par les photons, il nous faut choisir des modes normaux adéquats. De façon générale, la procédure consiste à choisir deux opérateurs hermitiques et à chercher leurs états propres communs. Par exemple, nous allons voir qu'une base pratique pour décrire le spin des photons est celle des ondes planes (d'impulsions bien définies) polarisées circulairement (nous verrons qu'elles correspondent à des photons portant un spin bien défini).

3.3.2 Spin des photons

Nous adoptons l'approche précédente pour le calcul de l'opérateur de spin de la lumière. Tout comme pour le calcul de l'impulsion, on revient à l'expression dérivée plus haut pour la partie spin du moment angulaire (équations 3.5). Nous utilisons les décompositions 3.46 de \mathbf{E} et \mathbf{A} sur la base des ondes planes, en écrivant cette fois ci explicitement les deux composantes du champ électrique dans le plan transverse $\eta = (n, s = 1, 2)$:

$$\begin{aligned}\mathbf{E} &= i \sum_n \mathcal{E}_n^{(1)} \left(\boldsymbol{\epsilon}_{n,1} \alpha_{n,1} e^{i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}} - \boldsymbol{\epsilon}_{n,1}^* \alpha_{n,1}^* e^{-i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}} + \boldsymbol{\epsilon}_{n,2} \alpha_{n,2} e^{i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}} - \boldsymbol{\epsilon}_{n,2}^* \alpha_{n,2}^* e^{-i\mathbf{k}_n \cdot \mathbf{r}} \right), \\ \mathbf{A} &= \sum_{n'} \frac{\mathcal{E}_{n'}^{(1)}}{\omega_{n'}} \left(\boldsymbol{\epsilon}_{n',1} \alpha_{n',1} e^{i\mathbf{k}_{n'} \cdot \mathbf{r}} + \boldsymbol{\epsilon}_{n',1}^* \alpha_{n',1}^* e^{-i\mathbf{k}_{n'} \cdot \mathbf{r}} + \boldsymbol{\epsilon}_{n',2} \alpha_{n',2} e^{i\mathbf{k}_{n'} \cdot \mathbf{r}} + \boldsymbol{\epsilon}_{n',2}^* \alpha_{n',2}^* e^{-i\mathbf{k}_{n'} \cdot \mathbf{r}} \right).\end{aligned}\tag{3.53}$$

Rappelons nous que le MAS s'écrit

$$\mathbf{S} = \epsilon_0 \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{E} \times \mathbf{A}.\tag{3.54}$$

En utilisant le fait que les seuls termes croisés donnant une intégrale non nulle sont ceux correspondant à $n' = n$ et $n' = -n$, et le fait que $\boldsymbol{\epsilon}_{n,s} = \boldsymbol{\epsilon}_{-n,s}$, un calcul fastidieux mais facile donne

$$\begin{aligned}\mathbf{S} &= i\hbar \sum_n \boldsymbol{\epsilon}_{n,1} \times \boldsymbol{\epsilon}_{n,2}^* \alpha_{n,1} \alpha_{n,2}^* - \boldsymbol{\epsilon}_{n,1}^* \times \boldsymbol{\epsilon}_{n,2} \alpha_{n,1}^* \alpha_{n,2} \\ &\quad + \boldsymbol{\epsilon}_{n,1} \times \boldsymbol{\epsilon}_{n,1}^* |\alpha_{n,1}|^2 + \boldsymbol{\epsilon}_{n,2} \times \boldsymbol{\epsilon}_{n,2}^* |\alpha_{n,2}|^2.\end{aligned}\tag{3.55}$$

Polarisation linéaire

A ce stade, nous n'avons pas encore choisi les vecteurs $\boldsymbol{\epsilon}_{n,1}$ et $\boldsymbol{\epsilon}_{n,2}^*$. Considérons pour commencer le cas d'une polarisation linéaire. Elle est décrite par des vecteurs réels ($\boldsymbol{\epsilon}_{n,s}^* = \boldsymbol{\epsilon}_{n,s}$) obéissant à

$$\boldsymbol{\epsilon}_{n,1} \times \boldsymbol{\epsilon}_{n,2} = \frac{\mathbf{k}_n}{k_n}.\tag{3.56}$$

On obtient alors

$$\mathbf{S} = i\hbar \sum_n \frac{\mathbf{k}_n}{k_n} [\alpha_{n,1} \alpha_{n,2}^* - \alpha_{n,2} \alpha_{n,1}^*].\tag{3.57}$$

Sans perte de généralité, on peut imposer que $\boldsymbol{\epsilon}_{n,1}$ donne la direction de la polarisation. On a alors $\alpha_{n,2} = 0$ et

$$\mathbf{S} = 0.\tag{3.58}$$

Nous venons de retrouver le fait qu'une onde polarisée linéairement ne porte pas de MAS. On peut écrire le pendant quantique de l'équation 3.57

$$\hat{\mathbf{S}} = i\hbar \sum_n \frac{\mathbf{k}_n}{k_n} [\hat{a}_{n,1} \hat{a}_{n,2}^\dagger - \hat{a}_{n,2} \hat{a}_{n,1}^\dagger].\tag{3.59}$$

Ainsi, l'opérateur $\hat{\mathbf{S}}$ n'a pas d'états propres dans la base des polarisations linéaires.

Polarisation circulaire

Choisissons à présent la base des polarisations circulaires droite et gauche. Les vecteurs de base sont complexes, et donnés par l'équation 2.6. On a dans ce cas

$$\begin{aligned}
 \epsilon_{n,1} \times \epsilon_{n,2} &= -i \frac{\mathbf{k}_n}{k_n}, \\
 \epsilon_{n,1}^* \times \epsilon_{n,2} &= \epsilon_{n,2}^* \times \epsilon_{n,1} = 0, \\
 \epsilon_{n,1}^* \times \epsilon_{n,1} &= i \frac{\mathbf{k}_n}{k_n}, \\
 \epsilon_{n,2}^* \times \epsilon_{n,2} &= -i \frac{\mathbf{k}_n}{k_n}.
 \end{aligned} \tag{3.60}$$

Cette fois-ci, les contributions des deux modes sont découplées et il n'y a pas de termes croisés :

$$\mathbf{S} = \sum_n \frac{\hbar \mathbf{k}_n}{k_n} [|\alpha_{n,1}|^2 - |\alpha_{n,2}|^2] \tag{3.61}$$

L'opérateur quantique MAS est donc donné dans la base des ondes planes de polarisation circulaire par

$$\hat{\mathbf{S}} = \sum_n \frac{\hbar \mathbf{k}_n}{k_n} [\hat{a}_{n,1}^\dagger \hat{a}_{n,1} - \hat{a}_{n,2}^\dagger \hat{a}_{n,2}] = \sum_n \frac{\hbar \mathbf{k}_n}{k_n} [\hat{N}_{n,1} - \hat{N}_{n,2}]. \tag{3.62}$$

L'interprétation de cette expression est claire. On trouve que les photons dans le mode $\eta = (n, 1)$, de polarisation circulaire droite, portent chacun un MAS égal à $\frac{\hbar \mathbf{k}_n}{k_n}$, alors que les photons du mode $\eta = (n, 2)$, de polarisation circulaire gauche, portent chacun le MAS $-\frac{\hbar \mathbf{k}_n}{k_n}$, en parfait accord avec les calculs d'électromagnétisme classique (voir section 2.1.3). Cette propriété fondamentale des photons n'était pas apparente dans la base des polarisations linéaires. Un champ polarisé linéairement étant la somme de deux champs de même amplitude polarisés circulairement en sens contraire, on peut ainsi dire que chaque photon dans un mode de polarisation linéaire se trouve en fait dans une superposition d'états circulaire droite et circulaire gauche, avec des poids égaux et une phase qui détermine l'orientation de la polarisation⁷.

3.3.3 Moment angulaire orbital des photons dans l'approximation paraxiale

Il est possible de calculer, comme pour le MAS, le MAO porté par le champ électromagnétique. On trouve alors qu'il est systématiquement nul pour les ondes planes, de vecteur d'onde \mathbf{k}_n bien défini, ceci étant bien entendu dû au fait que les faisceaux de lumière portant du MAO possèdent une phase variant azimuthalement. Pour calculer le MAO de manière naturelle, on peut se placer dans le cadre de l'approximation

7. Ce raisonnement montre qu'on ne peut pas dire qu'un mode de polarisation linéaire contient des photons de spin 0. Plus généralement, il est faux de dire qu'un mode de polarisation elliptique contient des photons portant un spin variant entre 0 et 1 en valeur absolue. Oublier cette propriété peut mener à des erreurs d'interprétation, comme nous le verrons au chapitre 7.

paraxiale et choisir comme base les modes de LG d'indices $\eta = (\ell, p, s = 1, 2)$ polarisés linéairement. On peut alors montrer que dans cette base [121], le MAO s'écrit

$$\begin{aligned} \mathbf{L} &= \sum_{\eta} \ell \hbar \mathbf{u}_z |\alpha_{\eta}|^2, \\ \hat{\mathbf{L}} &= \sum_{\eta} \ell \hbar \mathbf{u}_z \hat{a}_{\eta}^{\dagger} \hat{a}_{\eta}. \end{aligned} \quad (3.63)$$

On en déduit que les modes de LG forment une base pertinente pour quantifier le MAO du champ électromagnétique.

3.3.4 Moment angulaire total des photons dans l'approximation paraxiale

Enfin, en choisissant comme base les modes de LG polarisés circulairement - c'est-à-dire des modes paraxiaux dont le MAO et le MAS sont bien définis -, on peut montrer que le moment angulaire total du champ s'écrit [121]

$$\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{S}} + \hat{\mathbf{L}} = \sum_n [(\ell + 1) \hbar \hat{N}_{n,1} + (\ell - 1) \hbar \hat{N}_{n,2}] \mathbf{u}_z. \quad (3.64)$$

3.3.5 $\hat{\mathbf{S}}$ et $\hat{\mathbf{L}}$ ne sont pas de véritables opérateurs moment angulaire

De façon générale, un opérateur quantique moment angulaire quelconque s'écrit $\hat{\mathbf{J}}_0 = \hat{\mathbf{r}} \times \hat{\mathbf{p}}$, où $\hat{\mathbf{r}}$ et $\hat{\mathbf{p}}$ sont les opérateurs position et impulsion du système. En nous plaçant en représentation "position", on a $\hat{\mathbf{p}} = -i\hbar \nabla$. $\hat{\mathbf{J}}_0$ obéit les règles de commutation ci-dessous.

$$\begin{aligned} [\hat{J}_{0,x}, \hat{J}_{0,y}] &= \hat{J}_{0,x} \hat{J}_{0,y} - \hat{J}_{0,y} \hat{J}_{0,x} = i\hbar \hat{J}_{0,z}, \\ [\hat{J}_{0,y}, \hat{J}_{0,z}] &= i\hbar \hat{J}_{0,x}, \\ [\hat{J}_{0,z}, \hat{J}_{0,x}] &= i\hbar \hat{J}_{0,y}. \end{aligned} \quad (3.65)$$

Ces commutateurs non-nuls signifient qu'il n'est pas possible de mesurer simultanément la projection d'un moment angulaire quantique sur deux axes différents.

Revenons à l'expression 3.62 que nous avons trouvée pour les MAS $\hat{\mathbf{S}}$ du champ magnétique. L'opérateur $\hat{\mathbf{S}}$ dépend uniquement des opérateurs \hat{N}_{η} , par conséquent toutes ses composantes commutent : $\hat{\mathbf{S}}$ n'est donc pas un moment angulaire valide. On peut montrer qu'il en est de même pour $\hat{\mathbf{L}}$, et que $\hat{\mathbf{S}}$ et $\hat{\mathbf{L}}$ ne commutent pas et ne possèdent donc pas d'états propres communs.

Comme expliqué au début de ce chapitre, l'opérateur $\hat{\mathbf{S}}$ génère des rotations de la direction du champ électrique : en général, le champ acquiert donc une composante selon le vecteur d'onde \mathbf{k} , ce qui détruit sa transversalité. De même, $\hat{\mathbf{L}}$ fait tourner les coordonnées spatiales, ce qui modifie la direction de \mathbf{k} sans changer celle du champ électrique, ce qui le rend également non-transverse. Par contre, $\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{L}} + \hat{\mathbf{S}}$ génère une rotation simultanée dans l'espace réel et dans l'espace du champ électrique, ce qui a pour effet de préserver la transversalité du champ. Pour éclairer cette discussion,

Cohen-Tannoudji *et al.* [122] avancent l'argument suivant. Le spin d'une particule correspond à son moment angulaire total dans le référentiel où elle est au repos (celui où le MAO s'annule). Un tel référentiel n'existe pas pour le photon qui se déplace à la vitesse de la lumière, ainsi le MAS et le MAO d'un photon ne sont pas simultanément mesurables.

3.3.6 Expression des opérateurs moment angulaire de la lumière dans une base quelconque et séparation du MAS et du MAO dans l'approximation paraxiale

Dans la partie qui suit, on utilise une généralisation des résultats précédents au cas de mode normaux quelconques.

Considérons des modes transverses quelconques \mathbf{F}_η obéissant à l'équation d'onde 2.3 et à la condition $\nabla \cdot \mathbf{F}_\eta = 0$. Ces modes doivent être normaux, c'est-à-dire vérifier

$$\langle \mathbf{F}_\eta | \mathbf{F}_{\eta'} \rangle = \int_V d^3\mathbf{r} \mathbf{F}_\eta \cdot \mathbf{F}_{\eta'}^* = \delta_{\eta\eta'}. \quad (3.66)$$

On montre que les expressions 3.28 obtenues dans le cas de la décomposition en ondes planes sont dans le cas général

$$\begin{aligned} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) &= \sum_\eta \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta} \left(\alpha_\eta(t) \mathbf{F}_\eta + \alpha_\eta^*(t) \mathbf{F}_\eta^* \right), \\ \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_\eta \mathcal{E}_\eta^{(1)} \left(\alpha_\eta(t) \mathbf{F}_\eta - \alpha_\eta^*(t) \mathbf{F}_\eta^* \right), \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \sum_\eta \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta} \left(\alpha_\eta(t) \nabla \times \mathbf{F}_\eta - \alpha_\eta^*(t) \nabla \times \mathbf{F}_\eta^* \right). \end{aligned} \quad (3.67)$$

Leur version quantique est simplement [5]

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{A}} &= \sum_\eta \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta} \left(\hat{a}_\eta \mathbf{F}_\eta + \hat{a}_\eta^\dagger \mathbf{F}_\eta^* \right), \\ \hat{\mathbf{E}} &= i \sum_\eta \mathcal{E}_\eta^{(1)} \left(\hat{a}_\eta \mathbf{F}_\eta - \hat{a}_\eta^\dagger \mathbf{F}_\eta^* \right), \\ \hat{\mathbf{B}} &= \sum_\eta \frac{\mathcal{E}_\eta^{(1)}}{\omega_\eta} \left(\hat{a}_\eta \nabla \times \mathbf{F}_\eta + \hat{a}_\eta^\dagger \nabla \times \mathbf{F}_\eta^* \right). \end{aligned} \quad (3.68)$$

Nous reprenons alors les expressions dérivées plus haut pour les parties spin et orbitale du moment angulaire (équations 3.5) :

$$\begin{aligned} \mathbf{L} &= \epsilon_0 \sum_{j=x,y,z} \int_V d\mathbf{r} E_j^\perp (\mathbf{r} \times \nabla) A_j^\perp \\ \mathbf{S} &= \epsilon_0 \int_V d\mathbf{r} \mathbf{E}^\perp \times \mathbf{A}^\perp \end{aligned}$$

En injectant les expressions 3.68, on peut montrer [5] que les opérateurs quantiques associés pour des modes normaux quelconques \mathbf{F}_η sont

$$\begin{aligned} \hat{\mathbf{L}} &= \frac{1}{2} \sum_{\eta, \eta'} \left(\hat{a}_\eta^\dagger \hat{a}_{\eta'} + \hat{a}_{\eta'} \hat{a}_\eta^\dagger \right) \langle \mathbf{F}_\eta | \hat{\mathcal{L}} | \mathbf{F}_{\eta'} \rangle, \\ \hat{\mathbf{S}} &= \frac{1}{2} \sum_{\eta, \eta'} \left(\hat{a}_\eta^\dagger \hat{a}_{\eta'} + \hat{a}_{\eta'} \hat{a}_\eta^\dagger \right) \langle \mathbf{F}_\eta | \hat{\mathcal{S}} | \mathbf{F}_{\eta'} \rangle, \end{aligned} \quad (3.69)$$

avec $\hat{\mathcal{L}}$ et $\hat{\mathcal{S}}$ les opérateurs quantiques standards pour le MAO et le MAS d'une particule de spin 1 :

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{L}} &= -i\hbar \mathbf{r} \times \nabla, \\ (\hat{\mathcal{S}}_k)_{ij} &= -i\hbar \epsilon_{ijk}, \end{aligned} \quad (3.70)$$

où chacun des indices les ijk sont les permutations de xyz et ϵ_{ijk} est le tenseur de Levi-Civita. Il faut distinguer $\hat{\mathbf{L}}$ et $\hat{\mathbf{S}}$ de $\hat{\mathcal{L}}$ et $(\hat{\mathcal{S}}_k)_{ij}$: les premiers agissent sur des états nombre, les seconds sur les modes classiques \mathbf{F}_η . $\hat{\mathcal{L}}$ agit sur la dépendance spatiale de \mathbf{F}_η , tandis que $(\hat{\mathcal{S}}_k)_{ij}$ est un jeu de trois matrices 3×3 agissant sur les composantes cartésiennes de \mathbf{F}_η . En optique classique, on utilise ces deux opérateurs pour obtenir le moment angulaire porté par les faisceaux de lumière. Nous calculerons explicitement les transformations générées par $\hat{\mathcal{L}}$ et $(\hat{\mathcal{S}}_k)_{ij}$ au chapitre 8.

Van Enk *et al.* [5] montrent que les opérateurs $\hat{\mathbf{L}}$ et $\hat{\mathbf{S}}$ ci-dessus sont des opérateurs moment angulaire valides pour le champ électromagnétique **si et seulement si** l'on considère uniquement leur composante sur l'axe z , dans l'approximation paraxiale. Dans ce cas, ces deux opérateurs commutent. On peut alors chercher une base d'états qui les diagonalise : ce sont par exemple les modes de LG polarisés circulairement, comme expliqué section 3.3.4. De plus, \hat{L}_z et \hat{S}_z génèrent bien les rotations de la dépendance spatiale et du champ électrique autour de l'axe z , respectivement. On peut donc appliquer ces rotations séparément, pour des angles quelconques, en préservant la physicalité du champ.

3.4 Un point important : MAS, MAO et symétries de rotation

Au début du chapitre 1, nous avons vu le lien entre conservation du moment angulaire et symétrie de rotation. Tout comme un système mécanique, le moment angulaire des photons est conservé au cours de leur propagation si l'espace dans lequel ils évoluent est invariant par rotation. Néanmoins, il est nécessaire de distinguer invariance par rotation du vecteur position (c'est le cas de la symétrie que nous avons vu au chapitre 1), et isotropie de l'espace. Le MAS des photons, qui est lié à la nature vectorielle du champ électromagnétique, est conservé au cours du temps si la propagation a lieu dans un milieu isotrope, c'est-à-dire dont les caractéristiques locales ne dépendent pas de la direction. Les lames biréfringentes en sont un contre-exemple : leur indice optique dépendant de la direction de polarisation du champ, elles sont capables de modifier le MAS des photons. Un autre contre-exemple que nous traiterons en partie IV est celui

de l'interaction avec le magnétisme : la matière magnétisée présente une anisotropie et les effets magnéto-optiques modifient la polarisation de la lumière. Le MAO, lui, est lié aux variations spatiales du champ, et apparaît même dans un modèle scalaire de la lumière. Il est donc conservé lors de la propagation de la lumière dans des milieux anisotropes, mais pas dans des milieux inhomogènes, dont les caractéristiques dépendent du vecteur position via l'angle azimutal φ . C'est par exemple le cas des lames de phase, donc le chemin optique varie avec φ et qui modifient le MAO des photons. En fait, toute modification du profil azimutal d'un faisceau de lumière - que ce soit en intensité, en phase ou en polarisation - peut contribuer à modifier son contenu en MAO.

Enfin, lors de la propagation dans des milieux dont l'anisotropie varie avec la position (donc anisotropes-inhomogènes), les deux degrés de libertés sont couplés, et le MAS peut être converti en MAO, et vice-versa. On retrouve ce cas de figure chez les q-plates du chapitre 2, ou pour des matériaux magnétiques dont la magnétisation varie spatialement, comme on le verra au chapitre 12.

Conclusion du chapitre

Le formalisme de la seconde quantification nous a permis de faire naturellement apparaître les photons, les excitations élémentaires du champ électromagnétique. Selon la base de modes normaux choisie pour décomposer le champ électromagnétique, on peut associer à un photon individuel des grandeurs bien définies : énergie, impulsion, MAS et MAO. La base des ondes planes donne par exemple des photons portant une impulsion bien définie, tandis que les champs polarisés circulairement ou les modes de LG contiennent respectivement des photons portant un MAS et un MAO précis. A l'inverse, une onde de polarisation linéaire ou elliptique contient des photons se trouvant dans une superposition d'états de MAS $\pm\hbar$, tandis qu'un mode de HG contient des photons dans une superposition d'états de MAO nul en moyenne.

Dans la suite de cette thèse, nous donnerons régulièrement une interprétation de la GHOE en termes de photons. Les résultats du présent chapitre se révéleront alors utiles pour prédire les grandeurs portées par les différents faisceaux harmoniques.

Enfin, nous avons souligné le fait qu'en général les opérateurs $\hat{\mathbf{L}}$ et $\hat{\mathbf{S}}$, associés aux expressions classiques 3.5, ne sont pas des opérateurs quantiques "moment angulaire". En particulier, ils ne peuvent générer des rotations autour d'un axe arbitraire, étant-donné qu'en général cela détruirait la transversalité du champ électromagnétique (contrairement à $\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{L}} + \hat{\mathbf{S}}$, qui est toujours un moment angulaire valide)⁸. En revanche, si l'on se place dans l'approximation paraxiale, on peut montrer que $\hat{\mathbf{L}}$ et $\hat{\mathbf{S}}$, qui sont alors dirigés selon l'axe de propagation z , génèrent des rotations physiquement valides par rapport à l'axe z . On peut alors effectuer des rotations du vecteur position et du vecteur champ électrique *séparément*. Cette propriété des champs paraxiaux sera très importante au chapitre 10, au cours duquel nous serons amenés à définir de nouveaux opérateurs moments angulaires, combinaisons linéaires de $\hat{\mathbf{L}}$ et $\hat{\mathbf{S}}$.

8. En fait, les quantités \mathbf{S} et \mathbf{L} ne sont même pas conservées au cours de la propagation du champ. Pour des faisceaux fortement focalisés, le MAO peut être converti en MAS, et vice-versa. Seul le moment angulaire total est alors conservé.

Deuxième partie

La génération d'harmoniques d'ordre élevé : théorie et expériences

Théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Le premier rayonnement laser est obtenu en 1960 par Théodore Maiman [123] grâce à un cristal de rubis. Un an plus tard seulement, la lumière d'un tel laser, une fois focalisée, permet d'atteindre une valeur crête de champ électrique de l'ordre de 10^5 V/m, correspondant à une puissance instantanée de 10^7 W/m². Cette intensité jusqu'alors inégalée rend possible la première expérience de génération de seconde harmonique [124]. L'optique non-linéaire est née et connaît rapidement un essor prodigieux, avec la mise en évidence de nombreux phénomènes durant la décennie 1960 : absorption à deux photons [125], mélange à quatre ondes [126], conversion paramétrique spontanée [127], etc.

Les champs électriques obtenus grâce aux lasers impulsionsnels de cette époque demeureraient cependant bien inférieurs à celui régnant au cœur des atomes, et liant les électrons au noyau atomique. Typiquement, un proton crée un champ électrique d'environ 10^{11} V/m à une distance de 1\AA , qui correspond à une intensité laser instantanée de l'ordre de 10^{20} W/m², ou 10^{16} W/cm². Des intensités laser élevées mais inférieures à 10^{14} W/cm² permettent au cours de la décennie 1970 des expériences d'ionisation ou de transition multi-photoniques [128], au cours desquelles un certain nombre de photons laser sont absorbés pour tout juste dépasser le seuil d'ionisation dans le premier cas, ou bien pour amener l'atome dans un état excité dans le second. Dans ce régime, les effets multi-photon sont dits *perturbatifs*, c'est-à-dire que l'efficacité des processus peut être développée en puissances de la valeur du champ laser. Typiquement, la probabilité d'un effet à n photons est donnée par

$$P^{(n)} \propto I^n, \tag{4.1}$$

où I est l'intensité du laser. La figure 4.1 montre ainsi les probabilités d'ionisation du xénon, du krypton et de l'argon, processus qui requièrent respectivement l'absorption de 11, 13 et 14 photons de longueur d'onde 1064 nm. Les processus impliquant un nombre élevé de photons sont bien moins probables que ceux impliquant un nombre de photons faible.

Il faut attendre les années 1980 pour que les progrès des laser (avec notamment l'invention de l'amplification par dérive de fréquence, ou CPA [129]) permettent d'atteindre des intensités de l'ordre de 10^{14} W/cm², suffisamment élevées pour déformer significativement le potentiel coulombien. Deux phénomènes sont alors découverts :

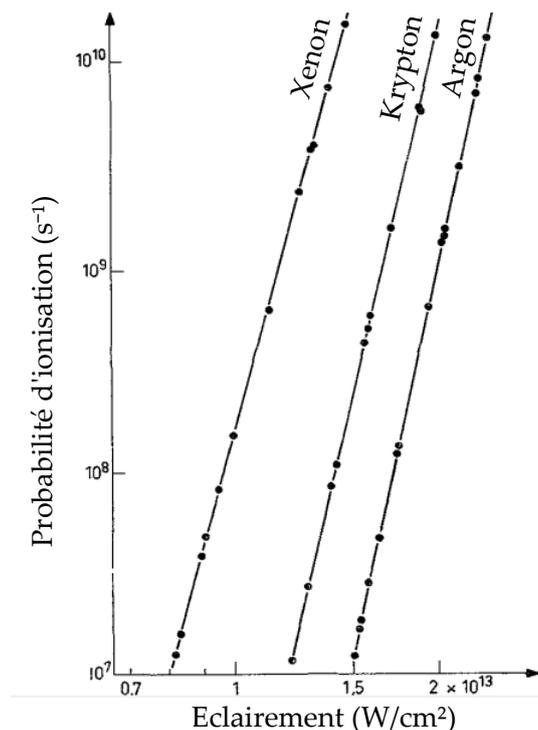


FIGURE 4.1 – Variation de la probabilité d'ionisation multi-photonique du xénon, du krypton et de l'argon, en fonction de l'éclairement laser. La longueur d'onde de ce dernier est 1064 nm. Les pentes de ces trois droites valent respectivement 11 ± 0.2 , 13 ± 0.2 et 14 ± 0.2 . Tiré de [128].

l'ionisation au-dessus du seuil, ou *above threshold ionization* (ATI) en anglais, en 1979 [130, 131]; et la génération d'harmoniques d'ordres élevés au cours des années 1987 et 1988.

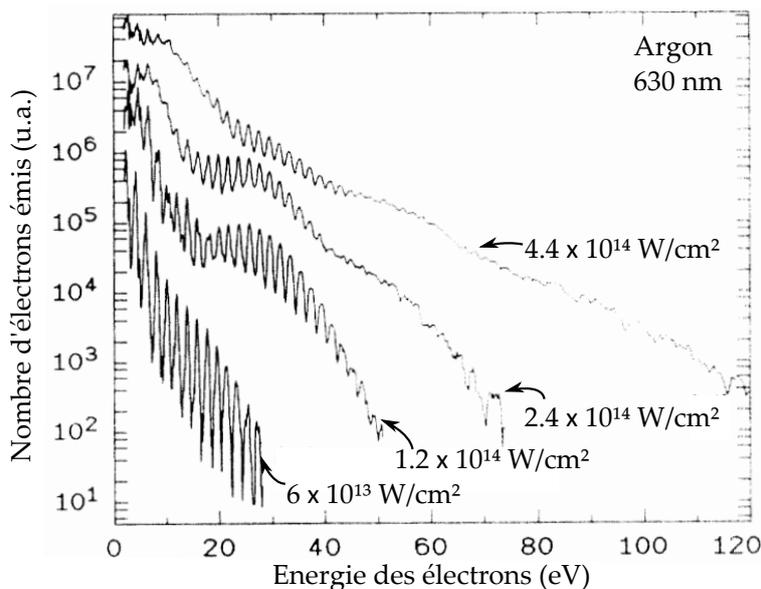


FIGURE 4.2 – Spectre d'ATI dans l'argon à 630 nm, pour différentes intensités crêtes. La durée des impulsions laser est 40 fs. Tiré de [132].

En ATI, l'émission d'un électron a lieu en absorbant plus de photons que nécessaires pour dépasser le seuil d'ionisation de l'atome. En mesurant les énergie des électrons arrachés, on obtient les spectres typiques de la figure 4.2. On observe une série de pics situés aux énergies multiples de celle d'un photon du laser. Pour un laser visible ou IR et aux intensités "modérées", sous les 10^{14} W/cm², la hauteur des pics décroît rapidement avec l'énergie. Pour des intensités supérieures à 10^{14} W/cm², un phénomène remarquable se produit. Après une décroissance aux basse énergies, le spectre présente un large *plateau*, au sein duquel un grand nombre de pics ont des intensités similaires. Au delà d'une certaine énergie, le signal d'électrons chute à nouveau. Cet effet nouveau ne pouvait être expliqué par la théorie des perturbations (équation 4.1), signe que des phénomènes physique encore inexplorés étaient à l'œuvre.

Les premières harmoniques d'ordre élevé sont observées en 1987 par McPherson *et al.* [50] à Chicago : 6 harmoniques d'un laser délivrant des impulsions picoseconde à 248 nm sont détectées. En 1988, Ferray *et al.* [51] observent jusqu'à l'harmonique d'ordre 33 d'un faisceau laser de longueur d'onde 1064 nm, au CEA Saclay. L'harmonique 33 a une longueur d'onde de 32 nm ; ce processus a donc converti un champ infrarouge en un rayonnement situé dans l'ultraviolet extrême.

La figure 4.3 est tirée de l'article de 1988. Comme pour l'ATI, le spectre de GHOE commence par décroître avec la fréquence, avant de former un plateau. Un grand nombre d'harmoniques sont ainsi émises avec des rendements similaires. Il existe une fréquence de coupure, appelée *cut-off* en anglais, au delà de laquelle le signal chute très fortement.

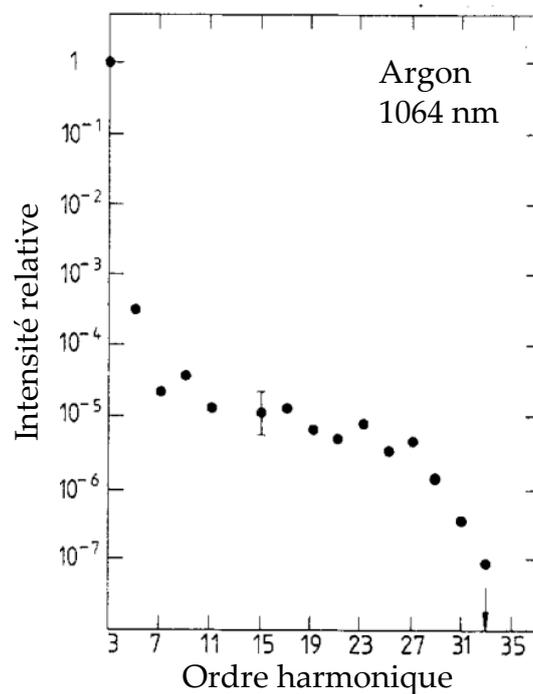


FIGURE 4.3 – Spectre d'harmoniques obtenu en 1988 dans l'argon à 1064 nm. L'intensité est indiquée en fraction de celle de l'harmonique 3. L'intensité du champ de génération est de 3×10^{13} W/cm⁻². La flèche indique la dernière harmonique détectée. Extrait de [51].

4.1 Harmoniques d'ordre élevé générées par un atome unique

4.1.1 Modèle à trois étapes

Pour expliquer la GHOE, un modèle est proposé en 1993 par Paul Corkum [133] et Ken Schafer *et al.* [134]. Plutôt que d'utiliser la théorie perturbative de l'interaction lumière-matière, qui montre ici ses limites, l'idée est de revenir dans le domaine temporel et de calculer les trajectoires possibles d'un électron arraché à l'atome, et soumis au champ électrique du laser. Ce modèle simple, appelé *modèle à trois étapes*, décompose le phénomène en trois phases successives.

- (1) **Ionisation tunnel.** Le champ laser, polarisé linéairement, est si intense qu'il déforme le potentiel coulombien de l'atome. Une barrière de potentiel est créée, qu'un électron dans l'état fondamental peut traverser par effet tunnel.
- (2) **Accélération dans le continuum.** Cet électron libéré est traité comme une particule chargée classique, sensible uniquement au champ électrique du laser (on néglige la force attractive de l'ion). Il est accéléré par ce dernier, freiné, puis ramené vers l'ion après le changement de signe du champ laser.
- (3) **Recombinaison.** L'électron peut repasser par l'origine et recombiner avec l'ion. Ce faisant, il cède l'énergie cinétique qu'il a accumulée pendant son trajet dans le continuum sous la forme d'un photon de fréquence dans le domaine XUV. La connaissance des différentes trajectoires possibles et de leur énergie cinétique finale doit donc permettre de prédire certaines caractéristiques du spectre de GHOE.

Dans la suite, nous détaillons successivement ces trois étapes et dégageons les grandeurs importantes.

Ionisation tunnel

On considère un électron dans l'état fondamental de l'atome d'hydrogène (on fait cette hypothèse pour négliger l'influence d'autres électrons, mais les résultats seront généralisables à d'autres atomes). L'énergie de l'état fondamental est $-I_p$, où I_p est le potentiel d'ionisation : c'est l'énergie minimale (positive) qu'il faut fournir pour extraire l'électron du potentiel. Ici le problème est à une dimension spatiale de coordonnée x , et le potentiel coulombien est donné par¹ $V_C(x) = -\frac{e}{4\pi\epsilon_0|x|}$. Si l'atome est plongé dans un champ électrique homogène, de fréquence ω et polarisé selon x , de la forme $E(t) = E_0 \cos(\omega t)\mathbf{u}_x$, l'énergie potentielle de l'électron est

$$V(x) = eV_C(x) - xeE(t) = -\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0|x|} - xeE_0 \cos(\omega t). \quad (4.2)$$

La figure 4.4 montre l'allure du potentiel à différents instants, pour un champ laser $E_0 = 0.06$ unités atomiques. Au moment où le champ laser atteint un maximum (en $t = 0$ ici), la barrière de potentiel est abaissée du côté des x négatifs, et possède alors

1. Dans la suite de ce chapitre, on utilisera régulièrement le système d'unités atomiques, dans lequel les propriétés fondamentales de l'atome (masse et charge de l'électron m et e , constante de Planck \hbar , rayon de Bohr a_0) valent 1.

une largeur finie. Une fraction du paquet d'ondes électronique peut la traverser par effet tunnel, et la probabilité que cela se produise est fonction de la largeur, de la hauteur de la barrière ainsi que du temps pendant lequel elle demeure abaissée. Si le champ E_0 dépasse une certaine valeur seuil, la hauteur de la barrière devient inférieure à $-I_p$, on a alors ionisation par suppression de barrière (l'intégralité du paquet d'ondes électronique est arraché à l'atome) [135]. L'intensité seuil I_{sat} au delà de laquelle cela se produit est appelée intensité de *saturation*, et on note E_{sat} le champ laser correspondant.

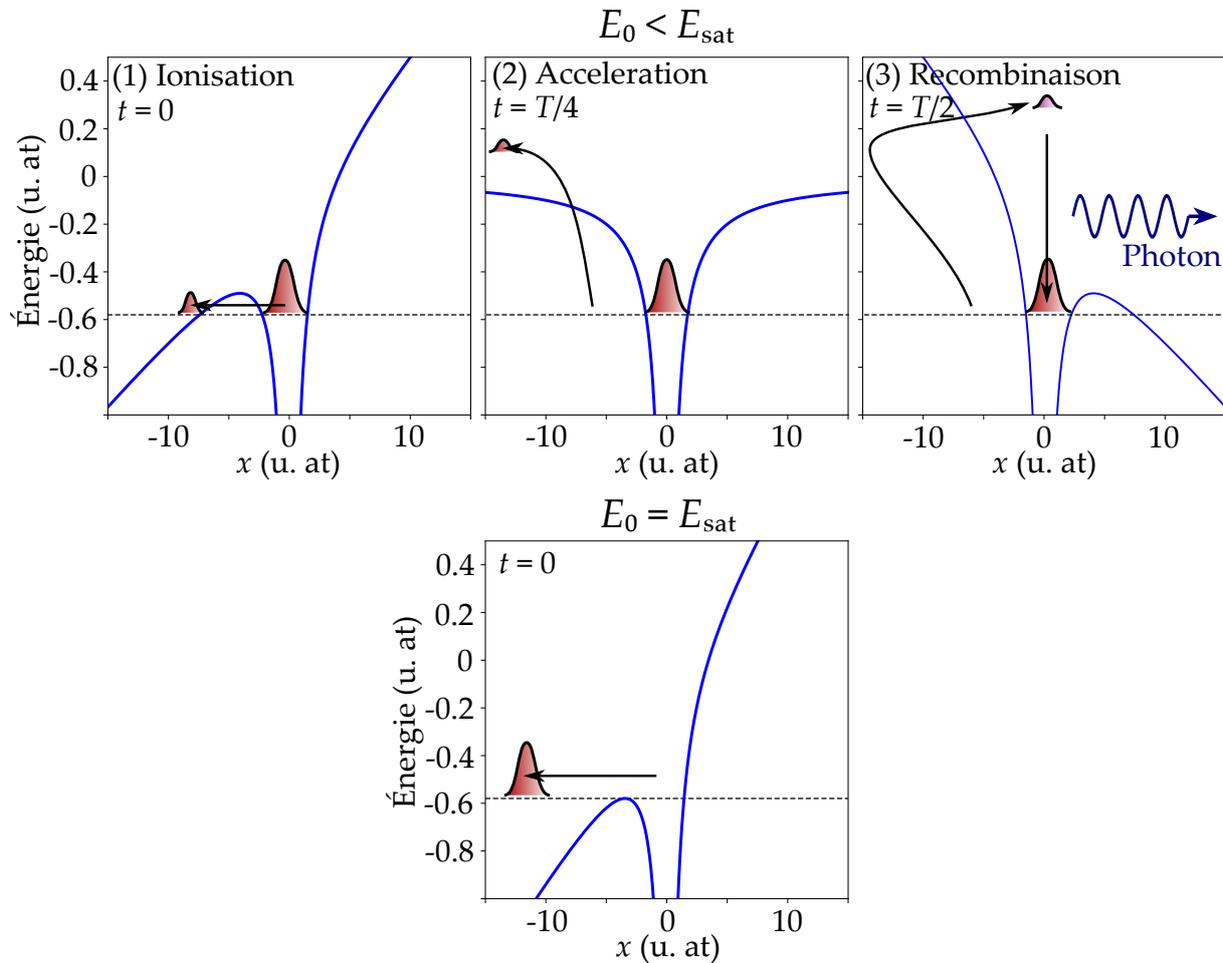


FIGURE 4.4 – Énergie potentielle de l'électron dans l'argon, pour un champ laser $E_0 = 0.06$ unités atomiques en haut). Le potentiel d'ionisation est $I_p = 0.58$ unités atomiques, et la ligne pointillée horizontale indique l'énergie $-I_p$. (1) Ionisation tunnel au temps $t = 0$. (2) Le champ laser s'annule au temps $t = T/4$, l'électron avance alors à une vitesse presque constante. (3) Le champ laser a changé de signe, et atteint de nouveau un module maximal au temps $t = T/2$. L'électron est rappelé vers le noyau mais possède désormais une énergie cinétique supplémentaire, qui est convertie en un photon lors de la recombinaison. Pour un champ de saturation $E_0 = 0.84$ unités atomiques, la barrière de potentielle est supprimée et le paquet d'ondes électronique quitte l'atome (en bas).

Bien que le champ de saturation soit une grandeur dynamique [136], on peut en calculer un ordre de grandeur en dérivant l'énergie potentielle par rapport à x :

$$\frac{dV}{dx} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 x^2} - eE_0.$$

A la limite de saturation, $\frac{dV}{dx}$ s'annule au point $x_0 = \sqrt{\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0 E_{\text{sat}}^2}}$, et on

a $V(x_0) = -I_p$. On trouve donc

$$E_{\text{sat}} = \frac{\pi\epsilon_0}{e^3} I_p^2. \quad (4.3)$$

Le tableau suivant donne les potentiels d'ionisation et les intensités de saturation de quelques gaz couramment utilisés en GHOE. Au cours de cette thèse on utilisera majoritairement l'argon, dont l'intensité de saturation est de $2.47 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Cela correspond à un champ électrique de $2.16 \times 10^{10} \text{ V/m}$, ou 0.084 unités atomiques.

Gaz	I_p (eV)	I_{sat} (10^{14} W/cm^2)
He	24.58	14.62
Ne	21.56	8.65
Ar	15.76	2.47
Kr	14	1.54
Xe	12.13	0.87

(4.4)

Comme on va le voir, la GHOE a lieu dans le régime d'ionisation tunnel, donc pour des intensités inférieures à I_{sat} . Dans l'argon, elle seront de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 . Toutefois, l'intensité instantanée n'est pas le seul paramètre important. La probabilité de l'ionisation tunnel augmentant avec le temps, il nous faut également quantifier la durée pendant laquelle la barrière de potentiel est abaissée. Pour cela, on utilise généralement le paramètre de Keldysh [137]

$$g = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}}. \quad (4.5)$$

$U_p = \frac{Ie^2}{4\epsilon_0 mc\omega^2}$ est l'énergie pondéromotrice du champ, correspondant à l'énergie cinétique moyennée dans le temps acquise par l'électron dans le champ laser. Le régime d'ionisation tunnel correspond à g petit devant 1. Pour une intensité de 10^{14} W/cm^2 à 800 nm on obtient $U_p = 12 \text{ eV}$, ce qui donne pour l'argon $g = 0.8$, donc dans le régime d'ionisation tunnel. Pour des longueurs d'onde plus grandes, g diminue², tandis que pour des longueurs d'onde plus courtes on se trouve dans le régime $g > 1$ où l'ATI est favorisée. Pour atteindre les $\sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$ qui permettent de se trouver dans le régime propice à la GHOE, on utilisera des impulsions laser de quelques milli-joules et de durée femtoseconde.

Accélération dans le continuum

On considère maintenant la fraction du paquet d'ondes électronique qui a franchi la barrière coulombienne au temps t_i . On suppose que sa dynamique est celle d'une particule chargée classique sous l'effet de la force de Lorentz du champ laser, et on note $x(t)$ la position de l'électron au cours du temps. On a alors

$$\frac{d^2x}{dt^2} = -\frac{eE_0}{m} \cos \omega t. \quad (4.6)$$

2. On verra qu'il peut être intéressant de générer des harmoniques d'ordre élevé avec des longueurs d'onde laser de quelques microns.

On suppose qu'à l'instant d'ionisation tunnel t_i , la position et la vitesse de l'électron sont $x(t_i) = 0$ et $\dot{x}(t_i) = 0$ ³. En intégrant l'équation précédente, il vient

$$\begin{aligned}\dot{x}(t) &= -\frac{eE_0}{m\omega} (\sin \omega t - \sin \omega t_i), \\ x(t) &= \frac{eE_0}{m\omega^2} (\cos \omega t - \cos \omega t_i) + \frac{eE_0}{m\omega} \sin(\omega t_i)(t - t_i).\end{aligned}\quad (4.7)$$

La position de l'électron oscille et dérive au cours du temps, et peut périodiquement repasser par le point $x = 0$. Par exemple, pour $t_i = 0$, ce qui correspond à un électron émis au moment du maximum du champ laser, la trajectoire retourne en $x = 0$ après exactement un cycle optique. La trajectoire est en fait la somme d'un terme oscillant et d'une droite dont la pente $\sin(\omega t_i)$ peut être positive ou négative.

La figure 4.5 montre quelques trajectoires possibles. Les temps d'ionisation t_i compris dans l'intervalle $[0, T/4]$ donnent naissance à des trajectoires qui repassent toutes par $x = 0$. L'énergie cinétique de l'électron à l'instant de recombinaison t_r où ce dernier repasse par l'origine correspond à la pente de la trajectoire au temps t_r : cette dernière est nulle pour $t_i = 0$ (l'électron atteint le point $x = 0$ avec une vitesse nulle) et $t_i = T/4$. Entre ces deux temps d'ionisation, l'énergie à la recombinaison atteint un maximum. Les temps d'ionisation compris dans l'intervalle $[-T/4, 0]$ donnent des trajectoires divergentes. Le même comportement a lieu pour t_i dans l'intervalle $[T/4, 3T/4]$, où le champ laser est négatif, mais par symétrie les trajectoires sont alors situées du côté des x positifs⁴.

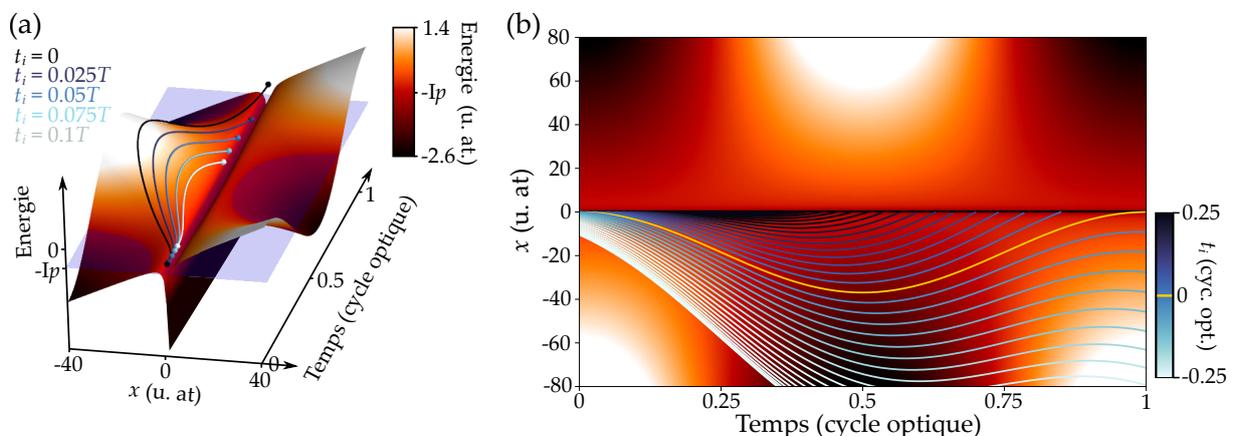


FIGURE 4.5 – (a) Le potentiel $V(x, t)$ est représenté par une surface sur laquelle l'électron se déplace. 5 trajectoires correspondant à des temps d'ionisation répartis régulièrement de $t_i = 0$ à $t_i = T/10$ sont représentées. Le plan transparent correspond à l'énergie $-I_p$ de l'état fondamental. (b) Trajectoires correspondant à divers t_i dans l'intervalle $[-T/4, T/4]$. La courbe jaune montre la trajectoire obtenue pour $t_i = 0$.

3. Il s'agit d'hypothèses fortes : à cause de la relation d'incertitude d'Heisenberg, l'électron "émis" possède en réalité une certaine distribution d'impulsion.

4. Notons que l'électron voyage vraiment "loin" du noyau atomique [138]. On obtient un ordre de grandeur grâce au facteur $eE_0/m\omega^2$ dans l'équation 4.7, qui vaut environ 1 nm à une longueur d'onde de 800 nm et un champ $E_0 = 3 \times 10^{10}$ V/m ; et presque 4 nm pour une longueur d'onde double de 1600 nm. C'est bien supérieur à la taille typique des atomes (~ 0.1 nm).

Recombinaison et énergie du photon émis

Certaines des trajectoires électroniques repassent donc un grand nombre de fois à proximité du noyau. On pourrait penser que chacun de ces retours en $x = 0$ peut mener à une recombinaison radiative. En réalité, nos calculs ne tiennent pas compte du fait que le paquet d'ondes électronique s'étale dans la direction y au cours du temps (l'électron est une particule "libre" sur l'axe y , alors qu'il est "confiné" par le champ laser dans la direction x). A chaque passage près de l'ion, la probabilité de recombinaison est donc plus faible qu'au passage précédent : en pratique seul le premier instant de retour t_r est important.

On obtient facilement l'énergie cinétique K de l'électron au temps t_r à partir de l'équation 4.7

$$K(t_r) = \frac{e^2 E_0^2}{2m\omega^2} (\sin \omega t_r - \sin \omega t_i)^2. \quad (4.8)$$

En vertu de la conservation de l'énergie, la recombinaison de l'électron avec l'ion mène à l'émission d'un photon d'énergie

$$\hbar\omega_{\text{xuv}} = I_p + K(t_r). \quad (4.9)$$

$K(t_r)$ est tracée sur la figure 4.6 pour différents couples (t_i, t_r) (donc différentes tra-

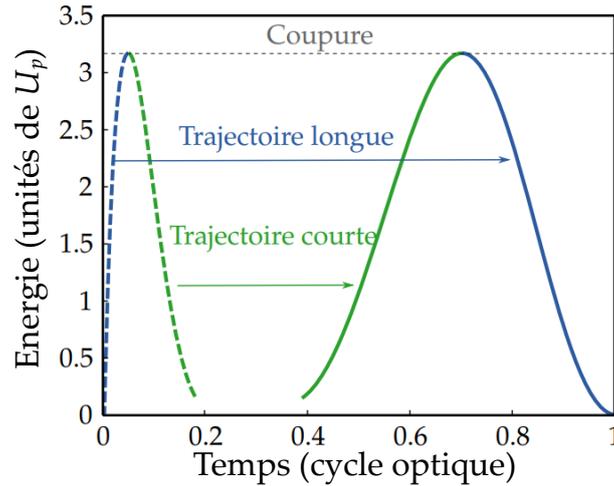


FIGURE 4.6 – Énergie cinétique de recombinaison $K(t_r)$, pour différents couples (t_i, t_r) . Les temps d'ionisation t_i sont tracés en pointillés, les temps de recombinaison avec des traits pleins. Les trajectoires courtes correspondent aux courbes vertes, les trajectoires longues aux courbes bleues. Tiré de [139].

jetoires électroniques). La figure se lit de la façon suivante. Pour obtenir une énergie de recombinaison donnée (donc une ordonnée fixée sur le graphe), deux trajectoires (t_i, t_r) sont possibles. Elles correspondent à des temps de séjour de l'électron dans le continuum différents, pour cette raison on parlera de trajectoires *courtes* et *longues*. Pour les trajectoires courtes, l'énergie augmente avec le temps de recombinaison, et c'est l'inverse pour les trajectoires longues. On voit de plus sur la figure qu'il existe une énergie de recombinaison maximale, égale à environ $3.17U_p$. L'énergie de photon maximale possible est donc

$$\hbar\omega_{\text{max}} \approx I_p + 3.17U_p. \quad (4.10)$$

Cette équation donne la fréquence de coupure du spectre de GHOE. Pour avoir un ordre de grandeur, considérons un champ laser de 2×10^{14} W/cm² et de longueur d'onde 800 nm. On obtient $U_p \approx 12$ eV, et l'expression précédente donne alors pour l'argon $\hbar\omega_{\max} \approx 53.8$ eV, donc dans le domaine XUV. Sur la figure 4.6, on voit que l'énergie de coupure correspond à une dégénérescence des trajectoires courte et longue : une unique trajectoire mène à l'émission d'un photon d'énergie $\hbar\omega_{\max}$.

En observant l'équation 4.10 ainsi que la définition de l'énergie pondéromotrice, on comprend qu'il existe plusieurs façons d'augmenter l'énergie de coupure. On peut tout d'abord augmenter I_p , donc choisir un gaz "difficile" à ioniser, comme l'hélium (voir tableau 4.4). Ensuite, puisque U_p est proportionnelle à l'intensité du laser, on peut augmenter cette dernière. On sait toutefois qu'il faut rester sous l'intensité de saturation, ce qui limite fortement l'intensité maximale permise. Enfin, U_p est inversement proportionnelle à ω^2 , donc varie comme le carré de la longueur d'onde. Des énergies de photons de l'ordre du keV, correspondant à des ordres harmoniques supérieurs à 5000, ont ainsi pu être obtenues avec des laser dans l'infrarouge moyen [140].

Pour le moment, bien que nous ayons pu prédire la valeur de l'énergie de coupure, nous n'avons pas encore prédit la présence d'*harmoniques* à proprement parler : toutes les énergies possibles sont présentes sur la figure 4.6. La discrétisation du spectre de GHOE apparaît lorsqu'on considère plusieurs émissions successives. L'enchaînement des trois étapes (ionisation, accélération, recombinaison) que nous venons de décrire se produit en fait à chaque extremum du champ laser, donc deux fois par période. Cette périodicité temporelle se traduit dans le domaine spectral par des harmoniques séparées de 2ω . Les harmoniques d'ordre paires interférant destructivement dans les milieux de génération centro-symétriques, comme les gaz nobles utilisés ici, on trouve que seules les harmoniques d'ordres impairs sont émises.

Fondamentalement, le processus de GHOE est de nature quantique : il provient de l'interférence entre le paquet d'ondes qui a voyagé dans le continuum (et possède une longueur d'onde de De Broglie faible du fait de son énergie cinétique) et celui qui est resté dans l'état fondamental de l'atome. Pour voir à quel point le modèle classique précédent est valide, il nous faut donc maintenant décrire l'électron de façon quantique.

4.1.2 Traitement quantique de l'atome

Modèle de Lewenstein

En 1994, Maciej Lewenstein *et al.* proposent un modèle de GHOE où l'électron obéit aux lois de la mécanique quantique [141]. Ce traitement demeure semi-classique, car le champ du laser est encore traité comme une onde classique. Dans cette partie, nous décrivons succinctement ce modèle et ses prédictions.

L'électron est soumis au potentiel de l'équation 4.2. Sa fonction d'onde ψ obéit à l'équation de Schrödinger, écrite dans le système d'unités atomiques

$$i \frac{d|\psi\rangle}{dt} = \left(-\frac{1}{2} \nabla^2 + V_C(x) + xE(t) \right) |\psi\rangle. \quad (4.11)$$

On fait alors les hypothèses suivantes. Tout d'abord, on considère uniquement l'état fondamental de l'atome, et on néglige les éventuels transferts vers des états excités, hypothèse justifiée dans le régime $g \ll 1$. Ensuite, on suppose que dans le continuum,

le paquet d'ondes subit uniquement l'effet du champ laser, sans ressentir celui du potentiel coulombien : c'est l'*approximation de champ fort*, ou *strong-field approximation* en anglais. Enfin, on néglige la déplétion de l'état fondamental, ce qui est encore une fois possible dans le régime d'ionisation tunnel où l'intensité laser est faible comparée à l'intensité de saturation [141]. Le moment dipolaire de l'électron (correspondant à sa position moyenne) est alors donné par

$$D(t) = \langle \psi(t) | x | \psi(t) \rangle. \quad (4.12)$$

Lewenstein *et al.* donnent son expression sous la forme

$$D(t) = -i \int_0^t dt_i \int d\mathbf{p} d_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)}^* e^{i\mathcal{S}(\mathbf{p}, t_i, t)} \mathbf{E}(t_i) \mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t)}. \quad (4.13)$$

Dans cette équation, \mathbf{d} est le dipôle de transition entre l'état fondamental et le continuum, $\mathbf{p}(t)$ est l'impulsion et $\mathbf{A}(t)$ est le potentiel vecteur du champ laser. $\mathcal{S}(\mathbf{p}, t_i, t)$ est l'action associée à la trajectoire démarrant au temps t_i , d'impulsion $\mathbf{p}(t)$ et recombinant au temps t . On peut interpréter l'expression ci-dessus en observant les termes successifs, de droite à gauche. Ils correspondent aux trois étapes du modèle classique précédent.

- (1) **Ionisation tunnel.** A l'instant d'ionisation t_i , une partie du paquet d'ondes passe de l'état fondamental à un état du continuum d'impulsion $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_i)$. L'amplitude de cette transition est $\mathbf{E}(t_i) \mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_i)}$.
- (2) **Accélération dans le continuum.** Sous l'effet du champ laser, le paquet d'ondes acquiert une phase proportionnelle à l'action

$$\mathcal{S}(\mathbf{p}, t_i, t_r) = - \int_{t_i}^{t_r} \left(I_p + \frac{1}{2} (\mathbf{p}(t) + \mathbf{A}(t))^2 \right) dt. \quad (4.14)$$

- (3) **Recombinaison.** L'impulsion finale du paquet d'ondes est $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r)$. L'amplitude du dipôle de recombinaison est le conjugué de celle du dipôle d'ionisation, $\mathbf{d}_{\mathbf{p}+\mathbf{A}(t_r)}^*$.

Le spectre de GHOE est finalement obtenu en prenant la transformée de Fourier de $D(t)$

$$D(\omega_q) = \int_{-\infty}^{+\infty} D(t_r) e^{i\omega_q t_r} dt_r = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_r \int_0^{t_r} dt_i \int d\mathbf{p} b_q(t_r, t_i, \mathbf{p}) e^{i\phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p})}. \quad (4.15)$$

A partir de maintenant on notera q l'ordre de l'harmonique, et ω_q sa fréquence. Le rayonnement de GHOE est donc la somme d'une infinité de chemins possibles, ce qui rend le calcul de $D(\omega_q)$ ardu. Toutefois, les amplitudes associées à la plupart des chemins interfèrent destructivement, et finalement seuls ceux pour lesquels la phase ϕ_q est stationnaire contribuent significativement à l'émission [142]. Cette phase s'écrit

$$\phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p}) = \omega_q t_i - \int_{t_i}^{t_r} \left(I_p + \frac{1}{2} (\mathbf{p}(t) + \mathbf{A}(t))^2 \right) dt. \quad (4.16)$$

On cherche donc les chemins qui minimisent ou maximisent $\phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p})$, pour lesquels son gradient s'annule. La résolution de l'équation $\nabla \phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p}) = \mathbf{0}$ permet de calculer

les trajectoires (t_r, t_i, \mathbf{p}) dominantes. On trouve alors qu'il existe deux familles de trajectoires, qui sont analogues aux trajectoires courtes et longues obtenues par le calcul classique, et qui correspondent à des temps d'ionisation complexes, un artéfact dû à l'étape à l'ionisation tunnel. Le modèle de Lewenstein prédit des énergies de recombinaison pour les différents couples (t_i, t_r) proches de celles obtenues classiquement (figure 4.6).

Simulation de l'équation de Schrödinger dépendant du temps

La figure 4.7 montre le résultat d'une simulation unidimensionnelle, où nous résolvons l'équation de Schrödinger via la méthode de Crank-Nicolson [143]. On considère un potentiel de Coulomb "doux", c'est-à-dire sans singularité en $x = 0$, s'écrivant $-1/\sqrt{x^2 + 2}$, et modélisant un atome d'hydrogène. La pulsation laser est de 0.05 unités atomiques, et le champ laser vaut 0.05 unités atomiques. La figure 4.7.a montre le module carré de la fonction d'onde au cours du temps. La probabilité de présence de l'électron oscille de part et d'autre de $x = 0$, et l'on peut voir des filaments de fonction d'onde s'éloigner et revenir vers le noyau aux alentours des extrema du champ laser. Comme dans le modèle de Lewenstein, le champ rayonné est donné par la transformée de Fourier du moment dipolaire $\langle \psi(t) | x | \psi(t) \rangle$. Le résultat est montré figure 4.7.c : on obtient comme prévu un spectre composé d'harmoniques impaires, dont l'intensité présente une décroissance aux harmoniques basses, un plateau, et une énergie de coupure.

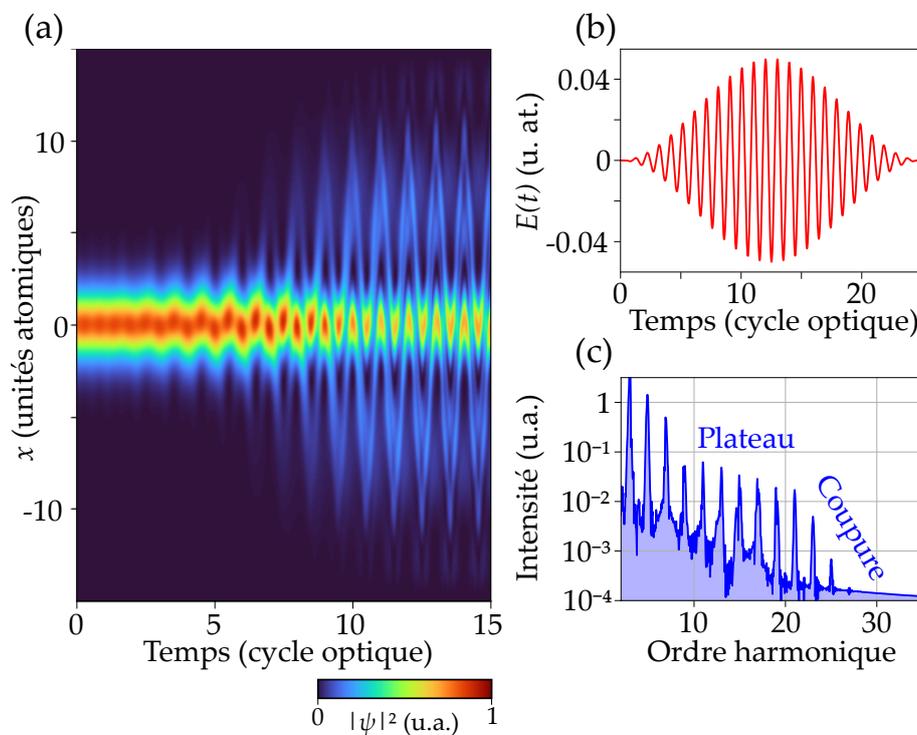


FIGURE 4.7 – GHOE simulée en résolvant l'équation de Schrödinger dépendant du temps par la méthode de Crank-Nicolson. (a) Modulé carré de la fonction d'onde de l'électron $|\psi^2(x, t)|$. (b) Champ laser au cours du temps. (c) Spectre rayonné par le dipôle.

Comme évoqué plus haut, la présence d'harmoniques dans le spectre est liée à la périodicité temporelle des événements de recombinaison. Une impulsion laser de 25 fs et de longueur d'onde centrée sur 800 nm contient une dizaine de cycles optiques, et donc une vingtaine d'instants d'émission de lumière XUV. Depuis une dizaine d'années, il est possible de synthétiser des impulsions lumineuses infrarouge de quelque cycles optiques, voir contenant un unique cycle optique. Quand de telles impulsions sont utilisées en GHOE, une unique bouffée de rayonnement est émise et les harmoniques fusionnent pour donner un continuum de fréquence [144].

4.1.3 Phases spectrale et spatiale des harmoniques, impulsions attosecondes

Phase spectrale

Après la découverte du phénomène de GHOE, on comprit assez rapidement qu'il pourrait être utilisé pour synthétiser des impulsions lumineuses extrêmement brèves [145]. La GHOE fournit en effet un rayonnement de largeur spectrale de plusieurs dizaines d'eV. Durées et largeurs spectrales sont reliées par l'inégalité de Cauchy-Schwartz. En terme d'énergie de photon exprimée en eV, elle s'écrit [146]

$$\Delta E(\text{eV}) \times \Delta t \geq 4 \ln(2) \frac{\hbar}{e} = 1.8 \times 10^{-15} \text{eV} \cdot \text{s} = 1.8 \text{eV} \cdot \text{fs}. \quad (4.17)$$

$\Delta t = 4 \ln(2) \hbar / e \Delta E$ est donc la durée minimale que peut atteindre une impulsion de largeur spectrale ΔE . Pour un spectre large de $\Delta E = 18 \text{eV}$, on obtient $\Delta t \approx 100 \text{as}$. Pour atteindre de telles durées, il faut cependant contrôler la *phase spectrale* du rayonnement, c'est-à-dire s'assurer que les différentes harmoniques ont une relation de phase précise. Pour une phase spectrale aléatoire, on obtient en effet un laser continu ne présentant pas d'impulsions.

Considérons un spectre composé d'un nombre N d'harmoniques impaires infiniment fines spectralement, d'amplitude $|E_q|$, de fréquences ω_q et de phase spectrale ϕ_q . Le champ XUV total est⁵

$$E_{xuv}(t) = \sum_{q_{\min}}^{q_{\min}+2N} |E_q| e^{i(\omega_q t + \phi_q)}. \quad (4.18)$$

Ce peigne de Dirac dans le domaine fréquentiel correspond à un peigne infiniment long de sinus cardinaux dans le domaine temporel. Chacune de ces bouffées de rayonnement est une impulsion attoseconde émise au moment d'un extremum du champ infrarouge. On parlera de trains d'impulsions attosecondes. On peut alors distinguer différents cas, selon la manière dont ϕ_q varie avec q .

Si $\phi_q = \text{constante}$, ou $\phi_q \propto q$, la durée des impulsions résultantes est dite *limitée par transformée de Fourier*, et elle est donnée par l'équation 4.17. La seule différence entre

5. Les harmoniques les plus basses sont émises avec une intensité bien plus élevée que celles du plateau, ce qui donne un rayonnement dont la largeur spectrale ΔE est trop faible. Pour synthétiser des impulsions attosecondes, il faut donc tout d'abord filtrer les ordres harmoniques bas. C'est pourquoi on aura en pratique q_{\min} de l'ordre de 9 dans l'équation 4.18.

les deux cas est une translation dans le temps, d'une durée $t_e = -\frac{\partial\phi_q}{\partial\omega}$ correspondant à un temps d'émission de l'impulsion.

Si ϕ_q varie différemment, par exemple quadratiquement avec la fréquence $\phi_q \propto q^2$, la durée des impulsions augmente. L'impulsion est dite *chirpée*, c'est-à-dire que les différentes fréquences sont émises à des temps $t_e = -\frac{\partial\phi_q}{\partial\omega}$ différents.

Dans nos modèles de GHOE, que ce soit le modèle classique ou quantique, une énergie de photon donnée est associée à certaines trajectoires, donc certains temps de recombinaison de l'électron. On s'attend donc à ce que la phase spectrale ne soit pas aléatoire, mais corresponde à la manière dont le temps de recombinaison varie avec l'énergie. Par exemple, on a vu que pour les trajectoires courtes, le temps de recombinaison augmente avec l'énergie (figure 4.6), ce qui correspond à une phase spectrale quadratique et croissante avec l'énergie. D'après ce modèle, les impulsions attosecondes produites par GHOE sont naturellement chirpées (on parle d'*atto-chirp*) [147].

La figure 4.8 montre des temps d'émission mesurés par la technique RABBIT (que nous expliquerons au chapitre suivant) dans le cas des trajectoires courtes. En accord avec les modèles, le temps d'émission croît de manière approximativement linéaire avec l'ordre harmonique dans le plateau avant de devenir constant aux alentours de la fréquence coupure.

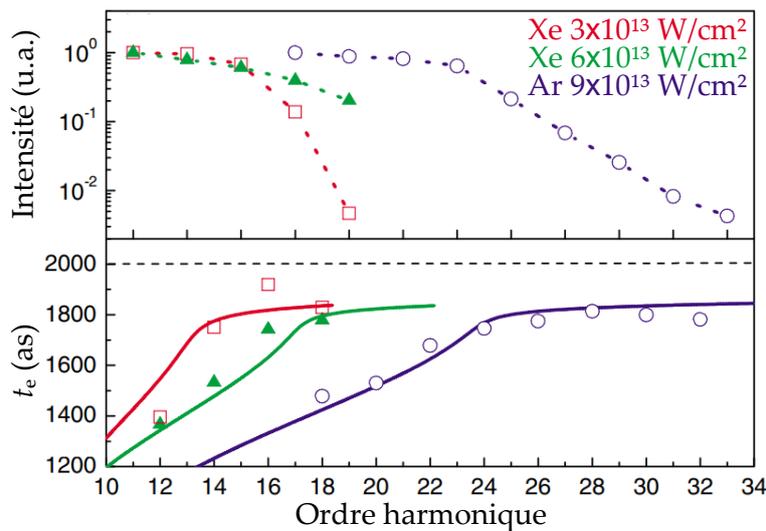


FIGURE 4.8 – Intensité des harmoniques (en haut) et temps d'émission (en bas) mesurés par RABBIT. Pour les temps d'émission, les lignes pleines indiquent les temps d'émission calculés par le modèle de Lewenstein, et la ligne pointillée noire indique le temps du zéro du champ laser. Tiré de [148].

Pour générer des impulsions attosecondes et les utiliser dans des expériences, il faudra mesurer leurs durées, ce qui passera par des mesures combinées de l'intensité spectrale et de la phase spectrale

Phase spatiale

Jusqu'à présent, nous avons considéré les harmoniques générées par un unique atome. Dans la pratique, le faisceau laser fondamental est focalisé dans un jet de gaz,

et le processus d'émission a lieu pour un grand nombre d'atomes. Le faisceau XUV généré est alors une somme cohérente des harmoniques générées par chacun d'entre eux.

Pour une harmonique et une famille de trajectoires données, le temps d'émission dépend de l'intensité laser. La figure 4.9.a,b montre ainsi que la phase des harmoniques varie de façon presque linéaire avec l'intensité, le facteur de proportionnalité étant bien plus grand en valeur absolue pour les trajectoires longues (le ratio est de 1 à 20 environ pour l'harmonique 19 dans l'argon, aux intensités usuelles). Dans la suite, on écrira donc la dépendance en intensité de la phase de l'harmonique q sous la forme

$$\phi_q(I) = -\alpha_q^{(c,l)} I, \quad (4.19)$$

où I est l'intensité laser, et où c se réfère à "courte" et l à "longue". La phase $\phi_q(I)$ est appelée *phase atomique*, et l'équation précédente est une bonne approximation pour les harmoniques du plateau.

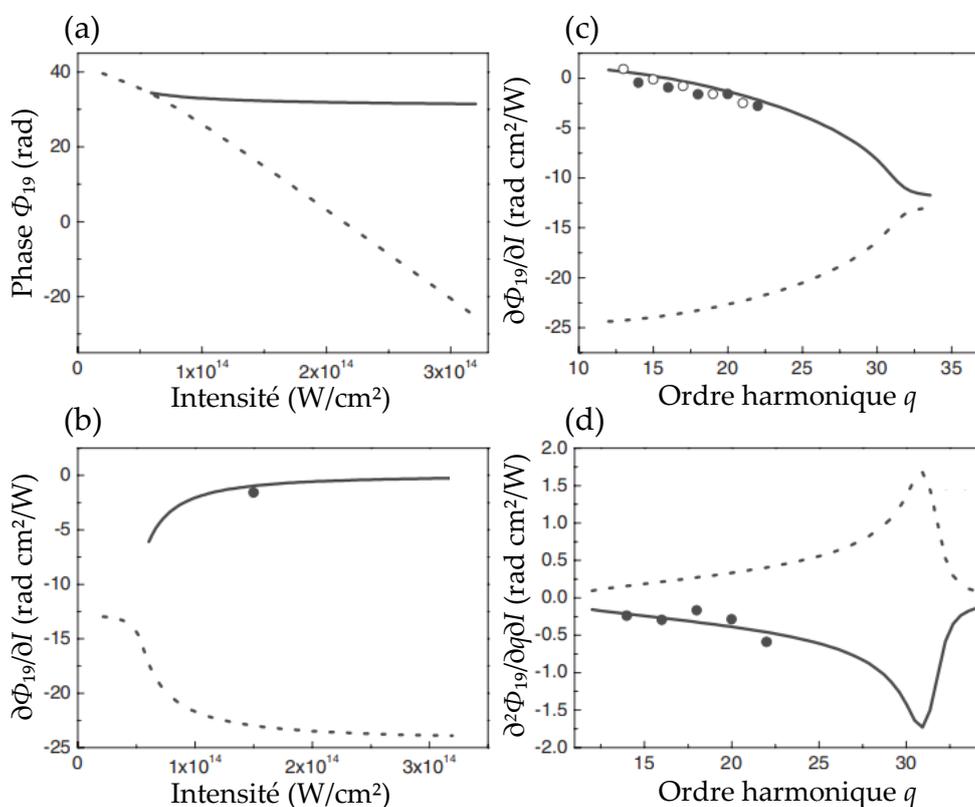


FIGURE 4.9 – (a) Phase et (b) variation de la phase avec l'intensité, pour l'harmonique 19 générée dans l'argon. (c) Dérivée de la phase spectrale par rapport à l'intensité laser, en fonction de l'ordre harmonique. (d) Dérivée du délai de groupe par rapport à l'intensité, en fonction de l'ordre harmonique. Les trajectoires courtes et longues correspondent respectivement aux traits plein et pointillés. Tiré de [149].

L'intensité laser est rarement homogène dans le milieu de génération. Si la longueur de Rayleigh Z_R est grande devant l'extension longitudinale du gaz (ce sera le cas en pratique puisqu'on aura Z_R de l'ordre de quelques centimètres et des jets de gaz de quelques centaines de microns), on pourra négliger les variations d'intensité selon z .

Par contre la tache focale du faisceau laser sera de l'ordre de quelques dizaines de microns, les variations transverses de l'intensité doivent donc être prises en compte.

Pour un faisceau de génération gaussien, les variations d'intensité créent un effet de lentille divergente. En effet, d'après l'équation 4.19, la phase de chaque harmonique est très négative au centre du faisceau où l'intensité est élevée, et augmente lorsqu'on s'éloigne de ce dernier. Cet effet est plus marqué pour les trajectoires longues, dont l'émission est très divergente. Nous verrons qu'il est ainsi possible de jouer sur l'accord de phase pour favoriser l'émission d'une des deux familles de trajectoires par rapport à l'autre.

4.2 Effets d'accord de phase

Comme évoqué plus haut, le rayonnement de GHOE est la somme cohérente des harmoniques émises par chaque atome dans le faisceau de génération⁶. Comme pour les autres phénomènes d'optique non-linéaire, les différents émetteurs doivent être accordés en phase afin que le rayonnement interfère constructivement. Cela se produit lorsque la condition d'accord de phase est satisfaite, c'est-à-dire lorsque le champ de génération et celui des harmoniques ont la même vitesse de phase lors de leur traversée du milieu. De façon générale, les effets d'accord de phase ont une grande influence sur le profil spatial de l'émission [150], ainsi que sur l'intensité totale des harmoniques générées [151].

Faisons la liste des phénomènes contribuant à la phase des deux ondes. Tout d'abord, nous venons de voir que la phase atomique (équation 4.19) dépend de l'intensité laser. Elle participe donc au désaccord de phase, et de façons différentes pour les trajectoires courtes et longues. De plus, le milieu de génération, composé d'atomes, d'ions et d'électrons libres, peut présenter un indice optique différent à la longueur d'onde du laser et à celle des harmoniques, ce qui est aussi une source de désaccord de phase. Enfin, on a un effet de phase géométrique dû au fait que le faisceau fondamental n'est pas une onde plane, et possède donc une phase de Gouy (voir chapitre 2). Ces différents effets peuvent se compenser dans certaines conditions, ou au contraire mener à une faible efficacité de GHOE.

La condition d'accord de phase s'écrit

$$\delta \mathbf{k}_q = \mathbf{k}_q(x, y, z) - q \mathbf{k}_1(x, y, z) - \Delta \psi_q(x, y, z) = \mathbf{0}, \quad (4.20)$$

où \mathbf{k}_q est le vecteur d'onde de l'harmonique d'ordre q , \mathbf{k}_1 celui du champ de génération et $\Delta \psi_q$ la résultante des effets de la phase atomique et de la dispersion du milieu.

La figure 4.10 montre le désaccord de phase $\delta \mathbf{k}_q$ dans un plan parallèle à l'axe optique et contenant le foyer du laser gaussien, dans le cas où l'on considère uniquement les trajectoires courtes ou les trajectoires longues. Sur cette figure, l'échelle horizontale est bien plus grande que l'échelle verticale : le jet de gaz correspond à une droite verticale d'abscisse z donnée. Pour les trajectoires courtes, le désaccord de phase atteint

6. Le fait qu'il s'agisse d'une somme des amplitudes rayonnées, et non pas des intensités, est dû à la nature paramétrique de la GHOE. Lors de l'émission d'un photon d'énergie $q\hbar\omega$, l'état initial et l'état final de l'atome ayant émis ce photon sont les mêmes. Lorsque le photon est détecté, il est impossible de savoir par quel atome il a été émis, car ils sont tous dans leur état fondamental. L'électrodynamique quantique nous apprend qu'il faut alors additionner les amplitudes associées à l'émission du photon par chacun des atomes pour obtenir l'amplitude de probabilité finale [122].

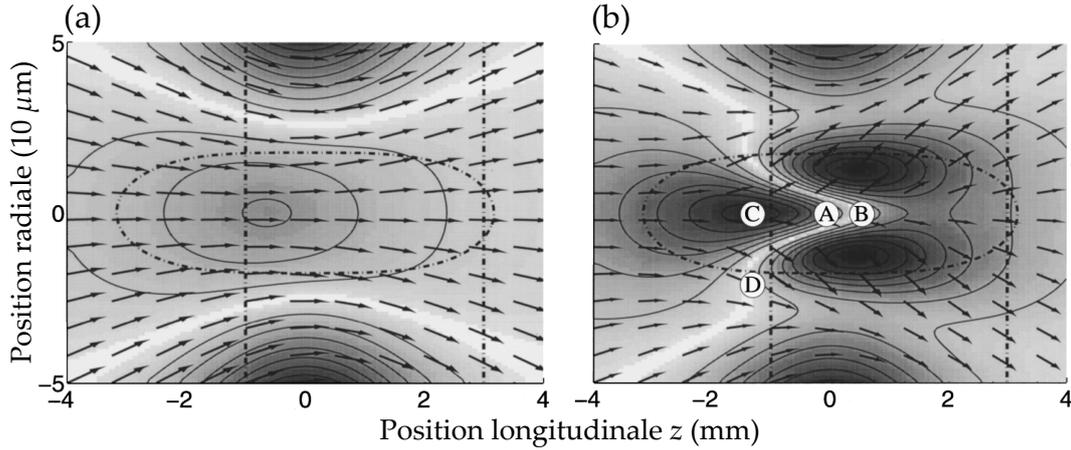


FIGURE 4.10 – Cartes simulées du désaccord de phase $|\delta\mathbf{k}_q|$ pour les trajectoires courtes (a) et longues (b). Un désaccord faible correspond au blanc, un désaccord élevé au noir. Les lignes pointillées verticales indiquent les positions optimales du jet de gaz (z négatifs pour les trajectoires longues, positifs pour les trajectoires courtes). Les flèches représentent la direction d'émission de l'harmonique, donc le vecteur d'onde \mathbf{k}_q . Le calcul a été fait pour l'harmonique 45 générée dans le néon, avec une intensité laser de $6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Tiré de [152].

un maximum sur l'axe, en $z = -0.5 \text{ mm}$ par rapport à la position du foyer. Balcou *et al.* ont calculé que la position optimale du jet de gaz (celle qui minimise $\delta\mathbf{k}_q$ tout en conservant une intensité laser élevée) est située à $z = 3 \text{ mm}$. Pour les trajectoires longues, le désaccord de phase présente une structure plus complexe. Il présente deux minima, notés B et D sur la figure. La zone B est située sur l'axe mais n'est pas très étendue. La zone D est située du côté des z négatifs, et de par sa taille contribuera majoritairement à l'émission. A cet endroit, les flèches sur la figure indiquent que la divergence est élevée : c'est l'effet de lentille de la phase atomique décrit plus haut.

On dispose donc d'une technique pour sélectionner les harmoniques émises par l'une des deux familles de trajectoires. En pratique on cherchera souvent à favoriser les trajectoires courtes, émises sous la forme d'un faisceau peu divergeant. Pour cela, nous placerons donc le foyer du laser légèrement en amont du jet de gaz.

4.3 Outil de simulation : le modèle du réseau "actif"

Au cours de cette thèse, nous aurons souvent besoin de simuler le profil spatial (en intensité et en phase) des harmoniques émises par divers champs infrarouge. Pour ce faire, nous utilisons un modèle approximatif de la GHOE, basé sur les résultats du modèle classique et des simulations SFA présentés plus haut.

Pour un processus non-linéaire perturbatif, l'amplitude du champ complexe de l'harmonique q serait relié à celui du champ de génération E_1 par une simple loi de puissance du type $E^{(q)} \propto (E_1)^q = |E_1|^q e^{iq\phi_1} e^{iq\omega t}$, avec ϕ_1 la phase du champ de génération. Toutefois, on a vu que la GHOE était non-perturbative, et que l'efficacité de l'émission est, en première approximation, indépendante de q pour les harmoniques du plateau. Ainsi, le module du champ E_q évoluera comme

$$|E^{(q)}| \propto |E_1|^{q_{\text{eff}}}, \quad (4.21)$$

où q_{eff} est un ordre de non-linéarité *effectif*, constant dans le plateau. Dans l'argon, aux intensités laser usuelles, on trouve que q_{eff} se situe entre 3 et 4 [153, 154] (figure 4.11). Dans la suite, on prendra généralement $q_{\text{eff}} = 3.5$ pour nos simulations. Le simple fait que q_{eff} soit inférieur à q pour les harmoniques d'ordre élevé aura de multiples conséquences, que nous observerons dans ce manuscrit.

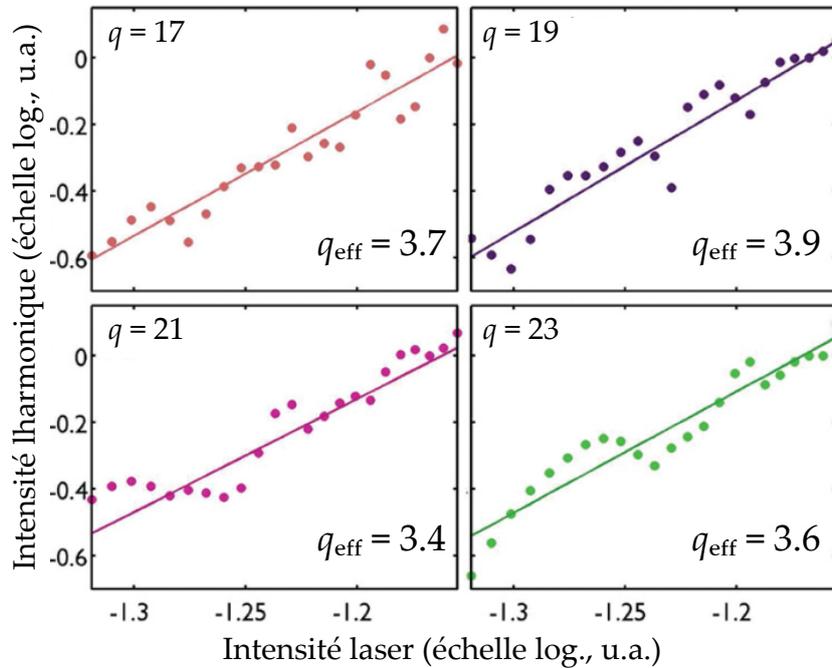


FIGURE 4.11 – Intensité de diverses harmoniques en fonction de l'intensité laser, simulé par un modèle SFA. L'intensité est ajustée par une droite de pente q_{eff} . Tiré de [154].

Pour tout phénomène non-linéaire, la phase de l'harmonique q doit varier comme q fois celle du champ de génération. Cependant, il y aura également en GHQE une contribution de la phase atomique (équation 4.19), si bien que la phase de l'harmonique sera approximée par

$$\phi_q \approx q\phi_1 - \alpha_q^{(c,l)} |E_1|^2. \quad (4.22)$$

Bien souvent, dans le cas des trajectoires courtes notamment, le terme dû à la phase atomique sera négligeable devant $q\phi_1$. De plus, l'accord de phase permettant de sélectionner les harmoniques générées par les trajectoires courtes, nous nous contenterons dans la suite de calculer le champ harmonique émis pour le paramètre $\alpha_q^{(c)}$ uniquement.

Finalement, on obtient donc une expression simple pour le champ de l'harmonique d'ordre q

$$E_0^{(q)} \propto |E_1|^{q_{\text{eff}}} e^{i(q\phi_1 - \alpha_q^{(c,l)} |E_1|^2)}. \quad (4.23)$$

Bien que les harmoniques soient émises dans tout le volume de gaz traversé par le laser, on fera l'hypothèse que l'émission a lieu dans un plan infiniment fin situé à une coordonnée z donnée, généralement au foyer du faisceau de génération. Cette hypothèse est justifiée par le fait que la longueur de Rayleigh du laser est grande devant l'extension du jet de gaz, et cela revient à négliger totalement les effets d'accord de phase longitudinal [155]. Pour cette raison, ce modèle est parfois appelé modèle de

la *dalle mince*, ou *thin-slab model* en anglais. Ici, nous l'appellerons plutôt modèle du *réseau actif*, car c'est sous ce nom qu'il a été introduit lors de thèses précédentes au sein de notre laboratoire [156] pour résoudre des problèmes de GHOE à deux faisceaux formant un réseau d'intensité et de phase (nous y reviendrons plus loin).

L'équation 4.23 donne l'expression du champ XUV *dans* le jet de gaz, donc le champ proche. Pour prédire les profils des harmoniques tels qu'on les observe sur un détecteur situé plusieurs dizaines de centimètres en aval du jet de gaz, il faut donc propager le faisceau harmonique en champ lointain. Pour cela nous utiliserons la théorie de la diffraction de Fraunhofer, valide pour les champs paraxiaux. Le champ lointain de l'harmonique q , noté $E_{\infty}^{(q)}$, est donné par la transformée de Fourier du champ proche.

Le modèle du réseau actif présente de nombreuses limites, notamment le fait qu'il ne donne pas les intensités relatives de différentes harmoniques. Nous verrons cependant qu'il pourra prédire avec succès le profil d'intensité et de phase des harmoniques dans un grand nombre de situations. Comparé aux simulations SFA, ce modèle a l'avantage de ne nécessiter que de très faibles ressources de calcul. Il donne aussi des indications physiques sur les phénomènes en jeu, car on peut faire varier les différents paramètres empiriques de la formule 4.23 pour étudier leurs effets séparément.

Aspects expérimentaux de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

5.1 Dispositif expérimental

Les travaux expérimentaux de cette thèse, sauf ceux de la partie [IV](#), ont été réalisés sur la plateforme ATTOlab du CEA Saclay. Commençons par détailler brièvement le fonctionnement du laser femtoseconde utilisé pour générer les harmoniques.

Source laser

Le laser FAB (Femtosecond-Attosecond-Beamline) est composé de trois lignes laser : FAB-1 et FAB-1bis, avec un taux de répétition de 1 kHz ; et FAB-10, avec un taux de répétition de 10 kHz [\[157\]](#). Les premières étapes du conditionnement du faisceau sont communes aux trois lignes. FAB est un laser titane :saphir fonctionnant sur le principe de la CPA (Chirped-Pulse Amplification). Une description détaillée du fonctionnement du laser peut être trouvée dans les articles de Golinelli *et al.* [\[158\]](#) et de Bresteau *et al.* [\[157\]](#).

Un filtre dispersif acousto-optique programmable (Dazzler) permet de contrôler la dispersion et la phase porteuse-enveloppe (*carrier-envelope phase*, CEP). Le Dazzler compense la dispersion causée par le reste de la chaîne d'amplification, et mesurée à la fin de celle-ci. A l'entrée de chaque ligne, un compresseur à réseaux, qui constitue la dernière étape de la CPA ¹, permet d'obtenir des impulsions de 25 fs.

La majorité des résultats expérimentaux présentés dans cette thèse ont été obtenus sur la ligne de lumière FAB-1bis (sauf ceux présentés à la fin de ce chapitre, qui ont été obtenus sur la ligne FAB-10). Les caractéristiques des impulsions laser à l'entrée de la ligne harmonique sont résumées dans le tableau [5.1](#).

1. Ce compresseur permet d'optimiser la durée des impulsions dans le jet de gaz, en observant les harmoniques générées.

Durée	25 fs
Énergie	~ 2 mJ (maximum)
Taux de répétition	1 kHz
Longueur d'onde centrale	800 nm (IR)
Largeur spectrale	50 nm
Polarisation	linéaire verticale
Largeur transverse à $1/e^2$	1.5 cm

TABLE 5.1 – Caractéristiques des impulsions du laser FAB-1bis.

5.1.1 Dispositif de génération d'harmoniques

Mise en forme du faisceau laser et jet de gaz

Les impulsions femtoseconde en sortie de compresseur sont mises en forme sur une table optique. Grâce à un atténuateur, composé d'une paire de polariseurs (des lames de silice à l'incidence de Brewster) précédée d'une lame demi-onde d'angle ajustable, on peut contrôler l'intensité du faisceau. Après le polariseur, la polarisation du laser est linéaire verticale.

Le faisceau est ensuite focalisé à l'aide de lentilles minces convergentes, de distance focale 50 ou 75 cm, dans le jet de gaz. Nous utilisons des iris pour optimiser le diamètre, l'intensité et le profil spatial du faisceau au foyer. Typiquement, la tache focale du laser est de l'ordre de 50 μm .

Le jet de gaz est délivré de façon continue à travers une ouverture circulaire de 500 μm de diamètre. Cet orifice de faible taille contraint le gaz à s'épandre à vitesse supersonique, ce qui garantit que l'épaisseur longitudinale du milieu gazeux est faible. On se rapproche ainsi du cas idéal d'un plan d'atomes infiniment fin selon la direction z , ce qui limite les effets d'accord de phase. Comme on l'a vu à la section 4.2, nous choisissons en général de positionner le foyer du laser en amont du jet de gaz, quelques millimètres avant ce dernier, pour favoriser l'accord de phase des harmoniques émises par les trajectoires courtes.

En génération d'harmoniques, le gaz, qu'il soit atomique ou moléculaire, peut être lui-même un objet d'étude. La GHOE sert alors de sonde : on parle de spectroscopie harmonique [159]. Dans cette thèse, on s'intéresse plutôt aux propriétés de la lumière et assez peu à celles du gaz. De plus, nous ne disposons pas d'une intensité laser assez élevée pour générer des harmoniques de façon efficace dans des gaz de grand I_p . En général, on générera donc dans l'argon, une espèce peu coûteuse, de grande section efficace.

Système de vide

Dans le domaine spectral XUV, tous les matériaux solides sont absorbants. Les gaz - en particulier l'air à 1 bar - ont une longueur d'absorption sub-millimétrique. La propagation du rayonnement issu de la GHOE doit donc avoir lieu dans le vide. De plus, comme nous allons le voir, les détecteurs de photons requièrent un vide poussé, typiquement sous les 10^{-5} mbar.

Pour ces deux raisons, tout le montage expérimental de GHOE, du jet de gaz jus-

qu'aux détecteurs, est placé dans des enceintes sous vide. Le laser de génération, focalisé, pénètre dans l'enceinte en passant à travers un hublot. Le jet de gaz est placé suffisamment loin de ce dernier pour que l'intensité lumineuse à proximité du foyer ne l'endommage pas. Pour atteindre les basses pressions requises, des pompes primaires sont d'abord utilisées. Elles permettent d'atteindre les 10^{-3} mbar nécessaires à l'allumage de pompes turbo-moléculaires permettant de descendre jusqu'à des pressions de 10^{-6} mbar. Les pompes turbo sont prises en sandwich entre les enceintes et les tuyaux menant aux pompes primaires, un système de *bypass* permettant de court-circuiter les pompes turbo et de relier directement les enceintes à la pompe primaire.

Du gaz étant injecté dans l'enceinte de GHOE, la pression à cet endroit est élevée. Pour garantir un vide secondaire correct au niveau du spectromètre, un montage de pompage différentiel est mis en place. Il s'agit d'une succession d'enceintes séparées par des parois. Le faisceau laser et les harmoniques passent d'une enceinte à la suivante au moyen d'un trou dont la largeur est de quelques millimètres. Or, pour des basses pressions telles que les nôtres, les molécules d'air et les atomes de gaz se comportent de manière *balistique*. Leur libre parcours moyen est de l'ordre de la dizaine de mètres (contre 70 nm environ à 1 bar et température ambiante), la grande majorité des collisions ont donc lieu avec les parois. La paroi équipée d'un petit orifice bloquant l'immense majorité du gaz résiduel, on peut avoir une pression de 10^{-3} mbar dans l'enceinte de génération tout en maintenant le spectromètre à 10^{-6} mbar.

Éléments optiques et détecteurs

Une fois les harmoniques générées, nous souhaitons les détecter et les caractériser. Pour cela, il faut tout d'abord les séparer spectralement à l'aide d'un réseau de diffraction, puis les imager avec un détecteur de photons.

La forte absorption du rayonnement XUV nous force à travailler la plupart du temps en réflexion : il n'existe pas de lentilles ou de lames d'onde transparentes dans l'XUV. Dans le domaine spectral XUV, la partie réelle de l'indice optique de la plupart des matériaux est proche de 1, tout en lui étant inférieur (figure 5.1). L'indice complexe s'écrit alors [160]

$$n(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega), \quad (5.1)$$

avec δ positif et petit devant 1, et où β décrit l'absorption du matériau. On trouve alors que la réflexion à incidence normale est hautement inefficace. Au contraire, pour des incidences rasantes (angles d'incidence proches de $\pi/2$), le fait que la partie réelle de l'indice soit inférieure à 1 conduit à un phénomène de *réflexion totale*, le rayonnement XUV ne pénétrant quasiment pas dans le matériau. D'après la loi de Snell-Descartes, la réflexion totale a lieu au delà de l'angle d'incidence critique *mesuré par rapport à la surface du matériau* $\theta_c = \sqrt{2\delta} \ll 1$. Pour cette raison, les miroirs et réseaux utilisés en GHOE sont positionnés en incidence très rasante, typiquement quelques degrés par rapport à la surface du matériau. Pour focaliser le faisceau d'harmoniques, des miroirs toriques sont utilisés. Les réseaux de diffraction fonctionnent également en incidence rasante².

Pour détecter les photons XUV émis par GHOE, on utilise des galettes de microcanaux [161] (qu'on appellera régulièrement MCP, pour *microchannel plates*, dans la suite

2. Une exception sera le réseau Spectrogon, dont l'utilisation en incidence quasi-normale est détaillée plus loin

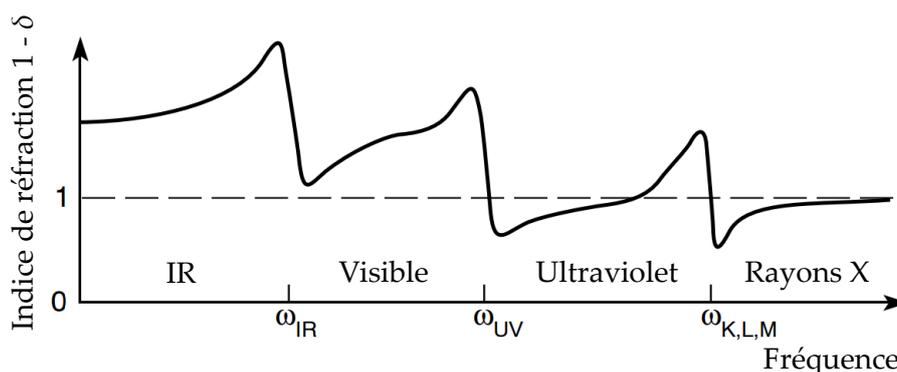


FIGURE 5.1 – Schéma des variations typiques de la partie réelle de l'indice de réfraction avec la fréquence, montrant de fortes variations autour des fréquences de résonance situées dans l'infrarouge, l'UV et l'XUV/X. Tiré de [160].

de ce manuscrit). Leur fonctionnement est similaire à celui d'un photo-multiplicateur : une particule incidente (cela peut être un photon, mais également une particule d'un autre type) arrache un électron à la surface de l'appareil, le signal électronique étant ensuite amplifié par cascade. Une MCP est une galette de verre creusée de "tunnels" (canaux) de quelques dizaines de microns de largeur. Les canaux sont creusés en biais par rapport à la surface de la galette, si bien qu'un photon incident pénétrant dans un canal est assuré de frapper de ce dernier. Les deux faces de la galette étant polarisées, l'impact d'un photon déclenche une cascade d'électrons qui se propage dans le canal. Dans notre cas, la distribution des électrons en sortie des canaux est rendue visible par un écran de phosphore. La face arrière de ce dernier est enfin imagée par une caméra CCD (Hamamatsu Photonics, modèle ORCA Spark C11440-36U) munie d'un objectif. L'ensemble MCP + écran de phosphore est donc une matrice de petits photo-multiplicateurs, capable d'imager spatialement le faisceau de photons incident. La tension aux bornes du détecteur étant de l'ordre de plusieurs kV, ce dernier n'opère que pour des pressions environnantes inférieures à 10^{-5} mbar.

Les deux configurations du spectromètre de photons

Pour la plupart des expériences rapportées dans cette thèse, nous utilisons un spectromètre constitué d'un réseau de diffraction, d'une fente pour sélectionner la région spectrale d'intérêt, et d'un détecteur MCP. Ce spectromètre peut être utilisé dans deux configurations (figure 5.2).

Dans la configuration (1), ou configuration *en incidence rasante*, on utilise un dispositif classique en GHOE. Le réseau de diffraction (Hitachi, modèle numéro 001-0437*1.2) est un réseau *cylindrique* à pas variable (*variable line spacing*, VLS) [162]. Chaque composante monochromatique du spectre est focalisée dans la dimension spectrale (horizontale) en champ lointain, ce qui garantit une résolution spectrale optimale. L'angle d'incidence par rapport à la surface du réseau est de 3.2° . Les MCP sont placées au foyer du réseau, à 23.5 cm de ce dernier. Cette configuration est idéale pour les cas où l'on souhaite détecter toutes les harmoniques jusqu'au cut-off.

La figure 5.3 montre un spectre de GHOE typique obtenu dans l'argon avec le spectromètre dans sa configuration (1). L'allure plateau/coupe est bien visible, avec une énergie de coupe aux alentours de 35 eV. Le position du jet de gaz a été ajustée de

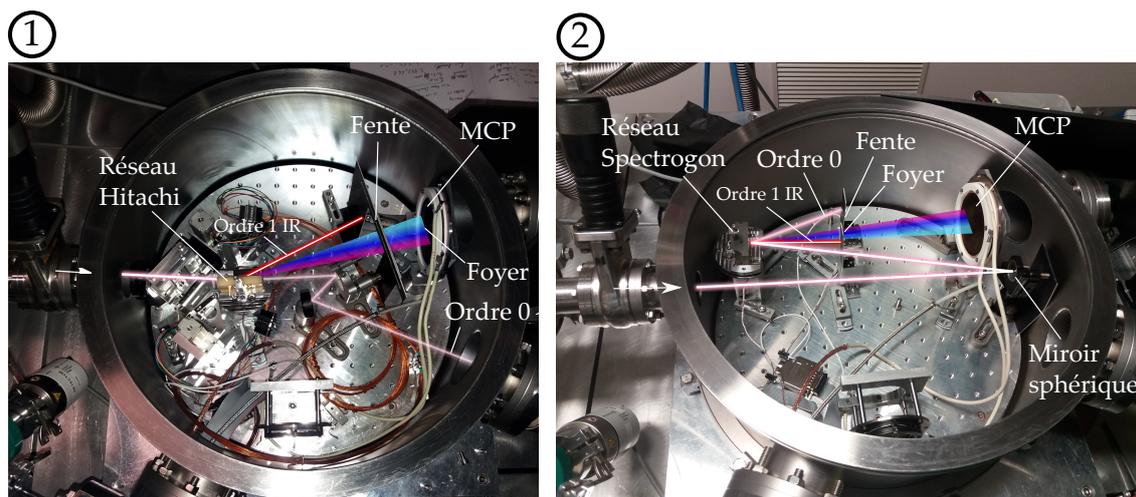


FIGURE 5.2 – Les deux configurations du spectromètre. Gauche : configuration (1), en incidence rasante. Droite : configuration (2), en incidence normale. La flèche indique la direction d'arrivée du faisceau.

façon à rendre visibles les harmoniques émises par les trajectoires courtes et longues. Ces dernières prennent la forme d'anneaux d'intensité dans l'espace spatio-fréquentiel [163]. On constate que la divergence des contributions des trajectoires longues (respectivement courtes) diminue (respectivement augmente) avec l'ordre harmonique (lignes pointillées sur la figure). Les divergences des deux familles de trajectoire deviennent égales au niveau du cut-off. Ces observations sont en accord avec le comportement de la phase atomique décrit au chapitre précédent.

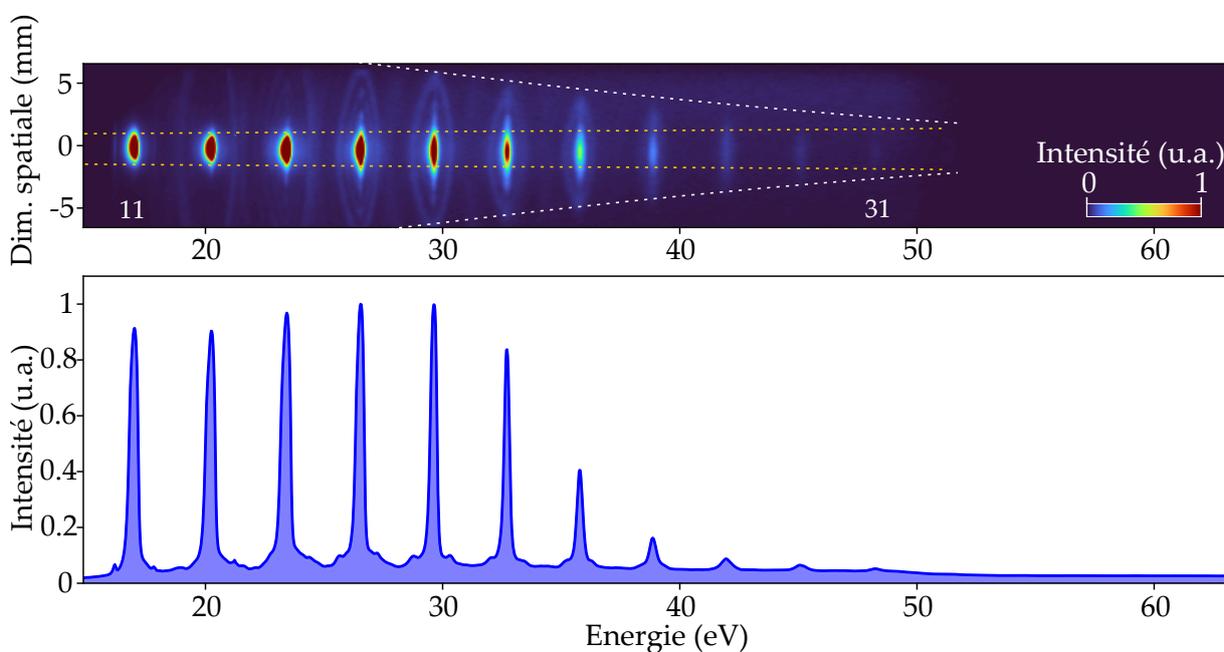


FIGURE 5.3 – En haut : spectre d'harmoniques obtenu dans l'argon sur la ligne de lumière FAB-1bis, avec le spectromètre en configuration incidence rasante. Les harmoniques 11 à 31 sont visibles. L'intensité laser est d'environ 10^{14} W/cm². En bas : intensité intégrée le long de l'axe vertical.

Toutefois, dans cette thèse nous nous intéresserons souvent au profil spatial des harmoniques, notamment lorsque ces dernières porteront du MAO. L'utilisation du réseau Hitachi est alors proscrite, car ce dernier est astigmatique. Il focalise le faisceau dans la dimension horizontale, et agit donc comme un convertisseur de mode (voir section 2.3.3). Dans notre cas, il ne sera pas suffisant de se placer hors foyer du réseau, comme c'était le cas pour les expériences rapportées dans la thèse de Romain Généaux [139].

Pour imager fidèlement le profil transverse du faisceau, nous utiliserons le spectromètre en configuration (2), en *incidence normale*, inspirée des travaux de Hartmut Ruf³ [164]. Pour cela, nous disposons d'un réseau de diffraction plan (Spectrogon), à pas régulier (700 traits/mm). Pour limiter la dispersion induite par le réseau, il faut illuminer le moins de traits possibles, et donc re-focaliser le faisceau en amont. Pour cela, on utilise un miroir sphérique en incidence quasi-normale, de 60 cm de rayon de courbure (donc 30 cm de distance focale). Il s'agit d'un miroir multi-couche de molybdène-silicium-carbure de bore (B_4C) [165]. Le réseau Spectrogon est placé 10 cm en amont du foyer du miroir sphérique pour éviter tout endommagement dû au flux de photons. Malgré l'incidence normale très défavorable, le revêtement de B_4C réfléchit environ 30% du signal de l'harmonique 13, et 10% de celui de l'harmonique 19 (figure 5.4), pour un angle d'incidence de 10° . Les énergies de photons plus élevées sont difficiles à détecter.

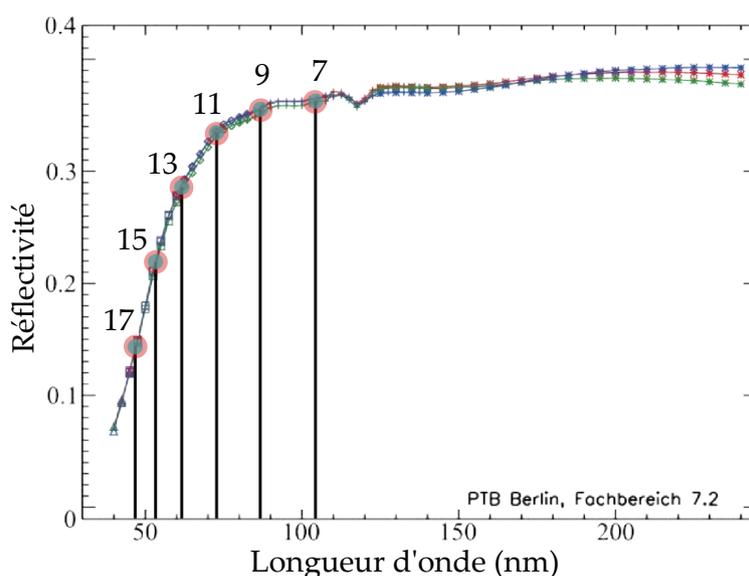


FIGURE 5.4 – Réflectivité du miroir sphérique en B_4C . Les ordres harmoniques sont indiqués. Adapté de [164].

3. Les éléments optiques du dispositif nous ont été prêtés par Valérie Blanchet et Yann Mairesse, du laboratoire CELIA (Bordeaux).

5.2 Mesure de durée des impulsions attoseconde : le RABBIT

Dans le chapitre 4, nous avons évoqué le fait que le rayonnement de GHOE pouvait prendre la forme d'impulsions attoseconde. De telles impulsions permettent d'accéder à la dynamique des électrons dans la matière, que ce soit en phase gaz, solide ou liquide. Les expériences de spectroscopie résolues en temps à l'échelle attoseconde [166, 167] sont basées sur des schémas dits *pompe-sonde*, où une première impulsion (souvent infrarouge, de durée femtoseconde) déclenche le processus, tandis qu'une deuxième impulsion (l'impulsion attoseconde) vient sonder ce dernier, avec un délai contrôlé. En répétant la mesure un grand nombre de fois pour différents délais pompe-sonde, on peut reconstruire la dynamique étudiée.

Dans ce contexte, il est primordial de connaître avec précision la durée des impulsions attoseconde, car il s'agit d'un des paramètres déterminant la résolution temporelle de l'expérience. Pour ce faire, l'idée est de caractériser le rayonnement dans le domaine spectral, en intensité et en phase, avant de le reconstruire dans le domaine temporel par transformée de Fourier. L'intensité spectrale est obtenue à l'aide d'un spectromètre de photons ou de photo-électrons. Pour mesurer la phase spectrale du train d'impulsions attoseconde, la technique la plus couramment utilisée est appelée RABBIT (pour *Reconstruction of Attosecond Beatings By Interference of Two-photon transitions*).

Toute mesure de phase passe par l'observation d'interférences. Pour mesurer une phase spectrale, différentes composantes spectrales du rayonnement doivent interférer. Le RABBIT tire profit du fait que le rayonnement de GHOE contient des énergies de photon élevées, capables d'ioniser des atomes. Si l'on refocalise les harmoniques dans un second jet de gaz, la photoionisation de ces derniers libère des électrons dont l'énergie cinétique est d'autant plus élevée que l'harmonique absorbée est de haute fréquence. Ces photoélectrons sont guidés dans une bouteille magnétique, puis détectés par des MCP. En mesurant le temps de vol des photoélectrons, qui dépend de l'énergie des photons XUV absorbés, on obtient un spectre de photoélectrons qui est une réplique du spectre de GHOE. Ce dispositif est appelée spectromètre à temps de vol (*time of flight*).

Pour que les harmoniques successives interfèrent, l'idée est de superposer aux harmoniques focalisées une faible fraction du champ IR ayant généré les harmoniques, à l'aide d'un interféromètre [168, 169]. L'ionisation est alors *habillée par laser*, et de nouvelles transitions électroniques sont possibles. Il s'agit de transitions à deux photons d'énergies différentes : absorptions successives d'un photon XUV et d'un photon IR, ou bien absorption d'un photon XUV suivie de l'émission stimulée d'un photon IR. Le spectre de photoélectrons voit donc apparaître des pics *satellites* (*sidebands* en anglais) situés entre deux harmoniques (figure 5.5). Il s'agit des deux seules transitions possibles dans la plage d'intensité IR du RABBIT : l'intensité du champ d'habillage - de l'ordre 10^{11} W/cm² - est insuffisante pour générer des transitions d'ordres supérieurs, ou pour que l'infrarouge ionise le gaz à lui seul [170].

Comme on le voit sur la figure 5.5, la transition qui consiste à absorber un photon de l'harmonique q et un photon IR, et celle qui consiste à absorber un photon de l'harmonique $q + 2$ et à émettre un photon IR par émission stimulée, aboutissent à la même énergie de photoélectron. Les deux transitions ayant le même état final (un électron dans le pic satellite noté $q + 1$), elles interfèrent. Véniard *et al.* [171] prédisent

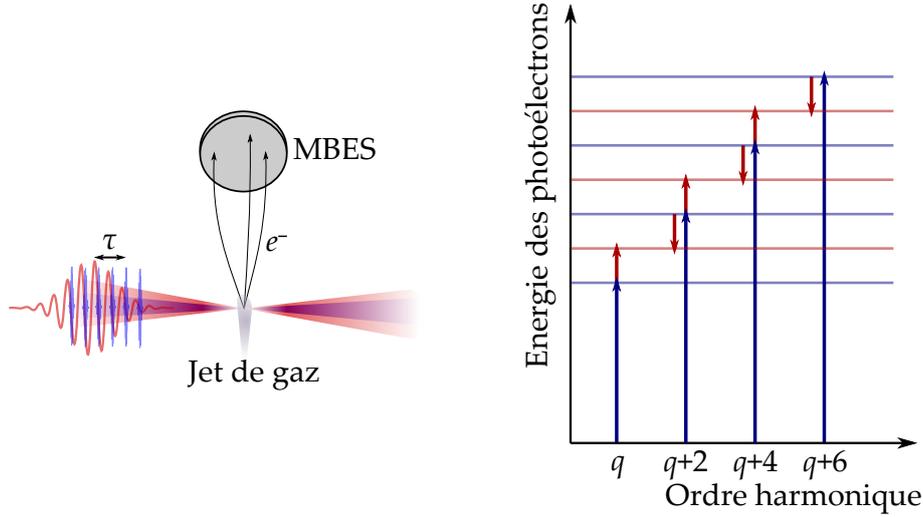


FIGURE 5.5 – Principe du RABBIT. La superposition de l'impulsion IR femtoseconde, d'intensité crête $\sim 10^{11}$ W/cm², et du train d'impulsions attoseconde, mène à l'apparition de pics satellites dans le spectre obtenu par le spectromètre à temps de vol (MBES, magnetic bottle electron spectrometer). En faisant varier le délai τ entre les deux champs, on fait osciller l'amplitude des pics satellites. La phase de cette oscillation nous renseigne sur la phase spectrale du peigne d'harmoniques.

que l'intensité du pic satellite $q + 1$ est modulée en fonction du délai τ entre l'IR et l'XUV selon

$$I_{q+1} = I_q + I_{q+2} + 2\sqrt{I_q I_{q+2}} \cos(2\omega\tau + \phi_{q+2} - \phi_q + \delta\phi_a). \quad (5.2)$$

Dans cette expression, I_q et I_{q-2} sont les intensités des harmoniques adjacentes, ω est la fréquence de l'infrarouge, ϕ_{q+2} et ϕ_q sont les phases des harmoniques adjacentes, et $\delta\phi_a$ est un terme de phase atomique qu'on pourra souvent négliger. Le signal des pics satellite évolue donc de façon sinusoïdale avec le délai τ , avec une phase égale à

$$\varphi_{SB} \approx \phi_{q+2} - \phi_q \approx \frac{\partial\phi}{\partial\omega} \times 2\omega, \quad (5.3)$$

avec $\phi(\omega)$ la phase spectrale de l'XUV. En balayant τ , et en ajustant les oscillations par des fonctions sinusoïdales, on accède donc à la dérivée seconde de la phase spectrale

$$\frac{\partial^2\phi}{\partial\omega^2} = \frac{1}{2\omega} \frac{\partial\varphi_{SB}}{\partial\omega}. \quad (5.4)$$

La phase enveloppe-porteuse de l'impulsion attoseconde (proportionnelle à ϕ) n'est donc pas connue. Par contre, l'atto-chirp, qui détermine la durée de l'impulsion, est mesurable. En intégrant deux fois l'équation 5.4 et en combinant cette information avec l'intensité spectrale, le profil temporel des impulsions est obtenu par transformée de Fourier⁴.

4. La technique RABBIT reconstruit en fait le profil temporel *moyen* des impulsions du train.

5.3 Stabilisation interférométrique active : le LIZARD

La durée des impulsions attoseconde n'est pas le seul paramètre ayant une influence sur la résolution temporelle de l'expérience. Le délai τ entre les impulsions IR et XUV doit également être contrôlé très finement. En effet, une résolution temporelle de 100 as correspond à une différence de chemin optique de 30 nm environ : c'est l'ordre de grandeur de la précision interférométrique qu'on cherche à atteindre. Il s'agit d'un défi expérimental. En effet, les lignes de lumière attoseconde comprennent un certain nombre de pompes turbo-moléculaires induisant d'importantes vibrations. De plus, l'absorption d'une fraction de l'intensité élevée des faisceaux IR mène à une dilatation thermique des miroirs de l'interféromètre. Enfin, cette stabilité nanométrique doit pouvoir être maintenue pendant plusieurs heures, par exemple lors d'expériences de spectroscopie en coïncidence [172, 173, 174] ou de photoémission de surfaces [175, 176], qui demandent de longs temps d'intégration. Enfin, l'exigence de stabilité est encore compliquée par le fait que les interféromètres utilisés sont souvent de grande taille, avec des bras de plusieurs mètres de long.

Pour toutes ces raisons, la différence de chemin optique de l'interféromètre attoseconde doit être stabilisée. Cette stabilisation peut être *passive*, par exemple en découplant les pompes des tables optiques et/ou en adoptant des géométries colinéaires [177, 178], mais une stabilisation *active* est souvent nécessaire. Dans ce second cas, le délai pompe-sonde est mesuré régulièrement, et ses fluctuations compensées par des miroirs placés sur une platine de délai. La plupart des techniques de stabilisation utilisent un laser continu qui se propage en parallèle des faisceaux IR et XUV dans l'interféromètre. Après recombinaison, les mouvements des franges d'interférence de ce laser rendent mesurables les fluctuations de délai. Étant donné que le bras de l'interféromètre où a lieu la GHOE contient un filtre métallique éliminant le champ IR, la fréquence du laser de stabilisation doit souvent être différente de celle du champ de génération. Dans d'autres cas, le laser continu contourne le filtre, et très souvent est forcé de se propager sur des optiques spécifiques, attachées aux montures des faisceaux principaux [179, 180, 181, 182, 183, 184]. Dans tous ces cas, le schéma optique est largement complexifié par la présence du laser additionnel. De plus, le délai ainsi mesuré est celui accumulé par le laser continu, qui peut être différent du véritable délai entre l'XUV et l'IR [185].

Au début de cette thèse, nous avons mis au point une méthode de stabilisation active dont le signal d'entrée est le spectre de photoélectrons obtenu dans un spectromètre à temps de vol, à l'intérieur duquel un gaz est ionisé par les champs XUV et IR superposés. Cette technique prend le contrepied du RABBIT ; là où ce dernier suppose le délai τ parfaitement maîtrisé pour mesurer la phase spectrale de l'XUV, notre méthode considère cette dernière connue et est capable en retour de mesurer τ . Il s'agit donc d'une mesure de délai *in-situ* (au foyer des faisceaux dans le spectromètre), et non pas une estimation d'un déphasage accumulé dans un interféromètre⁵. La technique est appelée LIZARD, pour *Laser-dressed Ionization for Attosecond Adjustment of pump-pProbe Delays*. Ici, on décrit succinctement le principe et les performances du LIZARD, de plus amples détails sont donnés dans la ref. [186].

5. On mesure toujours des interférences, mais entre transitions électroniques et non pas entre chemins optiques.

5.3.1 Stabilisation de délais interférométriques

Les techniques de stabilisation active reposent sur des signaux interférométriques qui dépendent du délai pompe-sonde. Par exemple, dans le cas d'un laser continu, une photodiode peut être placée à la sortie de l'interféromètre, et délivrera un signal variant sinusoidalement avec τ . Une boucle de rétroaction peut alors faire en sorte que la valeur de ce signal reste constante dans le temps [182, 185].

Toutefois, pour les applications nécessitant de balayer le délai, il est primordial de pouvoir verrouiller continuellement la phase pompe-sonde à des valeurs de consigne arbitraires, avec une stabilité uniforme sur toute la plage de délai. Ce n'est pas le cas pour l'unique photodiode de l'exemple précédent : au niveau des extrema de la sinusoïde le signal ne varie pas avec τ , et donc la sensibilité est très mauvaise. Une solution consiste à utiliser deux signaux modulés avec le délai, mais déphasés [187, 188, 189], par exemple en utilisant plusieurs photodiodes. Si l'on note $\varphi(t)$ la différence de phase entre les faisceaux, de tels signaux s'écrivent

$$\begin{aligned} M_1(t) &= O_1 + A_1 \sin(\varphi(t) + \Delta) \\ M_2(t) &= O_2 + A_2 \cos \varphi(t). \end{aligned} \quad (5.5)$$

Les différents paramètres ($O_1, A_1, O_2, A_2, \Delta$) peuvent être calibrés en réalisant un scan rapide du délai, au cours duquel on suppose que ce dernier n'a pas le temps de fluctuer. Si $\Delta = 0$, M_1 et M_2 sont en quadrature de phase; par conséquent, pour toute valeur de $\varphi(t)$, au moins l'un des deux signaux variera significativement avec le délai, ce qui assure une bonne sensibilité dans la mesure du délai. Dans le cas général, la phase $\varphi(t)$ est mesurée aux instants ultérieurs à partir des valeurs de $M_1(t)$ et $M_2(t)$ selon

$$\varphi(t) = \mathcal{U} \left(\tan^{-1} \left(\frac{1}{\cos \Delta} \times \frac{A_2 \cdot (M_1(t) - O_1)}{A_1 \cdot (M_2(t) - O_2)} - \tan \Delta \right) \right). \quad (5.6)$$

Dans cette équation, avec \mathcal{U} est un opérateur de "déroulement", permettant de supprimer les sauts de phase, et qui fonctionne tant que $\varphi(t)$ ne varie pas au delà de $\pm\pi$ entre deux instants d'échantillonnage.

5.3.2 Principe, régime de fonctionnement et performances du LIZARD

Comme nous l'avons vu section 5.2, la photoionisation habillée par laser mène à l'observation de pics satellites oscillant avec le délai τ . De plus, à cause de l'atto-chirp, ces oscillations sont déphasées (équation 5.2). L'idée de base du LIZARD est de sélectionner deux de ces pics satellites qui joueront le rôle des signaux de stabilisation M_1 et M_2 .

De façon remarquable, le processus de GHOE donne toujours un atto-chirp suffisant pour que deux pics satellites proches de la quadrature de phase puissent être trouvés dans le spectre de photoélectrons. Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, le modèle à trois étapes prédit que le temps de recombinaison de l'électron (et donc le temps d'émission de l'harmonique correspondante) varie presque linéairement avec l'énergie. La figure 5.6 montre ainsi le temps de recombinaison calculé par SFA dans l'argon, pour différentes intensités de génération. Qu'importe la valeur de celle-ci, la différence en temps de recombinaison entre les parties basse et haute du spectre

(indiquées par des triangles noirs sur la figure) est approximativement $0.3T$, où T est le cycle optique. En vertu de l'équation 5.3, le déphasage entre les oscillations des pics satellites situés aux extrémités du spectre est donc $\Delta\varphi_{SB} \approx 2\omega \times 0.3T = 1.2\pi$. Puisque $\Delta\varphi_{SB}$ est plus grand que $\pi/2$, on peut toujours trouver deux pics satellites dont le déphasage est proche de $\pi/2$, quel que soit l'intensité ou le gaz de génération.

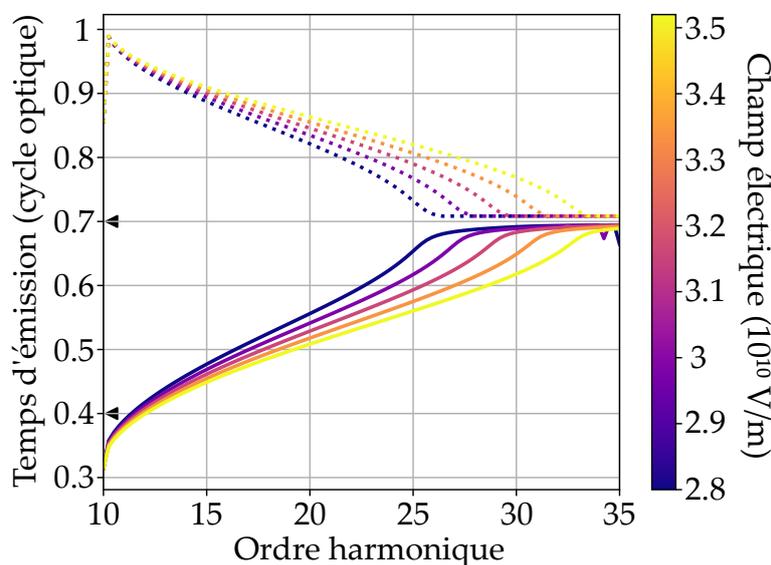


FIGURE 5.6 – Temps de recombinaison de l'électron calculé par simulation SFA, en fonction de l'ordre harmonique. On considère un atome d'argon à 800 nm. Les trajectoires courtes et longues sont représentées par des traits pleins et pointillés, respectivement.

En contrepartie, cela signifie que des impulsions attoseconde parfaitement post-comprimées (par des éléments dispersifs dédiés, tels que des filtres métalliques), donc ne présentant pas de chirp, ne peuvent pas être correctement stabilisées par la technique LIZARD, les pics satellites oscillant tous en phase dans ce cas.

Résultats expérimentaux

La technique LIZARD a été testée à ATTOLab, sur la ligne FAB-10 [157], qui est équipée d'un spectromètre à temps de vol (TOF). Les impulsions IR ont une durée de 23 fs, une énergie de 2 mJ, et un taux de répétition de 10 kHz. Cette ligne de lumière est optimisée pour des expériences demandant de longs temps d'acquisition, d'où l'emploi d'un taux de répétition élevé. La figure 5.7 montre le schéma expérimental. FAB-10 possède une double focalisation : les champs IR et XUV sont d'abord focalisés dans le TOF pour le diagnostic RABBIT, puis refocalisés dans l'expérience située en bout de ligne. Tous les miroirs du montage ont un revêtement diélectrique, sauf deux miroirs d'argent situés sous vide, sur le trajet du faisceau d'habillage. Ils absorbent une fraction significative de la puissance du laser, mais ne peuvent la dissiper facilement, et donc subissent une importante dilatation thermique. Pour cette raison, on observe une dérive lente du délai pompe-sonde, ce dernier variant d'environ 8 fs par heure, soit une centaine d'attoseconde par minute [174, 157].

Afin d'être seulement sensibles aux variations de délai, le bruit des signaux de sidebands M_1 et M_2 doit être réduit autant que possible. Ce bruit peut provenir de variations de l'intensité laser, ainsi que de variations du recouvrement spatial des

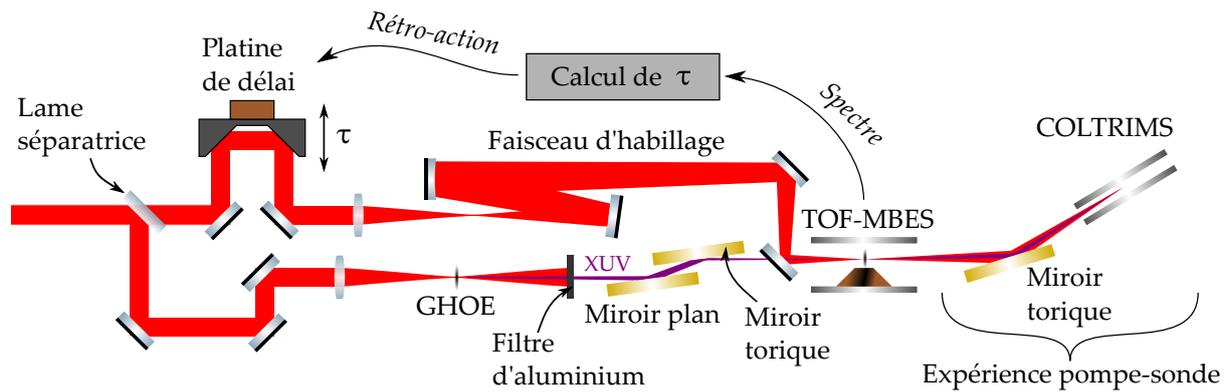


FIGURE 5.7 – Schéma d'implémentation du LIZARD. Les bras de l'interféromètre sont longs d'environ 2.5 m. Le dispositif COLTRIMS (*Cold target Recoil Ion Momentum Spectrometer*) en bout de ligne est un exemple d'application du LIZARD, et ne fait pas partie du système de stabilisation.

faisceaux. Pour palier ces deux problèmes, le signal du TOF est moyenné sur un grand nombre de tirs laser, et le pointé du laser est stabilisé. Le délai pompe-sonde est contrôlé par deux miroirs montés sur une platine de translation piézo-electrique (SmarAct, modèle SLC-24 150-P-R-S), précise à 1 nm près. Le signal électronique des MCP du TOF est traité par un oscilloscope.

Avant de démarrer la boucle de stabilisation, un balayage rapide (~ 20 s) du délai est effectué afin de calibrer les amplitudes, phases, et offsets des pics satellites. Deux d'entre eux, proches de la quadrature de phase, sont sélectionnés pour reconstruire la phase pompe-sonde $\varphi(t)$. L'écart à la valeur de consigne φ_0 est noté $\Delta\varphi(t) = \varphi(t) - \varphi_0$, et est minimisé par une boucle de rétroaction utilisant un filtre PID (*proportional-integral-derivative*). Puisque nous cherchons à compenser des dérives lentes du délai, nous choisissons une fréquence d'échantillonnage de 10 Hz, qui permet d'accumuler 1000 tirs laser à chaque mesure. Dans la première version de l'expérience, ces opérations étaient réalisées par un programme Python conçu sur mesure. Elles sont désormais prises en charge par une interface utilisateur basée sur PyMoDAQ [190].

La figure 5.8.a montre l'écart $\Delta\varphi$ mesuré sur une longue durée, dans le cas où la phase pompe-sonde dérive librement (courbe bleue) et dans le cas où elle est stabilisée par LIZARD (courbe orange). Les deux pics satellites choisis pour la stabilisation sont les ordres 14, et 22, déphasés de 0.46π , donc très proches de la quadrature de phase. Dans le cas non-stabilisé, on observe bien une importante dérive, avec la composante linéaire décrite plus haut. Dans le second cas, l'erreur RMS (*root-mean-square*), qui quantifie l'écart moyen à la consigne, et de 134 mrad, ce qui correspond à une stabilité de délai de 28 as sur le long terme. Cette stabilité est comparable à l'état de l'art [177, 191, 185, 179, 180, 181, 183], mais nous rappelons qu'ici c'est une véritable mesure de la phase pompe-sonde qui est effectuée. La durée d'impulsion la plus courte jamais mesurée [192] excède les 40 as, ce qui valide la capacité du LIZARD à stabiliser des expériences résolues en temps à l'échelle attoseconde.

En faisant varier la phase de consigne φ_0 , on peut réaliser des balayages de délai stabilisés. La figure 5.9.a présente ainsi le résultat d'une expérience RABBIT. Pour obtenir cette image, le délai a été lentement balayé durant deux heures, sur une plage de 13 fs. 10 périodes d'oscillation à 2ω sont ainsi visibles dans les oscillations des pics satellites

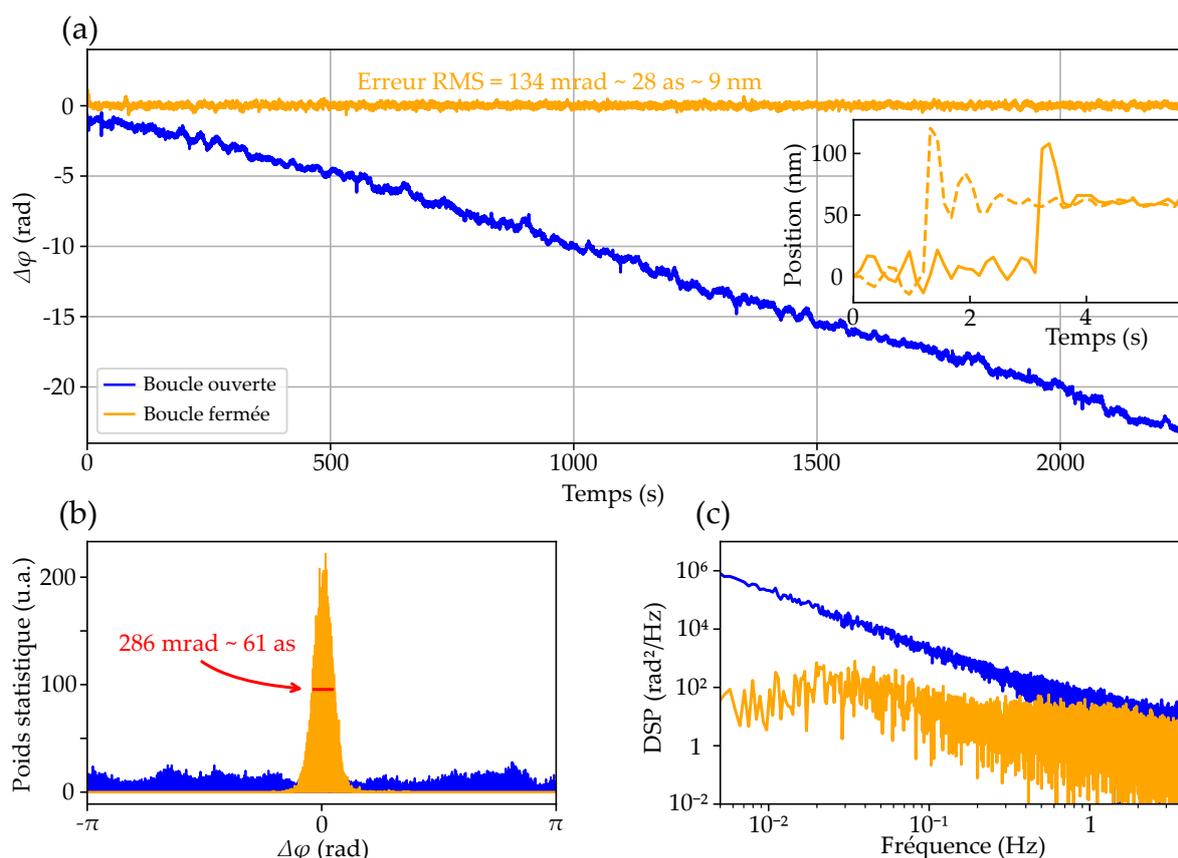


FIGURE 5.8 – Comparaison entre les dérives interférométriques en boucle ouverte (bleu) et en boucle fermée (orange, stabilisé par LIZARD). (a) Mesure à long-terme de l'erreur $\Delta\varphi$. L'encart montre l'évolution de la position de la platine piézo-électrique quand la valeur de consigne sur le chemin optique est brusquement modifiée de 100 nm, dans le cas d'un PID correctement réglé (traits pleins) et non-optimisé (traits pointillés). La nouvelle valeur de consigne est atteinte en 0.5 s. A cause de la configuration en coin de cube des miroirs, la platine ne bouge que de $100/2 = 50$ nm. (b) Histogramme de l'erreur. La largeur à mi-hauteur doit correspondre à environ deux fois l'erreur RMS, soit environ 60 as. (c) Densité spectrale de puissance (DSP), obtenue par transformée de Fourier du signal temporel. La fréquence maximale stabilisée est 5 Hz. Le bruit basse fréquence, correspondant aux dérives lentes de l'interféromètre, est efficacement réduit par le LIZARD.

et des harmoniques. Entre chaque pas de 20 nm de chemin optique, ce dernier est stabilisé, et le signal est moyenné pendant 65 s, ce qui correspond à 6.5×10^5 tirs laser.

L'effet de la stabilisation LIZARD est bien visible lorsqu'on trace la corrélation entre les intensités de deux pics satellites différents (figure 5.9.b). Les sidebands oscillant à la même fréquence mais ayant des phases différentes, le signal de corrélation prend la forme d'une ellipse [193, 194], la phase φ correspondant à l'azimut de chaque point de l'ellipse. L'orientation de cette dernière donne une indication sur la phase relative des deux sidebands : les sidebands 14 et 22 donnent ainsi une ellipse de corrélation symétrique par rapport à la verticale, alors qu'elle est largement inclinée pour les sidebands 20 et 22. Lorsque le délai τ est balayé de manière non-stabilisée, on obtient les nuages de points bleus : les ellipses sont parcourues de manière aléatoire car le

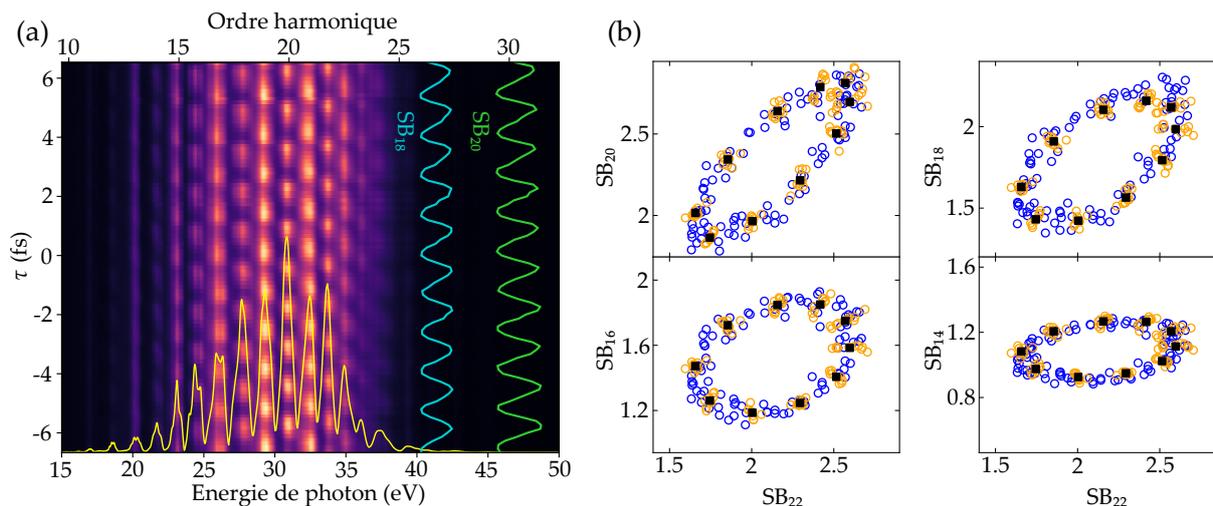


FIGURE 5.9 – (a) Scan RABBIT dans l'argon, stabilisé par LIZARD sur un durée de près de 2h. Le chemin optique est régulièrement modifié par pas de 20 nm. La courbe jaune est l'amplitude du signal oscillant à 2ω , les harmoniques (aux ordres impairs) et les sidebands (aux ordres pairs) sont visibles. Le signal brut des sidebands 18 et 20 est indiqué par les courbes bleue et verte, il oscille de façon très régulière. (b) Signaux de corrélation entre les sidebands 14,16,18,20, et la sideband 22, pour un scan stabilisé (en orange, les carrés noirs sont les points de consigne) et non-stabilisé (en bleu). Tous les axes ont la même échelle.

décali fluctue fortement. Par contre, pour le scan stabilisé par LIZARD, les points (en orange) s'accumulent au niveau des phases de consignes (carrés noirs), et l'ellipse est échantillonnée de façon discrète.

Nous pensons que le LIZARD peut devenir un outil précieux pour la mesure des phases spectrales [186] lorsque le rapport signal/bruit est particulièrement faible, en raison par exemple de sections efficaces faibles [195]. Notre technique est particulièrement adaptée aux lignes de lumière attoseconde qui sont déjà équipées d'un spectromètre électronique à temps de vol : dans ce cas elle ne nécessite aucun élément optique additionnel. Rappelons que contrairement à toutes les techniques de stabilisation interférométriques existantes, le principe du LIZARD repose sur l'interférence des paquets d'ondes photoélectroniques - et non pas de faisceaux lumineux -, ce qui permet de mesurer *in situ* la différence de phase XUV/IR.

De plus, nous pensons que cette technique pourrait être étendue au cas des impulsions attoseconde isolées. Dans ce cas, le spectre de GHOE n'est pas un peigne d'harmoniques mais un continuum de fréquences XUV, qui ne peut donner lieu à des sidebands dans le spectre de photoélectrons. Cependant, les techniques de reconstruction d'impulsions attoseconde isolées (caméra à balayage de fente attoseconde [196], FROG-CRAB [197]) utilisent également des spectrogrammes modulés avec le délai pompe-sonde. Des calculs préliminaires montrent que tant que l'impulsion attoseconde est chirpée, l'interféromètre pourrait être stabilisé en utilisant comme signaux d'entrée l'énergie moyenne du spectre, et l'intensité spectrale à cette énergie [198].

Le LIZARD est actuellement opérationnel de façon permanente sur les lignes de lumière FAB-10 et FAB-1 d'Attolab, et a déjà été utilisé pour des expériences de photoémission attoseconde en phase solide ou gazeuse [157]. La technique est protégée par

un brevet ⁶.

Conclusion du chapitre

Nous avons décrit les montages expérimentaux sur lesquels ont été effectuées les expériences présentées dans les chapitres suivants. La ligne de lumière FAB-1bis comprend un spectromètre de photons permettant au choix d'avoir une bonne résolution spectrale, ou bien d'imager le profil transverse du faisceau d'harmoniques, au détriment de la résolution spectrale. Nous avons également décrit une nouvelle méthode de stabilisation active de délais interférométriques attoseconde, implémentée au début de cette thèse : le LIZARD.

A l'issue des parties I et II, nous disposons de tous les outils nécessaires à la compréhension des chapitres suivants, où nous allons générer et caractériser des harmoniques d'ordre élevé portant divers types de moment angulaire.

6. Numéro d'identification : WO/2022/058173, numéro d'identification CEA : BD20821. Lien : <https://patentscope.wipo.int/search/fr/detail.jsf?docId=W02022058173>

Troisième partie

Moments angulaires du photon en génération d'harmoniques d'ordre élevé

Expériences de transfert de moment angulaire orbital vers l'XUV

Dans ce chapitre, on rapporte les résultats d'expériences de GHOE effectuées avec un champ de génération portant du MAO. Nous nous plaçons dans la continuité d'expériences déjà rapportées dans la littérature depuis une dizaine d'années, avec pour principal objectif de mettre en évidence les limites d'une approche perturbative de la GHOE.

6.1 Transfert de MAO en GHOE

La première expérience s'intéressant à la conservation du MAO en génération d'harmonique fut menée par M. Zürich *et al.* en 2012 [52]. Les auteurs observèrent des harmoniques de forme annulaire, et mesurèrent le MAO $\ell^{(q)} \sim \ell_1$ pour l'harmonique d'ordre q . Ce résultat surprenant suggérait que le MAO n'était pas conservé paramétriquement en GHOE. Des expériences ultérieures, à commencer par celle de Gariepy *et al.* [53] en 2014, puis par Généaux *et al.* [54] en 2016, vinrent contredire ce résultat et trouvèrent la loi d'échelle $\ell^{(q)} = q\ell_1$. Aujourd'hui, cette loi de conservation multiplicative du MAO a été confirmée à de multiples reprises par des expériences [56] et des simulations numériques [55].

Conservation paramétrique du MAO

La conservation du MAO s'interprète facilement dans une image paramétrique de la GHOE. On peut considérer *heuristiquement* que q photons infrarouges, d'énergie $\hbar\omega$ et de MAO $\hbar\ell_1$ doivent être absorbés pour émettre un photon unique de l'harmonique q , d'énergie $q\hbar\omega$ et de MAO $q\hbar\ell_1$. On prédit donc bien la loi

$$\boxed{\ell^{(q)} = q\ell_1.} \quad (6.1)$$

L'état final et initial de l'atome étant les mêmes, toutes les quantités conservées (énergie, quantité de mouvement, moment angulaire, etc.) le sont en fait pour la lumière seule. Cette image, bien que prédisant le bon résultat, doit être utilisée avec précaution. En effet, la GHOE est un phénomène de nature non-perturbative, ce qui signifie entre autre

que le nombre de photons IR impliqués dans le processus d'émission est mal défini. Nous verrons au cours de ce chapitre les premières limites d'une vision perturbative de la GHOE, et proposerons un nouveau modèle photonique non-perturbatif au chapitre 10.

La conservation du MAO en optique non-linéaire est en fait une conséquence directe des symétries de l'expérience. Considérons un champ fondamental paraxial $\mathbf{E}_1(r, \varphi, z)$, de fréquence ω , et état propre de l'opérateur MAO, pour $\ell = \ell_1$. Le champ est donc symétrique par rotation autour de l'axe z

$$\mathbf{E}_1(r, \varphi + \delta\varphi, z, t) = \mathbf{E}_1(r, \varphi, z, t)e^{i\ell_1\delta\varphi}. \quad (6.2)$$

En fait, comme on le voit, la rotation du vecteur position ne laisse pas le champ \mathbf{E}_1 totalement invariant : elle le déphase de $\ell_1\delta\varphi$. C'est une conclusion importante : pour des faisceaux portant un MAO bien défini, une rotation de la dépendance spatiale suivie d'une translation dans le temps d'une durée appropriée laisse le champ invariant. Si le milieu de génération est homogène, alors cette symétrie est respectée par l'expérience dans son ensemble, et elle doit donc rester vraie pour les harmoniques émises en vertu du principe de Curie¹. Considérons la transformation suivante : une rotation de la dépendance spatiale d'un angle $\delta\varphi$, suivie d'une translation dans le temps de $\delta t = -\frac{\ell_1}{\omega}\delta\varphi$. L'effet sur le champ fondamental est le suivant

$$\mathbf{E}_1 \rightarrow \mathbf{E}_1 e^{i\ell_1\delta\varphi} e^{i\omega\delta t} = \mathbf{E}_1 \quad (6.3)$$

Puisque le champ fondamental est inchangé, le champ \mathbf{E}_q de l'harmonique q l'est également. Or la transformation agit sur lui selon

$$\mathbf{E}_q \rightarrow \mathbf{E}_q e^{i\ell^{(q)}\delta\varphi} e^{iq\omega\delta t} = \mathbf{E}_q e^{i\ell^{(q)}\delta\varphi} e^{-iq\ell_1\delta\varphi} \quad (6.4)$$

Ainsi, le champ \mathbf{E}_q est invariant si $\ell^{(q)}\delta\varphi = q\ell_1\delta\varphi$, c'est-à-dire si on a bien

$$\ell^{(q)} = q\ell_1. \quad (6.5)$$

Enfin, cette loi de conservation peut être retrouvée dans un modèle ondulatoire de la GHOE. La phase de l'harmonique d'ordre q générée dans un plan d'atomes de gaz est approximée par $\phi_q = q\phi_{\text{IR}} - \alpha_{\text{at}}^{(q)} I_{\text{IR}}$, où ϕ_{IR} et I_{IR} sont respectivement la phase et l'intensité du champ infrarouge, et $\alpha_{\text{at}}^{(q)}$ est une constante décrivant la phase atomique (voir chapitre 4). Pour un mode de LG idéal, on a $\phi_{\text{IR}} = \ell_1\varphi$ et donc $\phi_q = q\ell_1\varphi - \alpha_{\text{at}}^{(q)} I_{\text{IR}}$. Comme I_{IR} ne dépend pas de l'azimut φ on obtient bien une phase hélicoïdale correspondant au MAO $q\ell_1$ ². Cette variation azimutale de la phase se conserve lors de la propagation de l'harmonique, tandis que la phase atomique ne participe qu'à créer une variation radiale de la phase. Le MAO est donc conservé, bien qu'on ne s'attende pas à obtenir des modes de LG purs dans l'XUV [200].

1. En substance, le principe de Curie affirme que les effets ont au moins les symétries des causes. Ici, les causes sont l'ensemble {champ fondamental + milieu de génération} et l'effet est le champ des harmoniques.

2. Nous évoquerons plus loin le cas d'un faisceau réel, imparfait. Une inhomogénéité azimutale de l'intensité correspond un contenu en MAO riche, ce qui constitue peut-être une explication des résultats rapportés par Sanson *et al.* [56] et Pandey *et al.* [199]

Expériences de GHOE avec un mode de Laguerre-Gauss dans l'infrarouge

Pour générer des harmoniques portant du MAO, on place donc une lame de phase en spirale dans le faisceau de génération. La figure 6.1 montre des spectres typiques obtenus dans l'argon par Romain Généaux durant sa thèse [54, 139], pour $\ell_1 = 1, 2, 3$. On observe des harmoniques dont le profil est annulaire, signe qu'elles portent un MAO non nul, et dont le diamètre augmente avec ℓ_1 . De plus, on observe une fréquence de coupure de l'XUV d'autant plus basse que ℓ_1 est élevé. Ceci est dû à la diminution de l'intensité crête de l'infrarouge et du taux de conversion gaussien-LG quand ℓ_1 augmente.

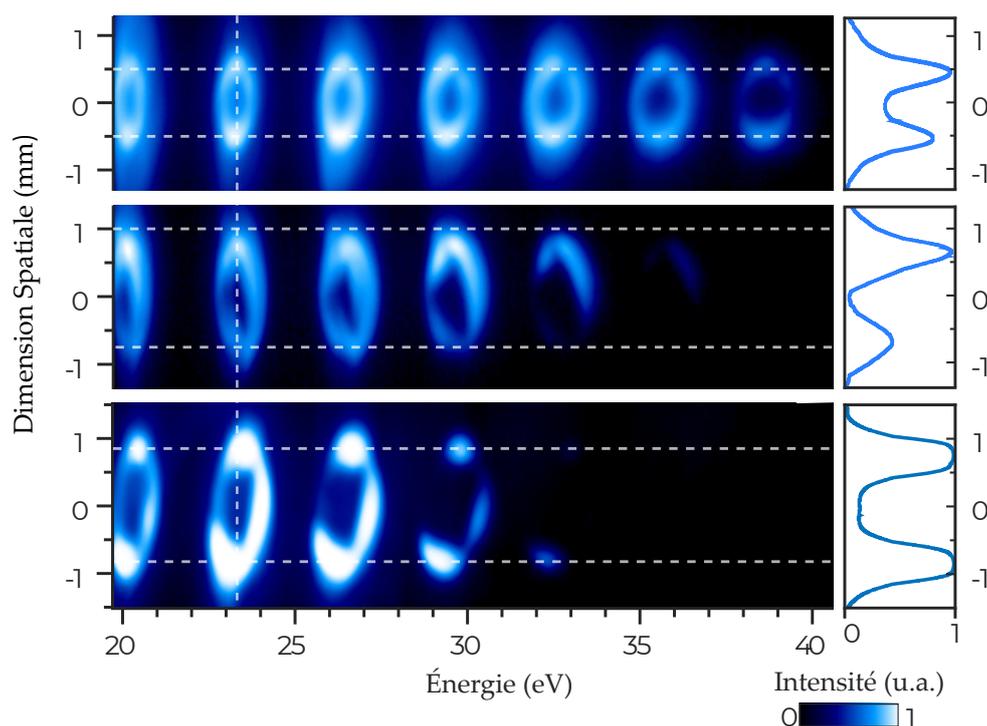


FIGURE 6.1 – Exemple de spectres d'harmoniques d'ordre 13 à 25 obtenus dans l'argon, pour différentes valeurs de MAO du faisceau fondamental. (Haut) $\ell_1 = 1$, (Milieu) $\ell_1 = 2$, (Bas) $\ell_1 = 3$. Le spectromètre utilisé est proche du nôtre dans sa configuration (1) (figure 5.2). Pour que la focalisation horizontale du réseau VLS ne détruise pas le profil des vortex, le détecteur est placé en amont du foyer du réseau. Les figures sur la droite sont des coupes d'intensité le long des lignes pointillées verticales. Tiré de [54].

Dans ces expériences, la qualité du mode de LG du faisceau de génération est cruciale. En particulier, le centrage du faisceau incident sur la LPS doit être optimisé. Il faut ensuite s'assurer que le dispositif de détection des harmoniques préserve le profil spatial des harmoniques. Les harmoniques de la figure 6.1 ont été détectées par un spectromètre du type de celui de la figure 5.2.(1), comportant un réseau de diffraction focalisant dans la dimension horizontale. En l'absence de précautions particulières, l'astigmatisme du réseau détruirait le profil des harmoniques par conversion de modes transverses (voir section 2.3.3). La figure a donc été obtenue en plaçant les MCP 8 cm en amont du foyer du réseau, au prix de la résolution spectrale (cette dernière reste toutefois suffisante pour séparer les différentes harmoniques).

Au début de cette thèse, nous avons réalisé la même expérience, en utilisant cette fois le spectromètre en incidence normale (configuration (2), figure 5.2). Nous avons alors peu ou pas d’astigmatisme, et pouvons imager fidèlement le profil des harmoniques. Cela se fait toutefois au détriment de la réflectivité : nous peinons à détecter les harmoniques d’ordre plus grand que 15.

Nous retrouvons les caractéristiques attendues : chaque harmonique prend la forme d’un unique anneau d’intensité, ce qui signifie qu’elles sont proches d’un mode de LG d’indice radial p nul. La présence de modes d’indices p supérieurs peut être accentuée en favorisant l’accord de phase des trajectoires longues de la GHOE (figure 6.3) [200]. En effet, le nombre quantique p est lié à la dilatation radiale du mode de LG. La constante α_{at} intervenant dans l’expression de la phase atomique $e^{i\alpha_{\text{at}}l_{\text{IR}}}$ dépend du type de trajectoire considérée : elle est environ 20 fois plus grande pour la trajectoire longue que pour la trajectoire courte. Les trajectoires longues vont donc induire une courbure radiale de la phase plus importante, et contribuer à enrichir les harmoniques en modes de LG d’indices $p > 0$. Dans nos expériences, nous cherchons plutôt à minimiser l’accord de phase des trajectoires longues en plaçant le foyer du laser en amont du jet de gaz, et nous nous trouvons donc dans la situation de la figure 6.3.c,d.

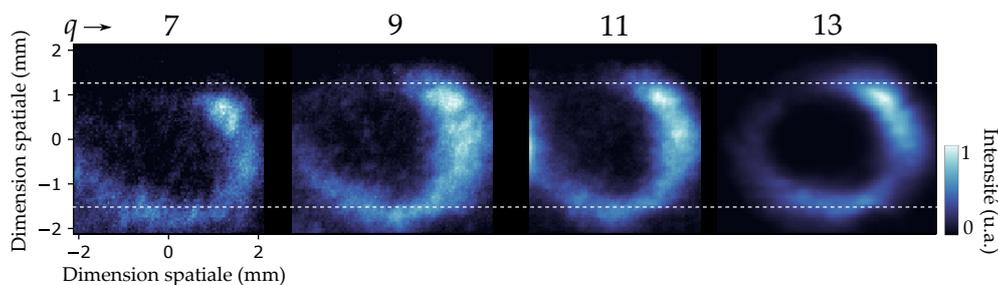


FIGURE 6.2 – Spectre d’harmoniques d’ordre 7 à 13 obtenu dans l’argon pour $\ell_1 = 1$, au début de cette thèse. Le spectromètre est en configuration "incidence normale" (figure 5.2).

Signature de la conservation du MAO dans le diamètre des anneaux

Pour mesurer le MAO des harmoniques, plusieurs techniques existent. La plupart sont des extensions au domaine XUV de techniques existantes dans le visible (voir section 2.4). On peut par exemple faire interférer les vortex XUV avec les harmoniques issues d’une source gaussienne de référence [53, 57], ou bien caractériser directement leur front d’onde à l’aide de senseurs d’Hartmann [56, 201, 202]. Nous présenterons au chapitre 9 une autre méthode, utilisant la conversion de mode transverse dans l’XUV. Ici, nous allons montrer comment la loi de conservation du MAO peut être déduite du profil d’intensité des harmoniques. Cette relation, démontrée par Généaux *et al.* [54], sera mise à l’épreuve en partie 6.2.1 de ce chapitre.

En effet, on constate en observant les figures 6.1 et 6.2 que pour une valeur donnée du MAO du champ de génération, toutes les harmoniques semblent être émises avec la même divergence, ce qui donne des anneaux d’intensité de même diamètre en champ lointain. Ces spectres ne présentent donc pas l’aspect typique des spectres d’harmoniques obtenus avec un faisceau fondamental gaussien, pour lesquels la divergence

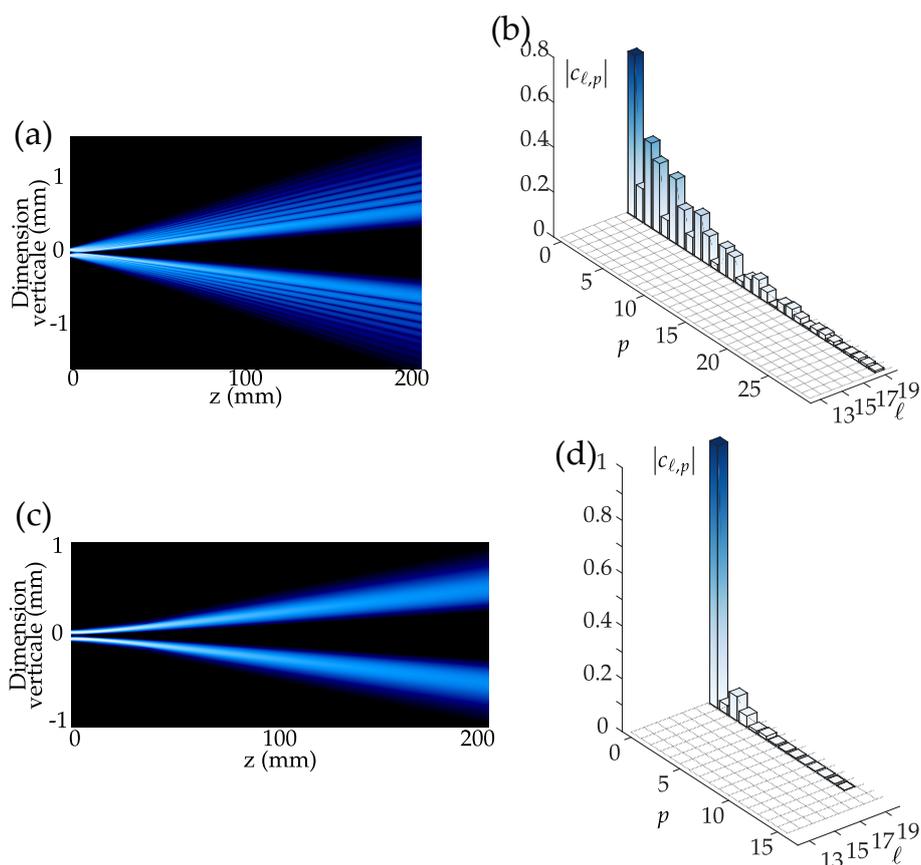


FIGURE 6.3 – (a,c) Simulation du profil de l’harmonique 19 au cours de sa propagation, dans le cas de trajectoires longues et courtes respectivement. En $z = 0$, les deux profils forment un unique anneau dont le rayon correspond à celui du mode du laser de génération au foyer. En (a), les multiples modes p , qui possèdent une phase de Gouy différente, interfèrent lors de la propagation pour donner de multiples anneaux d’intensité en champ lointain. (b,d) Décomposition sur la base des modes de LG dans le cas de trajectoires longues et courtes respectivement. Les coefficients de modules inférieurs à 10^{-4} sont ignorés. Tiré de [139] et issu de calculs numériques de Thierry Auguste.

augmente avec l’ordre harmonique³. Ceci est dû au fait que la GHOE n’a lieu qu’au niveau des régions de fortes intensité du champ laser. Pour un faisceau laser gaussien, la région où l’émission a lieu est d’autant plus petite que l’harmonique est d’ordre élevé. La phase atomique a également pour effet d’augmenter la divergence des ordres harmoniques élevés [203, 163]. Ces deux effets s’opposent à la diminution des effets de diffraction avec la longueur d’onde, et globalement les harmoniques élevées ont une divergence plus grande que les harmoniques basses.

Les choses sont bien différentes quand le champ de génération est un mode de LG : chaque harmonique prend la forme d’un anneau au foyer, dont le rayon est égal à celui du mode infrarouge et donc indépendant de q .

Supposons que l’harmonique q est émise dans un mode de LG pur, d’indices $\ell = \ell^{(q)}$ et $p = 0$. On a vu que cela était vrai en première approximation. En partant

3. Pour les trajectoires courtes (voir figure 5.3).

de l'expression 2.23 de l'amplitude des modes de LG, on peut calculer le rayon pour lequel leur intensité est maximale. Pour l'harmonique q , de longueur d'onde $\lambda_q = \lambda/q$, ce rayon s'écrit à une distance z du foyer

$$r_{\max}(q, \ell^{(q)}, z) = w(q, z) \sqrt{\frac{|\ell^{(q)}|}{2}} = w_0(q) \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda}{q\pi w_0(q)^2}\right)^2} \cdot \sqrt{\frac{|\ell^{(q)}|}{2}}, \quad (6.6)$$

où $w_0(q)$ est le waist du faisceau de l'harmonique q . De plus, puisque les harmoniques sont émises au niveau du pic d'intensité de l'infrarouge, on a

$$r_{\max}(q, \ell^{(q)}, 0) = w_0(q) \sqrt{\frac{|\ell^{(q)}|}{2}} = w_0(1) \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}}. \quad (6.7)$$

En injectant cette relation dans la précédente, on trouve alors

$$r_{\max}(q, \ell^{(q)}, z) = w_0(1) \sqrt{\frac{|\ell_1|}{2}} \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda}{\pi w_0(1)^2} \frac{\ell^{(q)}}{q\ell_1}\right)^2}. \quad (6.8)$$

Ainsi, r_{\max} est indépendant de q si $\ell^{(q)} = q\ell_1$. L'observation d'anneaux de même diamètres dans le spectre d'harmoniques est donc une signature de la loi multiplicative du MAO avec l'ordre harmonique.

Effet de l'inégalité angle-moment angulaire sur le contenu en MAO des harmoniques

Comme on peut le voir sur la figure 6.2, le profil d'intensité des harmoniques n'est pas toujours parfaitement invariant par rotation, certaines zones présentant des extinctions d'intensités. Ce manque de symétrie a une conséquence sur le contenu en MAO du faisceau.

En physique quantique, et notamment en optique, les grandeurs angle et moment angulaire sont conjuguées. Comme la position et l'impulsion, elles obéissent à une relation d'incertitude. Franke-Arnold *et al.* [204] ont ainsi montré qu'un faisceau de lumière localisé dans une région azimutale du plan transverse possède nécessairement un moment angulaire incertain par rapport à l'axe considéré.

Cela signifie que le MAO des harmoniques de la figure 6.2 ne peut pas être parfaitement défini, et présente nécessairement un spectre étendu. Pandey *et al.* [199] sont parvenus à quantifier cette dispersion du MAO en réalisant une mesure du front d'onde de l'harmonique $q = 25$. Une fois l'intensité et la phase spatiale connue, une transformée de Fourier azimutale donne le spectre de MAO. Le résultat est montré figure 6.4, et comparé avec le contenu en MAO du faisceau de génération. Ce dernier, bien que proche d'un mode de LG pur, contient toujours des contributions d'autres modes qui se traduiront par une modulation d'intensité avec φ . Cette modulation est accentuée par la non-linéarité de la GHOE, par le fait que le cut-off augmente avec l'intensité de génération, et par la dépendance linéaire de la phase atomique avec l'intensité. On obtient donc des harmoniques ayant un spectre de MAO plus large que celui du champ IR, approximativement centré sur la valeur $q \times \ell_1$. De même, dans une image paramétrique en terme de photons, on peut dire que dès que le champ IR présente une légère inhomogénéité, la physique très non-linéaire de la GHOE force la localisation angulaire des photons IR participant au processus d'émission. Ces photons possédant

un MAO distribué sur une certaine plage de valeurs, les photons de l'harmonique q possèdent également une distribution MAO étendue. Notons que cette interprétation est parfaitement compatible avec la conservation du MAO, la distribution restant centrée sur $q\ell_1$.

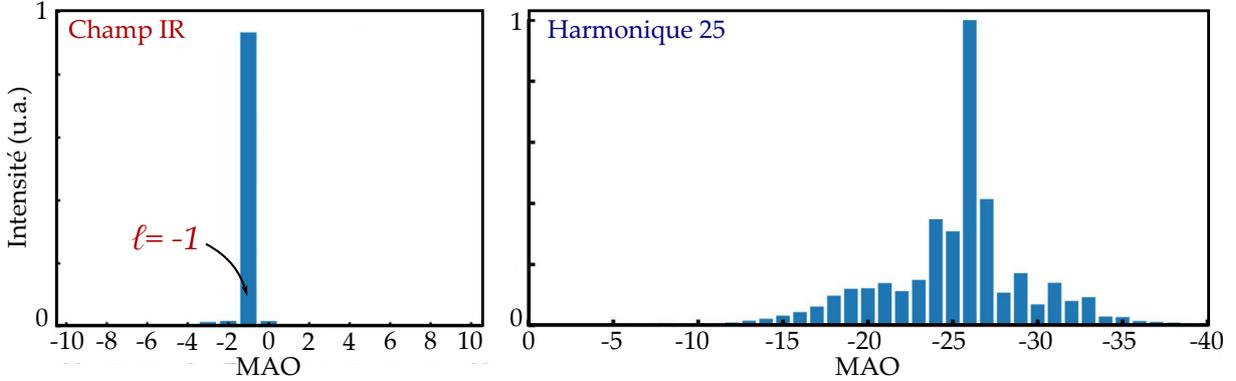


FIGURE 6.4 – Spectre de MAO du faisceau IR, un mode de LG de MAO $\ell = -1$ (gauche) et de l'harmonique d'ordre 25 obtenue dans l'argon (droite). Tiré de [199].

6.2 Contrôle du MAO des harmoniques : GHOE à deux faisceaux

La loi de transfert du MAO en GHOE $\ell^{(q)} = q\ell_1$ est donc vérifiée, chaque harmonique portant un MAO égal à son ordre multiplié par le MAO du faisceau de génération. Toutefois, pour les applications envisagées des vortex optiques XUV (voir partie IV), il serait souhaitable de pouvoir ajuster le MAO d'une harmonique donnée. On aimerait par exemple pouvoir obtenir un faisceau de fréquence $q\omega$ et de MAO $\ell = 1$.

Pour obtenir un faisceau de l'harmonique q portant un MAO $\ell^{(q)}$ arbitraire, Garipey *et al.* proposèrent en 2014 d'utiliser deux faisceaux laser de génération non-colinéaires [53], l'un d'intensité plus faible que l'autre, portant des MAO différents ℓ_1 et ℓ_2 , le point de croisement des deux faisceaux étant situé dans le jet de gaz (figure 6.7). Si l'on considère chaque faisceau comme contenant des photons portant les quantités de mouvement $\hbar\mathbf{k}_1$ et $\hbar\mathbf{k}_2$, alors la conservation de l'impulsion s'ajoute aux lois de conservation de la parité, de l'énergie et du moment angulaire (figure 6.5). En notant n_1 et n_2 les nombres de photons de chaque faisceau absorbés durant le processus d'émission⁴, on a alors $q = n_1 + n_2$ impair et

$$\hbar\omega_q = n_1\hbar\omega_1 + n_2\hbar\omega_2 \quad (6.9)$$

$$\hbar\mathbf{k}^{(q)} = n_1\hbar\mathbf{k}_1 + n_2\hbar\mathbf{k}_2. \quad (6.10)$$

$$\hbar\ell^{(q)} = n_1\hbar\ell_1 + n_2\hbar\ell_2. \quad (6.11)$$

4. Rappelons encore une fois que cette vision heuristique héritée de l'optique perturbative sera nuancée au chapitre 10.

La première de ces équations donne $\hbar\omega_q = q\hbar\omega$ dans le cas où $\omega_1 = \omega_2 = \omega$. La seconde équation prédit que chaque harmonique se sépare en plusieurs faisceaux émis dans différentes directions (figure 6.5). La troisième équation montre que chaque couple (n_1, n_2) , correspondant à une émission dans la direction $\mathbf{k}^{(q)} = n_1\mathbf{k}_1 + n_2\mathbf{k}_2$, reçoit un MAO différent. Notamment, si $\ell_1 = 0$ et $\ell_2 = 1$, la combinaison $(n_1 = q - 1, n_2 = 1)$ correspondra au MAO $\ell^{(q)} = 1$. Notons qu'ici on se place toujours dans l'approximation paraxiale : en pratique, l'angle entre les deux faisceaux sera faible (de l'ordre de 10 mrad). Ainsi, la direction de propagation z , sur laquelle nous projetons notamment le moment angulaire de la lumière, n'est pas ambiguë.

Dans la suite, pour simplifier les notations, nous notons $p = n_2$ le nombre de photons du second faisceau absorbés dans le processus d'émission⁵. On a donc $n_1 = q - p$. Partant de l'équation 6.10, et notant θ l'angle relatif des deux faisceaux, on trouve facilement que la direction d'émission correspondant à l'absorption de p photons du faisceau 2 fait un angle $\theta_{q,p}$ avec la direction de propagation du faisceau 1, angle qui est donné par

$$\tan \theta_{q,p} = \frac{p\hbar k \sin \theta}{q\hbar k \cos \theta} \Rightarrow \boxed{\theta_{q,p} \sim \frac{p\theta}{q}}. \quad (6.12)$$

Ainsi, les directions d'émission de chaque harmonique sont d'autant plus proches les unes des autres que q est élevé, comme on le voit sur la figure 6.5.

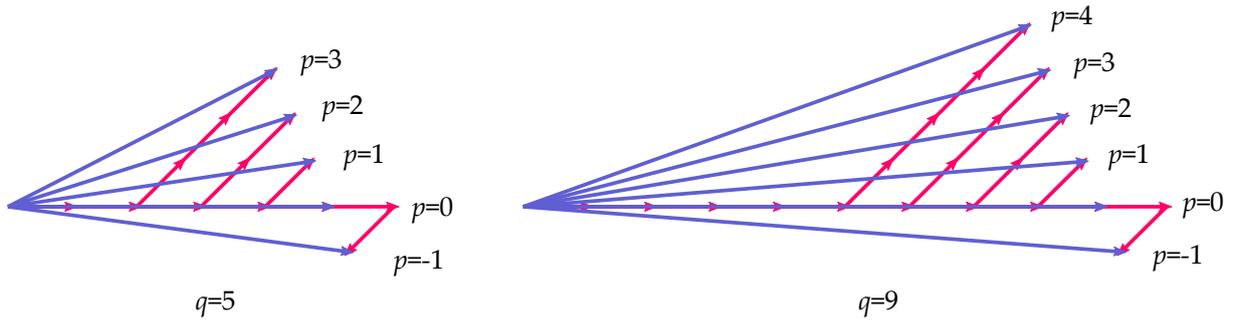


FIGURE 6.5 – Conservation paramétrique de l'impulsion des photons.

Un modèle ondulatoire de la GHOE aboutit aux mêmes prédictions. Dans leur zone de recouvrement, les deux faisceaux interfèrent, créant une série de franges brillantes et sombres. La GHOE ayant lieu dans les franges brillantes, d'intensité élevée, et pas dans les franges sombres, tout se passe comme si l'XUV était diffracté par un "réseau" placé en champ proche. Étant donné que ce réseau est également le lieu de la génération de l'XUV, on parlera de *réseau actif*. On s'attend donc à ce que chaque harmonique soit dispersée en une série d'*ordres de diffractions* en champ lointain. Comme les deux faisceaux portent des MAO différents, le réseau de champ proche est de plus en forme de fourche (voir figures 6.6 et 6.8) et ressemble aux réseaux réels introduits au chapitre 2 (voir section 2.3.2). Ainsi, chaque ordre de diffraction de l'harmonique q se voit bien communiquer un MAO différent. De plus, étant donné que la périodicité du réseau actif est fixe, mais que la fréquence des harmoniques varie comme $q\omega$, on s'attend à ce que les ordres de diffraction des harmoniques soient émis avec un angle relatif d'autant plus faible que q est élevé, en accord avec le modèle photonique et l'équation 6.12.

5. p est à distinguer de \mathbf{p} , l'indice radial des modes de LG.

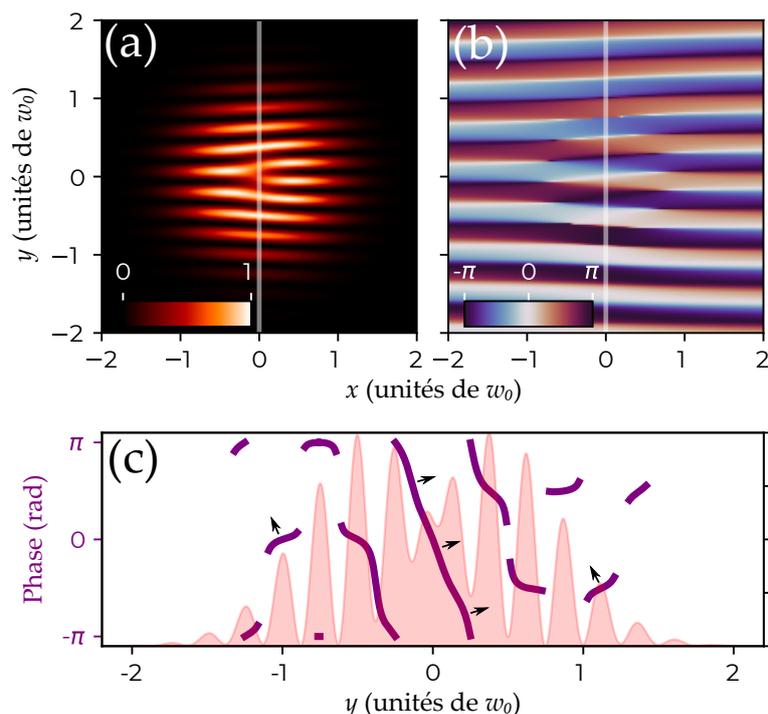


FIGURE 6.6 – Analyse de la superposition des foyers d’un faisceau gaussien et d’un mode de LG de MAO $\ell = 1$, avec un angle relatif entre les faisceaux de 50 mrad. (a) Intensité transverse, (b) phase transverse et (c) coupe de la phase en $x = 0$, l’intensité étant représentée en arrière plan. Les flèches représentent la direction locale de l’émission des harmoniques.

L’idée de générer des harmoniques d’ordre élevé avec deux faisceaux infrarouge n’est pas nouvelle. La première expérience de ce type eut lieu en 2011 [205]. Les auteurs s’intéressèrent aux intensités relatives des ordres de diffraction, et affirmèrent qu’elles obéissent à une loi *perturbative*, c’est-à-dire que l’amplitude de l’ordre de diffraction p varie comme

$$E_p \propto \left(\frac{|E_2|}{|E_1|} \right)^{|p|}, \trianglequad (6.13)$$

avec $|E_1|$ et $|E_2|$ les amplitudes des deux champs. Nous verrons plus loin que cette loi est en fait valide seulement si $\frac{|E_2|}{|E_1|} \ll 1$, ce qui est signifié par le symbole "attention" ci-dessus. Des comportements beaucoup plus riches, témoignant de la nature non-perturbative de la GHOE, peuvent être observés aux ratios d’intensité plus élevés.

Le schéma de GHOE avec deux faisceaux portant du MAO fut mis en place en 2016 par Kong *et al.* [57] et Gauthier *et al.* [58] séparément. Les premiers caractérisèrent le MAO des faisceaux XUV par interférométrie, les seconds par mesure du front d’onde. Nous nous proposons de reproduire ces résultats expérimentaux. Nous verrons que nos observations portent la trace de phénomènes plus complexes que la simple conservation du MAO, qui trouveront une explication au chapitre 10.

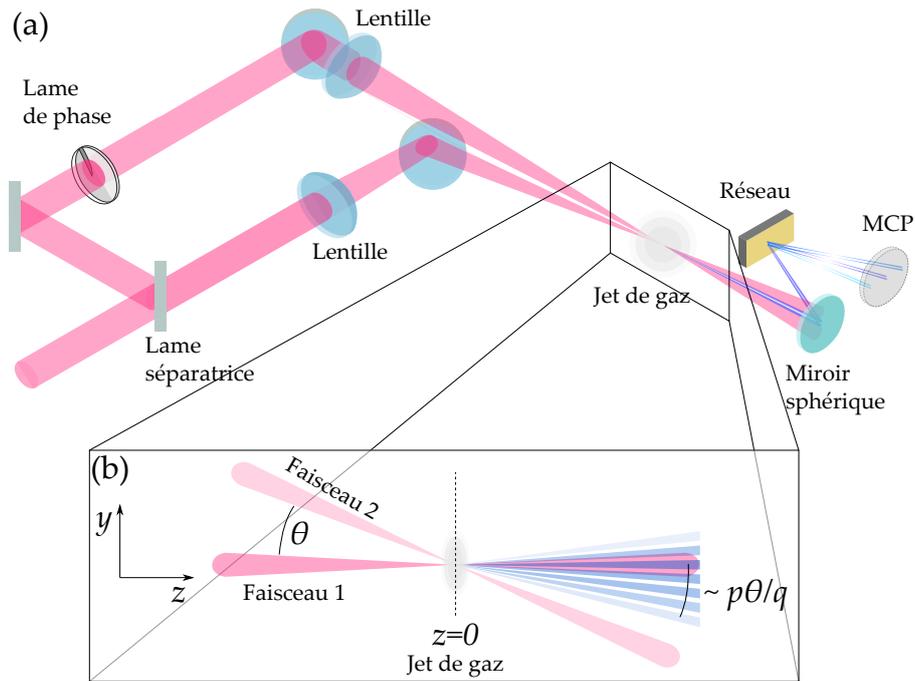


FIGURE 6.7 – Expérience de GHOE avec deux faisceaux non-colinéaires, l’un portant du MAO et l’autre non. Un atténuateur (il n’est pas montré sur la figure), constitué d’un polariseur et d’une lame demi-onde, est placé dans le bras du faisceau 2.

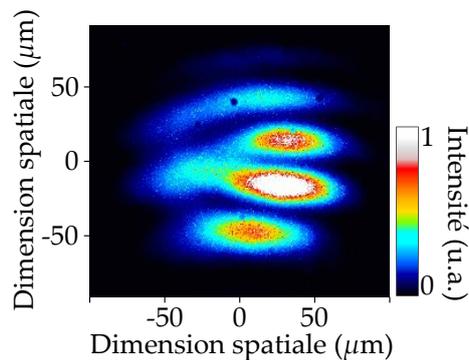


FIGURE 6.8 – Intensité laser au foyer des lentilles de 75 cm lorsque l’atténuateur est à sa transmission maximale. Le faisceau 1 est un mode gaussien, le faisceau 2 est un mode de LG de MAO $l_2 = 1$. Leur angle relatif est 25 mrad. Les points plus sombres sont dûs à des défauts des optiques d’imagerie.

6.2.1 Résultats expérimentaux

Dans cette section, nous présentons des observations réalisées avec le montage représenté figure 6.7. Le faisceau laser entrant est séparé en deux bras grâce à un interféromètre de Mach-Zender (voir l’annexe B pour visualiser le trajet du faisceau sur la table optique). Les deux bras sont recombinaés avec un angle relatif ajustable en sortie de l’interféromètre. L’un des faisceaux (le faisceau 1) est intense, se propage à l’horizontale ($\mathbf{k}_1 = k\mathbf{u}_z$) et porte le MAO $l_1 = 0$. Le second faisceau (faisceau 2) se propage avec un angle θ ajustable par rapport à l’horizontale, et porte $l_2 = 1$. La différence de marche entre les deux bras de l’interféromètre est annulée à l’aide de

deux miroirs placés sur une platine motorisée sur le trajet du faisceau 1. Les deux faisceaux sont focalisés dans le jet de gaz à l'aide de deux lentilles convergentes de 75 cm de distance focale. L'intensité du faisceau 2 peut être modulée à l'aide d'un polariseur vertical précédé d'une lame demi-onde. Cela nous permet de faire varier le ratio d'intensités $\frac{I_1}{I_2}$, où I_1 et I_2 sont les intensités totales dans les faisceaux 1 et 2, en gardant les autres paramètres expérimentaux constants. Nous imageons le champ IR total au foyer des deux faisceaux à l'aide d'une caméra CCD sur laquelle est montée un objectif, pour vérifier qu'il contient bien la dislocation attendue (figure 6.8).

- (1) On commence par générer des harmoniques avec le faisceau 1. Ce dernier se propageant horizontalement, on peut l'utiliser pour aligner le spectromètre XUV à l'air libre, en ouvrant les chambres à vide.
- (2) On ajoute ensuite le faisceau 2, en observant le bon recouvrement des deux faisceaux avec une caméra ou en optimisant la luminosité du plasma formé dans l'air par l'interférence des deux champs.
- (3) Le recouvrement est ensuite optimisé en observant les ordres de diffraction détectés sur les MCP.

Faible ratio d'intensité des deux faisceaux de génération

La figure 6.9 montre le spectre d'harmoniques obtenu avec ce montage, pour un angle relatif $\theta = 45$ mrad et les puissances $I_1 = 340$ mW et $I_2 = 17$ mW. Comme prévu, on observe des ordres de diffraction pour chaque harmonique, correspondant à $p = \pm 1$. Les autres ordres de diffraction ne sont pas visibles, à cause de la faible intensité du faisceau 2. Chaque ordre de diffraction est un anneau d'intensité centré sur la position prédite par l'équation 6.12.

Contrairement au cas de la GHOE avec un unique faisceau portant du MAO, on observe que le rayon des anneaux des ordres $p = \pm 1$ décroît avec q . La figure 6.10 montre que le rayon des anneaux est inversement proportionnel à q , ce qui est compatible avec le fait qu'ils portent tous le même MAO (équation 6.8). Comme on l'a vu, les modèles théoriques ainsi que les mesures rapportées dans la littérature [57, 58] prédisent bien les MAO $\ell^{(q,p=\pm 1)} = (q \mp 1)\ell_1 \pm \ell_2 = \pm 1$.

Ratio d'intensité élevé

Afin d'observer un plus grand nombre d'ordres de diffraction, nous augmentons l'intensité du faisceau 2. Intuitivement, un plus grand nombre de photons du faisceau 2 est alors disponible pour participer au processus d'émission. Nous reproduisons l'expérience pour plusieurs valeurs du ratio d'intensité, en faisant varier l'angle de la lame d'onde placée en amont du polariseur dans le faisceau 2. Dans la suite, on note $\alpha = \sqrt{\frac{I_2}{I_1}}$ la racine carré de ce ratio. La figure 6.11 montre l'évolution des ordres de diffraction de chaque harmonique, pour α variant de 0 à 0.4.

Observons en détail l'harmonique 9. On constate comme prévu l'apparition de l'ordre de diffraction correspondant à $p = +2$. Son profil d'intensité est un anneau, plus grand que celui de l'ordre $p = +1$, ce qui correspond au fait qu'il porte un MAO $\ell = 2$ plus élevé.

Toutefois, les profils des harmoniques 11,13 et 15 (lignes deux à 4 de la figure 6.11) présentent des caractéristiques tout à fait remarquables :

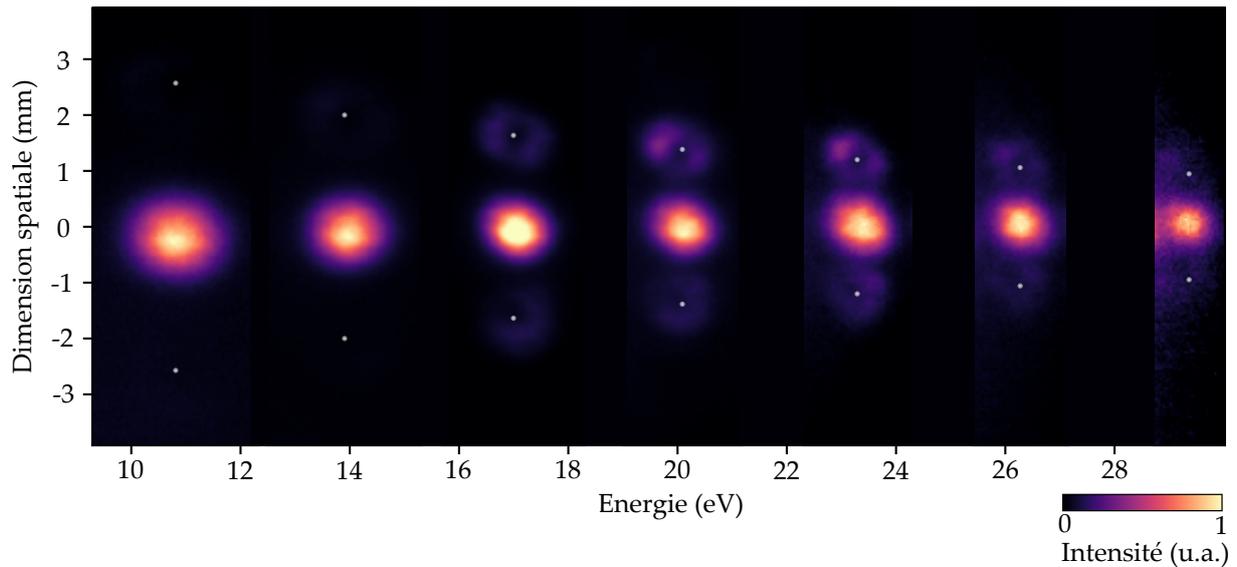


FIGURE 6.9 – Spectre d’harmoniques 7 à 19 obtenu avec deux faisceaux de génération non-colinéaires, pour $\alpha = \sqrt{\frac{I_2}{I_1}} = 0.15$. Le faisceau 1 a une puissance crête d’environ $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les points blancs montrent les positions attendues des ordres de diffraction $p = \pm 1$, d’après la loi en $p\theta/q$ (équation 6.12). L’intensité pic de chaque harmonique est normalisée. Bien que l’abscisse soit graduée en énergie, les images correspondent bien au plan transverse des harmoniques : des zones sombres ont été insérées entre les harmoniques pour préserver la lisibilité de la figure.

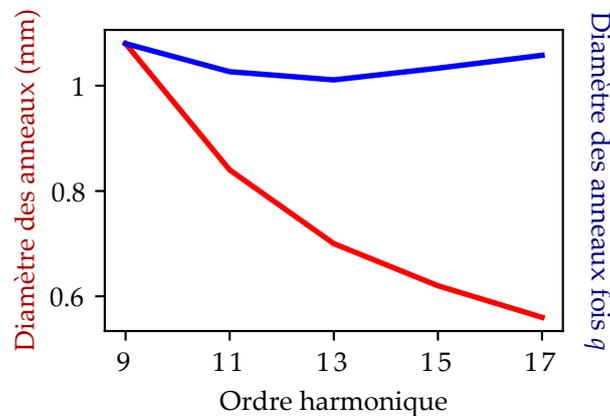


FIGURE 6.10 – Mesure du diamètre des anneaux des ordres de diffraction $p = 1$ en fonction de l’ordre harmonique (courbe rouge). La courbe bleue correspond au diamètre multiplié par l’ordre harmonique. On a $\alpha = 0.15$.

- (i) Pour toutes les harmoniques, on observe que la somme de fréquence est favorisée par rapport à la différence de fréquence, c’est-à-dire que les ordres $p > 0$ sont favorisés par rapport aux ordres $p < 0$.
- (ii) Pour α élevé (plus grand que ~ 0.2), les ordres de diffraction $p > 0$ ont une intensité comparable à celle de l’ordre $p = 0$. L’ordre $p = -1$ diminue au contraire.
- (iii) Le profil des ordres de diffraction change au fur et à mesure que α augmente. L’ordre $p = 0$ finit par devenir lui-même un anneau d’intensité! La valeur seuil

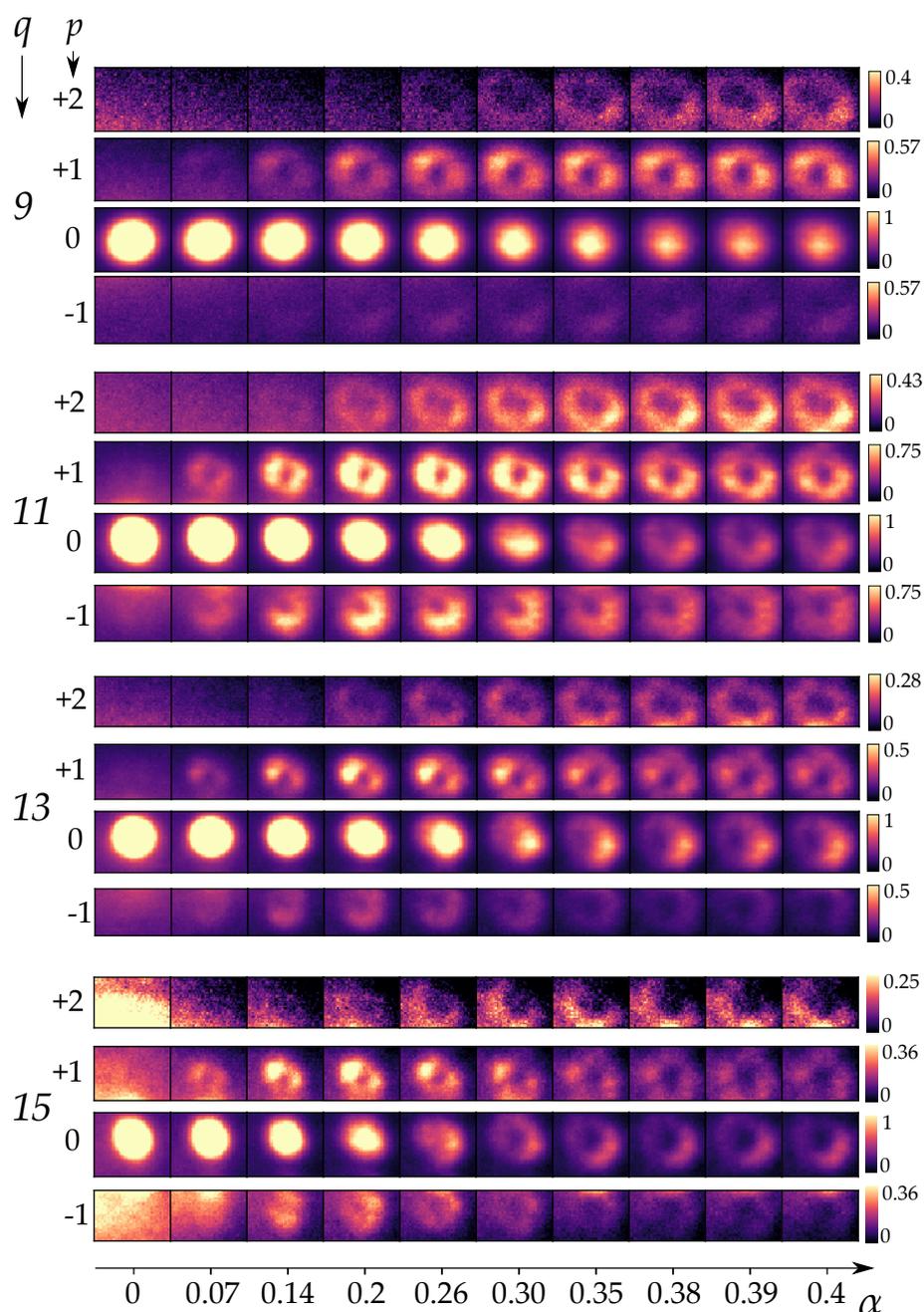


FIGURE 6.11 – Evolution de l'intensité des ordres de diffraction $p = 2, 1, 0, -1$ avec le ratio d'amplitude α des deux faisceaux IR, pour les harmoniques 9 à 15 générées dans l'argon. Pour des raisons de lisibilité, les échelles de couleurs diffèrent selon l'ordre de diffraction, cependant les échelles des ordres $p = \pm 1$ sont les mêmes afin de pouvoir comparer leurs intensités.

de α pour laquelle cela se produit diminue avec l'ordre harmonique.

(iv) Ces effets sont d'autant plus marqués que l'ordre harmonique q est élevé.

Les points (i) et (ii) sont incompatibles avec la loi d'échelle perturbative de l'équation 6.13. En effet, d'après cette loi, l'ordre $p = 0$ devrait toujours être dominant en intensité, tandis que l'intensité des autres ordres devrait diminuer avec p . De même, à cause du point (iii), notre analyse du diamètre des anneaux en fonction de l'ordre harmonique

(figure 6.10) ne semble valable que pour $\alpha \ll 1$. La figure 6.12 montre la même mesure pour $\alpha = 0.4$, le diamètre de l'anneau de l'ordre de diffraction $p = 1$ semblant alors à peu près constant avec q !

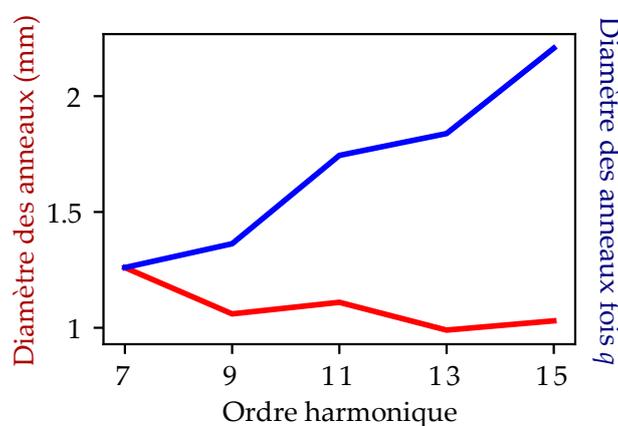


FIGURE 6.12 – Mesure du diamètre des anneaux des ordres de diffraction $p = 1$ en fonction de l'ordre harmonique (courbe rouge), pour $\alpha = 0.4$. La courbe bleue correspond au diamètre multiplié par l'ordre harmonique.

Pour finir, le fait que l'ordre $p = 0$ devienne un anneau d'intensité aux α élevés est peut-être la plus déconcertante de nos observations. Si la présence de MAO dans un faisceau laser se traduit par un profil annulaire, la réciproque n'est pas vraie. Nous allons voir plus loin que l'ordre $p = 0$ ne contient pas de singularité de phase, et donc pas de MAO. L'équation 6.11 restera donc valable dans tous les cas.

Tous ces résultats (y compris le point (iv)) sont bien reproduits par des simulations de réseau actif (figure 6.13). On observe la même modification du profil des anneaux, et des ordres de diffraction dont les intensités relatives ne respectent pas l'équation 6.13. Nous verrons au chapitre 10 comment réconcilier ces observations avec un modèle photonique de la GHOE.

Notons toutefois que le point (i) peut se comprendre assez intuitivement. Revenons à la figure 6.6.c, qui montrait la phase du champ de génération. On constate que le faisceau le plus intense a tendance à imposer sa phase au champ total. Sur l'axe optique, le mode gaussien domine et les fronts d'onde sont donc ceux du faisceau 1. Lorsqu'on s'éloigne du centre, le mode de LG finit par dominer et impose donc un front d'onde local incliné. L'émission des harmoniques ayant lieu selon la normale au front d'onde (flèches sur la figure 6.6.c), la direction d'émission moyenne tend à se rapprocher de l'axe du faisceau 2 au fur et à mesure que α augmente.

6.3 Qu'en est-il des impulsions attosecondes ?

Nous avons décrit dans la section 6.1 la GHOE à partir d'un mode de LG. Dans ce cas, la conservation du MAO a pour conséquence la production d'harmoniques possédant chacune une charge topologique bien précise, égale à celle du faisceau IR multipliée par son ordre.

Ainsi, on peut lire dans la littérature qu'un tel schéma permet la "génération d'impulsions attosecondes portant du moment angulaire orbital" [55, 53, 54]. Cette affirmation mérite pourtant une clarification. Les impulsions attosecondes naissent de la

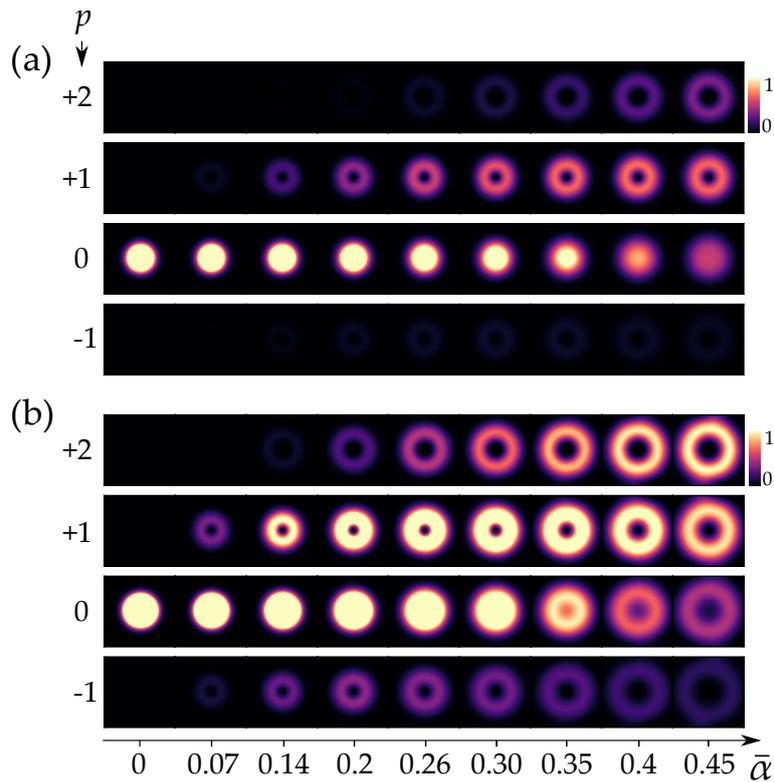


FIGURE 6.13 – Evolution simulée de l’intensité des ordres de diffraction $p = 2, 1, 0, -1$ des harmoniques 9 (a) et 13 (b) avec le ratio d’amplitude α des deux faisceaux IR.

superposition d’un grand nombre d’harmoniques ayant une certaine relation de phase. Dans notre cas, chaque harmonique porte un MAO différent, si bien que le moment angulaire porté par les impulsions résultantes est une grandeur ambiguë. Ici, on se propose d’étudier un peu plus en détail l’allure spatio-temporelle des trains d’impulsions attosecondes générés par un mode de LG.

Pour comprendre, on réalise une modélisation très simple des harmoniques générées. On considère un peigne d’harmoniques d’ordre q impair allant de q_{\min} à q_{\max} , et portant un MAO égal à $q\ell_1$, le MAO du champ IR. Ici, on note ω_1 la fréquence du champ de génération et on écrit alors le champ XUV total dans le plan transverse comme

$$E(r, \varphi, t) = \sum_{q=q_{\min}}^{q_{\max}} E_0^{(q)} A(r, q) e^{i(q\omega_1 t - \Phi(q\omega_1) + q\ell_1 \varphi)}. \quad (6.14)$$

Dans cette expression, $A(r, q)$ décrit le profil radial de l’harmonique q , $E_0^{(q)}$ est un réel donnant le poids de l’harmonique q , et $\Phi(q\omega_1)$ est la phase spectrale de l’émission à la fréquence $q\omega_1$.

Dans la suite, on supposera que les harmoniques ont le même profil radial $A(r, q) = A(r)$, qu’on prendra égal au profil d’un mode de LG d’indices $\ell = 3$ et $p = 0$. Cette approximation est justifiée par l’observation expérimentale que les harmoniques sont des anneaux d’intensité de rayon constant (figure 6.2). Le module $E_0^{(q)}$ est lui aussi supposé indépendant de q , c’est-à-dire que toutes les harmoniques ont la même intensité, ce qui est une approximation valide dans la région du plateau. Enfin, la phase spectrale

$\Phi(q\omega)$ est approximée par

$$\Phi(q\omega) = \frac{D}{2}(q\omega)^2. \quad (6.15)$$

D est la dérivée seconde de la phase par rapport à la fréquence, et correspond à la dispersion du délai de groupe. C'est une fonction croissante de q , ce qui modélise le fait que le temps d'émission croît linéairement avec l'ordre harmonique (voir chapitre 4). Ici on prendra une valeur typique $D = 3 \times 10^{-3} \text{ fs}^{-2}$ [168, 169].

6.3.1 Intensité spatio-temporelle : les ressorts de lumière

En prenant le module carré de $E(r, \varphi, t)$, on obtient l'intensité transverse de l'émission attoseconde au temps t . Elle est représentée sur la figure 6.14.a, en prenant $q_{\min} = 13$ et $q_{\max} = 39$. On observe deux lobes d'intensité tournant autour de l'origine au cours du temps. Une rotation complète de cette figure est achevée en une période T du champ de génération. En chaque point du profil transverse, on observe un train d'impulsions attosecondes séparées de $T/2$ identique à celui qu'on obtiendrait avec un faisceau de génération gaussien, à ceci près que le temps d'arrivée du train augmente avec l'azimut. C'est ce qui est représenté sur la figure : un lobe d'intensité rencontre d'abord le point (1), puis les points (2) et (3), ce qui donne les trois trains d'impulsions de la figure 6.14.b. On peut représenter le train d'impulsion dans l'espace et le temps sous la forme d'une isosurface prenant la forme d'un ressort de lumière (*light spring*, en anglais) à deux hélices [206]. Le ressort de lumière de la figure 6.14.c a été reconstruit expérimentalement par Romain Généaux en imageant l'intensité transverse des harmoniques, en mesurant la phase spectrale de l'émission par la technique RABBIT, et en supposant que la phase spatiale de chaque harmonique est $q\ell_1\varphi$ [54, 139].

Le fait que l'émission attoseconde prenne la forme d'une double hélice se comprend assez bien en se rappelant qu'une impulsion attoseconde est émise à chaque extremum temporel du champ IR. Or, le profil transverse d'un mode de LG d'indice azimutal $\ell_1 = 1$, contient deux extremas (un maximum et un minimum) tournant au cours du temps (figure 2.6). Chacun de ces deux lobes d'intensité émettant des impulsions attosecondes continûment, on obtient bien un ressort XUV à deux hélices. Avec un faisceau de génération de MAO $\ell_1 = 2$, on obtiendrait un ressort de lumière à quatre hélices, bien que les trains d'impulsions émis *localement* soient inchangés. Ainsi, l'équivalence angle-temps de l'expérience conduit la variation temporelle de l'émission, de périodicité $T/2$ à être lisible dans le profil spatial du faisceau, avec une périodicité azimutale de π .

6.3.2 Phase spatio-temporelle : MAO dynamique à l'échelle attoseconde

Les light-springs ont été prédits théoriquement par Hernández-García *et al.*, avant d'être observés expérimentalement [54, 139]. Toutefois, ils ne nous disent pas grand chose sur le contenu en MAO d'une impulsion attoseconde du train généré. D'après l'équation 6.14, le faisceau attoseconde possède un spectre de MAO s'étendant de $q_{\min}\ell_1$ à $q_{\max}\ell_1$. De plus, à cause de l'atto-chirp, les harmoniques sont déphasées. Or, fréquence et MAO sont reliés de manière univoque par la loi de conservation du MAO :

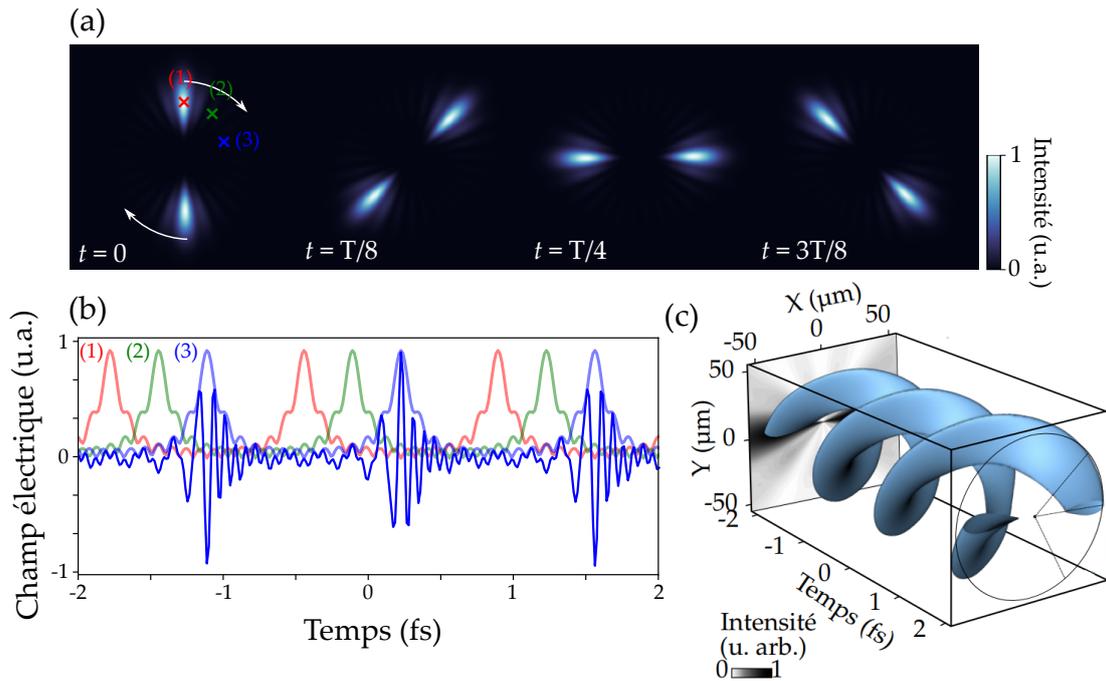


FIGURE 6.14 – (a) Intensité transverse instantanée des impulsions attosecondes obtenues pour $l_1 = 1$, à différents temps, calculée avec l'équation 6.14. T est la période du champ de génération. (b) Enveloppe des d'impulsions aux points (1), (2) et (3) correspondants dans la figure (a). Le champ électrique du train bleu est également représenté, l'attochirp est visible sous la forme d'oscillations de fréquence croissante. (c) Intensité spatio-temporelle du train d'impulsions attosecondes reconstruite expérimentalement par Généaux *et al.* [54, 139]. L'isosurface correspond à 80% de l'intensité crête.

cela signifie t-il que le moment angulaire des impulsions varie dans le temps, à l'échelle attoseconde ?

Pour le savoir, partons de l'équivalence entre translation dans le temps et rotation dans le cas de la GHOE avec un mode de MAO l_1

$$\frac{\partial}{\partial t} = \frac{\omega}{l_1} \frac{\partial}{\partial \varphi}. \quad (6.16)$$

Cette équation traduit le fait qu'une rotation d'angle $\delta\varphi$ est ici équivalente à une translation temporelle de durée $l_1\delta\varphi/\omega$.

Notons qu'ici toutes les grandeurs permettant de caractériser le champ sont locales, et dépendent du temps. Les impulsions attosecondes étant chirpées, nous les exprimons sous la forme

$$E(r, \varphi, t) = \mathcal{E}(r, \varphi, t)e^{-i\phi(r, \varphi, t)}, \quad (6.17)$$

avec $\mathcal{E}(r, \varphi, t)$ l'enveloppe de l'impulsion, lentement variable devant le terme de phase. ϕ est la phase instantanée de l'impulsion, dont la dérivée temporelle donne par définition la fréquence instantanée. En vertu de l'équivalence angle-temps 6.16, cette dernière est égale à

$$\omega(r, \varphi, t) = \frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\omega_1}{l_1} \frac{\partial \phi}{\partial \varphi}. \quad (6.18)$$

En assimilant la dérivée partielle du terme de droite au MAO local, on obtient alors

$$\ell(r, \varphi, t) \sim \ell_1 \frac{\omega(r, \varphi, t)}{\omega_1}. \quad (6.19)$$

La fréquence ω dépendant du temps à cause de l'atto-chirp, le MAO local varie donc lui aussi dans le temps. Pour visualiser ces variations du MAO, nous montrons figure 6.15.a,b l'intensité et la phase du champ donné par l'équation 6.14 à un instant donné. Les deux lobes d'intensité évoqués plus haut contiennent un certain nombre de sauts de phase azimutaux. La phase spatiale ressemble ainsi à celle d'un mode de LG, à ceci près que les sauts de phase ne sont pas régulièrement espacés : ils sont plus éloignés les uns des autres sur le front montant de l'impulsion, et se resserrent petit à petit au cours du temps. Ainsi, en un point donné du faisceau, la pente de phase augmente pendant la durée de l'impulsion. La figure 6.15.c montre la phase et le MAO $\ell(r, \varphi, t)$ pour un rayon r donné, en fonction de φ . On constate que le MAO local augmente sur la largeur de chaque lobe d'intensité, effectuant une transition continue de $q_{\min}\ell_1 = 13$ à $q_{\min}\ell_1 = 39$. D'après l'équation 6.16, cela signifie que le MAO local augmente de la même façon au cours du temps en chaque point du profil. En l'absence d'atto-chirp, on aurait $\omega(t) = \text{constante}$ et le MAO serait lui aussi constant au cours du temps (équation 6.19) et égal à la valeur moyenne du MAO des harmoniques.

En résumé, l'équivalence angle-temps en GHOE avec un faisceau IR portant du MAO nous permet d'affirmer que toute quantité variant dans le temps varie de la même façon avec l'azimut. Ainsi, si la phase du champ varie dans le temps (ce qui correspond à une certaine *fréquence*), elle doit également varier azimutalement (ce qui correspond à du MAO). Si, de plus, la fréquence instantanée varie dans le temps (c'est-à-dire s'il y a un *chirp*), le MAO doit varier avec l'azimut, ce qui en retour se traduit par un MAO local dépendant du temps. Insistons bien sur le fait que le MAO n'est défini que localement ici (il s'agit en fait de la densité de MAO) : le MAO intégré sur le profil transverse du faisceau est indépendant du temps. Mais, en chaque point du profil, la densité de MAO varie lors du passage de l'impulsion attoseconde.

Ce MAO variable causé par la conservation du moment angulaire en GHOE et par l'atto-chirp est à l'heure actuelle impossible à observer directement, car les variations se produisent localement, et à une échelle de temps inférieure à la durée des impulsions attosecondes. Cependant, un système physique qui subirait l'influence du MAO des harmoniques, et aurait une réponse dynamique attoseconde, serait probablement sensible à cette variation extrêmement rapide du moment angulaire.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons décrit la génération d'harmoniques avec un ou deux faisceaux IR non-colinéaires portant du MAO. Nous avons mis en évidence les premières limites d'une loi d'échelle perturbative pour l'intensité et le profil des ordres de diffraction des harmoniques. Nous avons notamment montré que dans le cas gaussien-LG, le rayon des anneaux d'intensité observés dans le spectre XUV était compatible avec l'évolution en $\sqrt{|\ell|}$ du rayon des modes de LG uniquement lorsque le faisceau de génération vortex est de faible intensité par rapport au faisceau gaussien. Dans le cas général, des profils d'allure étonnante sont observés.

Nous avons également apporté un éclairage sur la notion de MAO porté par les impulsions attosecondes résultantes.

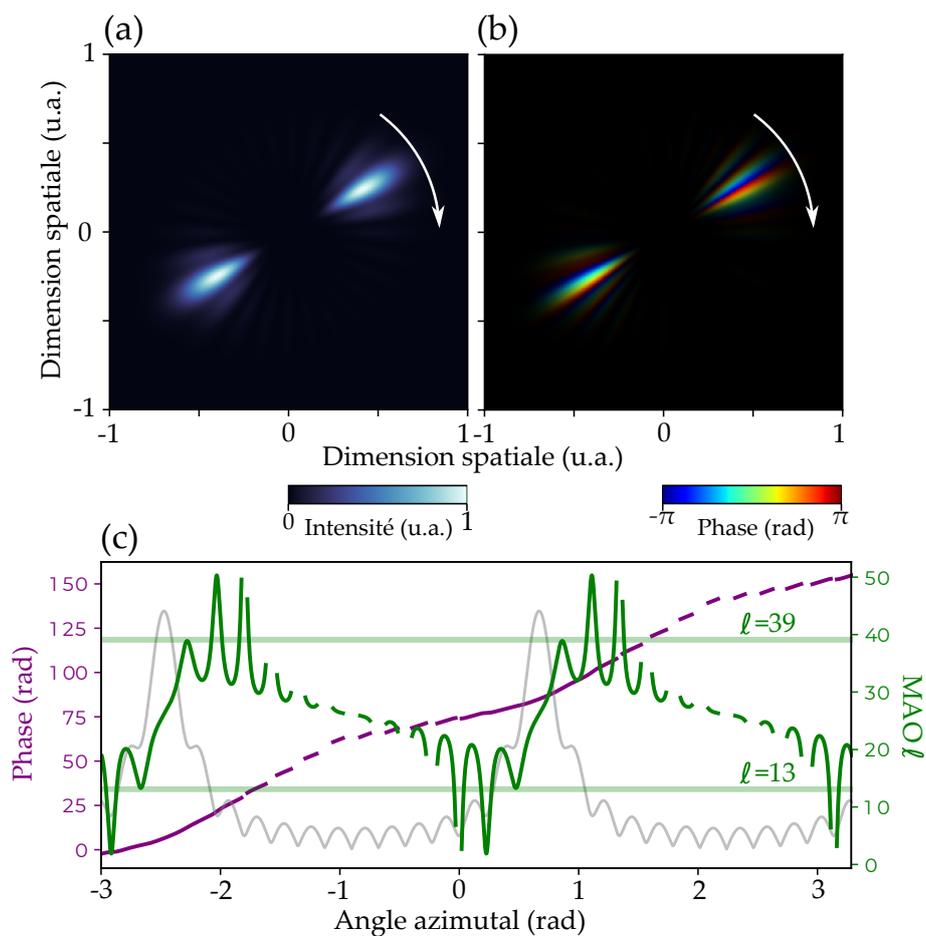


FIGURE 6.15 – (a) Intensité et (b) phase du champ donné par l'équation 6.14, pour un temps t donné. (c) Phase (violet) et densité de MAOI (vert) pour un rayon donné, en fonction de l'azimut φ . Le module du champ est indiqué par la courbe grise.

Expériences de transfert de moment angulaire de spin vers l’XUV

Dans ce chapitre, nous présentons des résultats d’expérience de GHOE avec des faisceaux de polarisation circulaire. La conservation du MAS en GHOE faisant désormais consensus [63], ce chapitre a surtout pour but de nous convaincre de notre capacité à générer des harmoniques de polarisation circulaire, ainsi que de mettre en évidence de nouvelles limites des modèles perturbatifs dans l’estimation de l’ellipticité des harmoniques générées.

7.1 GHOE en polarisation elliptique

Par analogie avec les expériences du chapitre précédent, on peut imaginer générer des harmoniques polarisées circulairement en utilisant un champ de génération de polarisation circulaire. Cependant, si l’on réalise l’expérience, on obtient une intensité harmonique rigoureusement nulle. L’effet de l’ellipticité du champ IR sur l’efficacité de la GHOE fut étudié en 1993 par Budil *et al.* [207]. La figure 7.1 montre les résultats obtenus dans l’argon à 825 nm. On observe une très forte diminution de l’intensité des harmoniques avec l’ellipticité, les harmoniques n’étant en pratique pas détectables pour des ellipticités supérieures à 0.6 en valeur absolue. De plus, cette diminution est d’autant plus rapide que l’ordre harmonique est élevé. Ce phénomène rend donc impossible le transfert de MAS d’un unique faisceau IR polarisé circulairement aux harmoniques.

On peut comprendre cet effet à l’aide du modèle à trois étapes de la GHOE. Lors de la deuxième étape, l’électron est libre de se déplacer dans le continuum sous l’effet du champ électrique du laser. Si ce dernier est polarisé linéairement, l’électron suit une trajectoire rectiligne qui le ramène éventuellement à proximité du noyau après une demi-période du champ. Si le champ est polarisé circulairement, l’électron est accéléré le long d’une trajectoire en spirale qui ne le ramène jamais à son point de départ, empêchant donc la recombinaison et l’émission de rayonnement XUV. Entre ces deux situations, l’efficacité de la GHOE décroît avec l’ellipticité. En réalité, la recombinaison reste possible pour des ellipticités non-nulles, pour deux raisons liées à la nature quantique de l’électron. Tout d’abord, l’extension spatiale limitée du paquet d’onde électronique avant l’étape d’ionisation tunnel, comparable à la taille de

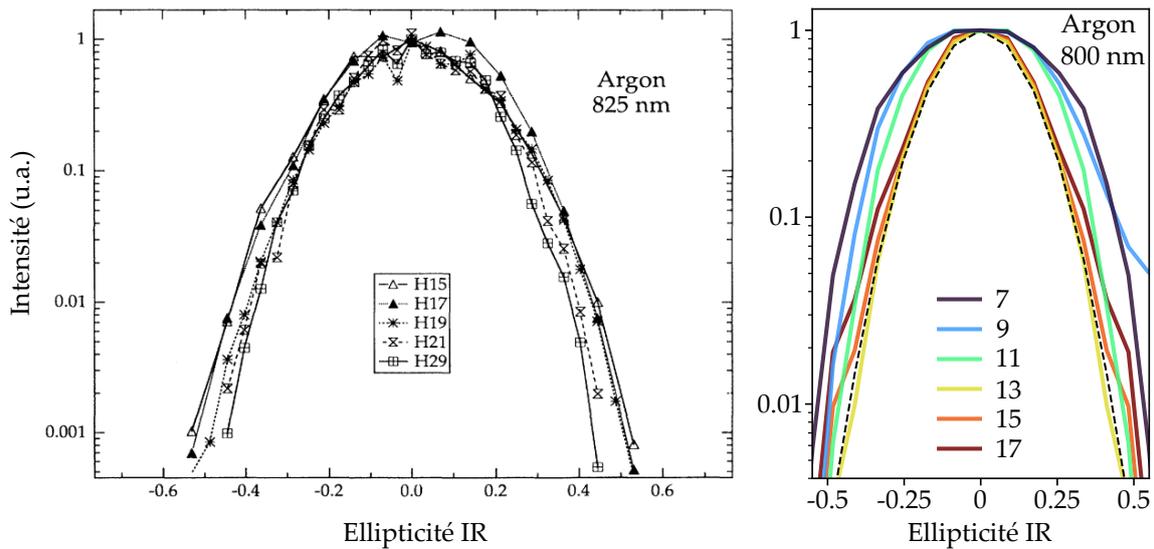


FIGURE 7.1 – Intensité des harmoniques générées dans l’argon en fonction de l’ellipticité du champ de génération par Budil *et al.* [207] (gauche) et au cours de cette thèse (droite), pour des intensités et des longueurs d’onde similaires. La ligne pointillée à droite correspond à la fonction $e^{-(\epsilon/0.2)^2}$, où ϵ est l’ellipticité du champ IR, qui semble être une très bonne approximation de l’efficacité de la GHOE pour les harmoniques d’ordre supérieur ou égal à 13.

l’orbitale atomique dans laquelle il se trouve, implique par la relation d’incertitude position-impulsion que la quantité de mouvement de départ de l’électron est mal définie. Ce dernier peut donc quitter le noyau avec une vitesse initiale non nulle, ce qui peut donner des trajectoires repassant bien par le noyau. De plus, l’extension spatiale du paquet d’onde libéré croît au cours du temps et peut donc, au moment où l’électron repasse au voisinage de son point de départ, s’étendre jusqu’au cœur ionique, même dans le cas d’une trajectoire elliptique.

Encore, une fois, considérer la GHOE comme un processus photonique paramétrique apporte un point de vue complémentaire. Contrairement au moment angulaire orbital, le moment angulaire de spin d’un photon est restreint à deux valeurs : $\pm\hbar$ (voir chapitre 3). Si le champ IR est polarisé circulairement, l’émission de l’harmonique $q > 1$ est impossible, car des photons de fréquence $q\omega$ émis devraient porter le MAS $\pm q\hbar$. Dans un champ d’ellipticité plus faible que 1, on peut combiner q photons IR de MAS $+\hbar$ et $-\hbar$ pour obtenir un photon d’énergie $q\hbar\omega$ et de MAS $\pm\hbar$. Pour un champ polarisé linéairement, les combinaisons menant à l’émission d’un photon de MAS $+\hbar$ et $-\hbar$ sont équiprobables, et l’harmonique résultante porte donc un MAS nul *en moyenne* : elle est polarisée linéairement. Pour un champ de polarisation elliptique, les deux combinaisons ne sont en général pas équiprobables, et on observe des harmoniques dont l’ellipticité augmente avec celle du champ de génération tout en lui restant inférieure (figure 7.2).

Pour contourner cette limitation fondamentale et obtenir des harmoniques portant un MAS moyen élevé, il existe plusieurs façons de faire. On peut tout d’abord modifier la polarisation de l’XUV a posteriori, en réfléchissant les harmoniques sur des miroirs avec un angle d’incidence bien choisi, pour déphaser les deux composantes du champ de $\pi/2$ [209]. Cette technique est de plus en plus répandue, mais ne permet pas d’obtenir

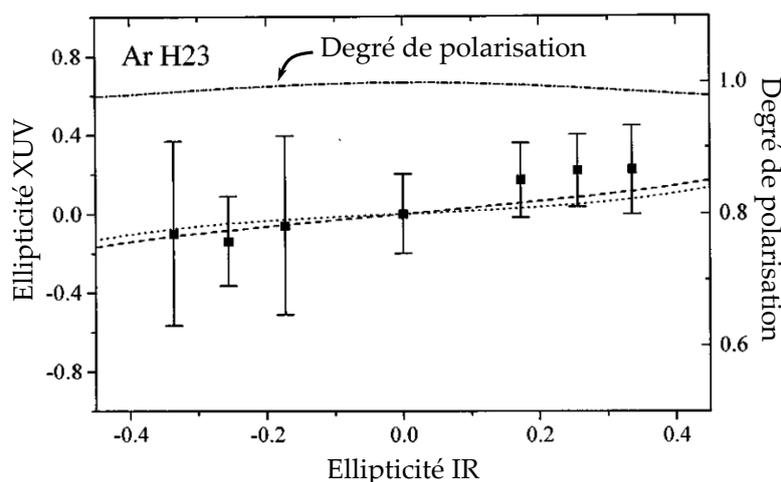


FIGURE 7.2 – Mesures de l'ellipticité de l'harmonique 23 générée dans l'argon (carrés), et degré de polarisation, en fonction de l'ellipticité du champ de génération. Les lignes pointillées sont des résultats de simulation. Extrait de [208].

une ellipticité constante sur une large bande spectrale. La deuxième façon de faire, qui nous intéresse dans cette thèse dédiée à la conservation du moment angulaire en GHOE, est de transférer le MAS du champ IR aux harmoniques en utilisant une superposition de plusieurs champs IR, comme au chapitre précédent. Comme nous le verrons, cette technique n'est pas non plus exempte d'inconvénients. Une troisième méthode consiste à exploiter des *résonances* pour favoriser l'excitation d'un dipôle transverse par un champ IR polarisé elliptiquement [139]. Enfin, il est possible de briser la symétrie du milieu de génération : des harmoniques polarisées elliptiquement ont ainsi été obtenues par GHOE dans des molécules alignées [210, 211].

7.2 GHOE par deux faisceaux de MAS opposés : théorie

Pour rendre l'étape de recombinaison possible, on peut "sculpter" le champ IR pour que ce dernier mène à une trajectoire électronique repassant par l'ion. Pour ce faire, Eichmann *et al.* [212] utilisèrent en 1995 deux faisceaux IR de polarisations circulaires opposées, l'un doublé en fréquence par rapport à l'autre. Le champ électrique résultant prend dans ce cas la forme d'un trèfle à trois feuilles. Ils parvinrent alors à générer des harmoniques de façon efficaces, car on peut montrer que certaines trajectoires électroniques repassent bien à proximité de l'origine (figure 7.3). On parlera de GHOE-PCC, pour GHOE en polarisations circulaires croisées.

Pour prendre en compte la conservation du MAS en GHOE à deux faisceaux, on peut ajouter aux équations 6.9 et 6.10 la condition suivante

$$\hbar\sigma^{(q)} = n_1\hbar\sigma_1 + n_2\hbar\sigma_2 = \pm\hbar, \quad (7.1)$$

avec $\sigma_1 = \pm 1$ et $\sigma_2 = \mp 1$ les MAS associés aux deux faisceaux IR. On voit donc que l'émission de l'harmonique d'ordre $q = n_1 + n_2$ est autorisée seulement si $n_1 = n_2 \pm 1$.

Dans le cas de la GHOE-PCC à deux couleurs, l'un des faisceaux de génération est doublé en fréquence par rapport à l'autre : on a donc $\omega_2 = 2\omega_1$. Pour respecter la conservation de la parité du nombre de photons, l'harmonique de fréquence $q\omega_1 =$

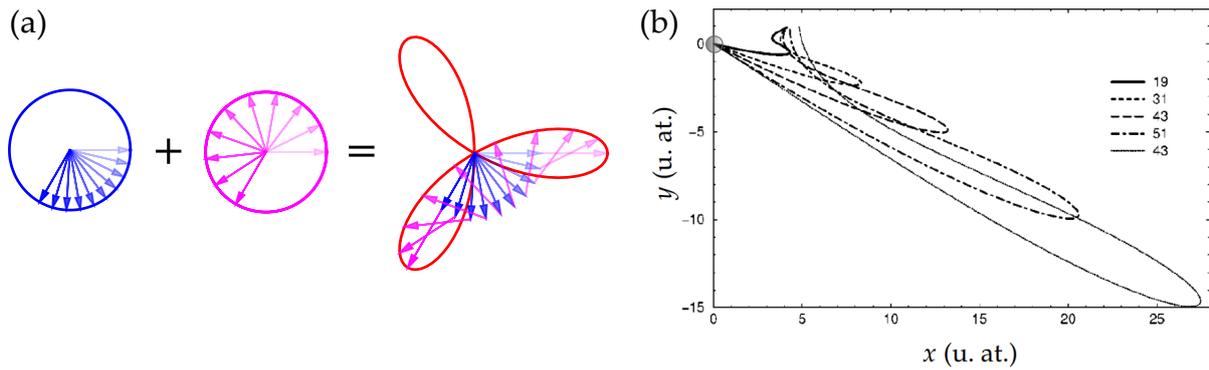


FIGURE 7.3 – (a) Champ électrique résultant de la superposition de deux champs à ω et 2ω , polarisés circulairement en sens contraire et d'intensités égales. (b) Trajectoires électroniques dans ce champ, correspondant aux harmoniques 19 à 51. La position du noyau atomique est représentée par un cercle. Figure (b) extraite de [213].

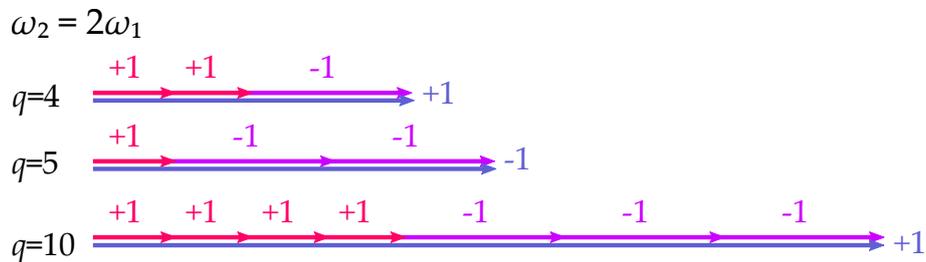


FIGURE 7.4 – Diagrammes photoniques autorisés par la conservation du MAS et de la parité en GHOE-PCC, pour diverses harmoniques, dans le cas à deux couleurs. Le MAS de chaque photon est indiqué.

$n_1\omega_1 + n_2 \cdot 2\omega_1$ est détectable pourvu que $n_1 + n_2$ soit impair. Cela peut donner des fréquences XUV multiples pair ou impair de ω_1 . Cependant, on se convainc facilement que les harmoniques d'ordre multiple de 3 ne peuvent pas respecter l'équation 7.1. En effet, pour ces harmoniques on a $q = n_1 + 2n_2 = 3m$, avec m un entier. Combiné avec la relation $n_1 = n_2 \pm 1$, on trouve $3n_2 = 3m \mp 1$, qui n'a pas de solution pour n_2 entier. En dehors de ces ordres interdits, deux harmoniques successives portent alors des MAS bien définis et opposés. On obtient donc bien des harmoniques polarisées circulairement.

Ce schéma fut proposé en 1995 [212, 214], mais la polarimétrie des harmoniques obtenues fut réalisée pour la première fois par Fleisher *et al.* en 2014 seulement [62]. Les auteurs observèrent bien une extinction des harmoniques multiples de 3, et mesurèrent des ellipticités très proches de ± 1 pour les harmoniques autorisées. Dans un second temps, ils firent varier l'ellipticité du champ IR. Ils modélisèrent la situation en associant à chaque photon des faisceaux de génération un spin "effectif" non-entier, variant continûment de 0 à 1 en valeur absolue. Les ellipticités mesurées dans l'XUV furent très différentes des valeurs prédites par les diagrammes photoniques : le MAS moyen du photon XUV émis n'est en effet pas la somme des MAS moyens des photons IR impliqués dans le processus d'émission. Cela obligea les auteurs à remettre en question la nature paramétrique de la GHOE et à supposer que des harmoniques d'ordre différents sont émises de manière conjointe, pour que le moment angulaire de

la lumière reste conservé.

Pourtant, une telle contradiction ne doit pas nous étonner. Nous avons vu au chapitre 3 que dans la base des ondes planes, l'opérateur MAS a *uniquement* pour valeurs propres \hbar ou $-\hbar$ pour un mode peuplé d'un photon. En général, une onde plane polarisée elliptiquement contient donc des photons dans une superposition d'états circulaires gauche et droit, et non pas des photons dans un état de MAS non-entier. La mesure du MAS des photons donne toujours le résultat "puremment gauche" ou "puremment droit". Peu après la publication de l'article de Fleisher *et al.*, Pisanty *et al.* publièrent les calculs corrects de MAS [63], cette fois-ci en accord avec les valeurs mesurées. Depuis, il a été montré que la GHOE-PCC à deux couleurs pouvait être utilisée pour sonder les symétries des atomes ou des molécules utilisés comme milieu non-linéaire [215].

7.2.1 GHOE avec deux faisceaux monochromatiques de polarisation circulaires croisées

Ici, on ne fera pas d'expériences de GHOE-PCC à deux couleurs. En effet, on souhaite tirer partie du montage expérimental utilisé au chapitre précédent, permettant de générer des harmoniques avec deux faisceaux IR non-colinéaires. Plutôt que de générer à deux couleurs, on utilisera donc plutôt deux faisceaux IR monochromatique non-colinéaires, de polarisations circulaires croisées. Cette méthode, déjà introduite par Hickstein *et al.*, permet également d'obtenir des harmoniques de polarisation circulaire [65].

Comme au chapitre précédent, les processus multiphotoniques obéissent à la conservation de l'impulsion, et on observe donc plusieurs ordres de diffraction pour chaque harmonique. Cependant, la conservation du MAS interdit tous les ordres de diffraction, sauf deux, en vertu de l'équation 7.1. Ils correspondent à l'absorption d'un nombre $n_1 = (q \pm 1)/2$ de photons du faisceau 1, de spin +1, et de $n_2 = (q \mp 1)/2$ photons du faisceau 2, de spin -1, et sont donc dans un état de MAS bien défini égal à ± 1 . Comme le montre la figure 7.5, ces deux directions d'émission polarisées circulairement, en sens contraire, se situent de part et d'autre de la bissectrice entre les deux faisceaux IR.

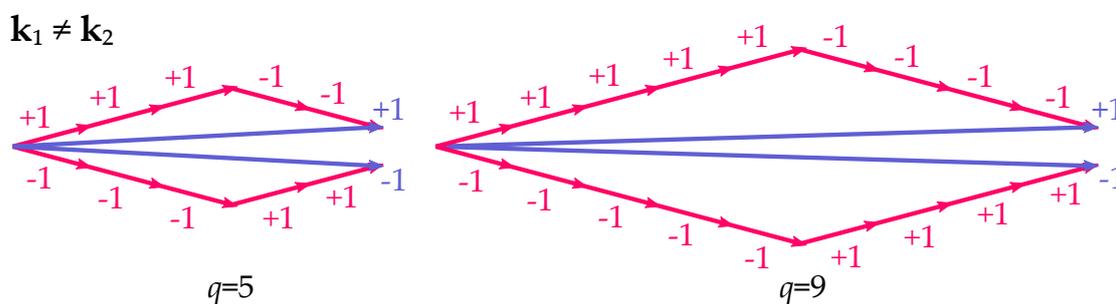


FIGURE 7.5 – Diagrammes photoniques autorisés par la conservation du MAS en GHOE-PCC, pour les harmoniques 5 et 9, dans le cas monochromatique non-colinéaire. Le MAS de chaque photon est indiqué.

Encore une fois, on aboutit aux mêmes conclusions par un modèle ondulatoire du

phénomène. Le champ résultant de la superposition des deux faisceaux s'écrit

$$\mathbf{E}(y, t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} E_1 e^{iKy} + E_2 e^{-iKy} \\ iE_1 e^{iKy} - iE_2 e^{-iKy} \end{pmatrix} e^{i\omega t} \quad (7.2)$$

avec y la coordonnée verticale dans le plan transverse, E_1, E_2 les amplitudes des faisceaux 1 et 2, et $K = 2\pi \sin \theta / \lambda$. Les deux faisceaux étant de polarisations orthogonales, ils n'interfèrent pas en intensité : on a $|\mathbf{E}(y)|^2 = E_1^2 + E_2^2$. La superposition de deux ondes polarisées circulaire gauche et droite donne un champ polarisé elliptiquement, dont l'ellipticité dépend uniquement du ratio d'intensité entre les deux ondes, et dont l'orientation de l'ellipse dépend uniquement de leur déphasage.

Dans le cas particulier où $E_1 = E_2$, on a

$$\mathbf{E}(y, t) = 2E_1 \begin{pmatrix} \cos(Ky) \\ -\sin(Ky) \end{pmatrix} e^{i\omega t}. \quad (7.3)$$

La polarisation est donc partout linéaire (figure 7.6.a). Cependant, les faisceaux étant non-colinéaires, leur déphasage varie spatialement, donc l'orientation du champ électrique varie avec la position : on a affaire à un réseau d'orientation de l'ellipse de polarisation (figure 7.6.a).

Lorsque le champ de l'équation 7.3 est utilisé pour générer les harmoniques, le processus d'émission en chaque point du plan transverse est strictement identique à celui ayant lieu avec un unique faisceau de génération polarisé linéairement. En particulier, le modèle à trois étapes s'applique normalement et les harmoniques émises en champ proche sont polarisées linéairement, parallèlement à la polarisation du champ IR, dont l'orientation varie spatialement. Ce n'est que la modulation *macroscopique* du champ proche qui donne, après propagation, des harmoniques de polarisations circulaires en champ lointain. En effet, partant de l'équation 7.3 et utilisant le modèle du réseau actif (équation 4.23) en négligeant la phase atomique, le champ proche de l'harmonique q s'écrit

$$\mathbf{E}_0^{(q)}(y) = |2E_1|^{q_{\text{eff}}} \begin{pmatrix} \cos(Ky) \\ \sin(Ky) \end{pmatrix} e^{iq\omega t}. \quad (7.4)$$

Le champ lointain est donné par la transformée de Fourier du champ proche, ce qui donne

$$\mathbf{E}_\infty^{(q)}(u) = |2E_1|^{q_{\text{eff}}} \begin{pmatrix} \delta(u - K) + \delta(u + K) \\ i\delta(u - K) - i\delta(u + K) \end{pmatrix} e^{iq\omega t}, \quad (7.5)$$

avec δ la fonction de Dirac et u la coordonnée angulaire en champ lointain. On obtient donc bien deux directions d'émissions, centrées aux angles $u = \pm K$, et de polarisations circulaires opposées. Pour le résumer en une phrase : les oscillations *spatiales* déphasées de $\pi/2$ des deux composantes de la polarisation en champ proche donnent des composantes déphasées de $\pi/2$ *temporellement* en champ lointain, c'est-à-dire de polarisation circulaire.

Pour simuler les harmoniques générées dans cette configuration, dans le cas d'un ratio d'intensité des deux faisceaux quelconque, nous devons adapter notre modèle du réseau actif (voir section 4.3) au cas d'une polarisation quelconque. Pour cela, nous faisons des hypothèses issues des résultats empiriques et des simulations SFA. Nous supposons que les harmoniques sont émises localement avec la même polarisation que le champ IR [216, 208]. De plus, la phase du champ IR ϕ_1 qui apparaît dans l'équation

4.23 est maintenant définie en prenant l'argument du projeté du champ électrique sur le grand axe de l'ellipse de polarisation. Enfin, pour modéliser la décroissance de l'efficacité de la GHOE avec l'ellipticité (figure 7.1), nous multiplions empiriquement le champ harmonique par le terme $e^{-(\epsilon_{IR}(x,y)/\epsilon_0)^2}$, avec $\epsilon_{IR}(x,y)$ l'ellipticité du champ de génération et ϵ_0 une ellipticité seuil égale à 0.2 dans nos conditions expérimentales. La figure 7.6.b montre le résultat obtenu avec le champ IR donné par l'équation 7.3.

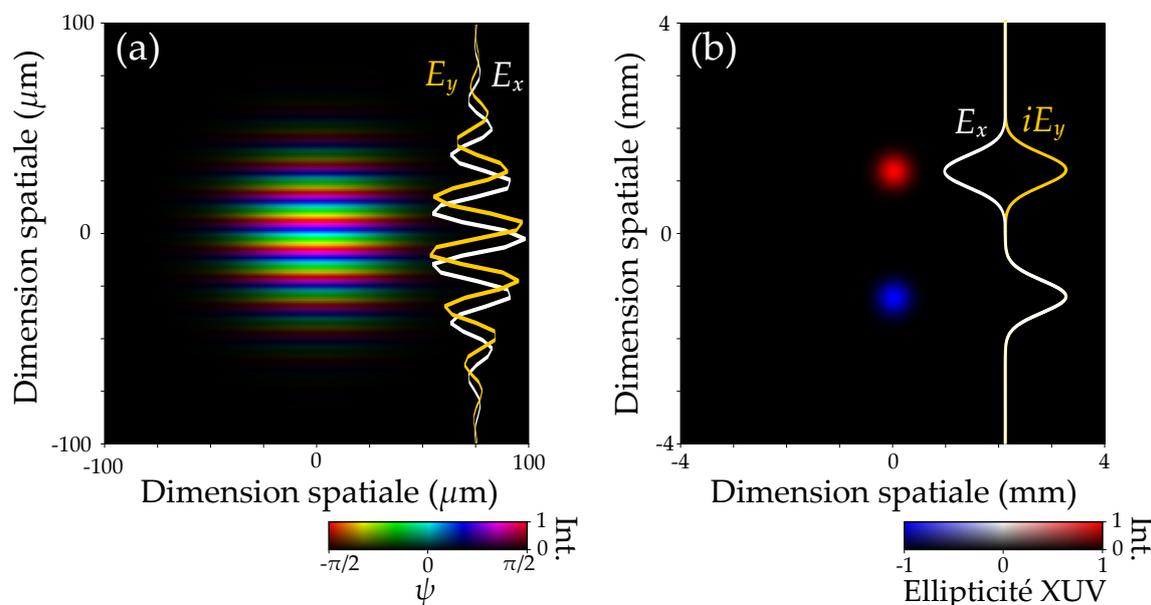


FIGURE 7.6 – (a) Angle d'orientation ψ de la polarisation du champ IR et (b) ellipticité de l'harmonique 19 correspondante en champ lointain. Les deux faisceaux IR portent les MAS +1 et -1, sont de même intensité et leur angle relatif est de 30 mrad.

Comme le montre l'équation 7.3, quand $E_1 = E_2$, le champ IR a une phase spatiale nulle : le champ atteint un maximum simultanément en tous les points du profil transverse¹. De façon remarquable, ce résultat reste valable si $E_1 \neq E_2$. L'ellipticité du champ IR est alors uniforme dans le foyer, et bien que les ellipses soient orientées dans différentes directions, elles sont parcourues de manière synchrone (figure 7.7). En résumé, on n'observe ni réseau d'intensité ni réseau de phase dans l'interférence des deux faisceaux de polarisation circulaires croisées. Cela explique pourquoi, dans tous les cas, seuls deux ordres de diffractions sont visibles pour chaque harmonique. La situation la plus favorable reste bien sûr celle où $|E_1| = |E_2|$, car elle maximise l'efficacité de la GHOE. Pour $|E_1| \neq |E_2|$, l'ellipticité non-nulle du champ IR induit une diminution nette de l'intensité de l'XUV.

Expérimentalement, on s'attend donc à voir tous les ordres de diffraction du cas linéaire disparaître quelque soit le ratio d'intensité des deux faisceaux, sauf les deux ordres situés de part et d'autre de la bissectrice des faisceaux IR.

1. Nous précisons au cours du chapitre suivant comment définir la phase d'un champ dont l'état de polarisation n'est pas uniforme.

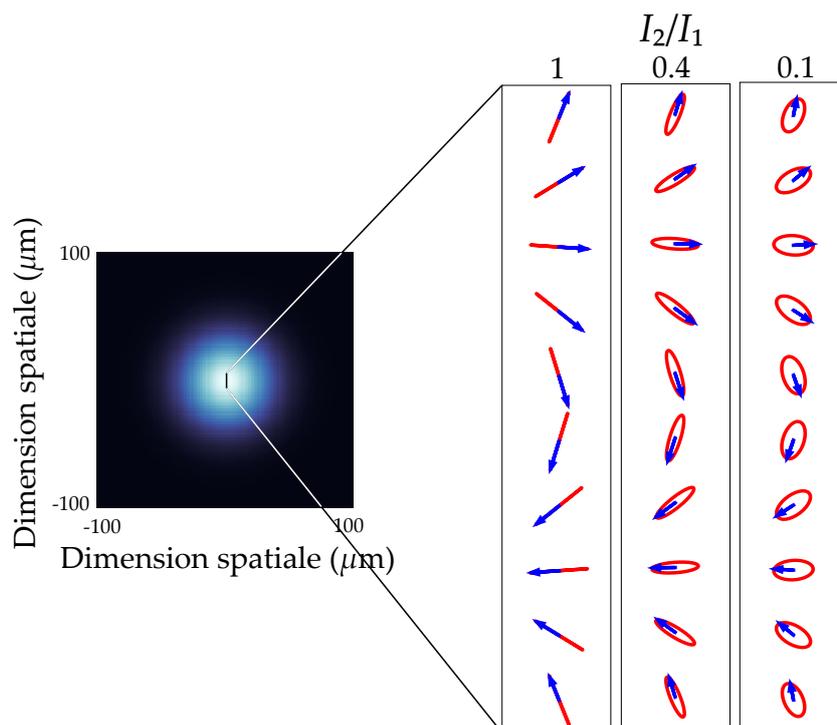


FIGURE 7.7 – Variation de l'état de polarisation du champ IR sur une période de la modulation, pour des ratios d'intensité $\frac{I_2}{I_1}$ de 1, 0.4 et 0.1. Les ellipses rouges représentent l'état de polarisation, et les flèches bleues le champ électrique pour $t = 0$.

7.3 GHOE par deux faisceaux de MAS opposés : expériences

Modification du montage expérimental

Pour réaliser l'expérience de GHOE-PCC à une couleur, on utilise un montage quasi-identique à celui du chapitre précédent. La LPS est retirée de l'interféromètre. Le laser d'entrée délivre des impulsions polarisées verticalement. Pour obtenir les états de polarisation requis, nous choisissons de placer une lame demi-onde dans le bras du faisceau 2. Lorsque ses axes sont orientés à 45° de la verticale, elle transforme la polarisation verticale incidente en polarisation horizontale. En sortie de l'interféromètre, une lame quart d'onde, également orientée à 45° , est placée sur le trajet des deux faisceaux. Les polarisations linéaires de ces derniers étant symétriques, à 45° par rapport à l'axe de la lame, on obtient bien deux faisceaux de polarisation circulaires gauche et droite (voir figure 2.9). Pour que la réflexion sur les miroirs ne modifie pas l'ellipticité des champs, la lame quart d'onde est placée juste avant le hublot de la chambre de GHOE.

Le fait que les deux seuls ordres de diffractions autorisés par la conservation du MAS se trouvent de part et d'autre de la bissectrice des deux faisceaux IR (figure 7.5) va nous compliquer la tâche, car dans la configuration du chapitre précédent ces deux ordres se propageaient selon des angles trop grands pour être collectés par le spectromètre. Le schéma optique ainsi que la procédure d'alignement permettant d'atteindre la configuration souhaitée sont donnés en annexe B.

7.3.1 Résultats expérimentaux

La figure 7.8 montre le spectre harmonique obtenu avec le spectromètre en incidence rasante pour des angles optimisés des lames d'onde, et compare avec le cas où les deux faisceaux IR ont une polarisation linéaire verticale. Nous observons bien une extinction

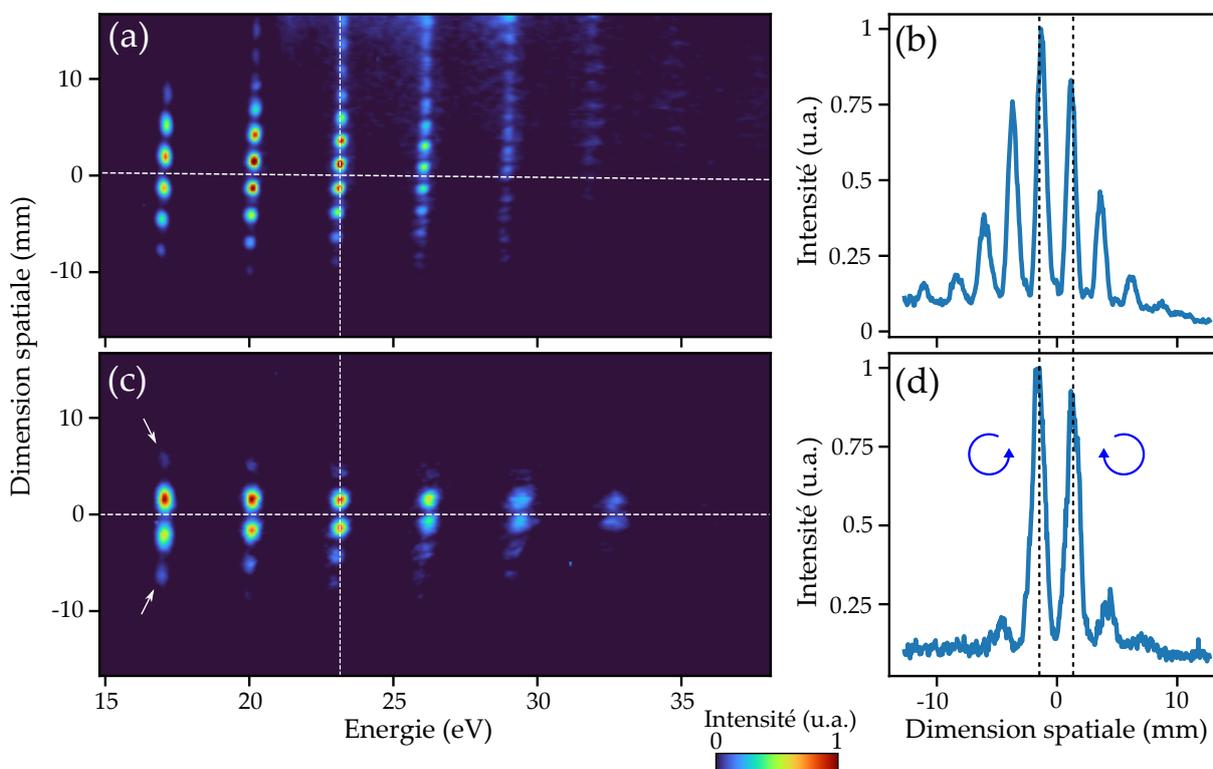


FIGURE 7.8 – Spectres d'harmoniques obtenus avec (a) des faisceaux IR de polarisation linéaire verticale, et (c) de polarisation circulaires croisées. La ligne pointillée horizontale correspond à la bissectrice entre les deux faisceaux de génération. Dans (c), les harmoniques 11 à 21 sont visibles. Les flèches blanches indiquent, pour l'harmonique 11, les ordres interdits par la conservation du MAS et pourtant détectés. (b,d) Intensité transverse de l'harmonique 15, le long de la ligne pointillée verticale dans (a,c).

quasi-complète des ordres de diffraction interdits par la conservation du MAS, les deux ordres restants étant situés de part et d'autre de la bissectrice (ligne pointillée blanche sur la figure). Ces derniers sont d'intensités similaires, signe que les intensités des deux faisceaux IR sont proches. On constate toutefois que certains ordres "interdits" sont encore visibles (flèches blanches), bien que très faibles, une imperfection que nous attribuons à un léger défaut de circularité des polarisations des faisceaux de génération [64].

La figure 7.9 montre le résultat de la même expérience, mais avec le spectromètre en incidence normale. Bien qu'un plus petit nombre d'harmoniques soit visible comparé à la situation précédente, nous sommes parvenus à éteindre presque complètement les ordres de diffraction interdits par la conservation du MAS.

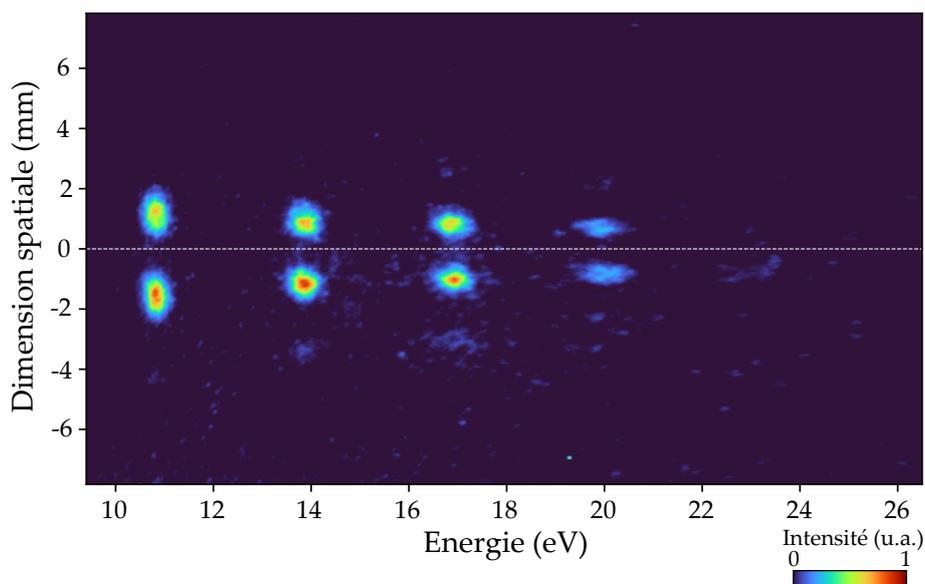


FIGURE 7.9 – Spectre d'harmoniques d'ordre 7 à 13 obtenus avec des faisceaux IR de polarisation circulaires croisées et d'intensités égales. La ligne pontillée horizontale correspond à la bissectrice entre les deux faisceaux de génération.

Effet de la rotation des lames d'onde

Pour obtenir les images 7.8 et 7.9, il nous a fallu ajuster très précisément l'angle des lames d'onde de manière à faire disparaître les ordres de diffraction interdits. Une rotation d'un degré d'une des lames suffit à les rendre de nouveau détectables. La qualité des lames d'onde est donc primordiale pour ces expériences. Les figures 7.10 et 7.11 montrent respectivement l'effet d'une rotation de la lame demi-onde du faisceau 2, et d'une rotation de la lame quart d'onde commune aux deux faisceaux.

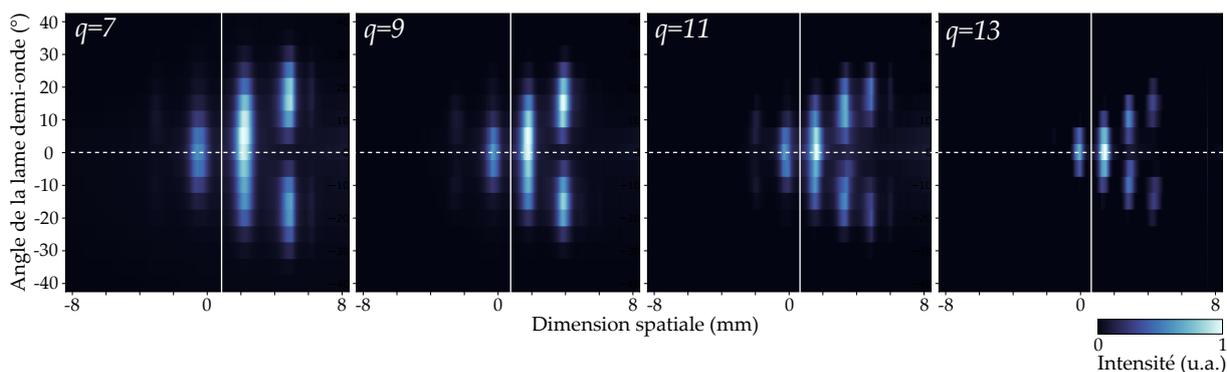


FIGURE 7.10 – Profils d'intensité de diverses harmoniques le long d'une droite verticale, pour différents angles de la lame demi-onde (comptés en degrés par rapport à 45°). La ligne horizontale pointillée indique le cas de faisceaux IR de polarisations circulaires croisées. La ligne blanche verticale indique la bissectrice entre les deux faisceaux. L'angle de la lame quart d'onde est fixé à sa valeur optimale de 45° .

Dans les deux cas, on observe bien l'apparition d'ordres de diffraction supplémentaires. Cependant, dans le cas d'une rotation de la lame demi-onde (figure 7.10), les ordres additionnels apparaissent uniquement d'un seul côté de la bissectrice, alors

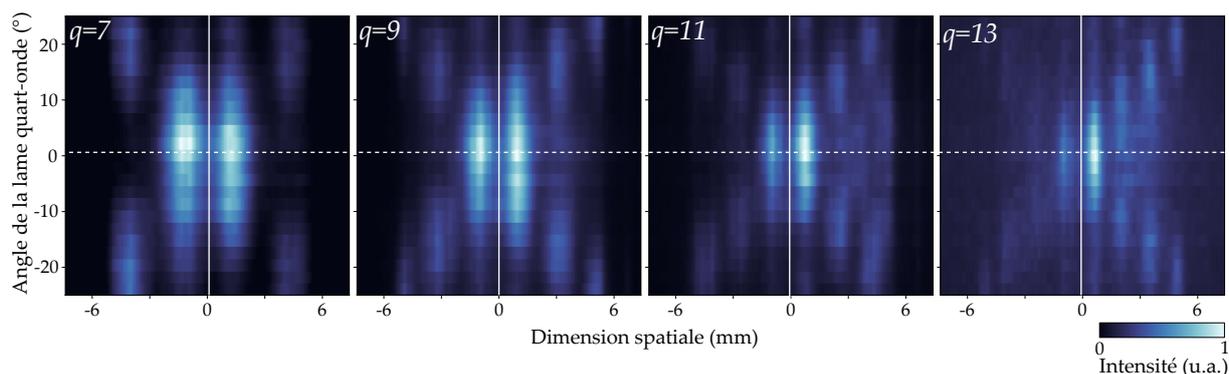


FIGURE 7.11 – Profils d'intensité de diverses harmoniques le long d'une droite verticale, pour différents angles de la lame quart d'onde (comptés en degrés par rapport à 45°). La ligne horizontale pointillée indique le cas de faisceaux IR de polarisations circulaires croisées. La ligne blanche verticale indique la bissectrice entre les deux faisceaux. L'angle de la lame demi-onde est fixé à sa valeur optimale de 45° .

qu'une rotation de la lame quart d'onde (figure 7.11) fait apparaître des ordres symétriques par rapport à la bissectrice.

La lame demi-onde n'agissant que sur le faisceau 2 (figure B.1), l'éloigner de son angle optimal a pour effet de diminuer la circularité du faisceau 2, et donc d'injecter dans ce dernier une proportion croissante de photons portant le "mauvais" spin (\hbar). Ce faisant, on autorise donc de nouveaux canaux d'émission, comme le montre la figure 7.12. Cependant, les photons du faisceau 1 étant tous identiques, de spin \hbar , ces canaux d'émissions additionnels ne peuvent être émis que du "côté" du faisceau 2. Si maintenant c'est la lame quart d'onde commune aux deux faisceaux qui pivote, l'ellipticité des deux faisceaux varie simultanément et de la même façon en valeur absolue. Chacun des deux faisceaux est alors pollué par une proportion croissante de photons de "mauvais" spin, qui participent à créer des canaux additionnels des deux côtés de la bissectrice.

Balayage de l'intensité de l'un des faisceaux

Comme nous en avons désormais l'habitude, nous pouvons enregistrer les spectres harmoniques obtenus tout en faisant varier le rapport d'amplitude α des deux faisceaux IR. D'après ce que nous avons appris, on s'attend à ce que cela fasse varier l'intensité relative des deux ordres de diffraction de MAS ± 1 ainsi que l'efficacité de la GHOE.

Puisqu'un champ elliptique est une superposition de deux champs de polarisations circulaires orthogonales, nous pouvons reproduire la situation où la GHOE a lieu dans un champ de polarisation elliptique, décrite à la section 7.1, si ce n'est qu'on peut ici observer individuellement les deux canaux d'émission de MAS opposés. En supposant que ces derniers sont dans un état de MAS parfaitement défini, on a alors simultanément accès à l'intensité relative des canaux *et* à une estimation de l'ellipticité des harmoniques en fonction de celle du champ de génération.

La figure 7.13 montre l'intensité des deux ordres de diffraction en fonction du ratio d'amplitude $\alpha = \frac{E_2}{E_1}$. Pour $\alpha = 1$, les deux ordres sont d'amplitudes très proches, tandis que pour $\alpha > 1$ (respectivement $\alpha < 1$) l'ordre de MAS -1 (respectivement $+1$) domine en intensité. On peut tenter de reproduire ces courbes avec le modèle perturbatif de

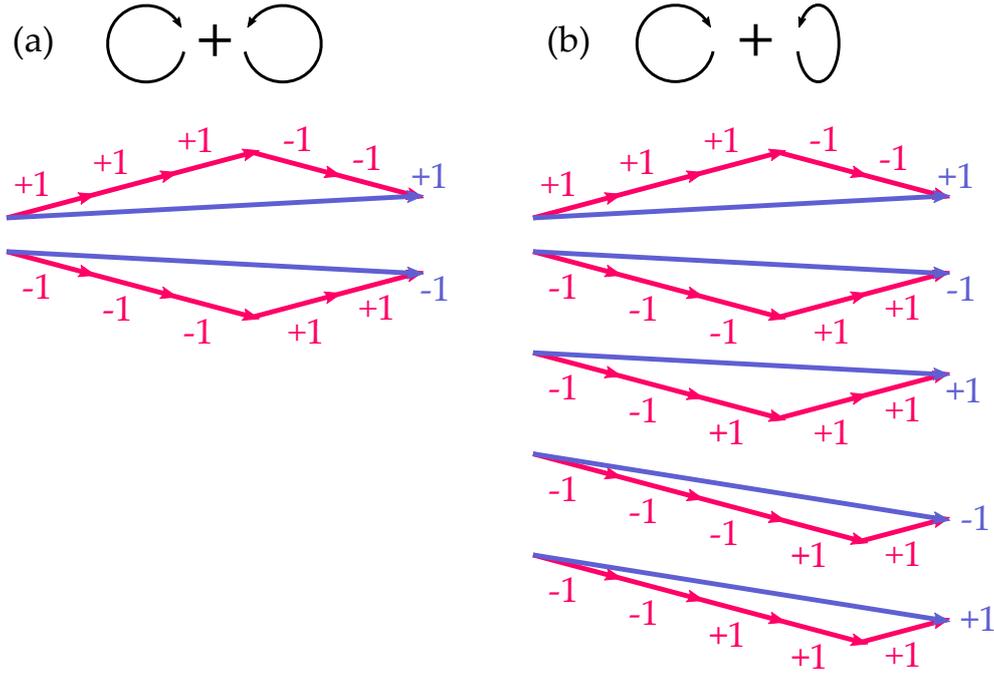


FIGURE 7.12 – (a) Diagrammes photoniques pour deux faisceaux IR polarisés circulairement en sens contraire, pour l'harmonique $q = 5$. (b) Si l'un des deux faisceaux IR n'est pas parfaitement circulaire, de nouvelles combinaisons sont possibles, émises dans une direction située du côté de celle du faisceau en question.

l'équation 6.13. On obtient les amplitudes suivantes pour les ordres de diffraction, notées $E_+^{(q)}$ (respectivement $E_-^{(q)}$) pour celle de spin +1 (respectivement -1)

$$\begin{aligned} E_+^{(q)} &= (E_1)^{\frac{q+1}{2}} (E_2)^{\frac{q-1}{2}} = \alpha^{\frac{q-1}{2}} (E_1)^q \\ E_-^{(q)} &= (E_1)^{\frac{q-1}{2}} (E_2)^{\frac{q+1}{2}} = \alpha^{\frac{q+1}{2}} (E_1)^q. \end{aligned} \quad (7.6)$$

En mettant ces amplitudes au carré, on obtient les courbes pointillées de la figure 7.13. On trouve bien que les deux ordres sont de même intensité pour $\alpha = 1$ et d'intensité croissante avec α . Mis à part ces deux propriétés, l'accord avec l'expérience est très mauvais, ce qui est là encore une conséquence de la physique non-perturbative de la GHOE. En particulier, le développement perturbatif donne des courbes augmentant très rapidement avec α au delà de 1, alors que l'expérience montre plutôt un point d'inflexion.

Ayant en main l'intensité des deux ordres de diffraction en fonction de α , on peut estimer quelle serait l'ellipticité de l'XUV généré par un champ de polarisation elliptique variable dans nos conditions expérimentales. L'ellipticité équivalente du champ IR est donnée par

$$\epsilon_{\text{IR}} = \frac{(E_1)^2 - (E_2)^2}{(E_1)^2 + (E_2)^2} = \frac{1 - \alpha^2}{1 + \alpha^2}, \quad (7.7)$$

et celle de l'harmonique q par

$$\epsilon_q = \frac{(E_+^{(q)})^2 - (E_-^{(q)})^2}{(E_+^{(q)})^2 + (E_-^{(q)})^2}, \quad (7.8)$$

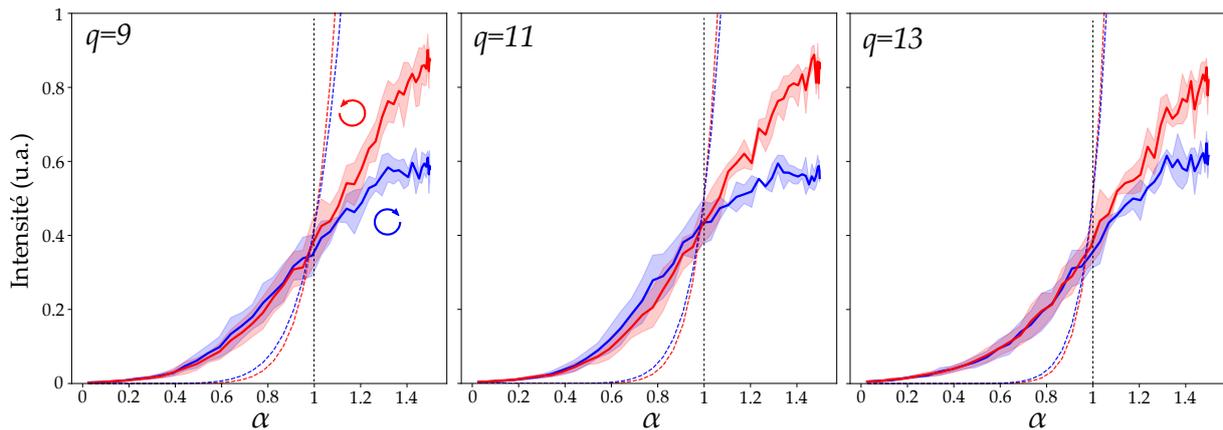


FIGURE 7.13 – Intensité des ordres de diffraction $p = \frac{q \pm 1}{2}$, pour différentes harmoniques, en fonction du ratio d’amplitudes α . Les valeurs sont moyennées sur plusieurs cadrans de la lame demi-onde de l’atténuateur.

avec $(E_{\pm}^{(q)})^2$ cette fois ci les intensités des deux ordres de diffraction mesurées par l’expérience. La courbe $\epsilon_q(\epsilon_{\text{IR}})$ est tracée figure 7.14. On observe bien que l’ellipticité des harmoniques augmente avec celle de l’infrarouge, tout en lui restant nettement inférieure en valeur absolue. L’ellipticité de l’harmonique 9 est légèrement plus grande que celle de la 11. Nous retrouvons donc bien les tendances rapportées dans la littérature (figure 7.2).

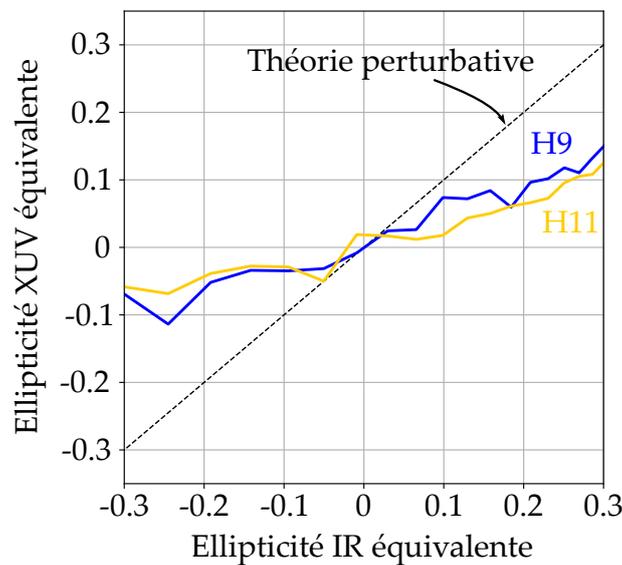


FIGURE 7.14 – Ellipticité des harmoniques 11 et 13 en fonction de l’ellipticité du champ de génération, estimée à partir des résultats de notre expérience.

Le modèle perturbatif prédit là encore un résultat bien différent. En effet, en injectant les expressions 7.6 dans l’équation 7.8, on trouve $\epsilon_q = \frac{1-\alpha^2}{1+\alpha^2} = \epsilon_{\text{IR}}$, c’est-à-dire une ellipticité ne dépendant pas de l’ordre harmonique et égale à celle de l’infrarouge (droite pointillée sur la figure 7.14).

Il nous faut garder à l’esprit que les mesures de la figure 7.14 ne sont qu’une *estimation* de la dépendance de l’ellipticité XUV à celle du champ de génération. En

effet, lors de nos expériences, lorsque nous faisons varier α nous ne nous contentons pas de changer l'ellipticité du champ IR total, nous modifions également son intensité, ce qui a un effet sur les trajectoires électroniques. Une meilleure manière de faire serait de scanner α tout en gardant $(E_1)^2 + (E_2)^2$ constant. Ce n'est cependant pas une chose facile à faire expérimentalement.

Les résultats montrés figure 7.13 et 7.14 pourraient être utiles pour élaborer une théorie photonique de la GHOE en polarisation elliptique. Au chapitre 10, nous présenterons une interprétation multi-photonique de la GHOE, mais elle sera restreinte aux polarisations linéaires. Nous mentionnerons en conclusion de ce manuscrit (section IV) les difficultés rencontrées lors de la prise en compte de la polarisation dans ces modèles.

Avantages et inconvénients d'une source de lumière basée sur la GHOE-PCC non-colinéaire

Le schéma expérimental décrit ici constitue une source de lumière particulièrement intéressante. Elle fournit un rayonnement XUV polarisé (en théorie) parfaitement circulairement, aussi intense que le rayonnement de GHOE standard, et dont le cut-off est d'énergie aussi élevée. De plus, on obtient en un seul tir laser les deux hélicités de la lumière simultanément, ce qui peut être très utile pour des expériences de dichroïsme circulaire. D'ailleurs, cette expérience fut utilisée dès 2015 pour mesurer le dichroïsme circulaire magnétique du fer [65], c'est-à-dire une absorption différente des polarisations circulaires droite et gauche due à la chiralité de la magnétisation (voir l'introduction du chapitre 11 pour plus de détails sur cet effet). La très courte durée des impulsions de génération permet d'envisager de réaliser ces expériences de dichroïsme à l'échelle femtoseconde.

Et pourquoi pas attoseconde ? On touche là à une probable limitation de ce schéma, qui est due au fait que les différentes harmoniques sont émises dans des directions légèrement différentes, si bien que leur recouvrement spatial n'est pas optimal (voir figure 7.9 par exemple). Pour obtenir des impulsions attosecondes polarisées circulairement, il faudrait superposer un grand nombre de ces harmoniques. Leur recouvrement partiel donne des impulsions attosecondes de polarisation circulaire, mais dont les caractéristiques (durée, largeur spectrale, etc.) varient spatialement [66]. Un système de refocalisation (précédé par exemple d'un élément bloquant les harmoniques d'une hélicité donnée) permettrait de superposer les harmoniques spatialement, mais les différents temps de parcours induiraient probablement un chirp important. Cette limitation intrinsèque explique peut-être pourquoi ce schéma n'a, à ce jour, jamais été utilisé dans des expériences pompe-sonde attosecondes.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons étudié la GHOE avec deux faisceaux IR non-colinéaires portant des MAS opposés, dont on a fait varier les ellipticités et le ratio d'intensité. Si les diagrammes photoniques semblent bien prédire l'allure des profils obtenus dans le cas où les deux faisceaux sont de même intensité, nous avons observé d'importantes déviations dans le cas contraire. Ces résultats, comme ceux du chapitre précédent, soulignent le besoin d'établir de nouveaux modèles multi-photoniques, plus complets, de la GHOE.

L'expérience à deux faisceaux présentée dans ce chapitre constitue une source prometteuse de rayonnement XUV de polarisation circulaire. Pour caractériser l'hélicité de ce rayonnement, nous avons mis en place un dispositif de mesure de dichroïsme circulaire magnétique, comme cela a été fait par Hickstein *et al.* [65]. Un échantillon de fer pris entre plusieurs aimants mobiles pouvait être inséré sur le trajet des harmoniques. Toutefois, ces mesures n'ont pas été concluantes, probablement à cause de la faible transmission de l'échantillon, menant à un signal très bas sur le détecteur.

Symétries de rotation et moments angulaires optiques fractionnaires

Dans les chapitres 6 et 7, nous avons étudié la GHOE avec des faisceaux portant du MAO ou du MAS. Combiner les deux expériences précédentes et générer des harmoniques portant simultanément du MAO *et* du MAS présente-t-il un intérêt? Le milieu de génération gazeux étant uniforme et isotrope, et nos faisceaux de lumière étant paraxiaux, on ne s'attend pas observer de comportements exotiques tels que des couplages spin-orbite optique.

Nous allons voir que si nous superposons plusieurs faisceaux infrarouge portant des MAS et des MAO différents, le champ total obtenu a un contenu en moment angulaire riche, et la structure de sa polarisation est complexe. Dans ce contexte, les harmoniques émises obéissent simultanément aux lois de conservation du MAS et du MAO. Cependant, on va voir qu'il est possible de simplifier grandement notre description en introduisant un nouveau type de moment angulaire, le moment angulaire généralisé (MAG), qui est une combinaison linéaire du MAO et du MAS, et dont les valeurs propres ne sont pas restreintes aux entiers mais peuvent prendre des valeurs fractionnaires. Notre champ infrarouge, bien que topologiquement complexe, sera état propre de ce nouvel opérateur, et les lois de conservation se réduiront alors simplement à une augmentation linéaire du moment angulaire avec l'ordre harmonique, comme dans le cas de la GHOE avec un faisceau de LG de MAO bien défini.

Le concept de moment angulaire généralisé a été introduit par Ballantine *et al.* [217] en 2015. Les auteurs démontrèrent qu'il est possible d'associer à certains faisceaux de lumière de polarisation non-uniforme une valeur demi-entière de moment angulaire, c'est-à-dire un quantum du type $\hbar/2$ porté par chaque photon. À l'aide d'une mesure de bruit quantique, ils mirent en évidence cette demi-quantification du moment angulaire.

Cette idée semble étrange : le spin et le moment angulaire orbital des photons ayant des valeurs propres entières, on voit mal comment un moment angulaire "total" pourrait être quantifié par valeurs demi-entières. Ballantine *et al.* font remarquer que la quantification entière du moment angulaire total de la lumière repose sur l'invariance des équations de Maxwell par rotation en trois dimensions. Toutefois, un faisceau de lumière paraxial présente une direction privilégiée - son axe de propagation - et une description du champ réduite à deux dimensions (le plan transverse) suffit.

Comme nous l'avons vu au début du chapitre 3, les transformations générées par le MAS et le MAO séparément ne sont en général pas physiques. Seules deux rotations

successives de même angle et même axe, l'une générée par le MAO et l'autre par le MAS, maintiennent le caractère transverse du champ. Cela signifie que seul le moment angulaire total $\hat{L} + \hat{S}$ est un véritable moment angulaire. Toutefois, nous avons aussi vu que dans l'approximation paraxiale, les opérateurs \hat{L}_z et \hat{S}_z génèrent individuellement des rotations permises autour de l'axe z . On peut donc a priori définir des combinaisons linéaires arbitraires de ces deux opérateurs, et obtenir de nouvelles transformations physiquement valides. C'est cette réduction de la dimensionalité, ce passage de trois à deux dimensions, qui va mener à des valeurs exotiques de moment angulaire [218].

Récemment, Pisanty *et al.* [219] ont étendu le travail de Ballantine *et al.* aux champs poly-chromatiques, et ont obtenu des moments angulaires optiques ayant des valeurs propres arbitraires, ni entières ni demi-entières. Les auteurs établissent ensuite la conservation de ces nouvelles quantités en GHOE. Leurs travaux restent cependant théoriques, et ces résultats n'avaient pas été étayés par des expériences d'optique non-linéaire avant cette thèse.

Au cours du chapitre 9, nous allons explorer le comportement des faisceaux de lumière portant un moment angulaire généralisé non-entier en GHOE, et notamment établir expérimentalement les lois de conservation associées. Pour commencer, il nous faut définir rigoureusement ce nouvel opérateur : c'est l'objectif du présent chapitre.

8.1 Symétries de rotation des champs paraxiaux et états propres des moments angulaires

Pour définir les nouvelles grandeurs physiques dont nous avons besoin, il nous faut revenir aux fondements des opérateurs MAS et MAO, et en particulier aux liens entre moment angulaire et symétrie de rotation.

Au cours de ce chapitre et des suivants, on utilisera souvent la notation de Dirac $|\ell, \sigma\rangle$ pour décrire un mode paraxial, état propre des opérateurs MAO et MAS. Cette notation est licite, car les états de la lumière classique forment un espace de Hilbert [220]. On aura alors $\hat{L}_z |\ell, \sigma\rangle = \ell |\ell, \sigma\rangle$ et $\hat{S}_z |\ell, \sigma\rangle = \sigma |\ell, \sigma\rangle$.

8.1.1 Le spin est le générateur des rotations du vecteur polarisation

On a défini au chapitre 3 la quantité suivante [5]

$$(\hat{S}_k)_{ij} = -i\hbar\epsilon_{ijk}, \quad (8.1)$$

qu'on a associé à l'opérateur MAS. En projetant sur l'axe z on obtient l'opérateur suivant, en coordonnées cartésiennes [221]

$$\hat{S}_z = -i\hbar \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (8.2)$$

Cet opérateur a pour vecteurs propres les champs de polarisation circulaire gauche et droite. On va voir maintenant que l'opérateur

$$\hat{R}_S(\theta) = e^{-\frac{i}{\hbar}\theta \cdot \hat{S}_z} \quad (8.3)$$

est une rotation d'angle θ du vecteur champ électrique par rapport à l'axe z . Pour un angle infinitésimal $\theta \ll 1$, on a $\hat{R}_S(\theta) \simeq 1 - \frac{i}{\hbar} \theta \cdot \hat{S}_z$. Appliquons $\hat{R}_S(\theta)$ à un champ électrique transverse $\mathbf{E} = (E_x, E_y, 0)$. On obtient un nouveau vecteur¹

$$\mathbf{E}' = \mathbf{E} - \theta \cdot (E_y, -E_x, 0) = \mathbf{E} + \theta \cdot \mathbf{u}_z \times \mathbf{E}. \tag{8.4}$$

On identifie clairement dans le dernier terme de l'équation ci-dessus le vecteur \mathbf{E} pivoté d'un angle θ autour de l'axe z . Ainsi, l'opérateur \hat{S}_z , tel que défini par l'équation 8.2, est bien le générateur infinitésimal des rotations de l'état de polarisation par rapport à z . Les faisceaux de lumière qui sont états propres de \hat{S}_z , c'est-à-dire pour lesquels la valeur $\sigma = \pm 1$ du MAS est bien définie, sont inchangés sous l'effet de l'opérateur \hat{R}_S , à une phase près

$$\boxed{\hat{R}_S(\theta) |\sigma\rangle = e^{i\varphi_\sigma(\theta)} |\sigma\rangle = e^{i\sigma\theta} |\sigma\rangle.} \tag{8.5}$$

C'est bien sûr le cas des faisceaux polarisés circulairement (Figure 8.1). Les faisceaux polarisés linéairement, ou bien dont l'état de polarisation n'est pas uniforme, doivent être considérés comme des superpositions de champs portant des MAS bien définis.

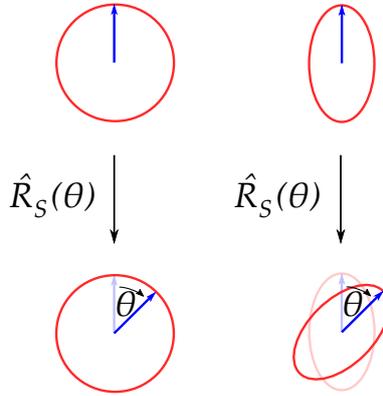


FIGURE 8.1 – Gauche : un champ électrique polarisé circulairement ne change pas d'état de polarisation sous l'effet d'une rotation d'angle θ . Droite : un champ de polarisation elliptique est modifié par la transformation.

8.1.2 Le moment angulaire orbital est le générateur des rotations de la dépendance spatiale

\hat{L}_z , l'opérateur moment angulaire orbital projeté sur l'axe z , est le générateur des rotations dans l'espace réel. Ainsi, l'opérateur

$$\hat{R}_L(\theta) = e^{-\frac{i}{\hbar} \theta \cdot \hat{L}_z} \tag{8.6}$$

est une rotation d'angle θ et d'axe z de la dépendance spatiale du faisceau. Pour le voir, appliquons cet opérateur à un champ paraxial quelconque $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, pour un angle de rotation $\theta \ll 1$. On obtient un nouvel état

$$\mathbf{E}' = \hat{R}_L(\theta) \mathbf{E} \simeq \left(1 - \frac{i}{\hbar} \theta \cdot \hat{L}_z \right) \mathbf{E}. \tag{8.7}$$

1. On généralise ce résultat à un angle macroscopique θ en utilisant la série de Taylor de la fonction exponentielle.

Utilisant l'expression $\hat{L}_z = -i\hbar\mathbf{u}_z \cdot (\mathbf{r} \times \nabla)$ (équation 3.70), on trouve [119]

$$\mathbf{E}'(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) - \theta\mathbf{u}_z \cdot (\mathbf{r} \times \nabla)\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r}) - (\theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{r}) \cdot \nabla\mathbf{E}(\mathbf{r}). \quad (8.8)$$

On reconnaît la variation locale à l'ordre 1 du champ $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, ce qui nous permet d'écrire

$$\mathbf{E}'(\mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r} - \theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{r}). \quad (8.9)$$

Le vecteur $\mathbf{r} - \theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{r}$ correspond simplement au vecteur \mathbf{r} pivoté d'un petit angle θ autour de l'axe z . Ainsi, le nouveau champ $\mathbf{E}'(\mathbf{r})$ est identique au champ initial $\mathbf{E}(\mathbf{r})$, à ceci près que sa dépendance spatiale a subi une rotation d'angle θ . Comme dans le cas du MAS, les faisceaux de lumière qui sont états propres de l'opérateur \hat{L}_z , c'est-à-dire pour lesquels la valeur ℓ du MAO est bien définie, sont laissés invariants par l'opérateur \hat{R}_L , à une phase près

$$\hat{R}_L(\theta) |\ell\rangle = e^{i\varphi_\ell(\theta)} |\ell\rangle. \quad (8.10)$$

C'est le cas, par exemple, des faisceaux de LG ou de Bessel avec un état de polarisation uniforme (Figure 8.2.a). Inversement, un faisceau polarisé radialement (Figure 8.2.b), ou bien un mode de HG, sont modifiés lorsqu'on effectue une rotation de leur dépendance spatiale. Ils correspondent donc à une superposition de modes de MAO différents.

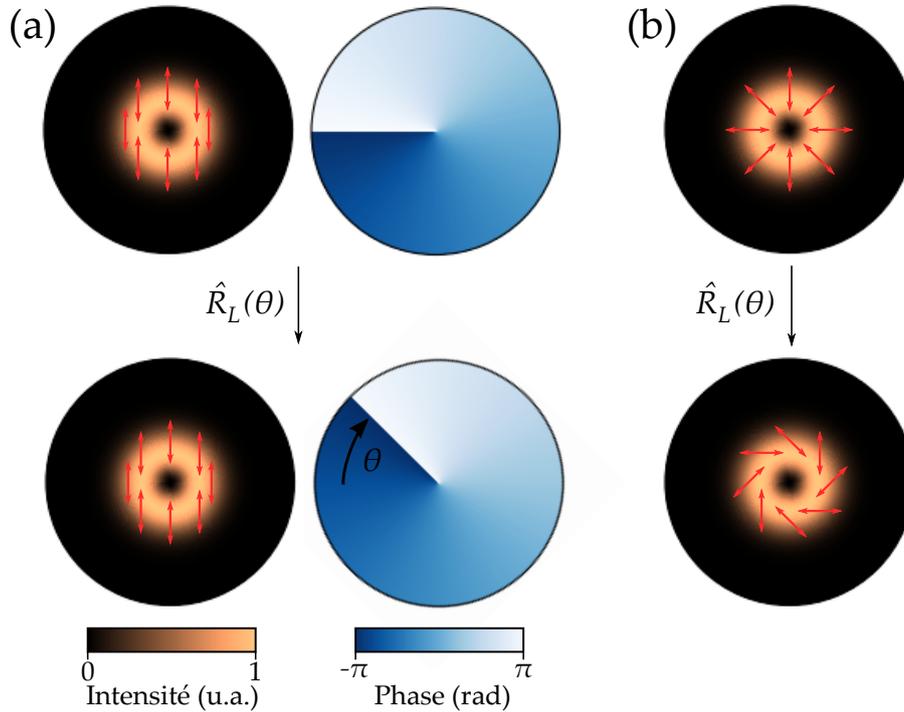


FIGURE 8.2 – (a) Un mode de LG de MAO $\ell = 1$ polarisé verticalement est inchangé, à une phase près, si on applique une rotation d'axe z de la dépendance spatiale. Étant donné que la polarisation est uniforme, la rotation de la dépendance spatiale n'affecte pas l'état de polarisation du faisceau. (b) Un faisceau de polarisation initialement radiale est modifié lorsqu'on applique la même transformation.

8.1.3 Le moment angulaire total et ses états propres

Le moment angulaire total $\hat{J}_z = \hat{L}_z + \hat{S}_z$ est donc le générateur des rotations des coordonnées cartésiennes dans l'espace réel et dans l'espace champ électrique : l'opérateur de rotation $\hat{R}_J(\theta) = e^{-\frac{i}{\hbar}\theta\hat{J}_z}$ induit simultanément une rotation d'angle θ du vecteur polarisation et de la dépendance spatiale du champ. On pourrait s'attendre à ce que le moment angulaire total soit toujours bien défini pour un faisceau de lumière. C'est en effet le cas, trivialement, pour un vortex optique de MAO bien défini, polarisé circulairement, étant donné que la polarisation et la dépendance spatiale sont individuellement invariantes par rotation autour de l'axe optique. Cela est également vrai pour les faisceaux de polarisation radiale (figure 8.2) ou azimuthale. Cependant, on va voir qu'il existe des faisceaux de lumière pour lesquels le moment angulaire total est mal défini. Il va nous falloir définir un nouvel opérateur pour décrire correctement le moment angulaire porté par de tels faisceaux.

Mis à part les arguments de symétrie, on peut comprendre simplement pourquoi les faisceaux de polarisation radiale ou azimuthale sont états propres de l'opérateur \hat{J}_z . De tels faisceaux sont typiquement obtenus en superposant deux faisceaux de même fréquence, mais portant des MAO et des MAS différents. Un faisceau polarisé radialement est par exemple donné par $|\ell, \sigma\rangle = |0, +1\rangle + |2, -1\rangle$, et un faisceau de polarisation azimuthale par $|\ell, \sigma\rangle = |0, +1\rangle + e^{i\pi} |2, -1\rangle$, c'est-à-dire qu'ils sont dans une superposition de deux modes de MAO séparés de deux unités. Le moment angulaire total du premier mode de la superposition est $j_1 = 0 + 1 = 1$ est celui du deuxième est $j_2 = 2 - 1 = 1$. Ces modes portant le même moment angulaire total, l'état résultant de leur somme possède lui aussi un moment angulaire total $j = j_1 = j_2$ bien défini. Avec cette analyse, on voit immédiatement qu'une superposition du type $|0, +1\rangle + |1, -1\rangle$ ne peut pas être état propre du moment angulaire total.

8.2 Rotations coordonnées, topologies non-triviales et moment angulaire généralisé

8.2.1 Rotations coordonnées

Un faisceau de lumière quelconque ne possède pas les symétries de rotation présentées ci-dessus. En général, un champ électrique n'est donc ni état propre des opérateurs MAO et MAS séparément, ni état propre du moment angulaire total. Considérons par exemple la superposition d'état évoquée plus haut : $|\ell, \sigma\rangle = |0, +1\rangle + |1, -1\rangle$. Il s'agit d'une superposition de deux faisceaux de même fréquence. Le premier est un gaussien polarisé circulaire droite, le second un vortex optique de MAO $\ell = 1$, circulaire gauche. Son ellipse de polarisation en différents points du plan transverse est représentée sur la figure 8.3. A première vue, ce champ électrique ne paraît pas très "symétrique". Pourtant, on va voir qu'on peut également lui associer une certaine transformation qui le laisse invariant.

Sur l'axe optique, le faisceau de LG a une intensité nulle, et la polarisation est donc purement circulaire droite. On appelle un tel point un "C-point" [222, 223]. Contrairement aux faisceaux de LG, qui présentent un singularité de phase en leur centre, il s'agit ici d'une singularité de l'angle d'orientation de l'ellipse de polarisation, puis-

qu'on ne peut définir l'orientation d'un cercle autour d'un axe normal passant par son centre. De la même manière qu'on définit la charge topologique d'un faisceau portant du MAO en intégrant sa phase spatiale le long d'une courbe fermée contenant l'axe optique, la topologie du C-point est caractérisée en intégrant l'angle d'orientation de l'ellipse le long d'une courbe contenant le C-point. On lui associe ainsi un indice, noté I_C , qui correspond au nombre de fois que l'ellipse de polarisation tourne sur elle-même lorsque l'on fait un tour autour de l'axe optique. Pour le faisceau polarisé radialement

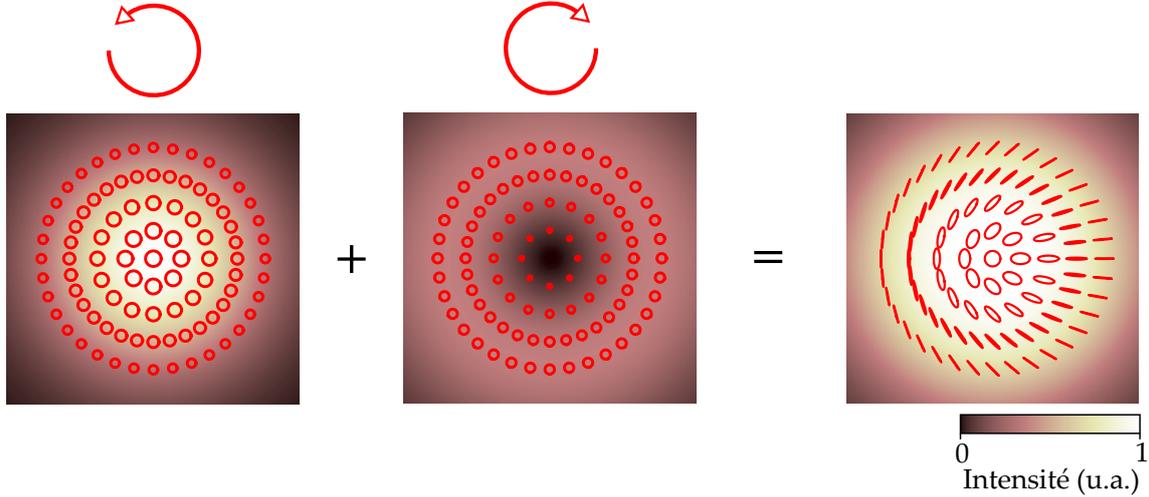


FIGURE 8.3 – État de polarisation du champ électrique résultant de la superposition d'un faisceau gaussien polarisé circulaire droite, et d'un vortex optique de MAO $\ell = 1$ polarisé circulaire gauche. Les ellipses de polarisation sont représentées en rouge en différents points du plan transverse, la carte de couleur indique l'intensité des champs. Le ratio d'intensité entre les composantes circulaire droite et gauche est de 0.85.

représenté sur la figure 8.2.b, il est facile de constater que l'ellipse de polarisation (qui est ici un segment) subit une rotation de 2π lors du parcours d'un cercle autour de l'axe optique. Pour ces faisceaux, on a donc $I_C = 1$. Toutefois, le facteur I_C n'est pas restreint aux nombres entiers. Une ellipse étant invariante par rotation d'un angle multiple de π , la valeur minimale non nulle du paramètre topologique est $|I_C| = \frac{1}{2}$. Elle est obtenue pour une superposition de deux faisceaux portant des MAS opposés, et des MAO différant d'une unité. Ainsi, le faisceau de la figure 8.3 correspond à $I_C = 1/2$. En faisant varier les MAO des faisceaux superposés pour obtenir le champ total, on peut obtenir différentes topologies de C-points (Figure 8.4). Par exemple, on obtient $I_C = 3/2$ avec la superposition $|\ell, \sigma\rangle = |0, +1\rangle + |3, -1\rangle$. Certaines configurations portent des noms. Les champs correspondant à $I_C = \frac{1}{2}$ et $I_C = -\frac{1}{2}$ sont respectivement appelés "lemon" et "star" [224, 222, 223]. Les champs de la figure 8.4 ont pour point commun de posséder un certain type de symétrie. Ils sont invariants lorsqu'on leur applique des *rotations coordonnées*, c'est-à-dire des rotations d'angles différents de la dépendance spatiale et de l'ellipse de polarisation.

La rotation coordonnée de paramètre γ et d'angle θ est la transformation qui consiste à faire tourner d'un angle θ la dépendance spatiale du faisceau, et d'un angle $\gamma\theta$ son vecteur polarisation. Plus formellement, elle transforme un champ vectoriel $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ en un autre champ $\mathbf{E}'(\mathbf{r}, t)$ tel que

$$\mathbf{E}'(\mathbf{r}, t) = \mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}(\theta) \cdot \mathbf{r}, t), \quad (8.11)$$

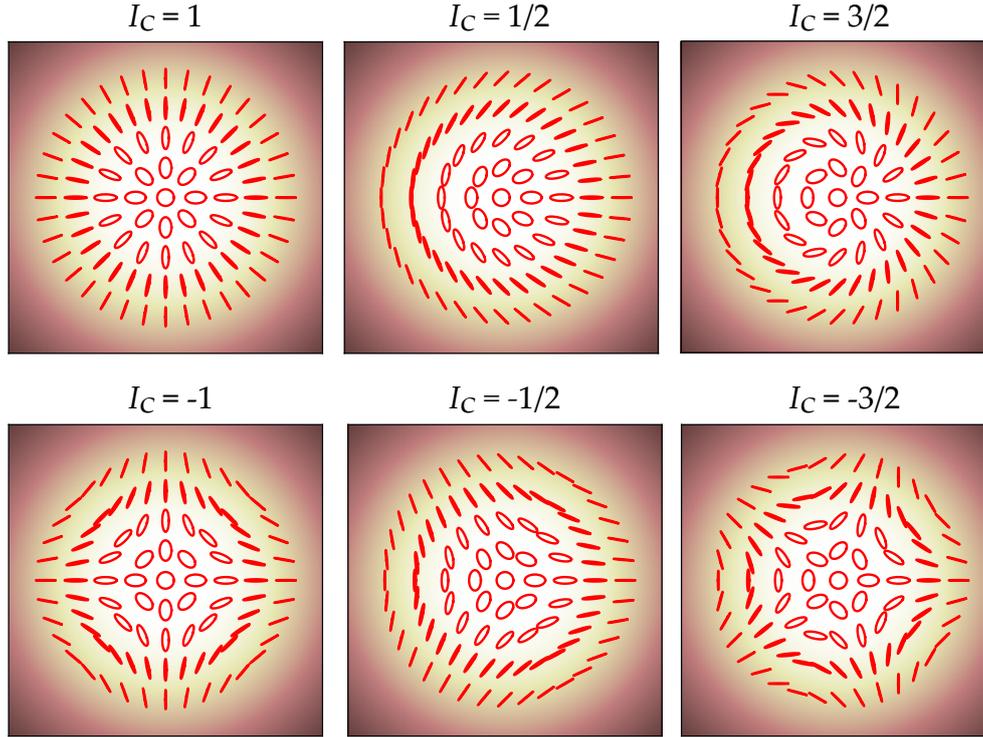


FIGURE 8.4 – Collection de C-points correspondant à différents indices I_C . On représente l'état de polarisation dans le plan transverse, le long de cercles de différents rayons centrés sur l'origine. Le long du cercle de plus grand rayon, les deux faisceaux de MAS opposés ont la même intensité, la polarisation y est donc linéaire.

où $\mathbf{R}(\theta)$ est la matrice de rotation d'angle θ par rapport à l'axe optique.

Un champ de lumière $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ invariant par rotation coordonnée obéit à l'équation d'invariance

$$\mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}(\theta) \cdot \mathbf{r}) = \mathbf{E}(\mathbf{r})e^{i\phi}, \quad (8.12)$$

où ϕ est une phase. On peut démontrer que la solution générale de l'équation 8.12 dans le cas monochromatique est un champ de la forme

$$\mathbf{E} = \left(a_1 \mathbf{e}_{+1} e^{i\ell_1 \phi} + a_2 \mathbf{e}_{-1} e^{i\ell_2 \phi} \right) e^{i\omega t}, \quad (8.13)$$

où a_1, a_2 sont des coefficients quelconques, et $\mathbf{e}_{+1}, \mathbf{e}_{-1}$ sont les vecteurs de Jones correspondant aux polarisations circulaires droite et gauche. Les solutions sont donc les superpositions du type $|\ell, \sigma\rangle = a_1 |\ell_1, +1\rangle + a_2 |\ell_2, -1\rangle$. La démonstration est donnée en annexe C. Ainsi, tout champ possédant une symétrie de rotation coordonnée s'écrit comme une somme de deux champs de MAS opposés et de MAO différents. De tels états sont dits *non-séparables*, les degrés de liberté de MAS et de MAO présentant une forme d'intrication [220, 225].

Dans le cas des C-points tels que ceux de la figure 8.4, les valeurs de γ et de I_C sont égales. Cependant, les champs électriques ayant une symétrie de rotation coordonnée ne sont pas forcément des C-points. Par exemple, le champ électrique peut être partout linéaire dans le plan transverse, et pourtant correspondre à une valeur non nulle de γ (figure 8.5). La singularité d'orientation de la polarisation au centre du faisceau

s'accompagne alors d'un zéro d'intensité. Dans la suite, on utilisera uniquement le paramètre γ pour décrire la topologie de la polarisation.

On verra un peu plus loin comment calculer γ en fonction des MAO des deux faisceaux superposés. Cependant, notons que ce paramètre dépend uniquement des symétries du champ, et qu'il n'est pas du tout nécessaire de connaître les MAO impliqués pour trouver sa valeur : il suffit d'observer comment la polarisation varie dans le plan transverse. Comme on le verra, les valeurs des MAO déterminent la charge de moment angulaire généralisé porté par le faisceau.

8.2.2 Rubans de Möbius de polarisation

Pour simplifier notre analyse, il est instructif de considérer des champs qui sont invariants par rotations coordonnées mais dont la polarisation est partout linéaire. C'est le cas du faisceau polarisé radialement de la figure 8.2.b. La polarisation n'étant pas définie sur l'axe optique, ce dernier présente un zéro d'intensité. De tels faisceaux sont naturellement produits par le phénomène de réfraction conique [226, 227, 228], qui a lieu dans les cristaux biaxiaux. La figure 8.5.a montre un de ces faisceaux, invariant par rotation coordonnée de paramètre $\gamma = 1/2$.

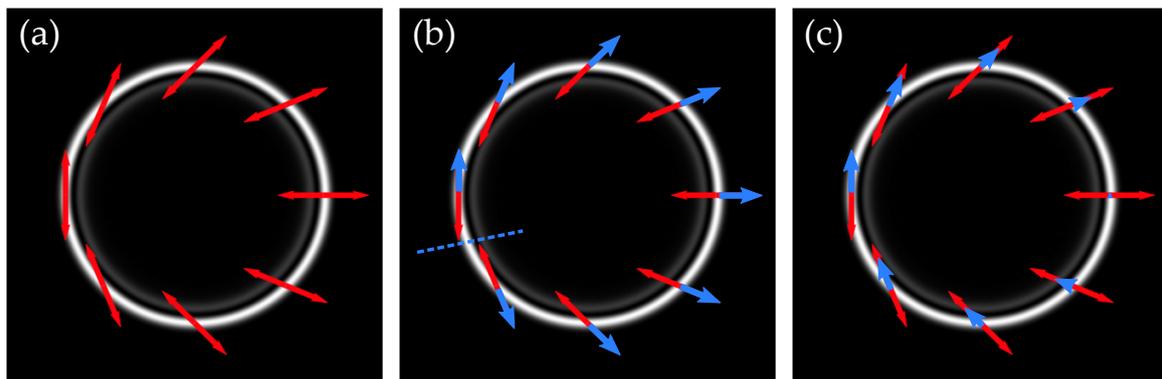


FIGURE 8.5 – (a) Champ similaire au C-point d'indice 1/2 de la figure 8.4, mais avec une polarisation localement linéaire, produit par réfraction conique. Ce champ s'écrit également comme une superposition du type $|\ell, \sigma\rangle = |0, +1\rangle + |1, -1\rangle$ [217]. (b) Topologie de ruban de Möbius de la polarisation. (c) Partie réelle du champ électrique à $t = 0$ (flèches bleues). Adapté de [217].

En observant ce faisceau d'un peu plus près, nous faisons rapidement face à ce qui semble être un paradoxe. Le champ électrique réel est décrit par un vecteur dont la direction et la norme varient à travers le plan transverse. Nous pouvons donc ajouter une flèche, avec une direction donnée, sur chacun des segments décrits par la polarisation du champ au cours du temps (en bleu sur la figure 8.5.b). Localement, cela ne pose aucun problème, mais après avoir fait un tour complet autour du centre du faisceau, la flèche a pivoté de π , et une discontinuité apparaît [229]!

Bien sûr, cette discontinuité ne peut pas être physique, car en choisissant un autre point de départ pour le marquage des flèches on aurait obtenu une discontinuité située à un autre endroit. En réalité, le champ électrique possède une phase, et celle-ci varie dans l'espace car les faisceaux superposés pour obtenir le champ total portent du MAO. Lorsqu'on parcourt un cercle autour de l'axe optique, la phase du champ augmente,

et atteint π lorsqu'on a effectué un tour complet. Ce changement de signe du champ après un tour complet autour de l'axe optique explique qu'il n'y ait en réalité pas de discontinuité. Le champ électrique a un instant donné a donc finalement l'allure représentée sur la figure 8.5.c.

Ce paradoxe apparent met en lumière le fait que le champ de la figure 8.5, tout comme les C-points de la figure 8.4 qui sont associés à un paramètre γ demi-entier, ont une topologie non-triviale de ruban de Möbius. Un ruban de Möbius est une surface compacte dont le bord est homéomorphe à un cercle. Il ne possède donc qu'une seule face et qu'un seul bord. Pour visualiser cette topologie, on peut empiler les ellipses de polarisation du faisceau de la figure 8.3 correspondant au même rayon mais pour des angles azimutaux variant de 0 à 2π . On obtient une surface cylindrique formant un ruban dans l'espace (E_x, E_y, φ) (figure 8.6.a). Les deux extrémités du ruban correspondant au même angle azimutal, on peut les connecter. On obtient la surface représentée sur la figure 8.6.b,c. La topologie du ruban est décrite par le nombre de *twists* qu'il contient, lequel est directement lié au paramètre γ .

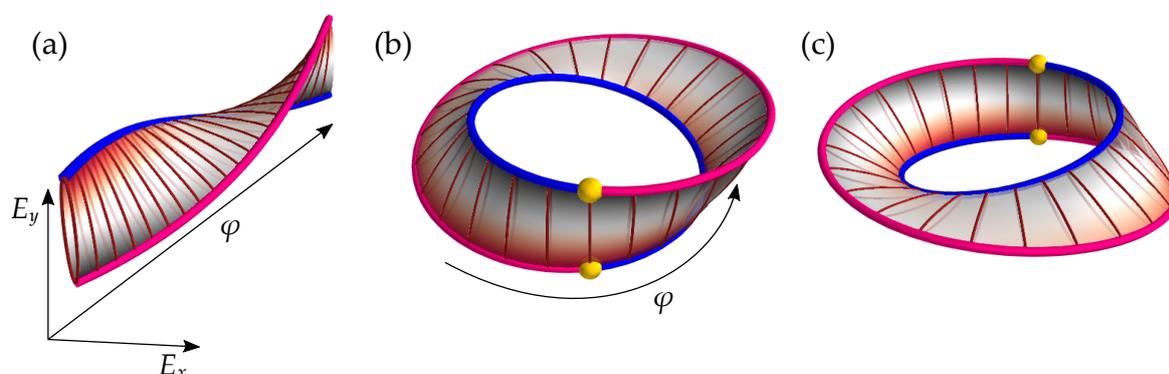


FIGURE 8.6 – Visualisation du ruban de Möbius associé au C-point de la figure 8.3 ($\gamma = 1/2$), tracé pour un rayon $r = 0.6 \times w_0$. (a) Ellipses de polarisation, tracées sur l'intervalle $]0, 2\pi[$, formant un ruban ouvert avec un seul "twist". (b, c) Ruban de Möbius fermé, vu selon deux perspectives différentes. Les chemins tracés par les extrémités de l'ellipse de polarisation sont représentés par les courbes bleu et rouge. Il s'agit en fait d'un seul chemin, les deux courbes étant connectées au niveau des sphères jaunes.

Dans la suite, on appellera *ruban de Möbius de polarisation* (RMP) tout champ de lumière dont l'ellipse de polarisation, lorsqu'on balaye l'angle azimutal φ de 0 à 2π , se reconnecte à elle-même après avoir pivoté d'un nombre impair de fois π . En particulier, c'est le cas des champs invariants sous rotation coordonnée de paramètre γ demi-entier. Le nombre de *twists* que présente le ruban, c'est-à-dire le nombre de fois que la polarisation a pivoté d'un angle π , est alors donné par $n = 2\gamma$. Pour γ entier, le nombre de "twists" est pair et le ruban obtenu n'est pas un ruban de Möbius, mais un simple *ruban torsadé* (*twisted ribbons* en anglais) [230, 231]. La figure 8.7 montre un ruban torsadé correspondant à $\gamma = 1$, ainsi qu'un ruban de Möbius twisté trois fois et correspondant donc à $\gamma = 3/2$.

Nos champs de lumière étant paraxiaux, la polarisation est toujours planaire, et contenue dans le plan transverse. Ces rubans existent donc dans un espace dit *synthétique*, ou topologique, mais pas dans l'espace réel. Cependant, en quittant le régime paraxial, il est possible de créer de telles structures dans l'espace réel, c'est-à-dire que

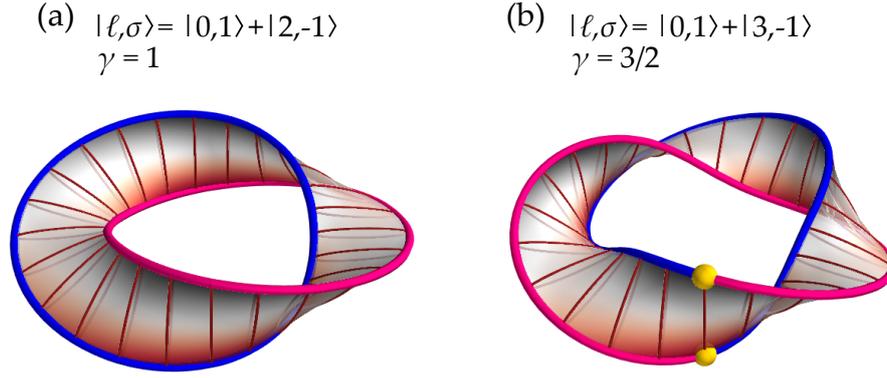


FIGURE 8.7 – (a) Ruban torsadé de paramètre topologique $\gamma = 1$. (b) Ruban de Möbius à trois "twists", de paramètre $\gamma = 3/2$.

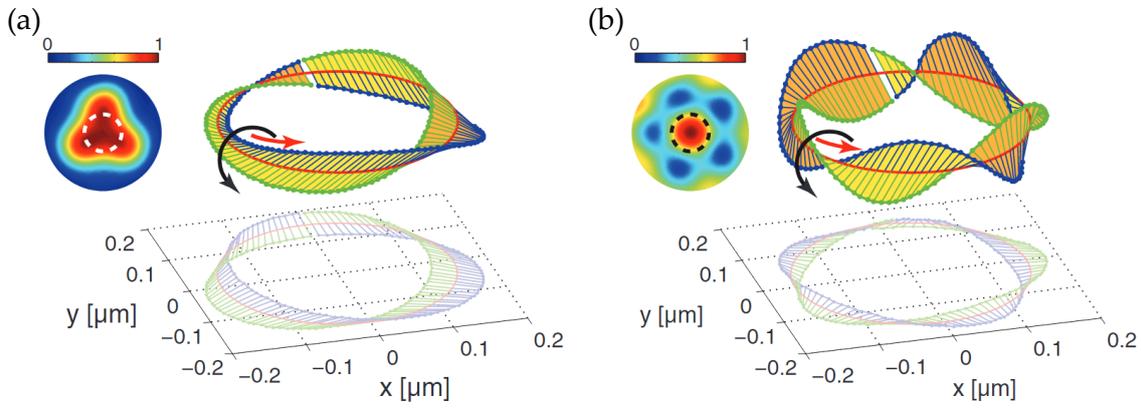


FIGURE 8.8 – Champs électriques tridimensionnels obtenus expérimentalement en focalisant fortement des C-points d'indices (a) $-1/2$ et (b) $-3/2$. Les sous-figures montrent l'intensité au foyer dans le plan transverse, ainsi que le cercle le long duquel les rubans sont calculés. Figure extraite de Bauer *et al.* [232].

l'extrémité de l'ellipse de polarisation dessine effectivement un ruban de Möbius en trois dimension dans l'espace. De tels objets ont été créés et caractérisés en focalisant fortement, à l'aide d'une lentille de grande ouverture numérique, des faisceaux paraxiaux de type C-point² [234, 232, 235]. La figure 8.8 montre deux de ces rubans. De manière étonnante, leur indice topologique I_C , donné par le nombre de twists des rubans, ne correspond pas à celui des faisceaux paraxiaux avant focalisation. Les rubans montrés ici sont issus de C-points d'indices $-1/2$ et $-3/2$, alors qu'ils contiennent respectivement 3 et 5 twists.

La topologie de ruban de Möbius de nos faisceaux de lumière peut s'interpréter comme le sous-groupe de symétrie formé par les rotations coordonnées. En optique paraxiale, les groupes de symétrie de la polarisation et de la dépendance spatiale sont découplés : on peut faire subir des rotations à l'une ou à l'autre sans compromettre le caractère transverse du champ électrique [6]. Chacun de ces groupes de rotation correspond au groupe $SO(2)$, de sorte que le groupe de symétrie de l'optique paraxiale est $SO(2) \times SO(2)$, qui forme donc un tore [219]. En effet, comme on le verra plus en

2. Des structures similaires peuvent être observées dans des ondes acoustiques ou des ondes de surface [233].

détail dans la section II.I, la courbe dessinée par la polarisation du champ dans l'espace synthétique épouse bien la surface d'un tore.

8.2.3 L'opérateur J_γ

Quelle grandeur physique peut-on associer aux rotations coordonnées? Pour le savoir, il nous faut trouver un opérateur qui servira de générateur infinitésimal de ces transformations. De manière intuitive, on devine qu'une rotation coordonnée de paramètre γ va être générée par l'opérateur $\hat{L}_z + \gamma\hat{S}_z$, étant donné qu'elle fait tourner la dépendance spatiale d'un angle θ , et la polarisation d'une fraction $\gamma\theta$ de cet angle. On peut aisément le démontrer. L'opérateur de rotation $\hat{R}_{L+\gamma S}$ se décompose en

$$\begin{aligned}\hat{R}_{L+\gamma S}(\theta) &= e^{-\frac{i}{\hbar}\theta \cdot (\hat{L}_z + \gamma\hat{S}_z)} \\ &= e^{-\frac{i}{\hbar}\theta \cdot \hat{L}_z} \cdot e^{-\frac{i}{\hbar}\gamma\theta \cdot \hat{S}_z} \\ &= \hat{R}_L(\theta) \cdot \hat{R}_S(\gamma\theta)\end{aligned}\quad (8.14)$$

Notons que cette décomposition est permise seulement si \hat{L}_z et \hat{S}_z commutent [236]. On a vu au chapitre 3 que c'est le cas uniquement dans l'approximation paraxiale. Appliquons cet opérateur au champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r})$.

$$\begin{aligned}\hat{R}_{L+\gamma S}(\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \hat{R}_L(\theta) \cdot \hat{R}_S(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}) \\ &= \hat{R}_L(\theta) \cdot (\mathbf{E}(\mathbf{r}) + \gamma\theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{E}(\mathbf{r})) \\ &= \mathbf{E}(\mathbf{r} - \theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{r}) + \gamma\theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{E}(\mathbf{r} - \theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{r}) \\ &= \mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r} - \theta\mathbf{u}_z \times \mathbf{r}) \\ &= \mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}(\theta) \cdot \mathbf{r}).\end{aligned}\quad (8.15)$$

On retrouve bien l'équation 8.11. Ainsi, l'opérateur $\hat{L}_z + \gamma\hat{S}_z$ est le générateur infinitésimal des rotations coordonnées de paramètre γ . Dans la suite, on appellera cet opérateur, ainsi que la grandeur physique qui lui est associée, *moment angulaire généralisé* (MAG). On le note $\hat{J}_{\gamma,z}$. Le moment angulaire total est donc un cas particulier du MAG : $\hat{J}_z = \hat{J}_{1,z}$.

Comme dans le cas du MAS et du MAO, les faisceaux de lumière qui sont états propres de l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$, c'est-à-dire pour lesquels la valeur j_γ du MAG est bien définie, sont laissés invariants par les rotations coordonnées $\hat{R}_{L+\gamma S}$, à une phase près (ils obéissent à l'équation d'invariance 8.12). Ainsi, si le champ $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ est un état propre de $\hat{J}_{\gamma,z}$, il est inchangé lorsqu'on applique une rotation coordonnée suivie d'une translation dans le temps

$$\mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}(\theta) \cdot \mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, t + \tau\theta).\quad (8.16)$$

La constante de temps τ dépend de la phase spatiale du champ, c'est-à-dire du contenu en MAO de $\mathbf{E}(\mathbf{r})$.

L'équation 8.16 est trivialement satisfaite par les faisceaux de LG polarisés circulairement, puisqu'ils sont à la fois invariants par rotation de la dépendance spatiale et du vecteur polarisation. De façon plus remarquable, les C-points de la figure 8.4 sont états propres de l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$ (pour différentes valeurs de γ), bien qu'ils ne soient pas états propres des opérateurs MAS et MAO.

On l'a vu, γ est directement lié à la topologie du champ et s'obtient facilement en observant les symétries de ce dernier. Mais comment ce paramètre s'exprime-t-il en fonction des MAO et MAS des faisceaux composant le champ total? Une manière de faire le calcul est d'utiliser l'équation 8.16. Considérons la superposition d'états $|\ell, \sigma\rangle = |\ell_1, +1\rangle + |\ell_2, -1\rangle$. En notation de Jones, le champ total s'écrit dans la base (x, y) selon

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = e^{i\ell_1\varphi} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + e^{i\ell_2\varphi} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}. \quad (8.17)$$

Dans cette base, la matrice de rotation est

$$\mathbf{R}(\theta) = \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \\ \sin \theta & \cos \theta \end{pmatrix}. \quad (8.18)$$

Faisons subir au champ de l'équation 8.17 une rotation coordonnée de paramètre γ et d'angle θ . Avec un peu d'algèbre, on obtient le nouveau champ

$$\begin{aligned} \mathbf{E}'(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}(\theta) \cdot \mathbf{r}, t) \\ &= \begin{pmatrix} \cos(\gamma\theta)(e^{i\ell_1(\varphi+\theta)} + e^{i\ell_2(\varphi+\theta)}) + i \sin(\gamma\theta)(e^{i\ell_1(\varphi+\theta)} - e^{i\ell_2(\varphi+\theta)}) \\ -\sin(\gamma\theta)(e^{i\ell_1(\varphi+\theta)} + e^{i\ell_2(\varphi+\theta)}) + i \cos(\gamma\theta)(e^{i\ell_1(\varphi+\theta)} - e^{i\ell_2(\varphi+\theta)}) \end{pmatrix} \\ &= e^{i\ell_1\varphi} e^{i(\ell_1+\gamma)\theta} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + e^{i\ell_2\varphi} e^{i(\ell_2-\gamma)\theta} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (8.19)$$

Ainsi, on a $\mathbf{E}' = \mathbf{E}e^{i\omega\tau\theta}$ (c'est-à-dire que les champs \mathbf{E}' et \mathbf{E} diffèrent seulement d'un facteur de phase) si et seulement si $\ell_1 + \gamma = \ell_2 - \gamma = \omega\tau \Rightarrow \gamma = (\ell_2 - \ell_1)/2$. Une autre manière (plus triviale) d'obtenir ce résultat est d'imposer aux deux champs de la superposition de l'équation 8.17 d'avoir la même charge de MAG j_γ , ce qui donne $\ell_1 + \gamma \times (+1) = \ell_2 + \gamma \times (-1)$. Pour conclure, le champ $|\ell, \sigma\rangle = |\ell_1, +1\rangle + |\ell_2, -1\rangle$ est état propre de l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$ à condition que

$$\boxed{\gamma = \frac{\ell_2 - \ell_1}{2}}. \quad (8.20)$$

D'après l'équation 8.19, la rotation coordonnée d'angle θ correspondante multiplie ce champ par le terme de phase $e^{i\omega\tau\theta}$ avec

$$\boxed{\tau = \frac{1}{\omega} \frac{\ell_1 + \ell_2}{2} = \frac{j_\gamma}{\omega}}, \quad (8.21)$$

c'est-à-dire qu'elle déphase le champ proportionnellement à la moyenne des MAO ℓ_1 et ℓ_2 . Par définition, la charge j_γ est égale à $\omega\tau = (\ell_1 + \ell_2)/2$. Grâce à l'équation 8.21, on peut vérifier que pour $\ell_1 = 0$, $\ell_2 = 1$, on a $\tau = \frac{1}{2\omega}$ et on obtient bien un déphasage de $e^{i\pi} = -1$ lorsque φ varie de 0 à 2π , en accord avec la figure 8.5.c.

Les grandeurs γ et j_γ ne doivent pas être confondues. Si γ indique la topologie de la polarisation du champ, elle ne donne *a priori* pas d'information sur le moment angulaire qu'il porte. En effet, deux champs peuvent avoir le même paramètre γ , mais porter des charges MAG j_γ différentes. C'est par exemple le cas des champs $|\ell, \sigma\rangle = |0, +1\rangle + |1, -1\rangle$ et $|\ell, \sigma\rangle = |1, +1\rangle + |2, -1\rangle$. Cette distinction sera cruciale dans le prochain chapitre, où

nous générerons des faisceaux harmoniques ayant la même topologie mais portant des valeurs croissantes de j_γ .

La charge j_γ donne une information sur la phase du champ, et indique son contenu en moment angulaire. Pour le voir, on peut représenter le vecteur champ électrique à un temps donné, à l'intérieur de l'ellipse de polarisation. Les cas $j_\gamma = 1/2$ et $j_\gamma = 3/2$ sont représentés sur la figure 8.9. On constate que lorsqu'on parcourt l'azimut φ , le champ électrique tourne plus vite à l'intérieur de l'ellipse dans le deuxième cas, la phase accumulée par le champ lorsqu'on parcourt l'angle azimutal étant proportionnelle à j_γ .

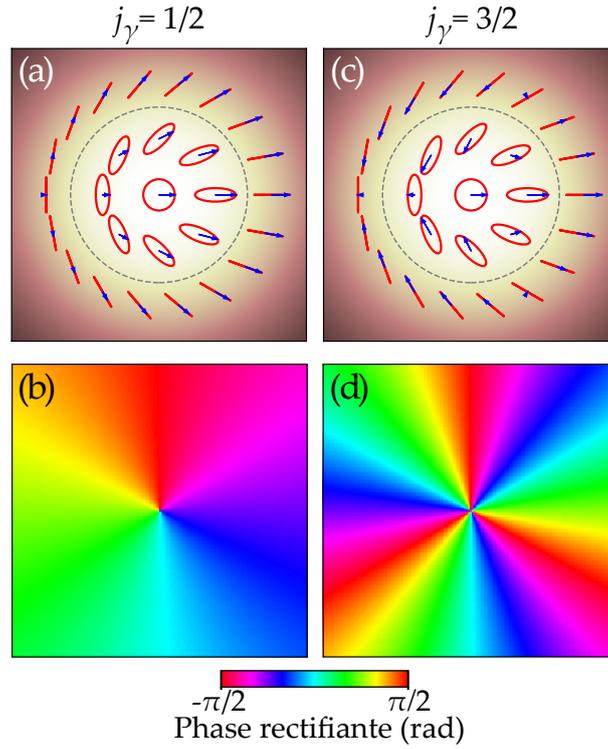


FIGURE 8.9 – Analyse de deux champs correspondant à $j_\gamma = 1/2$ (colonne de gauche) et $j_\gamma = 3/2$ (colonne de droite), avec $\gamma = 1/2$ pour les deux. (a, c) Ellipse de polarisation (rouge) et champ électrique à $t = 0$ (flèches bleues). Le cercle pointillé gris montre le rayon pour lequel les rubans de Möbius des figures 8.6 et 8.7.b ont été calculés. (b, d) Phase rectifiante.

Il n'est pas évident de quantifier cette phase, étant donné que la polarisation est elliptique. Une manière de le faire est d'utiliser la *phase rectifiante* [237], une quantité introduite sous ce nom par M. Dennis [237], qui s'appuyait sur les travaux de J.F. Nye [222]. Elle s'écrit

$$\Phi = \frac{1}{2} \arg(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}). \quad (8.22)$$

Cette quantité a pour inconvénient de ne varier que dans l'intervalle $]-\pi/2, \pi/2[$, mais pour avantage d'être très simple à calculer et à interpréter. En effet, le nombre de sauts de phase rectifiante dans le profil γ correspond à deux fois la charge j_γ . Pour le vérifier, considérons un champ invariant par rotation coordonnée de la forme

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = a_1(\mathbf{r})e^{i\ell_1\varphi} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + a_2(\mathbf{r})e^{i\ell_2\varphi} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}. \quad (8.23)$$

En fonction de la valeur des coefficients a_1 et a_2 , ce champ peut être linéaire ou elliptique. Quelques lignes de calculs donnent

$$\arg(\mathbf{E} \cdot \mathbf{E}) = \tan^{-1} \left(\tan((\ell_1 + \ell_2)\varphi) \right). \quad (8.24)$$

Finalement, on trouve pour la phase rectificante

$$\Phi = \frac{\ell_1 + \ell_2}{2} \varphi [\pi] = j_\gamma \varphi [\pi] \quad (8.25)$$

Ainsi, on trouve bien $\Phi = \frac{\varphi}{2}[\pi]$ pour $j_\gamma = 1/2$, c'est-à-dire un saut de phase de π , et $\Phi = \frac{3\varphi}{2}[\pi]$ pour $j_\gamma = 3/2$, c'est-à-dire trois sauts de phase de π (figure 8.9.b,d). Ces sauts de phase ne traduisent pas une discontinuité physique, mais sont dûs au fait qu'on ne peut définir l'orientation d'une ellipse au delà de l'intervalle $]-\pi/2, \pi/2[$.

La figure 8.10 montre l'évolution du module et de la polarisation du champ électrique de faisceaux RMP pour $\gamma = 1/2$ et $j_\gamma = 1/2$ et $3/2$. Il est instructif de le comparer à celui des modes de LG (figure 2.6). Comme pour les modes de LG polarisés linéairement, on peut compter un certain nombre de lobes tournant au cours du temps, signe que le faisceau porte du moment angulaire. Cependant, dans le cas de charges j_γ demi-entières, le nombre de lobes est impair : un unique lobe - effectuant une rotation complète en une demi-période du champ - pour $j_\gamma = 1/2$, trois lobes - effectuant une rotation complète en trois demi-période du champ - pour $j_\gamma = 3/2$, etc. Ainsi, les faisceaux MAG ont bien le profil spatio-temporel qu'on attend pour des modes de moment angulaire demi-entier, le nombre de lobes d'intensité étant toujours égal à deux fois la charge de moment angulaire. Nous verrons au chapitre suivant que cette propriété se retrouve dans le profil spatio-temporel de l'émission attoseconde lorsque ces modes sont utilisés en GHOE.

8.3 Le moment angulaire généralisé en optique quantique

Dans cette section, on note $|LG_{\ell,p,\sigma}\rangle$ l'état à un photon dans le mode de LG de MAO ℓ , d'indice radial p et de MAS $\sigma = \pm 1$. Il s'agit d'un état propre du MAO \hat{L}_z et du MAS \hat{S}_z

$$\begin{aligned} \hat{L}_z |LG_{\ell,p,\sigma}\rangle &= \ell \hbar |LG_{\ell,p,\sigma}\rangle, \\ \hat{S}_z |LG_{\ell,p,\sigma}\rangle &= \sigma \hbar |LG_{\ell,p,\sigma}\rangle. \end{aligned} \quad (8.26)$$

On définit aussi les modes propres du MAG, à γ fixé, comme

$$|RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|LG_{j_\gamma-\gamma,p,+1}\rangle + e^{i\phi} |LG_{j_\gamma+\gamma,p,-1}\rangle \right), \quad (8.27)$$

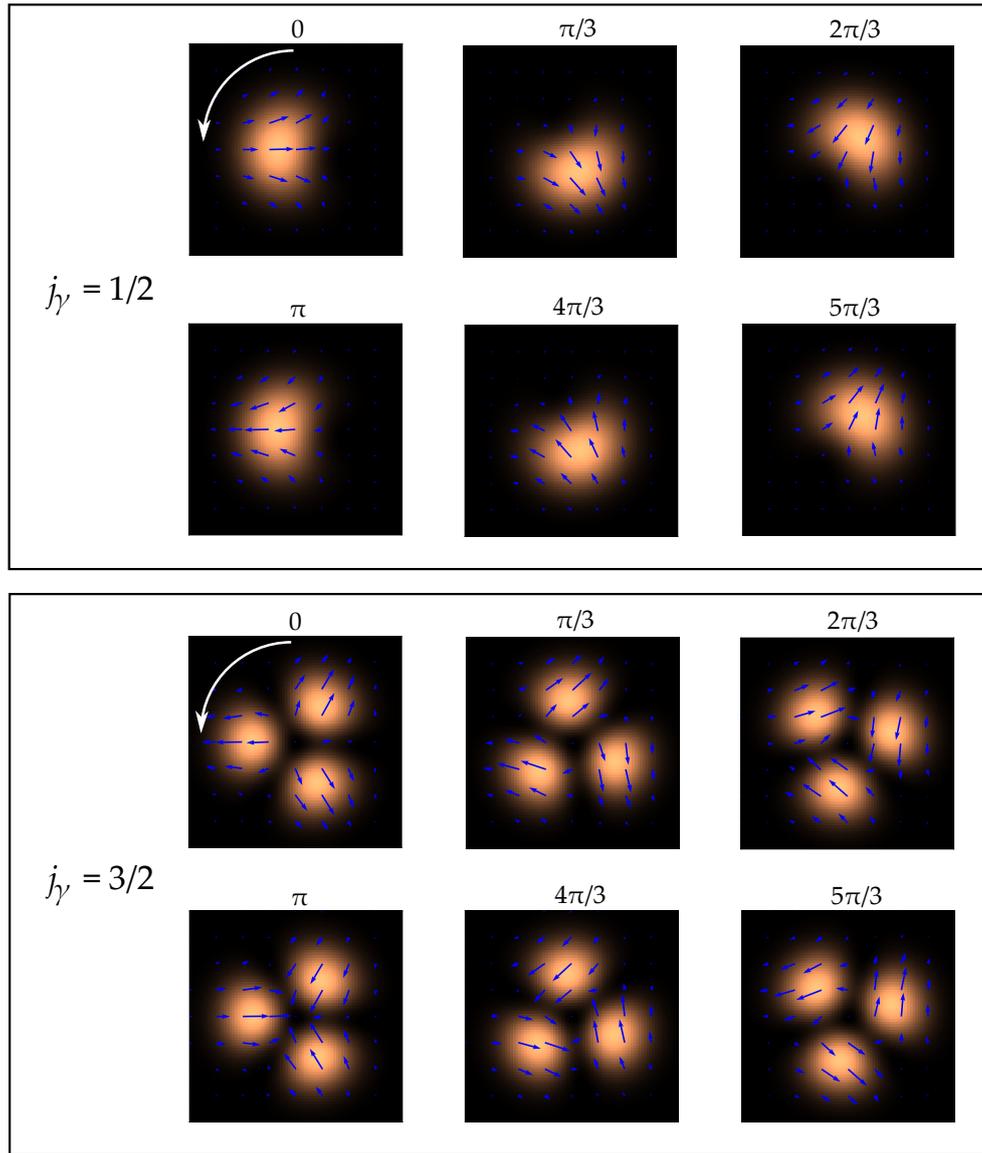


FIGURE 8.10 – Évolution de la norme de la partie réelle du champ (carte de couleur) et du champ électrique instantané (flèches bleues) sur une période, pour des RMP de paramètre $\gamma = 1/2$ et de charge MAG $j_\gamma = 1/2$ et $j_\gamma = 3/2$. La phase de l'onde est indiquée au dessus de chaque image. Ces deux modes ont le même état de polarisation, car ils correspondent au même paramètre γ . Cela ne semble pas être le cas sur les images, car on ne montre que le champ électrique à un instant donné : dans les deux cas la polarisation est bien linéaire horizontale à gauche, linéaire verticale à droite, et circulaire au centre du faisceau. Une animation montrant l'évolution de ces deux champs est disponible en format vidéo, en annexe de cette thèse.

où *RM* signifie "ruban de Möbius". On vérifie alors facilement que cet état est état propre de $\hat{J}_{\gamma,z}$, mais pas de \hat{L}_z ni de \hat{S}_z

$$\begin{aligned} \hat{L}_z |RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(j_\gamma - \gamma)\hbar |LG_{j_\gamma-\gamma,p,+1}\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}e^{i\phi}(j_\gamma + \gamma)\hbar |LG_{j_\gamma+\gamma,p,-1}\rangle \otimes |RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle, \\ \hat{S}_z |RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}\hbar |LG_{j_\gamma-\gamma,p,+1}\rangle - \frac{1}{\sqrt{2}}\hbar e^{i\phi} |LG_{j_\gamma+\gamma,p,-1}\rangle \otimes |RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle, \\ \hat{J}_{\gamma,z} |RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}}(j_\gamma - \gamma + \gamma)\hbar |LG_{j_\gamma+\gamma,p,+1}\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}}(j_\gamma + \gamma - \gamma)\hbar e^{i\phi} |LG_{j_\gamma-\gamma,p,-1}\rangle \\ &= j_\gamma\hbar |RM_{j_\gamma,p,\phi}\rangle. \end{aligned}$$

(8.28)

Décomposition sur la base des états propres du MAG

On aimerait pouvoir décomposer l'état $|LG_{\ell,p,\sigma}\rangle$ sur l'ensemble des états propres de $\hat{J}_{\gamma,z}$, pour une valeur quelconque de γ fixée. Si, de plus, les états propres de $\hat{J}_{\gamma,z}$ sont orthogonaux entre eux, on disposera d'une base de modes normaux possédant un MAG bien défini.

Remarquons que le mode $|LG_{\ell,p,\sigma}\rangle$ s'écrit

$$\begin{aligned} |LG_{\ell,p,\sigma}\rangle &= \frac{1}{2} (|LG_{\ell,p,\sigma}\rangle + |LG_{\ell+2\gamma,p,-\sigma}\rangle + |LG_{\ell,p,\sigma}\rangle - |LG_{\ell+2\gamma,p,-\sigma}\rangle) \\ &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|RM_{j_\gamma=\ell+\gamma,p,\phi=0}\rangle + |RM_{j_\gamma=\ell+\gamma,p,\phi=\pi}\rangle). \end{aligned} \quad (8.29)$$

Cette décomposition est représentée figure 8.11. De plus, les états $|RM_{j_\gamma=\ell+\gamma,p,\phi=0}\rangle$ et $|RM_{j_\gamma=\ell+\gamma,p,\phi=\pi}\rangle$ sont orthogonaux. En effet, en restreignant les valeurs prises par le paramètre ϕ à 0 et π , on trouve

$$\ell=0, p=0, \sigma=+1 \quad = \quad 1/\sqrt{2} \quad j_\gamma=1/2, p=0, \phi=0 \quad + \quad 1/\sqrt{2} \quad j_\gamma=1/2, p=0, \phi=\pi$$

FIGURE 8.11 – Un mode de LG (ici le mode gaussien) polarisé circulairement s'écrit toujours comme une somme de deux états propres de $\hat{J}_{\gamma,z}$ (ici pour $\gamma = 1/2$) associés à la même valeur propre j_γ mais à $\phi = 0, \pi$.

$$\begin{aligned} \langle RM_{j'_\gamma,p',\phi'} | RM_{j_\gamma,p,\phi} \rangle &= \frac{1}{2} \left(\langle LG_{j'_\gamma-\gamma,p',+1} | + e^{i\phi'} \langle LG_{j'_\gamma+\gamma,p',-1} | \right) \\ &\quad \times \left(|LG_{j_\gamma-\gamma,p,+1}\rangle + e^{i\phi} |LG_{j_\gamma+\gamma,p,-1}\rangle \right) \\ &= \delta_{j_\gamma j'_\gamma} \delta_{pp'} \delta_{\phi\phi'}. \end{aligned} \quad (8.30)$$

Les états propres du MAG étant orthogonaux, et tout champ pouvant s'écrire comme une somme de modes de LG polarisés circulairement, on en déduit que les états $|RM_{j_\gamma,p,\phi=0,\pi}\rangle$ forment bien une base orthonormée complète des champs électromagnétiques paraxiaux. L'état arbitraire $|\psi\rangle$ s'écrit ainsi en fonction des états propres du MAG, étiquetés par les indices $\eta = (j_\gamma, p, \phi = 0, \pi)$, selon

$$|\psi\rangle = \sum_{\eta} C_{\eta} |RM_{\eta}\rangle, \quad (8.31)$$

où les C_{η} sont des constantes telles que $\sum_{\eta} |C_{\eta}|^2 = 1$.

Opérateur quantique associé au MAG

Les propriétés ci-dessus nous permettent de transposer les résultats du chapitre 3 - où l'on a introduit les opérateurs quantiques associés aux modes portant du moment angulaire - au cas des modes normaux états propres du MAG. En particulier on peut définir des opérateurs annihilation \hat{a}_η et création \hat{a}_η^\dagger de photons dans le mode $\eta = (j_\gamma, \mathbf{p}, \phi)$, tels que l'opérateur

$$\hat{N} = \sum_{\eta} \hat{a}_\eta^\dagger \hat{a}_\eta \quad (8.32)$$

donne le nombre total de photons. Dans cette base, l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$ est donc simplement donné par

$$\hat{J}_{\gamma,z} = \sum_{\eta} j_\gamma \hbar \hat{a}_\eta^\dagger \hat{a}_\eta, \quad (8.33)$$

alors que les opérateurs \hat{S}_z et \hat{L}_z ne seront pas diagonaux et auront des expressions plus compliquées, le MAS et le MAO n'étant pas bien définis pour les faisceaux MAG. En effet, on peut faire le calcul de l'opérateur MAS en utilisant la forme générale 3.55, pour les vecteurs de base suivants

$$\begin{aligned} \epsilon_{n,1} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ i \\ 0 \end{pmatrix} e^{i(j_\gamma - \gamma)\varphi} + \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \\ 0 \end{pmatrix} e^{i(j_\gamma + \gamma)\varphi}, \\ \epsilon_{n,2} &= \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ i \\ 0 \end{pmatrix} e^{i(j_\gamma - \gamma)\varphi} - \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \\ 0 \end{pmatrix} e^{i(j_\gamma + \gamma)\varphi}, \end{aligned} \quad (8.34)$$

avec $n = (j_\gamma, \mathbf{p})$. Ces deux vecteurs correspondent à $\phi = 0$ et $\phi = \pi$. Ce sont des états de polarisation non-uniforme, états propres de $\hat{J}_{\gamma,z}$ pour la valeur propre j_γ , tels que ceux représentés figure 8.11. Le calcul donne alors

$$\begin{aligned} \epsilon_{n,1} \times \epsilon_{n,1}^* &= \epsilon_{n,2} \times \epsilon_{n,2}^* = 0 \\ \epsilon_{n,1} \times \epsilon_{n,2}^* &= -i \frac{\mathbf{k}_n}{k_n} \\ \epsilon_{n,1}^* \times \epsilon_{n,2} &= i \frac{\mathbf{k}_n}{k_n}. \end{aligned} \quad (8.35)$$

En injectant dans l'équation 3.55, on trouve l'opérateur MAS dans la base des faisceaux MAG

$$\hat{S}_z = \hbar \sum_n \left[\hat{a}_{n,1} \hat{a}_{n,2}^\dagger + \hat{a}_{n,1}^\dagger \hat{a}_{n,2} \right]. \quad (8.36)$$

Comme prévu, l'opérateur \hat{S}_z n'est pas diagonal dans cette base, contrairement à $\hat{J}_{\gamma,z}$.

Moment angulaire moyen d'un faisceau de lumière

Notons que dans l'expression 8.27 des états propres de $\hat{J}_{\gamma,z}$, les poids relatifs des deux modes de LG superposés étaient les mêmes. Quel est le rôle de ce paramètre ?

Soit un photon unique dans l'état $|\psi\rangle = a_1 |\ell_1, \sigma = 1\rangle + a_2 |\ell_2, \sigma = -1\rangle$. Comme discuté plus haut, $|\psi\rangle$ est état propre de $\hat{J}_{\gamma,z}$ pour $\gamma = \frac{\ell_2 - \ell_1}{2}$ et la valeur propre $j_\gamma = \frac{\ell_1 + \ell_2}{2}$. Calculons la valeur moyenne de l'opérateur MAO dans l'état ψ . On trouve facilement

$$\langle \hat{L}_z \rangle_\psi = \frac{\langle \psi | \hat{L}_z | \psi \rangle}{\langle \psi | \psi \rangle} = \hbar \frac{|a_1|^2 \ell_1 + |a_2|^2 \ell_2}{|a_1|^2 + |a_2|^2}. \quad (8.37)$$

De même, on trouve pour la moyenne du MAS

$$\langle \hat{S}_z \rangle_\psi = \hbar \frac{|a_1|^2 - |a_2|^2}{|a_1|^2 + |a_2|^2}, \quad (8.38)$$

et pour le moment angulaire total

$$\langle \hat{J}_z \rangle_\psi = \langle \hat{L}_z \rangle_\psi + \langle \hat{S}_z \rangle_\psi = \hbar \frac{|a_1|^2 (\ell_1 + 1) + |a_2|^2 (\ell_2 - 1)}{|a_1|^2 + |a_2|^2}. \quad (8.39)$$

Par contre, la valeur moyenne du MAG est

$$\langle \hat{J}_{\gamma,z} \rangle_\psi = \langle \hat{L}_z \rangle_\psi + \gamma \langle \hat{S}_z \rangle_\psi = \hbar j_\gamma = \hbar \frac{\ell_1 + \ell_2}{2}. \quad (8.40)$$

On constate donc qu'en général $\langle \hat{J}_{\gamma,z} \rangle_\psi \neq \langle \hat{J}_z \rangle_\psi$. En égalisant les expressions 8.39 et 8.40, on obtient la condition $|a_1| = |a_2| = \frac{1}{\sqrt{2}}$.

Cette remarque est importante, car la moyenne du moment angulaire total $\langle \hat{J}_z \rangle_\psi$ détermine la quantité de moment angulaire contenue dans un faisceau dont les photons sont dans l'état $|\psi\rangle$. Si l'intensité du faisceau est entièrement absorbée par une particule, cette dernière subira une variation de moment angulaire $\langle \hat{J}_z \rangle_\psi$ multiplié par le flux de photons du faisceau. Le calcul ci-dessus montre que pour l'état propre du MAG $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} |\ell_1, \sigma = 1\rangle + \frac{1}{\sqrt{2}} e^{i\phi} |\ell_2, \sigma = -1\rangle$, avec ϕ une phase quelconque, la variation du moment angulaire de la particule est également égale à $\langle \hat{J}_{\gamma,z} \rangle_\psi = \hbar \frac{\ell_1 + \ell_2}{2}$ multiplié par le flux de photons³. Cela n'est en général pas vrai pour un état $|\psi\rangle = a_1 |\ell_1, \sigma = 1\rangle + a_2 |\ell_2, \sigma = -1\rangle$ avec a_1 et a_2 quelconque, bien qu'il s'agisse toujours d'un état propre de $\hat{J}_{\gamma,z}$.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, on a défini l'opérateur moment angulaire généralisé $\hat{J}_{\gamma,z} = \hat{L}_z + \gamma \hat{S}_z$. Pour y parvenir, nous avons cherché des transformations particulières, les rotations coordonnées, qui laissent invariants les faisceaux de polarisation non-uniforme obtenus lorsqu'on superpose différents modes de MAO et de MAS. Selon les valeurs de MAO et MAS impliqués, la charge MAG peut prendre des valeurs entières ou demi-entières. Les modes propres de l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$ sont topologiquement non-triviaux, et correspondent dans le cas général à des rubans de Möbius, leur topologie exacte étant dictée par la valeur du paramètre γ .

De plus, les états propres de $\hat{J}_{\gamma,z}$ (à γ fixé) forment une base complète et orthonormée des champs paraxiaux. Le formalisme de la seconde quantification donne dans

3. La particule se mettra à tourner autour de l'axe du faisceau, mais également sur elle-même, ces deux rotations se faisant possiblement à des vitesses différentes.

cette base des photons portant une charge MAG $j_\gamma \hbar$, alors que leur MAS et MAO est toujours mal défini. Cette base n'apparaît pas comme moins fondamentale que celles des modes états propres du MAO et du MAS (par exemple les modes de LG polarisés circulairement).

J_γ n'est pas le seul exemple de moment angulaire quantifié de façon étrange en physique. On l'a dit, la possibilité de définir des moments angulaires optiques fractionnaires dans l'approximation paraxiale - alors que les photons sont des bosons, de spin 1 - découle du fait que le système physique est contraint d'évoluer dans un espace de dimension réduite [218]. Des phénomènes similaires peuvent avoir lieu pour les électrons. Bien que le moment angulaire orbital des électrons prenne des valeurs entières, un électron contraint de se déplacer sur une orbite bi-dimensionnelle entourant un flux de champ magnétique voit son moment angulaire orbital subir un offset proportionnel à ce flux [238]. Ce mécanisme mène à introduire un facteur de phase pouvant prendre des valeurs arbitraires lors de l'échange de deux porteurs de charge, et à définir une classe de quasi-particules, les *anyons*⁴. Les anyons furent théorisés par F. Wilczek dans les années 1980. Leur statistique fractionnaire, qui ne correspond pas à celle des bosons ni à celle des fermions, n'a pu être observée que très récemment [239]. L'introduction de ces nouvelles quantifications a joué un rôle majeur dans la compréhension de l'effet Hall quantique fractionnaire [240].

Ballantine *et al.* [217] précisent que pour les électrons, le décalage du spectre du moment angulaire provient de la phase d'Aharonov-Bohm [238] accumulée au cours d'une orbite complète autour du flux magnétique. Pour les photons, un décalage similaire est obtenu car on a utilisé des champs de polarisation non-uniforme comme base pour décomposer les champs de lumière. Ballantine *et al.* ajoutent que la phase de Berry [241] associée à la variation de la direction de la polarisation le long d'une "orbite" autour de l'axe optique fournit un champ de jauge, qui décale le spectre des moments angulaires. Notons qu'une telle phase de Berry a été très récemment mesurée dans des microcavités en ruban de Möbius [242], et des moments angulaires optiques fractionnaires observés dans des micro-résonateurs à modes guidés [243].

4. De l'anglais *any*, n'importe quel (c'est-à-dire n'importe quel déphasage).

Moments angulaires fractionnaires en génération d'harmoniques d'ordre élevé

Nos efforts pour définir un moment angulaire dont les faisceaux rubans de Möbius sont états propres vont porter leurs fruits dans ce chapitre, en simplifiant les lois de conservation en GHOE. Au lieu d'imposer séparément la conservation du MAO et du MAS, et de comptabiliser les différents canaux photoniques, on impose uniquement la conservation du MAG. Dans notre expérience, le système physique est invariant par rotation coordonnée, et par conséquent la charge j_γ doit être conservée dans le temps, ainsi qu'au cours du processus non-linéaire [244]. C'est une conséquence du théorème de Noether (voir chapitre 1).

Dans ce chapitre, nous présentons les résultats d'expériences de GHOE à deux faisceaux portant du MAS et du MAO, et établissons expérimentalement la loi de conservation du moment angulaire généralisé j_γ . Pour cela, nous allons implémenter de nouvelles méthodes de mesure du MAO dans l'XUV, en nous appuyant sur notre maîtrise de la GHOE en géométrie non-colinéaire.

9.1 Le MAG porté par les harmoniques

Considérons un faisceau de génération état propre de l'opérateur MAG. Puisqu'il possède une charge j_γ^{IR} bien définie, on s'attend à ce que le MAG soit également bien défini pour l'harmonique d'ordre q . Par analogie avec la conservation du MAO en GHOE avec un faisceau de LG, on peut aussi s'attendre à la loi multiplicative $j_\gamma^{(q)} = q \times j_\gamma^{IR}$, avec $j_\gamma^{(q)}$ le MAG de l'harmonique d'ordre q .

Comme pour la conservation du MAO en GHOE (section 6.1), cette variation linéaire du MAG avec l'ordre harmonique découle simplement des symétries du champ infrarouge ainsi que du milieu de génération. On considère ici un milieu non-linéaire isotrope, uniforme et invariant dans le temps. Ainsi, c'est uniquement le champ infrarouge qui contraint les symétries de l'expérience. Ce dernier possède une symétrie de rotation coordonnée : il ne change pas si on lui applique une rotation coordonnée de paramètre γ et d'angle θ suivie d'une translation temporelle d'une durée Δt^{IR} donnée par l'équation 8.21

$$\Delta t^{IR} = j_\gamma^{IR} \theta / \omega. \quad (9.1)$$

Puisque la transformation globale ne change pas le champ infrarouge, il doit en être de même pour le faisceau harmonique d'ordre q . Ce dernier a une fréquence égale à $q\omega$, et ainsi la rotation coordonnée le translate dans le temps d'une durée

$$\Delta t^{(q)} = \frac{j_\gamma^{(q)} \theta}{q\omega}. \quad (9.2)$$

En égalisant les durées Δt^{IR} et $\Delta t^{(q)}$ on trouve alors comme attendu

$$j_\gamma^{(q)} = qj_\gamma^{IR}. \quad (9.3)$$

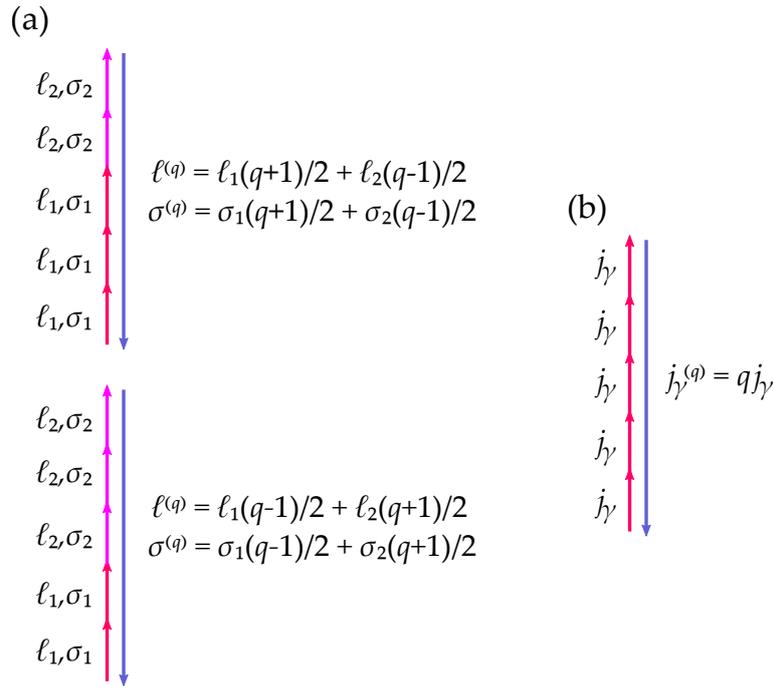


FIGURE 9.1 – (a) Le champ infrarouge contient deux types de photons, de MAS opposés et de MAO différents. Deux canaux photoniques contribuent à l'émission de l'harmonique d'ordre q , les MAS et MAO de l'XUV résultent donc de différentes combinaisons de photons venant de chaque faisceau. (b) Le champ infrarouge peut également être décrit comme une assemblée de photons portant chacun la charge j_γ . Il n'y a qu'un seul canal d'émission, et le photon XUV porte le moment angulaire qj_γ .

Dans une vision de l'expérience en termes de photons, notre approche pourrait se résumer ainsi. Nous avons initialement deux faisceaux de lumière cohérents superposés, portant des MAO et des MAS différents. Le champ infrarouge total contenait ainsi des photons dans l'état superposé : $|\ell, \sigma\rangle = |\ell_1, \sigma_1\rangle + |\ell_2, \sigma_2\rangle$. La détection des harmoniques émises revient à fixer les photons du champ fondamental dans l'un ou l'autre des états propre de la superposition. Pour comprendre quel était le moment angulaire des harmoniques, il fallait donc compter les différentes combinaisons de photons IR respectant la conservation du MAS et calculer les MAS et MAO des photons XUV résultants (figure 9.1.a). L'approche en terme de MAG consiste à traiter le champ IR comme occupant un mode unique, contenant des photons portant un moment angulaire généralisé $j_\gamma \hbar$, cette fois bien défini. Pour émettre l'harmonique d'ordre q , un nombre q

de ces photons est absorbé et un seule est émis, emportant une charge MAG q fois plus élevée (figure 9.1.b). Sachant cela, on peut remonter aux MAO des faisceaux de spin ± 1 en écrivant $\ell_{\pm 1}^{(q)} = j_{\gamma}^{(q)} \mp \gamma$. Chaque harmonique sera donc en fait une superposition d'états du type $|\ell, \sigma\rangle = |(q+1)\ell_1/2 + (q-1)\ell_2/2, +1\rangle + |(q-1)\ell_1/2 + (q+1)\ell_2/2, -1\rangle$, c'est-à-dire une superposition de deux vortex optiques d'hélicités opposées, en accord avec les lois de conservation du MAS et du MAO. Dans la suite, on fera référence à ces deux sous-faisceaux par leur MAS (+1 ou -1), et on notera les quantités qui leur sont associées avec un indice + ou -, comme le signe du MAS qu'ils portent.

Dans un modèle ondulatoire du phénomène, la principale contribution à la phase de l'harmonique d'ordre q en champ proche est liée à la phase spatiale du champ IR : la phase de l'harmonique vaut approximativement q fois la phase du champ infrarouge. Il y aura également, comme dans le cas de la GHOE par un faisceau IR portant du MAO, une contribution (plus faible) de la phase atomique.

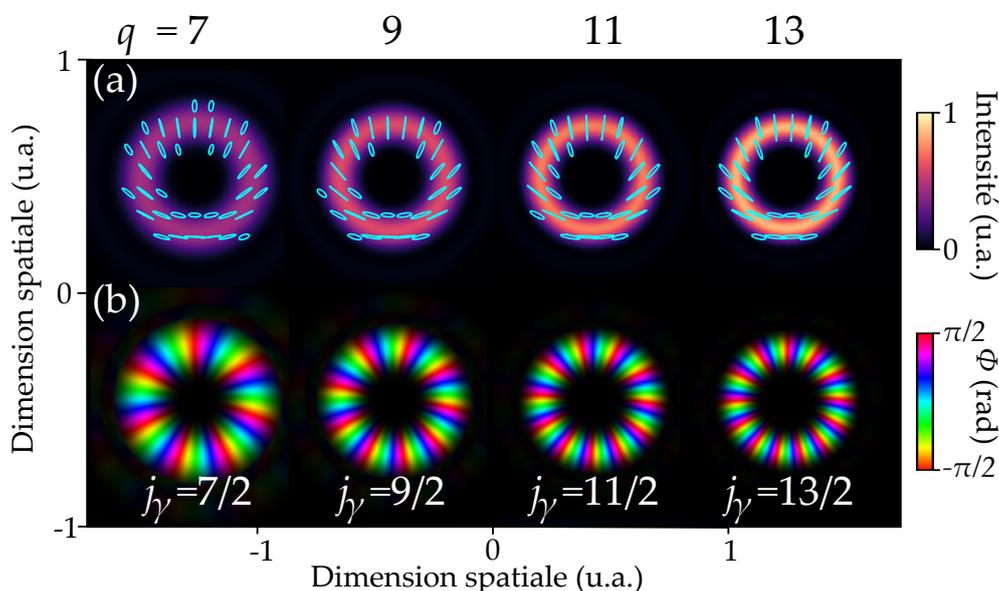


FIGURE 9.2 – Simulation du spectre d'harmoniques généré par un RMP de charge $j_{\gamma}^{IR} = 1/2$. (a) Intensité (carte de couleur) et ellipse de polarisation (en bleu ciel). (b) Phase rectifiante.

Pour simuler la GHOE avec des rubans de Möbius de polarisation, on utilise le modèle du réseau actif. La figure 9.2 montre le résultat de la simulation dans le cas où le champ de génération est un RMP avec $j_{\gamma}^{IR} = 1/2$, obtenu en superposant temporellement et spatialement un faisceau gaussien ($\ell_1 = 0$) polarisé circulaire droite, et un faisceau de LG de MAO $\ell_2 = 1$ polarisé circulaire gauche. Pour commencer, on considère que ces deux faisceaux ont la même intensité et la même taille de foyer.

Grâce à cette simulation, on observe principalement deux choses :

- Les harmoniques possèdent la même topologie que le champ infrarouge, ici un ruban de Möbius à un twist. Le paramètre γ est en effet constitutif de l'expérience et est valable pour le champ IR comme pour les harmoniques .
- On a bien $j_{\gamma}^{(q)} = q j_{\gamma}^{IR}$, comme le révèle la variation azimutale de la phase rectifiante.

On peut également remarquer que, comparé au champ fondamental (figure 8.7.a), les faisceaux harmoniques en champ lointain ont pivoté de $\pi/2$ autour de l'axe optique.

Ceci est dû au fait que les champs de lumière RMP considérés ne sont pas des modes propres de la propagation. Intuitivement, les deux faisceaux qui constituent chaque harmonique accumulent une phase de Gouy différente due à leur MAO durant la propagation du foyer jusqu'au champ lointain. Pour une différence d'une unité entre les deux MAO, la différence de phase de Gouy après propagation vaut $\pi/2$ (voir équation 2.23), ce qui est à l'origine de la rotation du profil du faisceau.

D'un point de vue pratique, la GHOE avec un tel champ infrarouge est très défavorable, car les harmoniques ne sont générées que dans les zones où l'ellipticité du champ infrarouge est faible en valeur absolue. La figure 9.3.b montre l'ellipticité du champ infrarouge au foyer, pour un ratio d'intensité totale entre les faisceaux de 0.85, comme ce sera le cas expérimentalement (voir sections 9.2.2 et 9.2.1). Au centre du faisceau la polarisation est circulaire, l'efficacité de la génération y tombe donc à zéro. C'est également le cas loin de l'axe optique, dans la zone où le faisceau de LG est bien plus intense que le faisceau gaussien. Finalement, les harmoniques sont majoritairement générées le long du cercle où les deux faisceaux IR ont la même intensité (figure 9.3.c). Pour comparer, la figure 9.3.d montre ce que serait l'efficacité de la GHOE si les deux faisceaux infrarouges avaient la même polarisation linéaire, d'après le modèle du réseau actif. En intégrant l'intensité de l'XUV des figures 9.3.c et 9.3.d, on trouve qu'un peu moins de 75 % de l'énergie est perdue à cause de l'ellipticité du champ IR, par rapport au cas linéaire. Les faisceaux harmoniques en champ lointain seront donc de faible intensité et plus difficiles à détecter. Dans l'idéal, on aurait préféré un faisceau IR tel celui de la figure 8.5, pour lequel la polarisation est partout linéaire. Un tel faisceau aurait cependant été difficile à obtenir expérimentalement.

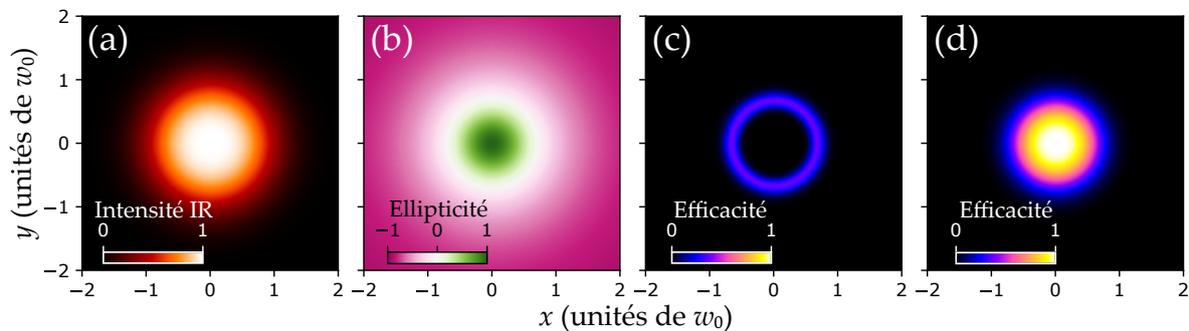


FIGURE 9.3 – Analyse du champ infrarouge et de l'efficacité de la GHOE. (a) Intensité totale du champ IR. (b) Ellipticité du champ IR. (c) Efficacité de la GHOE. (d) Efficacité de la GHOE, dans les cas où les deux faisceaux superposés sont polarisés linéairement. Pour pouvoir les comparer, (c) et (d) ont la même échelle de couleur.

9.2 GHOE avec des faisceaux portant du MAG en géométrie non-colinéaire

Notre objectif est de mesurer la charge j_γ portée par chaque harmonique. Idéalement, une telle mesure implique de caractériser complètement l'état de polarisation des harmoniques dans le plan transverse, ce qui donnerait accès au paramètre γ . Ensuite, une mesure du front d'onde permettrait de remonter à la valeur de j_γ . Évidemment,

une expérience de ce type est très difficile à réaliser. À cause de l'absence d'éléments optiques en transmission dans l'XUV, la polarimétrie des harmoniques s'effectue à l'aide de multiples réflexions sur des miroirs à l'angle de Brewster. Un premier jeu de miroirs rotatif sert de polariseur à angle variable, tandis qu'un deuxième jeu de miroir sert d'analyseur [209]. De même des senseurs de front d'onde du type Hartmann sont compliqués à mettre en place, et surtout nécessitent généralement de filtrer une des composantes linéaires de la polarisation [70].

Ici, on va plutôt tenter de lever la dégénérescence des canaux d'émission de spin $+1$ et -1 pour pouvoir caractériser leur MAO et leur MAS indépendamment. Cela rend les mesures plus simples, car chacun des deux canaux présente une polarisation circulaire, et un MAO bien défini. Une fois le MAO ℓ et le MAS σ mesurés, la combinaison $\ell + \frac{1}{2}\sigma$ correspondra à la charge MAG du canal d'émission considéré. Pour lever la dégénérescence, nous adoptons la même approche que celle du chapitre 7, et séparons angulairement les deux faisceaux IR de génération. Comme on l'a vu aux chapitre précédents, la conservation de l'impulsion implique que les canaux ± 1 , qui correspondent aux ordres de diffraction $p = (q \pm 1)/2$, ont désormais des directions d'émission différentes et sont donc séparés *spatialement*, ce qui permet de les caractériser indépendamment en champ lointain.

On aurait aussi pu séparer les deux canaux *spectralement*, en doublant en fréquence l'un des deux faisceaux IR. Cependant, comme on va le voir au chapitre II, le fait d'avoir un champ de génération polychromatique change la donne. En effet, ce dernier n'a plus la topologie d'un ruban de Möbius, mais d'un noeud torique [219]. De plus, une harmonique donnée est alors un vortex optique polarisé circulairement, donc arbore une topologie triviale [245]. Des expériences de ce type (deux couleurs, et mélangeant MAS et MAO) ont déjà été réalisées, notamment par Dorney *et al.* [68], mais le MAO des harmoniques n'a pas été mesuré¹.

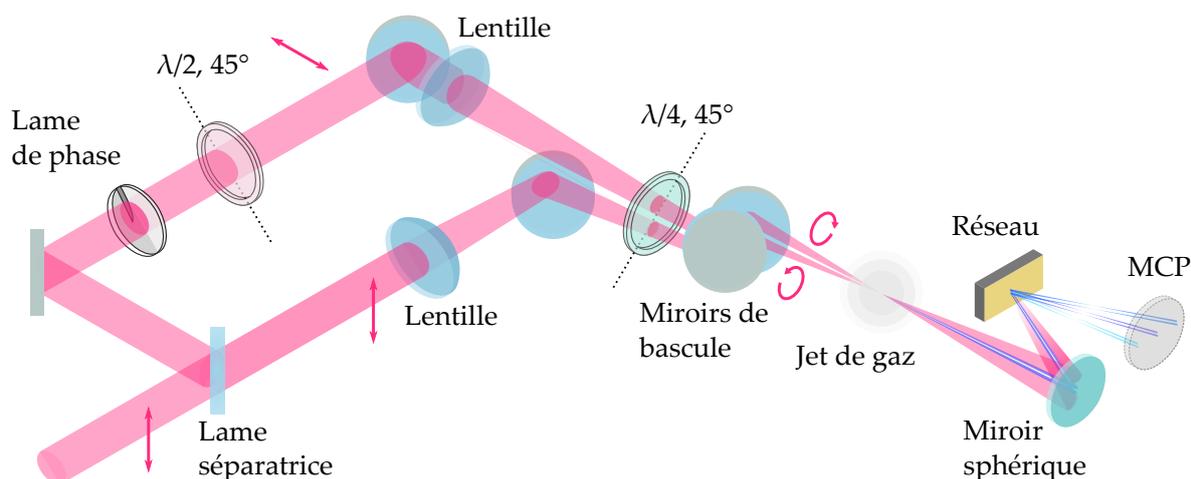


FIGURE 9.4 – Expérience de GHOE avec un RMP, en géométrie non-colinéaire.

1. Dans leur article, les auteurs font référence à une forme de "conservation simultanée des moments spin-orbite en GHOE" ("simultaneous spin-orbit momentum conservation in HHG"). Cette formulation est trompeuse, car elle laisse entendre que le phénomène standard de GHOE peut mener à une forme de couplage spin-orbite, alors que ce n'est pas ce qui est observé. Les MAS et MAO sont conservés indépendamment, et la valeur de l'un n'influence pas la valeur de l'autre. Jusqu'à présent, aucun couplage spin-orbite optique n'a pu être observé qui serait directement causé par la GHOE.

Le schéma expérimental (figure 9.4) sera donc le même que celui du chapitre 9, à ceci près qu'une lame de phase en spirale est maintenant insérée dans le faisceau 2. Afin de préserver le profil spatial des harmoniques, on fait encore une fois le choix d'utiliser le spectromètre en mode "incidence normale". De plus, comme on va le voir, la valeur de l'angle entre les deux faisceaux $\theta_0 = 50$ mrad n'a pas été choisie au hasard, mais permettra à plusieurs directions d'émission d'une harmonique donnée d'interférer. Enfin, étant donné que les deux ordres de diffraction $p = (q \pm 1)/2$ sont situés de part et d'autre de la bissectrice entre les deux faisceaux de génération, il nous faut comme au chapitre précédent placer cette bissectrice sur l'axe horizontal à l'aide d'un jeu de deux miroirs de bascule.

Protection de la topologie de la polarisation

On a vu que la conservation du MAG est intimement liée aux symétries du champ de génération. Or, le fait d'introduire un angle entre les deux faisceaux IR va inévitablement briser la symétrie de rotation de l'expérience. On pourrait s'attendre à ce que cela détruise la topologie de ruban de Möbius du champ infrarouge.

Pour comprendre, rappelons nous ce qui se passait dans le cas de la GHOE avec deux faisceaux gaussiens de MAS opposés (chapitre 7). L'interférence entre les deux faisceaux prenait la forme d'un réseau d'orientation de la polarisation, c'est-à-dire que l'ellipse de polarisation tournait périodiquement lorsqu'on se déplaçait verticalement dans le plan focal. Ici, la même chose va se produire, à ceci-près que le réseau sera en forme de fourche, à cause du MAO non nul porté par le faisceau 2.

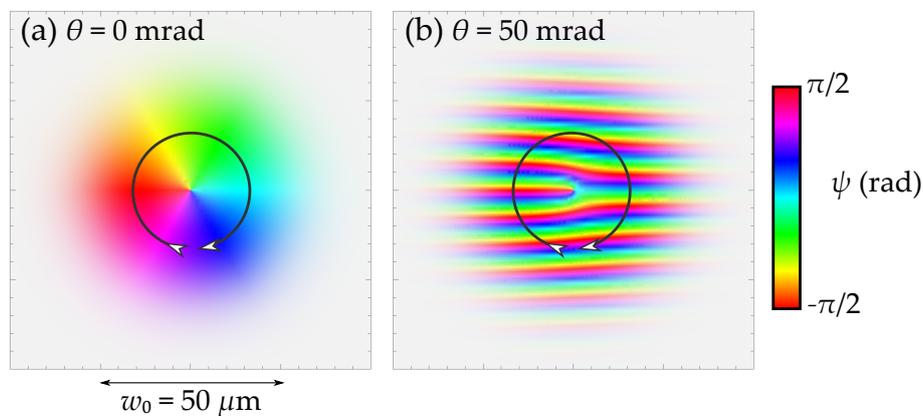


FIGURE 9.5 – Angle d'orientation ψ de l'ellipse de polarisation, pour deux faisceaux IR colinéaires (a) et avec un angle relatif de 50 mrad (b).

La figure 9.5 montre l'angle d'orientation de l'ellipse de polarisation ψ dans le plan transverse, pour un angle entre les deux faisceaux nul (figure 9.5.a) et de 50 mrad (figure 9.5.b). Pour comprendre quelle est la topologie associée au champ dans le second cas, observons comment varie ψ lorsqu'on parcourt un cercle contenant l'axe optique. Pour chaque frange du réseau parcourue, l'ellipse a pivoté de π sur elle-même. Mais après parcouru la moitié du cercle, le réseau est traversé en sens inverse, l'ellipse pivotant de $-\pi$ chaque frange. Le ruban de polarisation formé comprend donc un certain nombre de "twists" dans le sens horaire et anti-horaire [246, 231]. Comme le réseau contient une dislocation d'ordre 1, la partie gauche du réseau comporte exactement une frange

de plus que la partie droite. Ainsi, le nombre net de "twists" est 1, comme pour le champ de la figure figure 9.5.a. Les deux champs sont topologiquement équivalents, et correspondent au même paramètre topologique $\gamma = 1/2$. La figure 9.6 montre les rubans de Möbius calculés pour différentes valeurs de l'angle entre les deux faisceaux. Ils peuvent être "détwistés" pour obtenir celui de la figure 8.6. On dit que la grandeur γ est *topologiquement protégée*, c'est à dire qu'une petite variation de l'un des paramètres du système - tel que l'angle entre les deux faisceaux, leur ratio d'intensité, ou même leur état de polarisation - ne suffit pas à modifier sa valeur. Pour ce faire, il faudrait ajouter une singularité au champ, par exemple en lui superposant un troisième vortex optique.

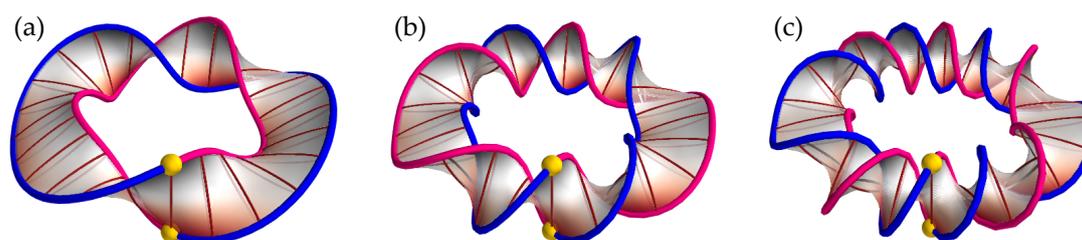


FIGURE 9.6 – Rubans de Möbius correspondant à $\gamma = 1/2$, obtenus pour différents angles entre les deux faisceaux IR : (a) 25 mrad, (b) 50 mrad, (c) 75 mrad. Dans chaque cas, le nombre net de "twists" est 1. Les rubans sont calculés pour un cercle de rayon $0.77w_0$ centré sur l'axe optique.

La figure 9.7 montre le profil d'intensité des harmoniques générées par le RMP de la figure 9.5.b), et dont la topologie est représentée figure 9.6.b, pour un angle de 50 mrad entre les faisceaux IR. Comme attendu, on observe deux vortex séparés pour chaque ordre harmonique. Leurs charges de MAO diffèrent d'une unité, et leurs hélicités sont opposées.

9.2.1 Mesure expérimentale du MAO des faisceaux XUV par interférences en polarisation linéaire

Dans un premier temps, nous cherchons à caractériser le MAO des faisceaux XUV lorsque les faisceaux de génération sont polarisés linéairement. En comparant avec le cas circulaire, on pourra ainsi valider l'absence de couplage spin-orbite. On commence donc par réaliser l'expérience avec des faisceaux IR polarisés verticalement. Dans le schéma expérimental de la figure 9.4, les axes neutres des deux lames d'onde sont placés à la verticale. Dans ce cas, il n'y plus lieu de considérer la loi de conservation du spin, et ainsi toutes les combinaisons de photons provenant des deux faisceaux sont autorisées. On obtient en champ lointain la figure 9.8.a. Comme attendu, on observe plusieurs directions d'émission pour chaque harmonique, chacune prenant la forme d'un vortex optique avec un profil annulaire. Pour une harmonique donnée, le rayon des anneaux augmente, de haut en bas, avec la valeur du MAO. Pour les harmoniques 9, 11 et 13, les anneaux ont une région de recouvrement qui présente une intrigante figure d'interférence. Lorsqu'on balaye l'image de haut en bas, la période spatiale de la figure d'interférence diminue. On va voir que la mesure de cette période spatiale

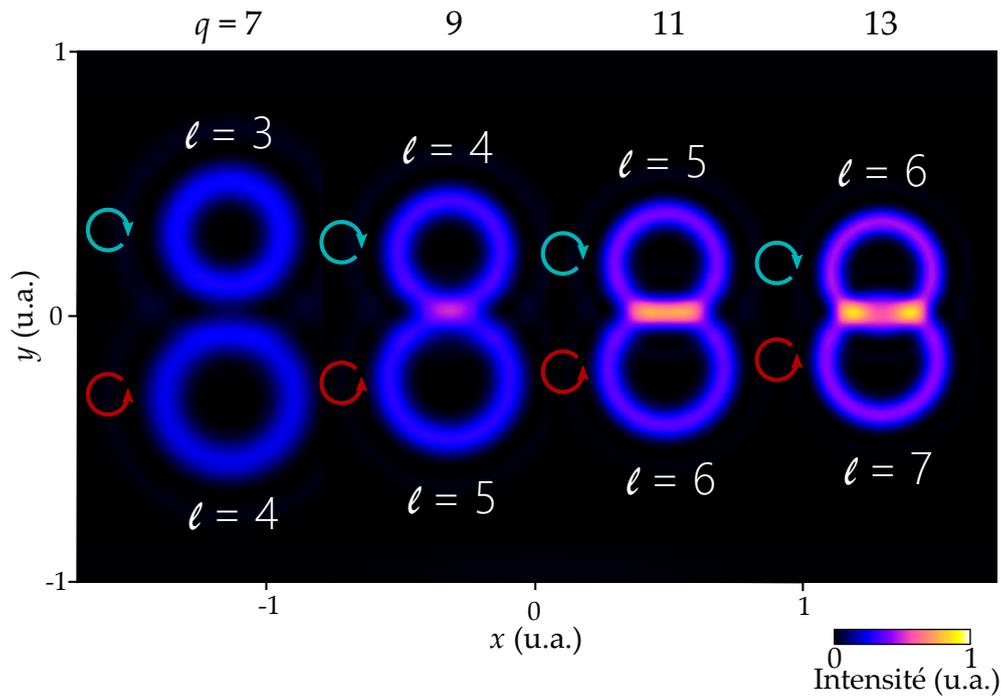


FIGURE 9.7 – Profils spatiaux des harmoniques 7 à 13 générées par le RMP non-colinéaire de la figure 9.5.b, simulés par le modèle du réseau actif. Les flèches circulaires indiquent l'hélicité du vortex le plus proche.

permet d'obtenir la phase spatiale relative de deux vortex considérés, et donc d'obtenir une information sur leur MAO.

Considérons deux vortex optiques décalés spatialement, de sorte que la partie inférieure de l'un interfère avec la partie supérieure de l'autre. Si les MAO des deux vortex sont de même *signe*, dans la zone de recouvrement les phases spatiales varient en sens contraire (Figure 9.11.a) et par conséquent des franges d'interférence apparaissent. Leur période spatiale est d'autant plus petite que les MAO considérés sont grands. Cette particularité est bien visible sur la figure expérimentale 9.8.a ainsi que sur les simulations (Figure 9.8.c). L'analyse des fréquences spatiales des franges d'interférence de l'harmonique 11 (Figure 9.8.b,d) montre bien des fréquences augmentant de haut en bas de l'image, avec là encore un très bon accord entre théorie et expérience. Les figures 9.9 et 9.10 montrent la même analyse pour les harmoniques 9 et 13. On constate que la fréquence du pic du spectre augmente avec les ordre de diffraction p et $p + 1$ considérés, signe que le MAO porté par les vortex superposés augmente. Notons que pour calculer le spectre des fréquences spatiales, il nous faut une unité de mesure de distance en champ lointain pertinente. La période de la figure d'interférence dépend uniquement des MAO portés par les vortex superposés et de la distance entre les deux singularités de phase. On note Δ la moitié de cette distance, qui dépend uniquement de l'angle entre les faisceaux de génération et de l'ordre de l'harmonique. Il semble donc pertinent de mesurer les distances en champ lointain en unités de Δ (ce qui donne des fréquences spatiales en unités de $1/\Delta$), car cela nous permettra de comparer les figures d'interférence issues de différentes harmoniques. Nous devons cependant considérer une subtilité de l'expérience. Δ est mesuré en prenant la distance entre deux ordres de diffraction alignés *verticalement*, alors que les figures d'interférence sont

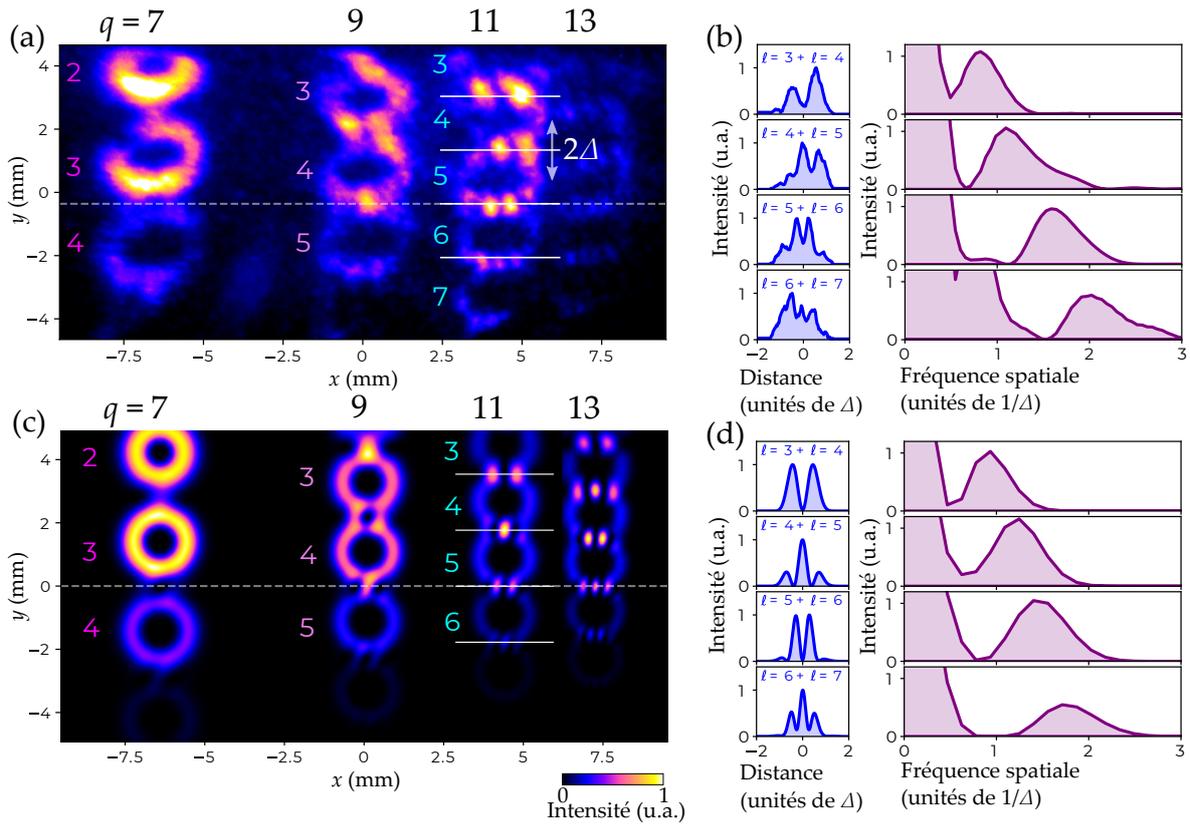


FIGURE 9.8 – Spectre d’harmoniques obtenu avec deux faisceaux IR non-colinéaires polarisés verticalement, portant les MAO $\ell_1 = 0$ et $\ell_2 = 1$. (a) Profils d’intensité expérimentaux des harmoniques 7, 9, 11 et 13. Les chiffres colorés indiquent la charge de MAO du vortex le plus proche. La bissectrice entre les faisceaux IR est indiquée par la ligne pointillée horizontale. Δ correspond à la moitié de la distance entre les centres de deux vortex voisins, et ne dépend que de l’ordre de l’harmonique et de l’angle entre les deux faisceaux IR. (b) Gauche : profils d’intensité de l’harmonique 11 le long des segments blancs horizontaux dans (a). Droite : transformée de Fourier correspondante, avec les fréquences spatiales en unités de $1/\Delta$. (c) Profils d’intensité simulés pour les harmoniques 7, 9, 11 et 13. (d) Gauche : profils d’intensité de l’harmonique 11 le long des segments blancs horizontaux dans (c). Droite : transformée de Fourier correspondante.

modulées *horizontalement*. Or, il n’y a aucune raison que les coordonnées horizontale et verticale soient comparables : il suffit que la surface des MCP ne soit pas normale aux faisceaux XUV pour que l’image soit déformée, et c’est le cas en pratique. Différentes harmoniques étant diffractées par le spectromètre selon des angles différents, elles ne peuvent toutes être en incidence normale sur le détecteur. C’est pour cette raison que les vortex XUV apparaissent plus larges que hauts sur la figure 9.8.a. Ainsi, la dimension horizontale de nos images expérimentales est multipliée par un facteur ~ 0.85 , pour que les vortex soient circulaires, avant de calculer les transformées de Fourier des figures de frange.

Calculons la périodicité des franges d’interférence. On considère une superposition de deux modes de LG XUV co-propageants, polarisés verticalement, et portant les MAO ℓ_a et ℓ_b , dont les singularités sont séparées d’une distance 2Δ (Figure 9.11.a et 9.8.a).

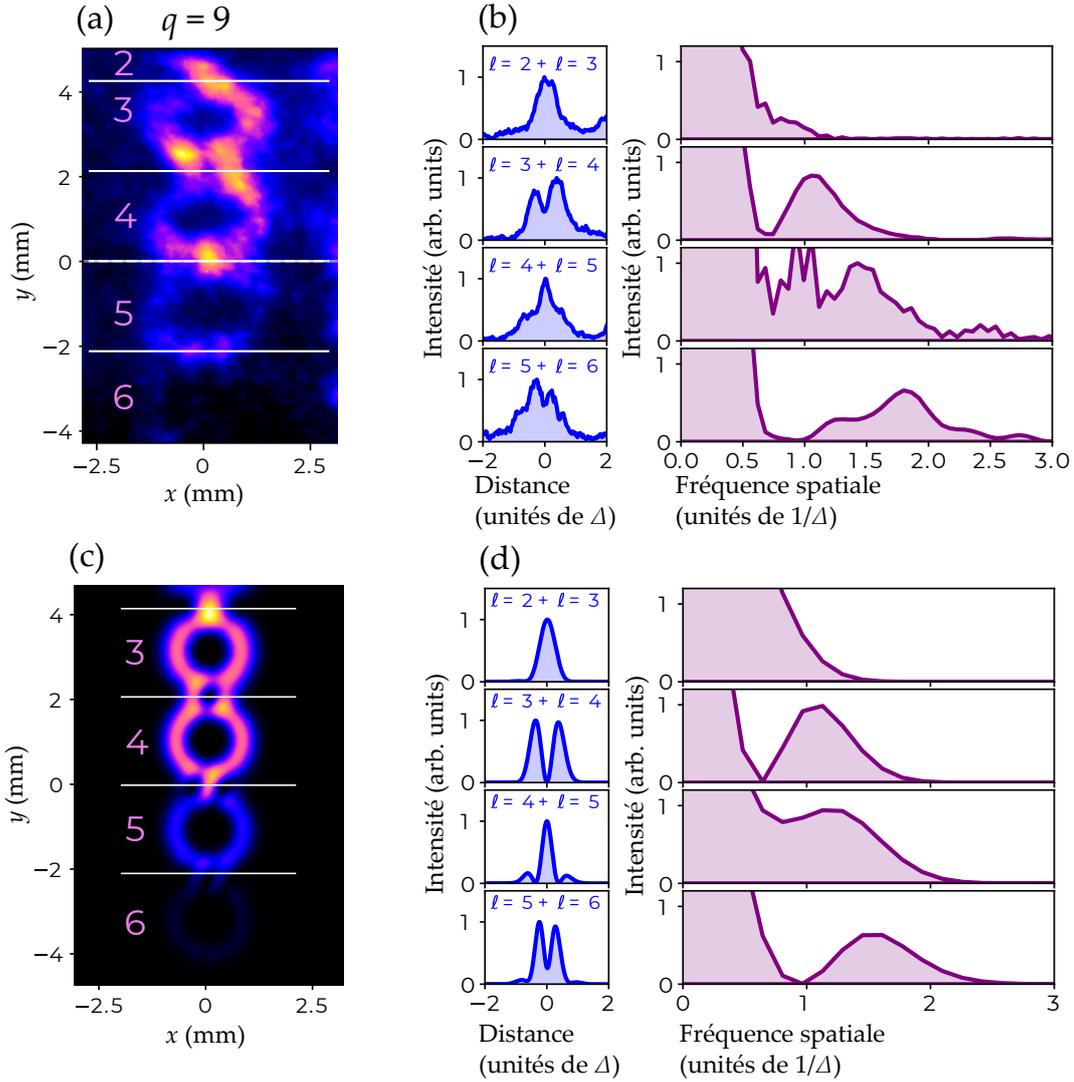


FIGURE 9.9 – Profils d'intensité expérimentaux (a) et simulés (c) de l'harmonique 9. (b) et (d) montrent les profils le long des segments blancs dans (a, c) et les transformées de Fourier correspondantes.

On note E_1 et E_2 les champs électriques des deux vortex, et x la coordonnée le long d'une ligne horizontale équidistante des centres des vortex (flèche blanche sur la figure 9.11.a). Pour $x \ll \Delta$, le champ électrique total sur cette ligne s'écrit

$$(E_1 + E_2)(x) = E_0 \left(e^{i\ell_a \tan^{-1}\left(\frac{x}{\Delta}\right)} + e^{i\ell_b \tan^{-1}\left(-\frac{x}{\Delta}\right)} \right) \approx E_0 \left(e^{i\ell_a \frac{x}{\Delta}} + e^{-i\ell_b \frac{x}{\Delta} + i\phi} \right), \quad (9.4)$$

avec ϕ la différence de phase des deux vortex considérés. L'intensité XUV varie donc avec x selon

$$I(x) \approx E_0^2 \left(2 + 2 \cos \left(\frac{x}{\Delta} (\ell_a + \ell_b) - \phi \right) \right). \quad (9.5)$$

On déduit de cette équation la position du principal pic dans le spectre des fréquences spatiales du motif d'interférence :

$$f_x \approx \frac{\ell_a + \ell_b}{2\pi\Delta}. \quad (9.6)$$

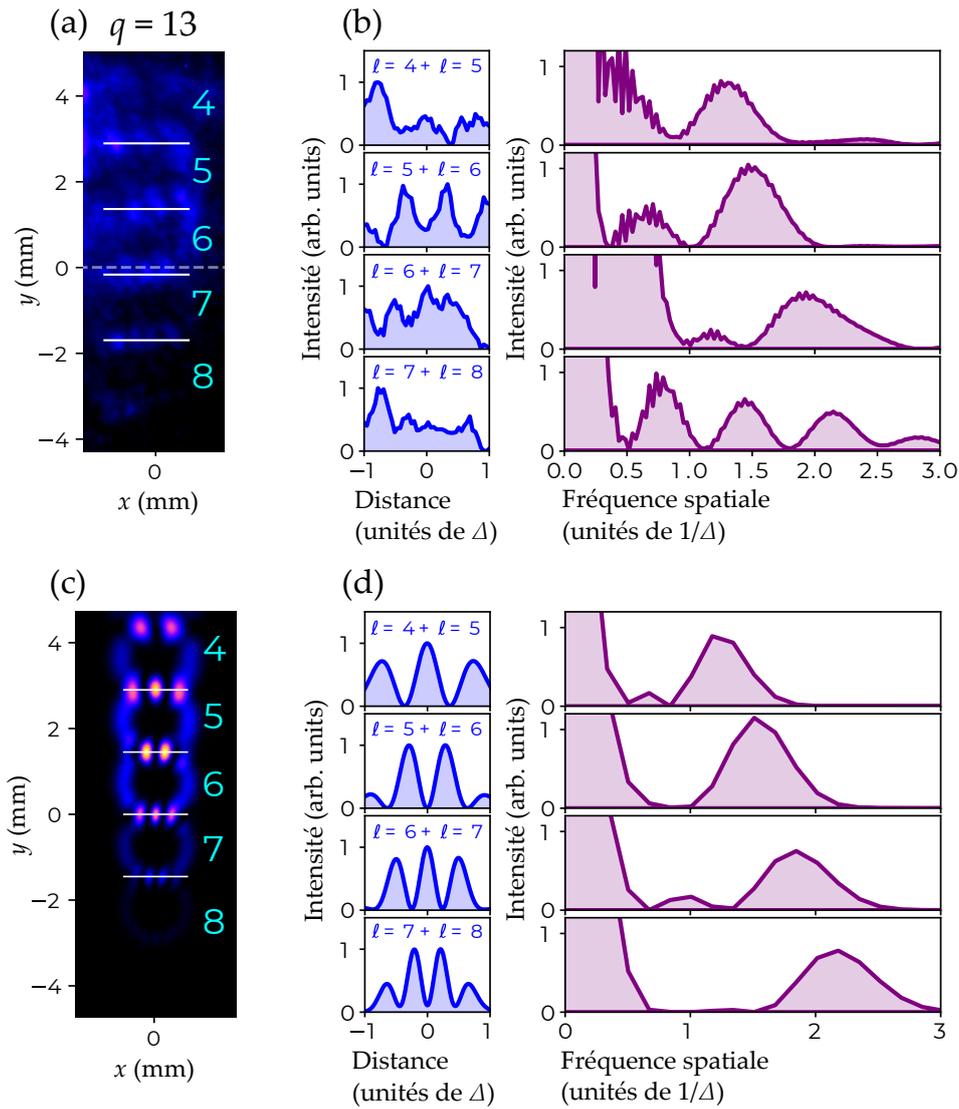


FIGURE 9.10 – Profils d’intensité expérimentaux (a) et simulés (c) de l’harmonique 13. (b) et (d) montrent les profils le long des segments blancs dans (a, c) et les transformées de Fourier correspondantes.

Faisons l’hypothèse raisonnable que le MAO augmente d’une unité d’un vortex à l’autre, comme attendu par conservation du MAO en GHOE à deux faisceaux. On a alors $\ell_a = \ell_b - 1 = \ell$, et on obtient

$$f_x \approx \frac{2\ell + 1}{2\pi\Delta}. \quad (9.7)$$

La formule ci-dessus donne les valeurs présentées dans la dernière colonne du tableau 9.1. Dans ce tableau, les valeurs le long d’une ligne devraient en théorie être égales. On constate que les résultats expérimentaux et ceux issus du modèle du réseau actif sont globalement en bon accord. On s’aperçoit cependant que l’équation 9.6 surestime toujours légèrement la fréquence spatiale des franges d’interférence. Cependant, elle prédit la bonne tendance et donne un ordre de grandeur tout à fait correct. L’erreur est due au fait que notre calcul est seulement valide pour de petites valeurs de x . En pratique, on prend la transformée sur toute la largeur de l’harmonique considérée, ce

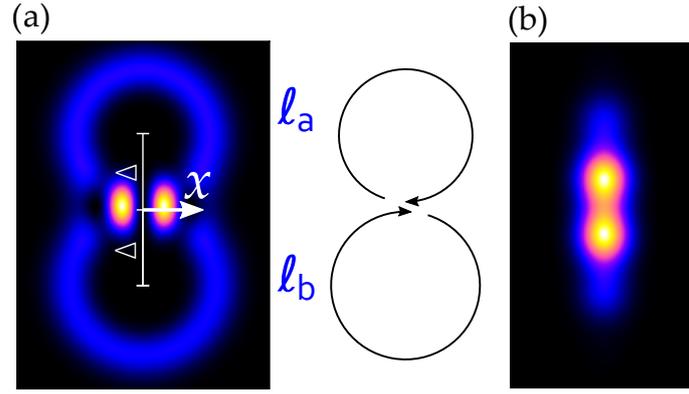


FIGURE 9.11 – (a) Intensité simulée de l’interférence de deux modes de LG de MAO $\ell_a = 4$ et $\ell_b = 5$. La distance séparant leurs centres est ajustée pour que la partie inférieure du vortex supérieur interfère avec la partie supérieure du vortex inférieur. Dans la zone de recouvrement, les phases spatiales varient en sens contraire (schéma à droite). (b) Comparaison avec des faisceaux gaussiens. La figure est un résultat de simulation de GHOE avec le modèle de réseau actif, pour deux faisceaux IR gaussiens de même intensité et d’angle relatif 25 mrad. 4 ordres de diffractions, centrés sur la bissectrice, sont visibles mais ne présentent aucune interférence dans leurs zones de recouvrement.

qui tend à faire décroître la fréquence spatiale mesurée. On pourrait faire un calcul plus fidèle à la réalité en considérant les ordres plus élevés du développement limité de la fonction arc-tangente dans l’équation 9.4.

TABLE 9.1 – Valeurs de $f_x \cdot \Delta$ pour différents couples (ℓ_a, ℓ_b) . Pour chaque harmonique, on donne la valeur mesurée expérimentalement (colonne de gauche) et par le modèle du réseau actif (colonne de droite). Les barres d’erreur expérimentales correspondent à la largeur à mi-hauteur du pic dans le spectre des fréquences spatiales.

(ℓ_a, ℓ_b)	H9		H11		H13		éq. 9.6
	Exp.	Sim.	Exp.	Sim.	Exp.	Sim.	
(3, 4)	1.06 ± 0.26	1.07	0.82 ± 0.25	0.93			1.11
(4, 5)	1.47 ± 0.33	1.30	1.15 ± 0.35	1.23	1.34 ± 0.28	1.25	1.43
(5, 6)	1.82 ± 0.30	1.58	1.59 ± 0.36	1.50	1.51 ± 0.25	1.52	1.75
(6, 7)			1.99 ± 0.39	1.78	1.92 ± 0.36	1.84	2.07
(7, 8)						2.19	2.39

Ces résultats permettent de valider la loi de conservation introduite au chapitre 6, cette fois pour des ordres de diffraction p élevés (jusqu’à $p = 8$ pour l’harmonique 13)

$$\ell_{q,p} = p\ell_1 + (q - p)\ell_2. \quad (9.8)$$

Notons enfin que des simulations permettent de remarquer que la position des franges d’interférence dépend de la phase relative des deux faisceaux de génération (voir l’annexe D).

L’observation d’interférences entre deux faisceaux d’une harmonique donnée est rendue possible par le fait qu’ils portent du MAO. La figure 9.11.b montre bien que pour des faisceaux XUV gaussiens, on n’observe pas de franges d’interférence. Les

faisceaux portant du MAO, grâce à la variation spatiale de leur phase, rendent ainsi possible la mesure de la phase relative ϕ entre les deux ordres de diffraction superposés. D'éventuelles variations de ce déphasage, liées à la physique de la GHOE ou causée par la propagation des faisceaux, seraient donc mesurables avec une précision attoseconde.

Puisqu'il n'y a a priori pas de couplage spin-orbite en GHOE (le MAS et le MAO sont conservés indépendamment), la valeur obtenue pour le MAO des faisceaux XUV en polarisation linéaire doit être la même que dans le cas des faisceaux IR bi-circulaires. Cependant, pour satisfaire la loi de conservation du MAS, tous les ordres de diffractions mis à part les deux situés de part et d'autre de la bissectrice vont s'éteindre. Les deux directions restantes étant polarisées orthogonalement, les franges d'intensité vont également disparaître, ce qui rendra impossible la mesure du MAO par la méthode présentée ici. Nous utiliserons donc une autre méthode, basée sur la focalisation astigmatique des harmoniques.

9.2.2 Mesure expérimentale du MAO des faisceaux XUV polarisés circulairement par focalisation astigmatique

En l'absence de franges d'interférence, comment mesurer le MAO porté par chacun des canaux d'émission ? On aimerait vérifier qu'on obtient les mêmes charges de MAO que dans le cas de la polarisation linéaire. On choisit ici d'implémenter une méthode de mesure du MAO basée la conversion de modes transverses. La position du jet de gaz a été choisie de façon à ce que nos vortex XUV soient proches de modes de LG purs [54]. On a vu au chapitre 2 que dans le visible, un mode de LG pouvait être obtenu à partir d'un mode d'HG par le biais de lentilles cylindriques. Ici, nous allons réaliser l'opération inverse, et convertir partiellement nos modes de LG XUV en modes de HG. Comme on va le voir, les deux indices cartésiens de ces deniers nous permettra de remonter au MAO porté par nos faisceaux. Étant donné qu'aucun élément optique en transmission n'existe dans le domaine de longueur d'onde XUV, la conversion ne sera pas réalisée par des lentilles, mais par le miroir sphérique déjà présent dans le spectromètre (voir figure 9.4). En effet, un miroir sphérique en incidence non normale présente un astigmatisme, et focalise différemment dans les dimensions verticales et horizontales. Contrairement aux convertisseurs utilisant des lentilles cylindriques, la conversion ne sera ici que partielle, mais suffisante pour mesurer le MAO du faisceau incident sur le miroir.

Les modes d'Hermite-Gauss étant une base complète des modes transverses de la propagation dans l'espace libre, il est possible d'écrire tout mode de Laguerre-Gauss sous la forme d'une somme, potentiellement infinie, de ces modes. Calculer analytiquement cette décomposition n'est pas chose facile. Kimel *et al.* [115] ont montré que les parties réelle et imaginaire du mode de LG $\mathcal{LG}_{\ell,p}$ s'écrivaient en fonction des modes de HG $\mathcal{HG}_{j,k}$ selon :

$$\begin{cases} \operatorname{Re}\{\mathcal{LG}_{\ell,p}\} = \sum_{n=0}^p \sum_{m=0}^{[\ell/2]} a_{\ell,p}^{n,m} \mathcal{HG}_{2(n-m)+\ell, 2(p-n+m)} \\ \operatorname{Im}\{\mathcal{LG}_{\ell,p}\} = \sum_{n=0}^p \sum_{m=0}^{[(\ell-1)/2]} b_{\ell,p}^{n,m} \mathcal{HG}_{2(n-m)+\ell-1, 2(p-n+m)+1} \end{cases} \quad (9.9)$$

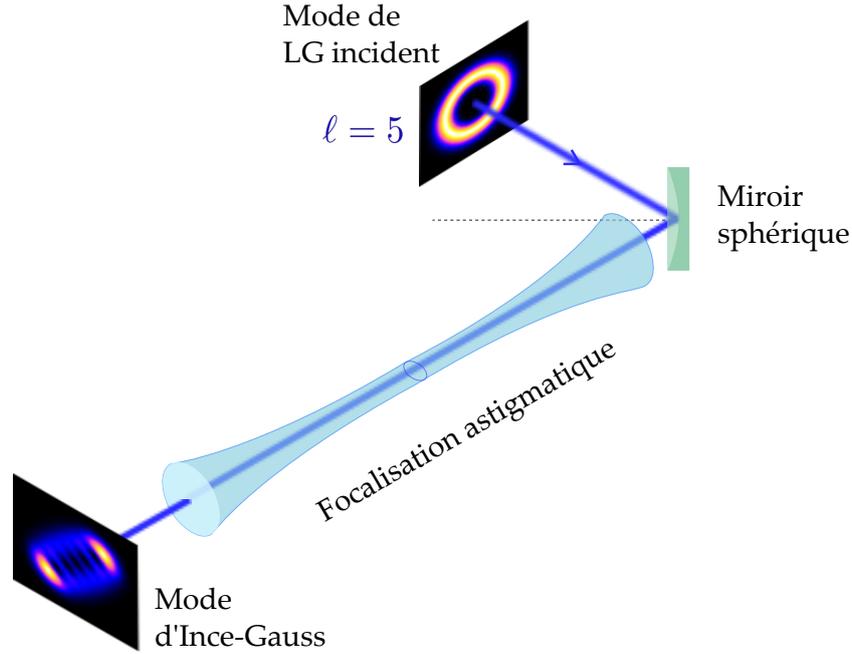


FIGURE 9.12 – Schéma de notre convertisseur de mode. Un mode de LG XUV de MAO $\ell = 5$ et d'indice radial nul est partiellement converti en un mode de HG d'indices $(5, 0)$ après focalisation par le miroir sphérique en incidence non normale.

L'expression des coefficients $a_{\ell,p}^{n,m}$ et $b_{\ell,p}^{n,m}$ est donnée en annexe E. Dans cette décomposition, on remarque que la somme $m + n$ des deux indices des modes de HG impliqués est égale à $2p + \ell$. Ainsi, la décomposition du mode $\mathcal{LG}_{\ell,p}$ comprend des modes de HG d'indices inférieurs ou égaux à $2p + \ell$. On peut vérifier que l'équation E.1 donne bien $\mathcal{LG}_{\ell=1,p=0} = \frac{1}{\sqrt{2}}(\mathcal{HG}_{1,0} + i\mathcal{HG}_{0,1})$.

Focaliser un mode de LG par un système astigmatique revient à déphaser chacun des modes $\mathcal{HG}_{j,k}$ de sa décomposition d'un facteur $e^{ik\Theta}$ (ou bien, et cela revient au même, d'un facteur $e^{ij\Theta}$), le paramètre Θ dépendant du système de focalisation [116]. Pour $\Theta = \pi/2$, la conversion de mode est parfaite : un mode de LG d'indices (ℓ, p) incident est entièrement converti en un unique mode de HG d'indices $(\ell + p, p)$ basculé de $\pm 45^\circ$, en fonction du signe de ℓ . Une telle opération est réalisée par le convertisseur de la figure (*lentilles cylindriques, chapitre 2*). Dans notre expérience, la conversion ne sera que partielle et on aura $0 < \Theta < \pi/2$. La figure 9.12 illustre le principe de notre mesure du MAO par conversion de mode. La figure 9.13 a été obtenue en utilisant les équations E.1. Elle montre le résultat de la conversion de modes pour différents indices radiaux p et azimutaux ℓ du mode de LG incident, ainsi que plusieurs valeurs de Θ . Les champs obtenus sont appelés modes d'Ince-Gauss [247] et apparaissent naturellement lorsqu'on résout l'équation d'onde paraxiale en coordonnées elliptiques. Ils sont à mi-chemin entre les modes de LG et de HG, de la même façon qu'une polarisation elliptique forme un état intermédiaire entre polarisation linéaire et circulaire.

Contrairement aux modes de LG, dont le profil d'intensité ne permet pas d'obtenir directement la valeur de l'indice azimutal ℓ (différentes valeurs de ℓ donnent toujours des anneaux d'intensité dont seul le rayon varie), les indices j et k des modes de HG sont directement lisibles dans leurs profils d'intensité. Ils correspondent en effet au

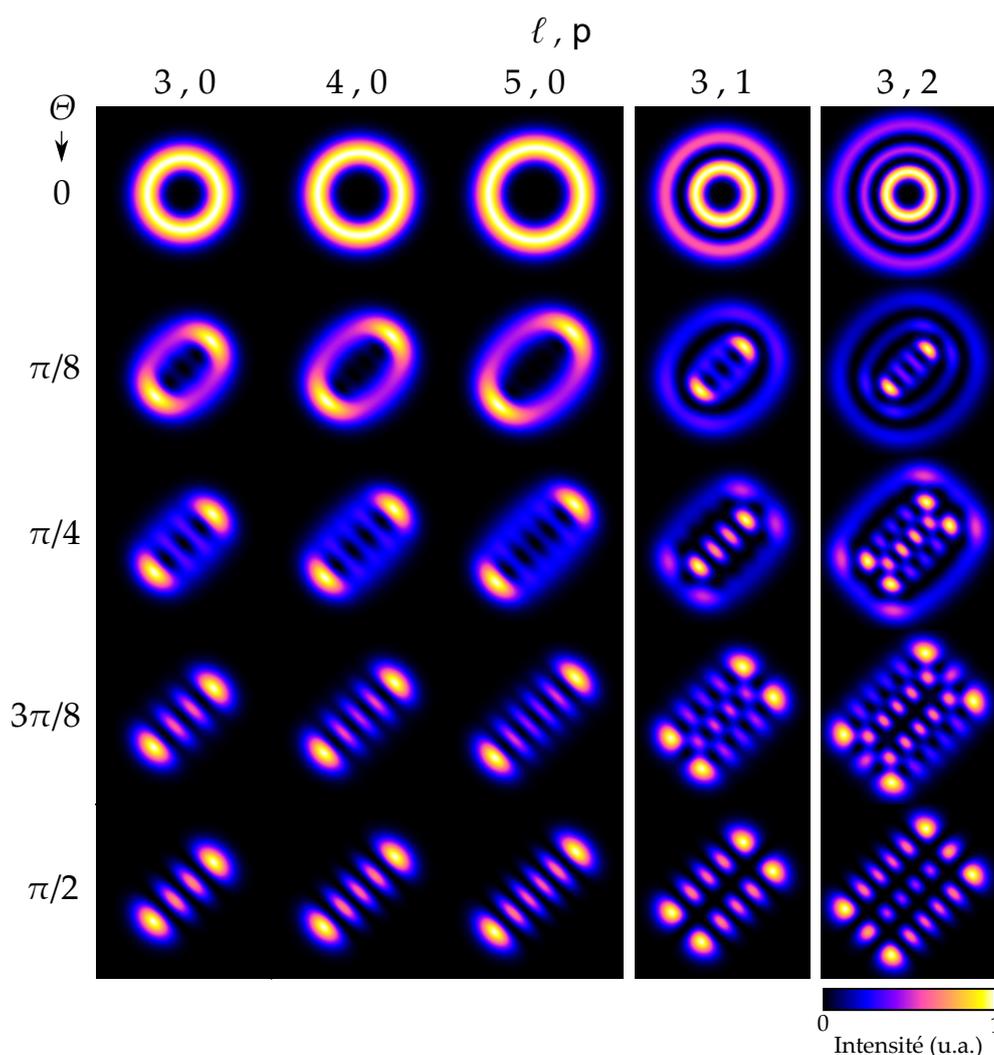


FIGURE 9.13 – Intensité transverse du mode de sortie du convertisseur pour différents modes de LG incidents. Chaque colonne correspond à un mode de LG d’entrée d’indices ℓ, p , et chaque ligne à une valeur du paramètre Θ . w est la largeur du faisceau.

nombre de noeuds d’intensité dans les dimensions horizontales et verticales. Ainsi, si l’on cherche à connaître le MAO d’un mode de LG, il suffit de convertir ce dernier dans le mode de HG correspondant pour obtenir la valeur du MAO à partir d’une image du profil d’intensité. C’est ce principe que l’on met à profit ici : on mesure le MAO des faisceaux XUV en les focalisant de manière astigmatique. Étant donné que nous sommes dans un régime où les vortex harmoniques ont un indice radial nul, la valeur du MAO est obtenue en comptant les minima d’intensité sur la diagonale de leur profil (voir les trois premières colonnes de la figure 9.13). La mesure du MAO par conversion astigmatique est routinière dans le domaine visible, où il suffit de placer une lentille inclinée sur le trajet du faisceau [248]. Cependant elle n’avait, à notre connaissance, jamais été appliquée à des harmoniques d’ordre élevé.

9.3 Résultats expérimentaux et conservation du MAG

Pour induire des polarisations circulaires croisées dans les deux faisceaux IR, les axes rapides de la lame demi-onde du faisceau 2 et de la lame quart d'onde commune aux deux faisceaux sont tous deux orientés à 45° de la verticale (figure 9.4). Après être passée à travers tous les éléments optiques, une impulsion du faisceau 1 (gaussien) a une énergie de 0.61 mJ, à comparer à 0.52 mJ pour une impulsion du faisceau 2 (LG). A cause de ce différentiel d'énergie, on s'attend à ce que le faisceau de spin -1 ait une intensité plus faible que celui de spin $+1$. Pour réaliser la conversion de mode, on augmente l'angle d'incidence des harmoniques sur le miroir de refocalisation jusqu'à environ 15° hors de la normale. Augmenter l'angle d'incidence permet d'améliorer le taux de conversion, mais se fait au détriment de la réflectivité. Les autres conditions expérimentales sont inchangées. On obtient alors la figure 9.14.

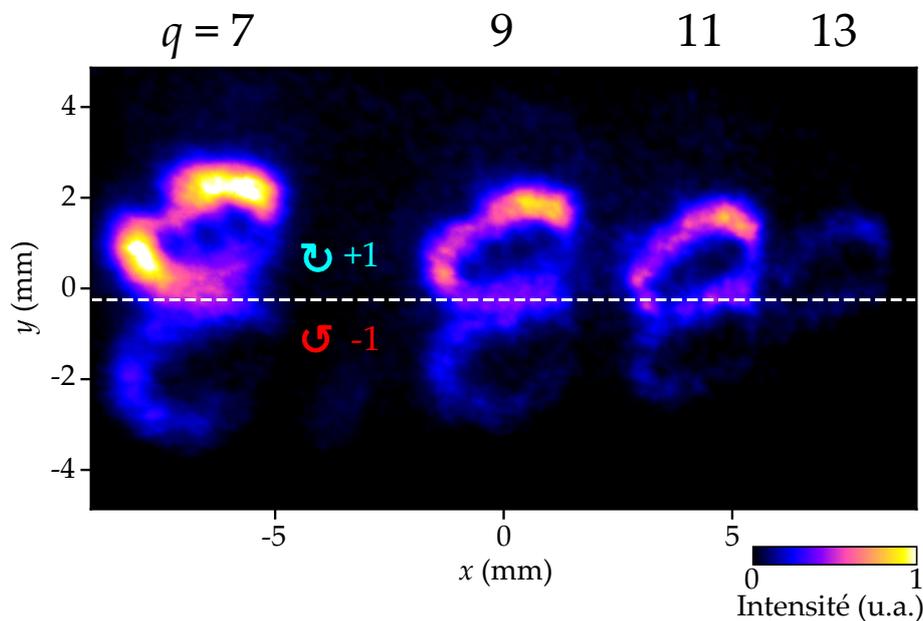


FIGURE 9.14 – Spectre d'harmoniques généré dans l'argon par un RMP de charge $j_y^{IR} = 1/2$ en régime non-colinéaire. Les spin $+1$ et -1 des faisceaux sont indiqués. La bissectrice entre les faisceaux IR est indiquée par la ligne blanche pointillée. Cette image a été obtenue en moyennant 30 acquisitions, chacune durant 0.6 s.

Comparons la à la figure 9.8.a. Contrairement au cas de la polarisation linéaire, on n'observe ici que deux directions d'émission pour chaque harmonique, ce sont les faisceaux de spin $+1$ et -1 évoqués plus haut et déjà observés au chapitre 7. Tous les canaux d'émission interdits par la conservation du spin sont entièrement éteints. Le faisceau de MAS $+1$ est plus intense que celui de MAS -1 , ce qui est dû à la différence d'intensité totale entre le faisceau 1 et le faisceau 2. Comme attendu, l'intensité globale de l'image est bien plus faible qu'en polarisation linéaire, ce qui se traduit par un bruit de fond élevé, et une harmonique 13 à peine visible. Ceci est dû au fait que le recouvrement entre un faisceau gaussien et un faisceau LG $\ell = 1$ est faible. Dans notre expérience, les deux faisceaux sont collimatés au même diamètre, et focalisés par des lentilles identiques, si bien que leur waists sont égaux. Pour optimiser le recouvrement, il aurait été bénéfique de réduire le waist du faisceau LG, par exemple à l'aide d'un

télescope. De même, on aurait idéalement préféré disposer d'une intensité totale plus faible pour le faisceau gaussien, et plus élevée pour le faisceau LG. Les contraintes expérimentales - notamment le fait qu'il faille d'abord générer des harmoniques sur l'axe avec le faisceau 1 uniquement, puis utiliser les deux miroirs de bascule (figure 9.4) - nous imposaient cependant de garder une énergie suffisamment élevée dans le faisceau 1².

Sur la figure 9.14, on remarque également que les franges d'interférence dans la zone de recouvrement des vortex de chaque harmoniques ont disparu. Il s'agit d'une indication que les polarisations des deux vortex sont bien orthogonales. On peut alors affirmer que le vortex supérieur est circulaire droite, alors que le vortex inférieur est circulaire gauche. Leur interférence prend la forme d'une modulation périodique (invisible sur l'image) de l'angle d'orientation de l'ellipse de polarisation. Ainsi, un polariseur XUV vertical ou horizontal permettrait de rendre la figure d'interférence de nouveau visible (voir figure 9.17.b,c). On observe également que chaque faisceaux XUV présente une élongation selon la diagonale, ainsi qu'un certain nombre de minima d'intensité, résultats de la conversion partielle de modes. En comparant la figure expérimentale avec la figure 9.13 on peut affirmer que le miroir sphérique agit comme un convertisseur de modes de paramètre $\Theta \approx \pi/8$. La figure 9.15 présente une analyse des profils d'intensité, et une comparaison avec le modèle du réseau actif. Pour ce dernier, l'effet du miroir sphérique hors incidence normale est simulé en appliquant une phase spatiale quadratique inégale selon les deux dimensions de l'espace $\varphi_q(x, y) = (ax^2 + by^2)/q$ au champ électrique, avant de le re-propager avec une transformée de Fourier. Ici on a pris $a = 0$ et $b \approx -7 \times 10^7$ rad/m². On observe là encore un très bon accord entre l'expérience et la simulation.

A cause de la faible intensité des harmoniques, la mesure du MAO par conversion de mode n'a pu se faire que pour les faisceaux de MAS +1 et -1 de l'harmonique 7, ainsi que pour le faisceau de MAS +1 des harmoniques 9 et 11. On obtient $\ell_+^{(7)} = 3$, $\ell_-^{(7)} = 4$, $\ell_+^{(9)} = 4$ et $\ell_+^{(11)} = 5$. Ces valeurs sont en accord avec celles mesurées en polarisation linéaire (équation 9.8). Les résultats de mesure du MAO des faisceaux XUV sont résumés sur la figure 9.16. Comme le montre la figure, chaque harmonique est dans un état de MAO et MAS "mal définis". Les MAO des deux faisceaux de l'harmonique q valent en effet $\ell_+^{(q)} = (q - 1)/2$ et $\ell_-^{(q)} = (q + 1)/2$, respectivement. Leurs charges MAG sont donc égales à

$$\begin{cases} j_{\gamma+}^{(q)} = \ell_+^{(q)} + \gamma\sigma_+^{(q)} = \frac{q-1}{2} + \frac{1}{2} \times 1 = \frac{q}{2} \\ j_{\gamma-}^{(q)} = \ell_-^{(q)} + \gamma\sigma_-^{(q)} = \frac{q+1}{2} + \frac{1}{2} \times (-1) = \frac{q}{2}. \end{cases} \quad (9.10)$$

Ainsi, l'expérience montre bien que la charge MAG est la même pour les deux faisceaux de spin ± 1 de l'harmonique q . $j_{\gamma}^{(q)}$ est donc une grandeur constitutive de chaque harmonique, et ne dépend pas du nombre de photons provenant de chacun des deux faisceaux IR dans le processus d'émission. De plus, la charge MAG du champ de génération étant $j_{\gamma}^{IR} = 1/2$, on observe la loi de conservation attendue

$$\boxed{j_{\gamma}^{(q)} = qj_{\gamma}^{IR}}, \quad (9.11)$$

2. Une autre façon de faire serait de générer avec les faisceaux LG $\ell_1 = 1$ et $\ell_2 = 2$. On aurait alors $j_{\gamma} = 3/2$, mais le recouvrement des deux faisceaux IR serait bien meilleur.

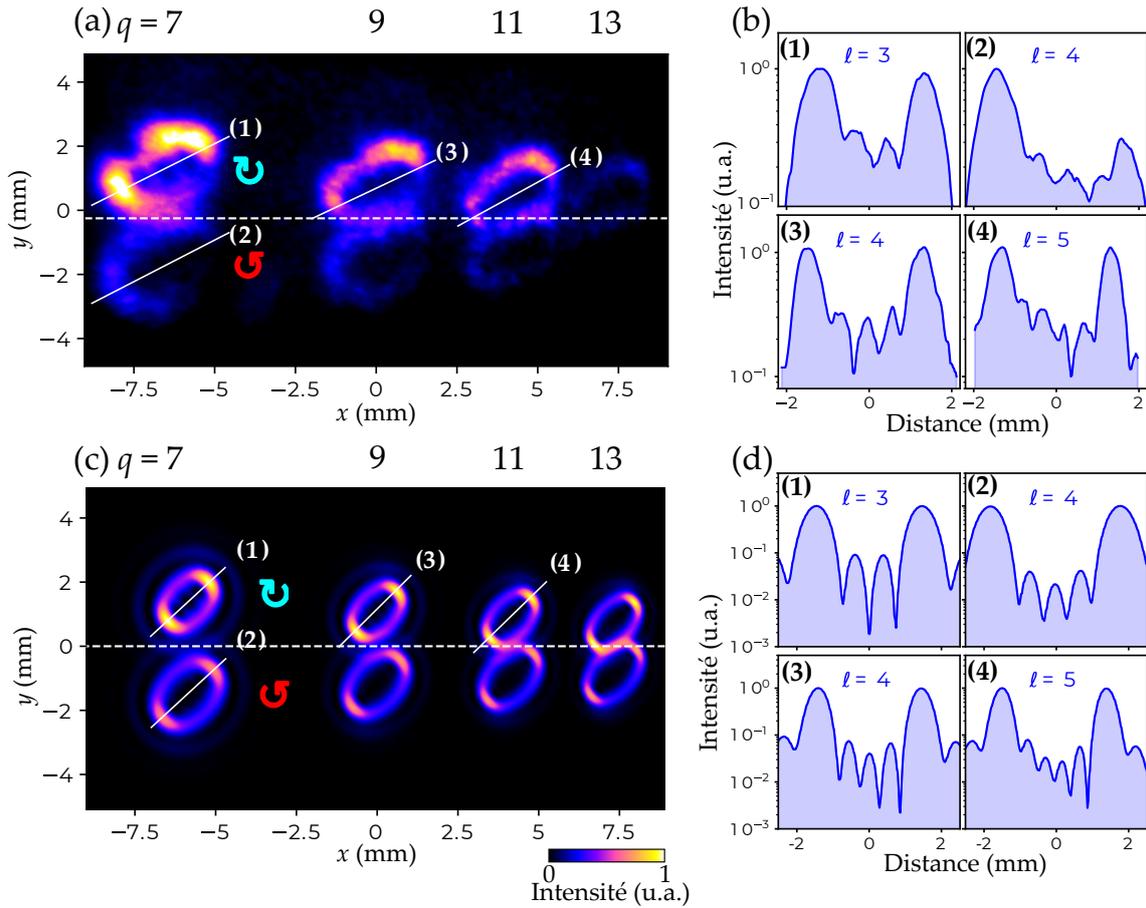


FIGURE 9.15 – (a) Profils d'intensité expérimentaux des harmoniques 7, 9, 11 et 13. la bissectrice des faisceaux de génération est marquée par la ligne pointillée horizontale. (b) Coupes de l'intensité selon les segments correspondants dans (a), en échelle logarithmique. La charge du MAO du vortex correspond au nombre de minima d'intensité. (c) Harmoniques simulées par le modèle du réseau actif. (d) Coupes de l'intensité selon les segments correspondants dans (c), en échelle logarithmique.

ce qui donne un spectre de moments angulaires demi-entier : $j_{\gamma}^{(7)} = 7/2$, $j_{\gamma}^{(9)} = 9/2$, $j_{\gamma}^{(11)} = 11/2$, etc.

9.4 Le MAG dans le domaine temporel

Jusqu'ici, on s'est seulement intéressé à décrire les propriétés de polarisation et de moment angulaire de chacune des harmoniques prise séparément. Cependant, lorsqu'on considère la superposition de plusieurs d'entre elles, on obtient des trains d'impulsions attoseconde. On a notamment vu au chapitre 6 que la superposition d'un certain nombre d'harmoniques portant un MAO bien défini égal à leur ordre donne dans le domaine temporel un *ressort de lumière* à deux hélices. Ici, on se trouve dans une situation similaire, chaque harmonique portant une charge j_{γ} égale à la moitié de son ordre. Pour remonter au profil spatio-temporel de l'émission attoseconde, il faut connaître simultanément le profil spatial d'intensité et de phase de chaque harmonique, ainsi que la phase spectrale du rayonnement XUV. Expérimentalement, on pourrait

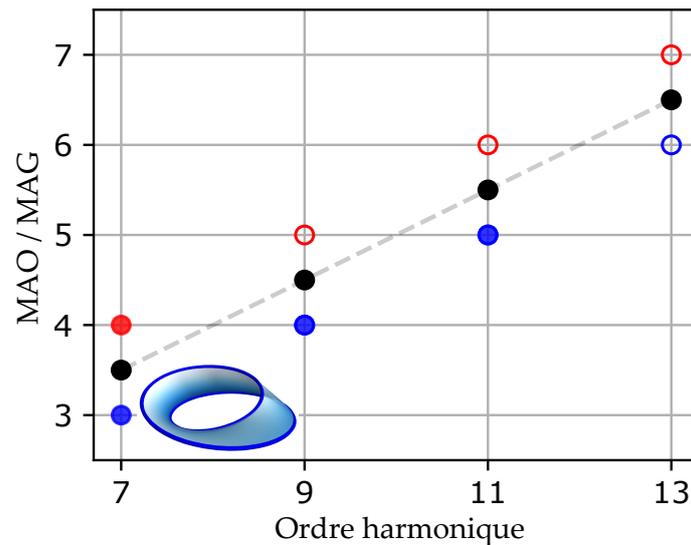


FIGURE 9.16 – Conservation de la charge de MAG. Quand les deux faisceaux IR de génération sont colinéaires, chaque harmonique est une superposition de deux états de MAO différents et de MAS opposés : $\sigma = +1$ et -1 (points bleus et rouges, respectivement). Par contre, la charge MAG de chaque harmonique (points noirs) est bien définie, et augmente linéairement avec l'ordre harmonique (ligne pointillée). Sur cette image, les cercles vides correspondent aux MAO uniquement mesurés par interférence en polarisation linéaire. Les disques plein indiquent les MAO également mesurés par conversion de mode, en polarisation circulaire. La surface 3D représente la topologie de ruban de Möbius des harmoniques en géométrie colinéaire.

combiner nos spectres et nos résultats de mesure du MAO avec une mesure de la phase spectrale, par exemple en utilisant la technique RABBITT.

Pour obtenir ces informations, nous réalisons ici des simulations quantiques de la GHOE, basées sur l'approximation de champ fort [249] (voir chapitre 4). Dans un souci de simplicité, on considère deux faisceaux de génération d'égales intensités, qui sont des modes de LG idéaux de charges $\ell_1 = 0$ et $\ell_2 = 1$. Pour reproduire la séparation angulaire des faisceaux XUV obtenue expérimentalement, on choisit un angle de 100 mrad entre les faisceaux et un waist de $30 \mu\text{m}$. Les impulsions laser sont modélisées par une enveloppe en \sin^2 de largeur temporelle à mi-hauteur 7.7 fs et de longueur d'onde centrale 800 nm. Comparée aux 25 fs de notre expérience, cette durée plus courte permet de limiter le temps de calcul. L'intensité crête est $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

La figure 9.17 présente les résultats obtenus. Comme prévu, les harmoniques sont composées de deux vortex optiques d'hélicités opposées (Figure 9.17.a) et de MAO ($q \pm 1$)/2. Dans les région de recouvrement des deux vortex, la direction de la polarisation tourne périodiquement en fonction de la coordonnée horizontale, ce qui explique que les intensités des composantes horizontales et verticales du champ (Figure 9.17.b,c) présentent des franges d'interférence en opposition de phase. En comparant les profils des différentes harmoniques, on constate que les faisceaux XUV de même hélicité ont un assez bon taux de recouvrement spatial, comme le mettent en évidence les lignes horizontales de la figure 9.17.a. On obtient donc deux ressorts optiques spatio-temporels séparés spatialement, l'un étant polarisé circulaire droite, l'autre polarisé circulaire gauche (Figure 9.17.d). Chacun de ces ressorts ne contient qu'une seule

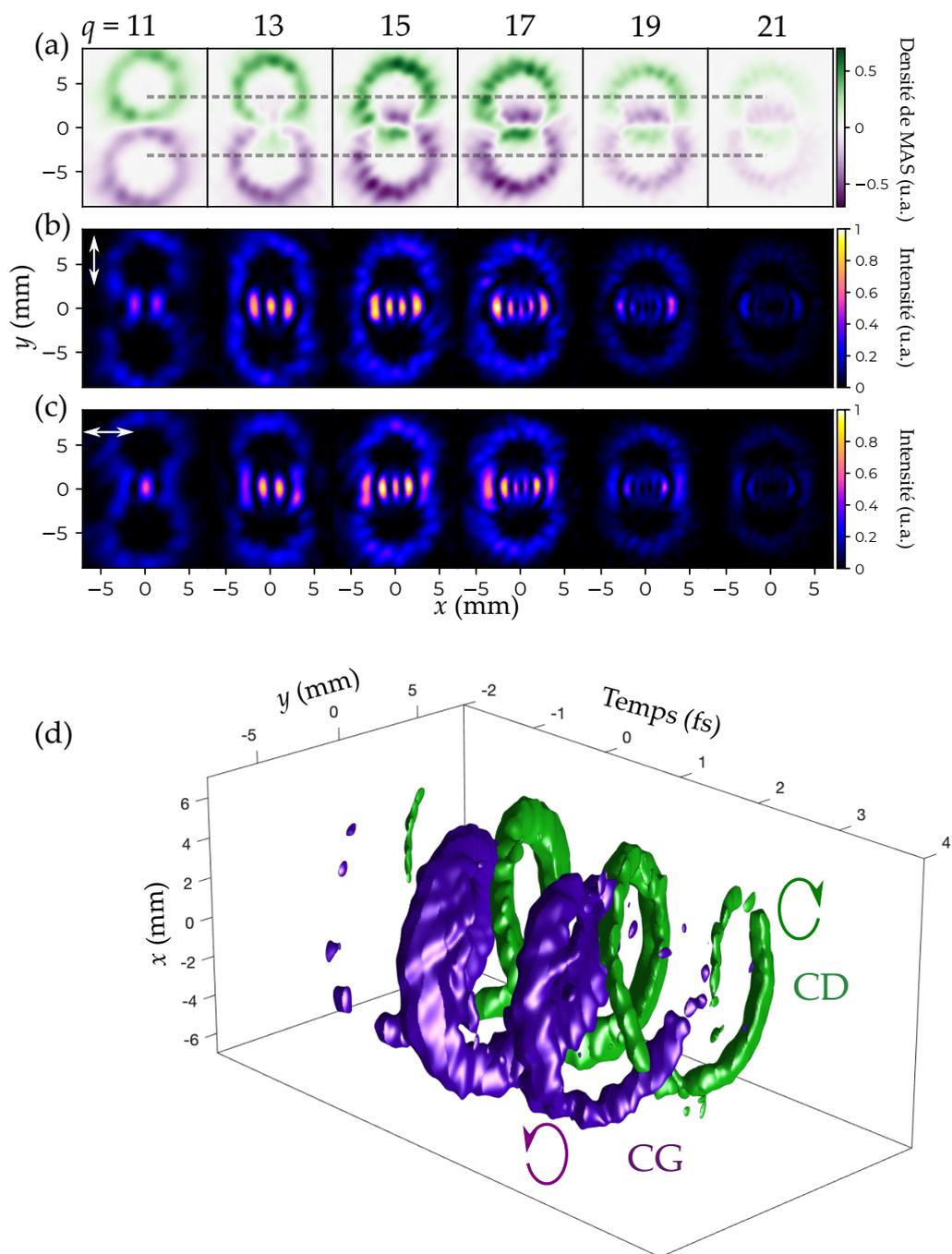


FIGURE 9.17 – Résultats de simulation SFA. (a) Densité de MAS en champ lointain. Les zones verte et violette correspondent à une polarisation circulaire droite (CD) et gauche (CG), respectivement. Les lignes pointillées horizontales mettent en évidence le bon recouvrement des vortex de même hélicité. (b) Intensité totale après un polariseur vertical. (c) Intensité totale après un polariseur horizontal. (d) Intensité spatio-temporelle de l'émission attoseconde. Les isosurfaces verte et violette correspondent aux polarisations circulaires droite et gauche, et à la moitié de l'intensité maximale. Simulation réalisée par Matthieu Guer et Carlos Hernández-García.

hélice, alors que les ressorts optiques "standards" générés lors de la GHOE par un mode de LG portant le MAO $\ell^{IR} = 1$ possédaient deux hélices imbriquées (figure 6.14).

Cette différence est due à un contenu en MAO différent. Dans le cas des ressorts optiques standards du chapitre 8, on peut se convaincre que le nombre d'hélices du ressort optique est donné par $n_h = \delta q \times \ell^{IR}$, avec δq la différence d'ordre entre deux harmoniques consécutives [250]. Avec des harmoniques impaires portant le MAO $\ell^{(q)} = q\ell^{IR}$, on obtient bien $n_h = 2\ell^{IR}$, donc deux hélices pour $\ell^{IR} = 1$. Dans le cas des faisceaux MAG, si on admet (sans aucune rigueur) que notre RMP porte un MAO "effectif" $\ell^{IR} \sim 1/2$, on obtient bien $n_h = 1$, soit une unique hélice.

Une façon plus intuitive d'obtenir le nombre d'hélices du ressort optique est d'inspecter le champ électrique du faisceau fondamental dans le plan transverse. Une impulsion attoseconde étant générée à chaque extremum du champ, le nombre d'hélices correspond au nombre de coordonnées azimutales pour lesquelles le champ laser atteint un pic, à un instant donné. Le profil transverse d'un RMP de charge $j_\gamma^{IR} = 1/2$ ne contient qu'un seul extremum, comme le montre la figure 8.10. Le ressort optique généré contient donc une unique hélice, alors qu'il en comptera trois pour $j_\gamma = 3/2$.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, on a généré des harmoniques d'ordre élevé avec un faisceau fondamental composite, état propre de l'opérateur MAG avec $j_\gamma = 1/2$. La géométrie non-colinéaire nous a permis de séparer spatialement les canaux d'émission de chaque harmonique, pour les caractériser de manière isolée. Dans un premier temps, une expérience "témoin" a été réalisée, avec des faisceaux de génération polarisés linéairement. On a pu vérifier la loi de conservation du MAO à deux faisceaux, pour de nombreux ordres de diffraction. Dans un second temps, les harmoniques ont été générées avec un RMP. Grâce à la mesure du MAO des harmoniques par conversion de modes transverse (technique qui n'avait pas été implémentée dans l'XUV à ce jour), nous avons pu établir la loi de conservation de la charge j_γ en GHOE. Bien que le faisceau IR ne soit ni un état propre de l'opérateur MAS, ni un état propre de l'opérateur MAO, il est état propre de $\hat{J}_{\gamma,z}$. En utilisant la base des faisceaux j_γ pour décomposer le champ, les deux lois de conservation du MAO et du MAS, qui donnent des harmoniques dans des états superposés de moment angulaire, deviennent une unique loi de conservation. Cette dernière prédit une augmentation linéaire du moment angulaire j_γ . Enfin, nous avons obtenu le profil spatio-temporel de l'émission XUV grâce à des simulations SFA. Ces calculs nous permettent de confirmer l'obtention de ressorts optiques polarisés circulairement et dont le nombre d'hélices est ajustable.

À notre connaissance, les expériences présentées dans ce chapitre sont les premières à étudier le comportement du MAG en optique non-linéaire. On peut se demander pourquoi des expériences plus simples, utilisant par exemple la génération de seconde ou troisième harmonique dans des cristaux, n'ont pas déjà été rapportées. De telles expériences s'affranchiraient du régime de champ fort non-perturbatif de la GHOE, et ses possibles complications. Cependant, les cristaux non-linéaire sont biréfringents, et constituent donc des milieux de génération *non-isotropes*. La symétrie de rotation du système étant brisée, on peut s'attendre à des déviations à la loi de conservation du MAS, et donc à celle du MAG, qui seraient dûes à un transfert de moment angulaire de la lumière vers la matière, ou bien à des effets de couplage spin-orbite [251, 248]. La GHOE peut, quant à elle, avoir lieu dans des gaz isotropes et uniformes, et conserve

simultanément le MAO et le MAS. C'est donc un processus non-linéaire idéal pour observer la conservation du MAG. La section [II.II](#) en conclusion présentera justement des résultats de simulation visant à comprendre l'effet d'une brisure de la symétrie sur la conservation du MAG en GHOE.

La nature non-perturbative de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Au cours des chapitres précédents, qui étaient dédiés à la manipulation du moment angulaire de la lumière en GHOE, nous avons très souvent interprété nos résultats en "comptant les photons", c'est-à-dire en supposant que l'émission de l'harmonique d'ordre q était un processus impliquant l'absorption d'exactly q photons du ou des champs de génération, et l'émission d'un unique photon XUV.

Cette approche, qui consiste à supposer que le processus non-linéaire implique un nombre bien défini de photons, est héritée de l'optique non-linéaire perturbative. Pour cette dernière, le champ laser est une petite *perturbation* du champ électrique de l'atome. On écrit alors la polarisation \mathbf{P} du milieu non-linéaire comme une suite de termes d'ordres croissants

$$\mathbf{P}/\epsilon_0 = \chi^{(1)}\mathbf{E} + \chi^{(2)}\mathbf{E} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(3)}\mathbf{E} \cdot \mathbf{E} \cdot \mathbf{E} + \dots \quad (10.1)$$

avec \mathbf{E} le champ électrique incident, de fréquence ω . $\chi^{(n)}$ est le tenseur de susceptibilité d'ordre n du milieu, qui tient compte de son éventuelle anisotropie et de ses propriétés de symétrie. L'équation ci-dessus, valable uniquement si \mathbf{E} est petit devant le champ coulombien, est une série de Taylor dont les termes successifs sont de plus en plus petits : l'émission de l'harmonique 3 est moins probable que celle de l'harmonique 2, et l'intensité de l'harmonique 2 est elle-même moins importante que la réponse linéaire du milieu. Cette affirmation est vraie localement, mais on ne doit pas oublier que dans une expérience réelle, les conditions d'accord de phase peuvent grandement favoriser une des harmoniques par rapport aux autres ¹.

En optique non-linéaire perturbative, chacun des termes du développement ci-dessus est associé à un processus à n photons. En génération de seconde harmonique par exemple, deux photons d'énergie $\hbar\omega$ sont absorbés, et un photon d'énergie $2\hbar\omega$ est émis. Le processus est paramétrique, c'est-à-dire que les états initial et final de l'atome sont les mêmes, et que les quantités conservées (l'énergie notamment) le sont pour les photons seuls. De façon générale, en optique non-linéaire perturbative, l'amplitude d'un processus à n photons identiques est proportionnelle à l'amplitude du champ fondamental mise à la puissance n .

1. On peut typiquement obtenir une efficacité de génération de seconde harmonique de 50%, c'est-à-dire que la moitié de la puissance du laser fondamentale est convertie en puissance à 2ω [252].

Lorsque le champ fondamental E est comparable à celui qui lie les électrons aux noyaux atomiques, le développement perturbatif ne converge plus. C'est ce qui se produit en GHOE : les harmoniques du plateau sont émises avec une intensité comparable, et l'efficacité de l'émission n'est pas proportionnelle à $|E|^q$, mais plutôt à $|E|^{q_{\text{eff}}}$ (voir section 4.3). Ceci correspond au fait que le nombre de photons du champ fondamental impliqués dans le processus d'émission est mal défini : comme on va le voir, l'émission de l'harmonique d'ordre q n'est **pas** un processus à q photons IR.

Pourtant, dans les chapitres précédents, nous avons pu nous appuyer sans vergogne sur la notion de photon, qui semble de fait rester très pertinente pour décrire certains aspects de la GHOE. Dénombrer les différentes façons de combiner q photons IR nous a permis de prédire avec succès diverses propriétés des faisceaux harmoniques : énergie, impulsion, MAS, MAO. Aux regards de ces grandeurs, tout porte à croire que la GHOE est bien un processus paramétrique.

Dans le cas de la GHOE avec deux faisceaux IR, l'intensité du second faisceau étant faible par rapport à celle du premier, Bertrand *et al.* [205] ont montré expérimentalement en 2011 que l'amplitude du processus d'émission de l'ordre de diffraction p de l'harmonique q est donnée par

$$E^{(q,p)} \propto \left(\frac{|E_2|}{|E_1|} \right)^{|p|} = \alpha^{|p|}. \quad (10.2)$$

Ainsi il semblerait qu'une théorie perturbative *vis à vis du faisceau 2* puisse être établie pour les faibles ratios d'amplitudes α . Cependant, Bertrand *et al.* ne commentent pas le fait que leurs courbes d'intensité s'infléchissent et dévient très rapidement (dès $\alpha \sim 0.05$) de la loi ci-dessus. Effectivement, au cours des chapitres 6 et 7, nous avons fait des observations en désaccord avec l'équation 10.2. Au début de cette thèse, l'expérience de Bertrand *et al.* était la seule à s'être intéressée aux rendements des ordres de diffraction en GHOE à deux faisceaux, et aucune expérience n'avait exploré toute la plage de valeurs de α , de 0 à 1.

L'expression perturbative 10.2 dit que l'amplitude des ordres de diffraction doit obligatoirement diminuer avec p dans le régime $\alpha \ll 1$. La figure 10.1.A indique symboliquement le comportement attendu d'après la théorie perturbative pour l'intensité des ordres de diffraction lorsqu'on augmente la valeur de $|E_2|$ tout en maintenant $|E_1|$ constant, et c'est ce qui est effectivement observé expérimentalement pour $\alpha \ll 1$. Bien entendu, si nous augmentons la valeur de α jusqu'à atteindre une valeur proche de 1, on s'attend tout de même à ce que les ordres p supérieurs finissent par devenir plus intenses que les ordres bas, puisque l'on sort du régime de validité de l'équation 10.2.

Si l'on réalise l'expérience, on trouve les courbes de la figure 10.1.B. Comme nous allons le voir, l'intensité des ordres de diffraction ne croît pas indéfiniment avec α . En fait chaque ordre est dominant en intensité pour une certaine plage de valeurs de α ; mais, de façon remarquable, l'intensité de chaque ordre de diffraction atteint un maximum avant de *diminuer*, pour finalement s'annuler²! De plus, ce comportement se produit pour des valeurs de α qui sont bien inférieures à 1, et pour lesquelles on s'attend à ce que le modèle perturbatif s'applique.

Le fait que l'intensité de chaque ordre de diffraction finisse immanquablement par décroître (il s'agit d'une véritable décroissance, pas seulement une décroissance

2. En fait, comme on peut le voir sur la figure, l'intensité des ordres de diffraction peut même rebondir après cette extinction et osciller avec α .

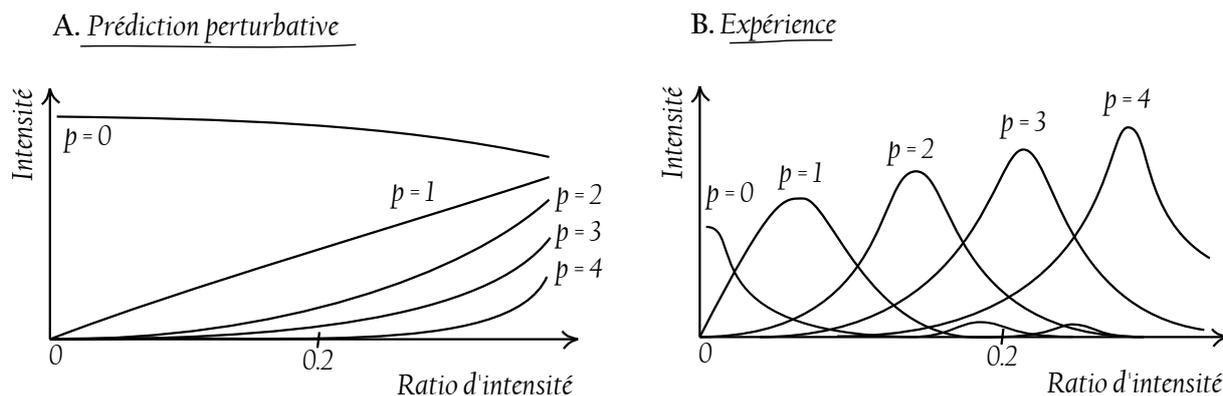


FIGURE 10.1 – Évolution schématisée de l'intensité des ordres de diffraction d'une harmonique avec α d'après le modèle perturbatif (A), et évolution observée expérimentalement (B).

relative par rapport aux autres ordres) quand α augmente, pour finalement atteindre zéro, est très intrigant. Considérons par exemple l'ordre de diffraction $p = 1$, dont nous avons jusqu'à présent représenté l'émission par le diagramme ci-dessous. Lors

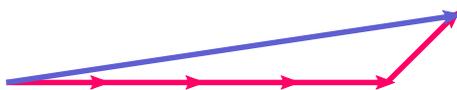


FIGURE 10.2 – Diagramme correspondant à l'émission d'un photon dans l'ordre de diffraction $p = 1$ de l'harmonique $q = 5$.

de ce processus, quatre photons du faisceau 1 (d'intensité constante) et un photon du faisceau 2 sont absorbés, pour émettre un photon XUV. Partant d'un faisceau 2 peu intense, nous augmentons petit à petit son intensité. De manière logique, la probabilité d'émission d'un photon de l'ordre $p = 1$ augmente, car plus de photons du faisceau 2 sont "disponibles". Comment est-il possible qu'en continuant d'augmenter le nombre de photons dans le faisceau 2 on puisse faire décroître cette probabilité, jusqu'à ce qu'elle atteigne zéro ?

Une explication possible est qu'il existe un autre processus, différent de celui du diagramme ci-dessus, dont l'état final est le même. Les amplitudes des deux processus pourraient interférer destructivement pour certaines valeurs de α . C'est effectivement ce qui se passe. On va voir dans ce chapitre qu'il existe une infinité de processus ayant le même état final que celui ci-dessus, et qu'il faut tous les prendre en compte pour obtenir la probabilité d'émission observée expérimentalement.

Pour calculer rigoureusement l'amplitude de chacun de ces processus, il nous faudrait une théorie d'électrodynamique quantique rendant compte de la GHOE. La recherche d'une telle théorie est encore un domaine actif [71, 72, 73, 74, 75, 76], le problème étant que les processus impliquant beaucoup de photons ne sont pas forcément moins probables que ceux impliquant un moins grand nombre de photons.

10.1 Modèle de la GHOE à deux faisceaux en termes de photons basé sur les équations du réseau actif

Nous allons écrire les équations du modèle du réseau actif pour le cas de deux faisceaux de génération de polarisation linéaire. Nous allons voir qu'on peut écrire l'amplitude de l'harmonique q comme une somme infinie de termes, qui s'interprètent naturellement comme les amplitudes de processus impliquant un nombre variable de photons. Bien entendu, les intensités calculées par cette méthode ne sont qu'approximatives, car le modèle réseau actif repose sur des hypothèses très fortes. Cependant nous verrons que les prédictions de ce modèle et les mesures expérimentales présentent un accord remarquable.

10.1.1 Développement binomial du champ harmonique généré par une superposition de deux faisceaux

Dans le modèle du réseau actif, on néglige les effets d'accord de phase longitudinal et on considère que le processus de GHOE a lieu dans une couche de gaz infiniment mince située en $z = 0$. Rappelons que le champ de l'harmonique q émit dans cette couche (c'est-à-dire avant sa propagation en champ lointain), s'écrit

$$E_0^{(q)} = |E|^{q_{\text{eff}}} e^{iq\phi - i\alpha_{\text{at}}|E|^2}, \quad (10.3)$$

avec E l'amplitude complexe du champ IR, et $\phi = \arg\{E\}$. Lors de nos expériences, l'accord de phase est généralement ajusté pour favoriser la contribution des trajectoires courtes, dont la phase atomique est plus faible. Il sera alors pratique de négliger le deuxième terme de phase et d'écrire

$$E_0^{(q)} = |E|^{q_{\text{eff}}} e^{iq\phi} \quad (10.4)$$

Nous supposons que E est en fait la somme de deux champs se propageant avec un faible angle relatif, selon les vecteurs d'onde \mathbf{k}_1 et \mathbf{k}_2 et situés dans le plan (y, z) . Le faisceau 1 est horizontal, donc $\mathbf{k}_1 = k_1 \mathbf{u}_z$, et son amplitude transverse est donnée par $E_1(x, y)$. Du fait du petit angle qu'il fait avec le faisceau 1, le champ du faisceau 2 dans le plan $z = 0$ s'écrit $E_2(x, y)e^{i\Delta k^\perp y}$, avec $\Delta k^\perp = (\mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_1) \cdot \mathbf{u}_y$. Le champ de génération total est donc

$$E(x, y) = E_1(x, y) + E_2(x, y)e^{i\Delta k^\perp y}, \quad (10.5)$$

A ce stade, nous allons reformuler l'expression 10.4, en écrivant pour des raisons qui deviendront apparentes plus loin

$$E_0^{(q)} = (E)^{q^+} (E^*)^{q^-}, \quad (10.6)$$

avec

$$\begin{aligned} q^+ &= \frac{q_{\text{eff}} + q}{2} \\ q^- &= \frac{q_{\text{eff}} - q}{2} \end{aligned} \quad (10.7)$$

Le champ proche de l'harmonique q est donc donné par

$$E_0^{(q)} = \left(E_1 + E_2 e^{i\Delta k^\perp y} \right)^{q^+} \left(E_1^* + E_2^* e^{-i\Delta k^\perp y} \right)^{q^-}. \quad (10.8)$$

On peut calculer cette expressions grâce à la formule du binôme généralisée aux puissances non-entières [253], valable pour $|E_1| > |E_2|$. On obtient un produit de deux sommes

$$\begin{aligned} E_0^{(q)} = & |E_1|^{q_{\text{eff}}} e^{iq\phi_1} \sum_{n=0}^{+\infty} \binom{q^+}{n} \left| \frac{E_2}{E_1} \right|^n e^{in(\phi_1 - \phi_2)} e^{in\Delta k^\perp y} \\ & \times \sum_{n'=0}^{+\infty} \binom{q^-}{n'} \left| \frac{E_2}{E_1} \right|^{n'} e^{-in'(\phi_1 - \phi_2)} e^{-in'\Delta k^\perp y}, \end{aligned} \quad (10.9)$$

avec $\binom{s}{n} = \frac{1}{n!} \prod_{m=0}^{n-1} (s - m)$ les coefficients binomiaux généralisés, et $\phi_1 = \arg\{E_1\}$, $\phi_2 = \arg\{E_2\}$. Cette formule étant valide pour $|E_1| > |E_2|$, on suppose pour commencer que les faisceaux ont des profils transverses identiques, si bien que la décomposition ci-dessus est valide partout dans le plan transverse si le ratio $\alpha = \left| \frac{E_2}{E_1} \right|$ est partout inférieur à 1. Nous reparlerons de cette subtilité plus loin.

Nous remarquons dans l'équation 10.9 que le champ de l'harmonique q s'écrit comme une somme d'ondes planes se propageant avec différents angles $(n - n')\Delta k / (kq) = (n - n')\theta / q$: il s'agit des ordres de diffraction de l'harmonique. Nous savons que l'ordre p est émis selon l'angle $\sim \frac{p\theta}{q}$, on pose donc $p = n - n'$ et on réarrange la double somme pour obtenir

$$E_0^{(q)} = |E_1|^{q_{\text{eff}}} \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \left| \frac{E_2}{E_1} \right|^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^\perp y} e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2}, \quad (10.10)$$

où l'on a introduit les coefficients

$$a_p^{(n)} = \binom{q^+}{n + \frac{|p|+p}{2}} \binom{q^-}{n + \frac{|p|-p}{2}}. \quad (10.11)$$

Dans un souci de complémentarité, voici l'expression obtenue pour $|E_1| < |E_2|$

$$E_0^{(q)} = |E_2|^{q_{\text{eff}}} \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} a_{q-p}^{(n)} \left| \frac{E_1}{E_2} \right|^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^\perp y} e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2}. \quad (10.12)$$

Dans le cas de deux faisceaux ayant le même profil d'intensité, on peut écrire $|E_2| = \alpha |E_1|$, et l'équation 10.10 devient alors

$$E_0^{(q)} = |E_1|^{q_{\text{eff}}} \sum_{p=-\infty}^{+\infty} \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \alpha^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^\perp y} e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2}. \quad (10.13)$$

De manière plus concise, l'amplitude de l'ordre de diffraction p est donc

$$\left| E_0^{(q,p)} \right| = |E_1|^{q_{\text{eff}}} \left| \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \alpha^{|p|+2n} \right|. \quad (10.14)$$

Chaque ordre de diffraction p s'écrit donc comme une onde plane, dont l'amplitude est une somme de puissances de α de même parité que p , avec des coefficients $a_p^{(n)}$. Si $\alpha \ll 1$, on peut négliger tous les termes sauf le premier et écrire $\left| E_0^{(q,p)} \right| \sim \left| a_p^{(0)} \right| \alpha^{|p|}$, ce qui est bien le résultat d'une approche perturbative. Dans le cas général, les termes suivants peuvent avoir des amplitudes élevées et ne sont donc pas négligeables.

Notons au passage que le terme $e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2}$ dans l'équation 10.13 est responsable de la conservation du MAO étudiée au chapitre 6, le MAO de l'ordre de diffraction p étant égal à $(q-p)\ell_1 + p\ell_2$, avec ℓ_1 et ℓ_2 les MAO des faisceaux de génération.

10.1.2 Valeur et signe des termes successifs

Les coefficients $a_p^{(n)}$ pour différents ordres de diffraction de l'harmonique 21 sont montrés figure 10.3. De manière remarquable, la somme infinie ci-dessus ne diverge pas, même pour des valeurs de $\alpha \sim 1$, car les coefficients $a_p^{(n)}$ alternent entre valeurs positives et négatives jusqu'à une certaine valeur de n . De plus, $a_p^{(n)} \neq a_{-p}^{(n)}$, ce qui explique la différence observée expérimentalement entre les intensités des ordres de diffraction p positifs et négatifs. On peut retrouver l'alternance du signe des coefficients

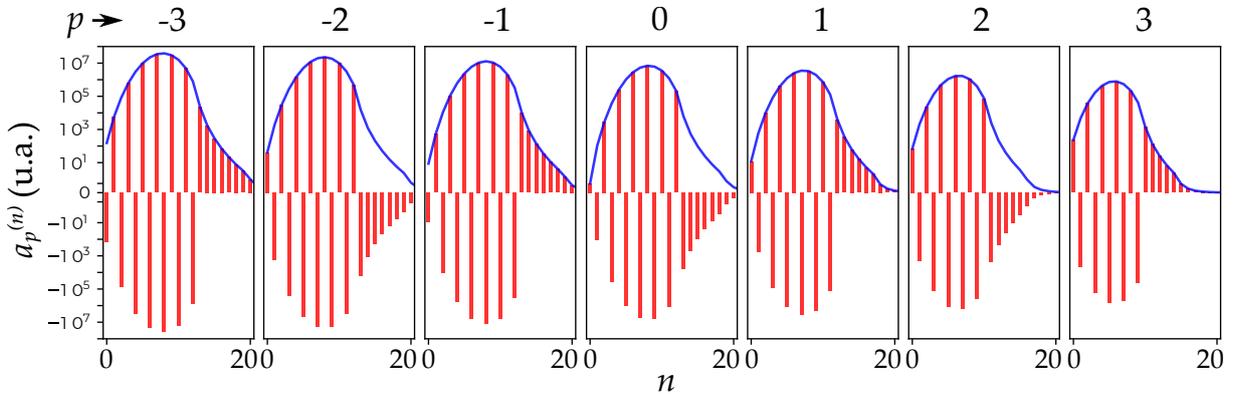


FIGURE 10.3 – Coefficients $a_p^{(n)}$ (barres rouges) pour n allant jusqu'à 20, pour différents ordres de diffraction de l'harmonique 21. La ligne bleue montre la valeur absolue des coefficients. On a $q_{\text{eff}} = 3.5$.

en cherchant le signe du ratio suivant pour $p \geq 0$

$$\frac{a_p^{(n+1)}}{a_p^{(n)}} = \frac{(q^+ - p - n)(q^- - n)}{(p + n + 1)(n + 1)}. \quad (10.15)$$

Le dénominateur étant positif, on cherche le signe de $(q^+ - p - n)(q^- - n)$, qui est un polynôme d'ordre 2 en n , dont les racines sont $r_1 = q^+ - p$ et $r_2 = q^- < 0$ pour les

harmoniques d'ordre élevé. Pour les ordres de diffraction tels que $p < q^+$, r_1 est positive, le ratio ci-dessus est donc négatif pour $n < r_1 = q^+ - p$: les signes des coefficients alternent jusqu'à cette valeur de n . Pour $q = 21$ et $p = 0$, on trouve $r_1 = 12.25$, donc les coefficients n'alternent plus à partir de $n = 13$, ce qui est confirmé par la figure 10.3.

La figure suivante (10.4.a) montre des cartes des coefficients $|a_p^{(n)}|$, cette fois non pas en fonction de n mais des puissances $|p| + 2n$ du développement 10.13, pour différents ordres de diffraction et différentes harmoniques. L'échelle est logarithmique, car la valeur absolue des coefficients varie très rapidement avec n . On constate comme prévu que seuls les coefficients correspondant à des puissances de même parité que p sont non-nuls, et les coefficients de puissance inférieure à $|p|$ valent zéro. Quand l'ordre harmonique augmente, le développement comprend un plus grand nombre de termes d'amplitude non-négligeable.

Il est très instructif de comparer ces coefficients à ceux obtenus pour $q_{\text{eff}} = q$, montrés figure 10.4.b. Dans ce cas, tous les coefficients du développement sont nuls sauf le premier, $a_p^{(0)}$.

10.1.3 Interprétation des termes successifs comme des amplitudes de processus multi-photons

Le fait que des puissances de α d'ordre $|p| + 2n$ apparaissent dans l'amplitude de l'ordre de diffraction p suggère la présence de processus à $p + 2n$ photons IR. Tous ces processus doivent avoir le même état final : l'émission d'un photon d'impulsion $\hbar\mathbf{k}_p \sim p\hbar\mathbf{k}_2 + (q - p)\hbar\mathbf{k}_1$, afin que leurs amplitudes puissent être sommées, et que la probabilité finale soit le carré de cette somme.

Comme le montrent les diagrammes suivants, on peut, pour émettre un photon de l'ordre de diffraction p , absorber $p + n$ photons du faisceau 1, où n est un entier, puis ré-émettre n photons par émission stimulée. La probabilité d'émission d'un photon dans l'ordre de diffraction p est donc donnée par le carré de la somme des amplitudes associées à chacun de ces processus. On retrouve ainsi le fait que la GHOE n'est pas un processus paramétrique impliquant un nombre précis de photons.

Pour un ordre de diffraction donné, chaque diagramme contient une émission stimulée de plus que le précédent. Nous pensons que cela est à l'origine de la différence de signe entre les coefficients $a_p^{(n)}$ et $a_p^{(n+1)}$ [254]. Le fait qu'une absorption suivie d'une émission stimulée mène à une amplitude déphasée de π est également observable lors de la photo-ionisation à deux couleurs, par exemple dans le cas du RABBIT. Dans le RABBIT, deux transitions, l'une impliquant une émission stimulée et l'autre pas, interfèrent pour former des pics satellites oscillant avec le délai XUV-IR (voir chapitre 5). La phase des pics satellites contient, en plus d'un terme inhérent à la phase spectrale des harmoniques, un déphasage de π attribué à l'émission stimulée [255]. Des déphasages similaires sont observés lors de l'ionisation au dessus du seuil (ATI) [256, 257].

10.2 Résultats expérimentaux

Pour tester ces prédictions, nous réalisons une expérience de GHOE à deux faisceaux polarisés linéairement, ayant le même profil transverse gaussien. Nous exploitons les

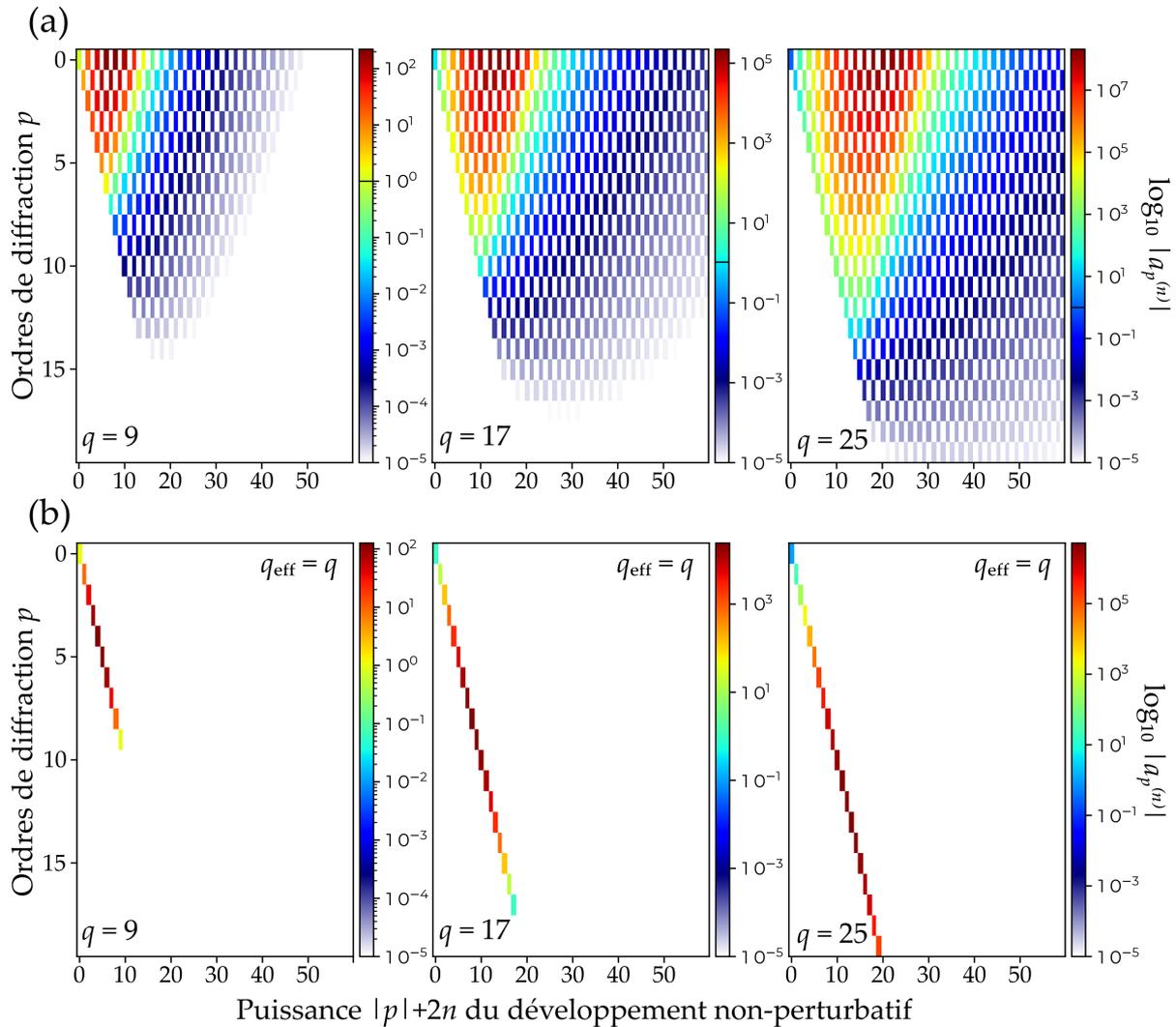


FIGURE 10.4 – Valeur absolue des coefficients $a_p^{(n)}$ des harmoniques 9,17 et 25, en fonction de l'ordre de diffraction p et de la puissance $|p| + 2n$ de α dans le développement 10.13, pour $q_{\text{eff}} = 3.5$ (a) et $q_{\text{eff}} = q$ (b).

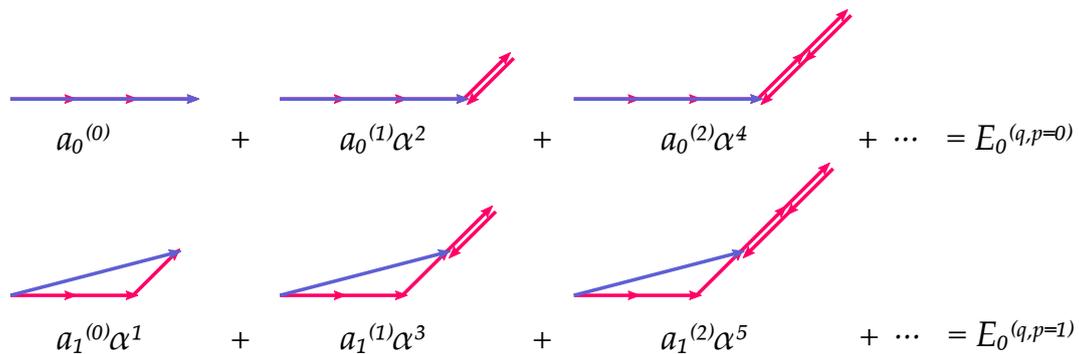


FIGURE 10.5 – Diagrammes associés à chacun des termes du développement 10.14 pour $q = 3$ et $p = 0$ (première ligne), et $p = 1$ (ligne du bas).

améliorations du montage expérimental détaillées au chapitre 7 : nous sommes capables d'imager simultanément les harmoniques générées par le faisceau 1 seul, ainsi que la bissectrice entre les deux faisceaux. Cela nous permet de détecter un grand nombre d'ordres de diffraction pour chaque harmonique.

La figure 10.6 montre les spectres obtenus en champ lointain. Dans un régime perturbatif par rapport au faisceau 2 (10.6.a), peu d'ordres de diffraction sont visibles, et l'ordre $p = 0$ est le barycentre de l'intensité. Les ordres de diffraction p et $-p$ sont en effet d'intensité similaires, comme le prédit la loi de puissance perturbative (équation 10.2). Nous augmentons ensuite l'intensité du faisceau 2 jusqu'à ce qu'elle atteigne celle du faisceau 1 (10.6.b). Le barycentre de l'intensité est alors au niveau de la bissectrice des deux faisceaux, et les ordres p bas (0 et 1) sont totalement éteints. Ces premières observations sont en accord avec le développement non-perturbatif de l'équation 10.14.

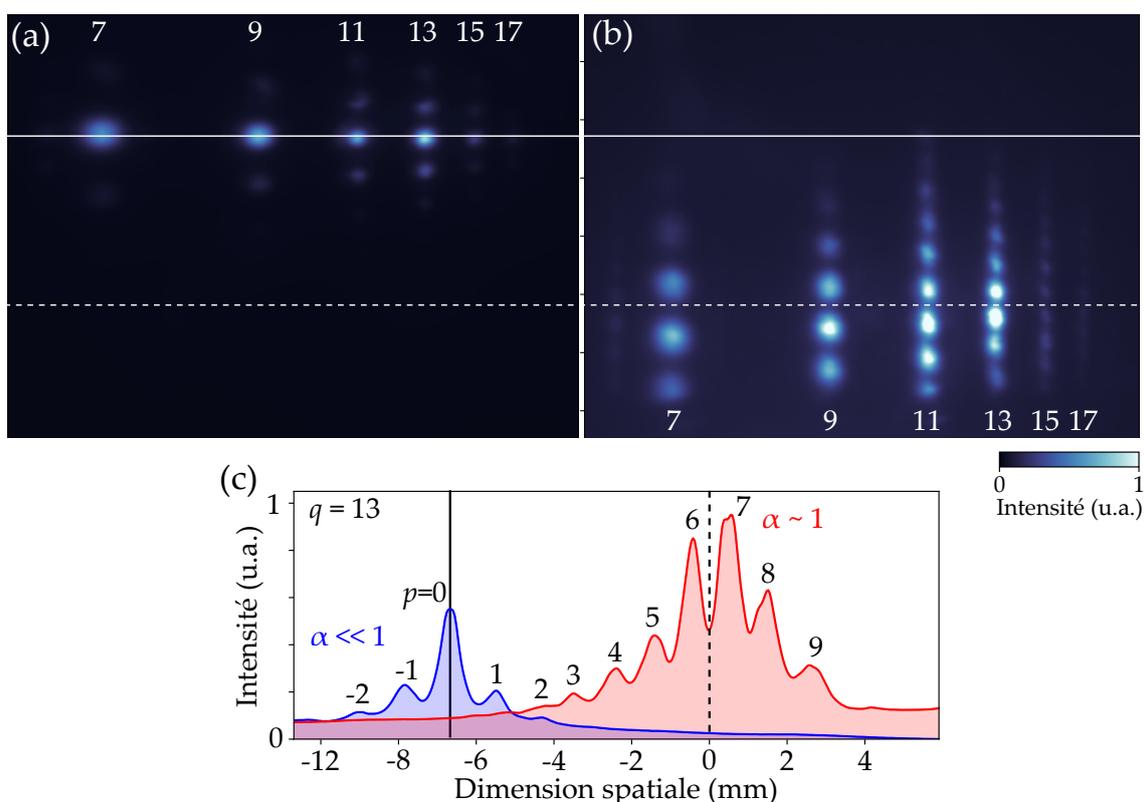


FIGURE 10.6 – Spectres d'harmoniques obtenus pour $\alpha \ll 1$ (a) et $\alpha \sim 1$ (b). La ligne blanche horizontale correspond à la direction des harmoniques émises par le faisceau 1 seul, la ligne pointillée indique la bissectrice des deux faisceaux. Les deux images ont la même échelle de couleur. (c) Profil d'intensité de l'harmonique 13 dans les deux cas. Les intensités ne sont pas normalisées : les courbes bleues et rouges ont la même échelle d'intensité. Les ordres de diffraction p sont indiqués à côté de chaque pic. Les ordres $p > 9$ ne sont pas détectés. L'angle entre les deux faisceaux est $\theta = 40$ mrad. Les intensités des deux faisceaux sont $I_1 \approx 10^{14}$ W/cm² et $I_2 \approx 5 \times 10^{12}$ W/cm² pour l'image (a), et $I_1 \approx I_2 \approx 10^{14}$ W/cm² pour l'image (b).

Afin d'explorer de façon plus précise la transition du régime perturbatif à un régime non-perturbatif par rapport au faisceau 2, nous allons maintenant balayer finement l'intensité du faisceau 2 pour de faibles valeurs de α . Nous présenterons ensuite des mesures similaires pour α variant de 0 à 1.

10.2.1 Régime perturbatif par rapport au second faisceau

Dans cette section, nous faisons varier I_2 de façon à ce que α varie de 0 à 0.15. Cette plage de valeurs nous permet d'observer des ordres de diffraction $p \leq 2$. L'intensité de chaque ordre de diffraction est sommée sur un rectangle de dimensions constantes centrée sur le maximum d'intensité. La figure 10.7.a montre le module de l'amplitude $|E_\infty^{(q,p)}|$ ainsi obtenu pour $q = 13$, en fonction de α . Le meilleur ajustement avec le premier terme $\propto \alpha^{|p|}$ de la loi d'échelle perturbative 10.14 est indiqué par des lignes tirets-pointillées. L'écart entre cet ajustement et les mesures n'est acceptable que jusqu'à $\alpha \approx 0.05$. Au-delà, les rendements expérimentaux s'éloignent progressivement de la loi de puissance, et on observe une saturation suivie d'une forte décroissance.

Nous ajustons les mesures expérimentales avec les trois premiers termes de la somme 10.13, en laissant l'algorithme optimiser la valeur des coefficients devant les puissances de α . L'ajustement avec trois termes parvient à reproduire fidèlement les variations mesurées sur cette plage de valeurs de α .

Nous pouvons ainsi comparer les coefficients obtenus par ajustement aux coefficients analytiques $a_p^{(n)}$ (figure 10.7). nous obtenons un accord satisfaisant, avec une augmentation progressive du module des coefficients avec n et, comme prévu par le modèle, une alternance de signe. Les mêmes conclusions sont obtenues pour les autres harmoniques (figure 10.8).

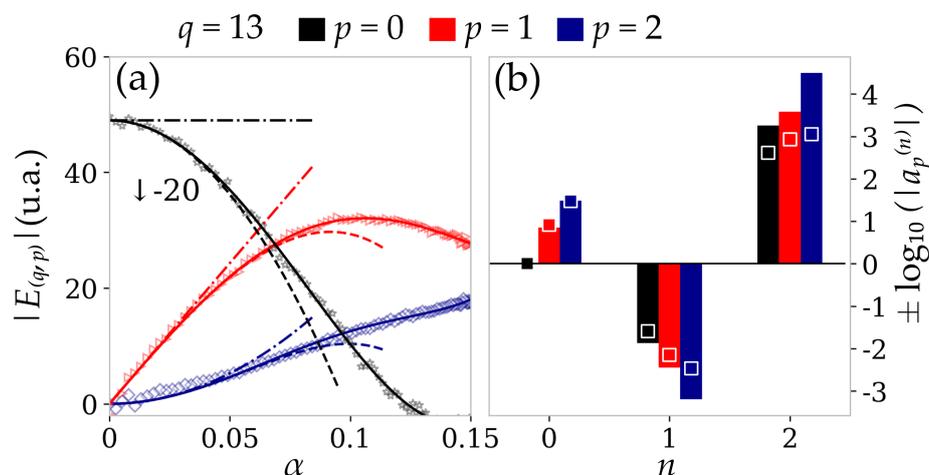


FIGURE 10.7 – (a) Amplitude expérimentale des champs électriques des ordres de diffraction $p = 0, 1$ et 2 pour l'harmonique $q = 13$. Ces courbes sont ajustées avec un (ligne pointillée-tiretée), deux (ligne tiretée) ou trois (ligne pleine) termes du développement 10.14. les coefficients devant chaque terme sont ajustés sans contrainte. (b) Comparaison entre les coefficients d'ajustement expérimentaux (barres pleines) et les coefficients analytiques $a_p^{(n)}$ (marqueurs carrés). Un signe positif est imposé au premier coefficient $a_p^{(0)}$.

Nous concluons donc que l'approximation perturbative (équation 10.2) a en fait un domaine de validité extrêmement limité, bien plus limité que ce qui était jusqu'à maintenant admis dans la littérature [205, 73, 63, 64]. Nous observons qu'à partir

de $\alpha \approx 0.05$, on doit considérer des corrections non-perturbatives pour reproduire correctement les résultats obtenus³.

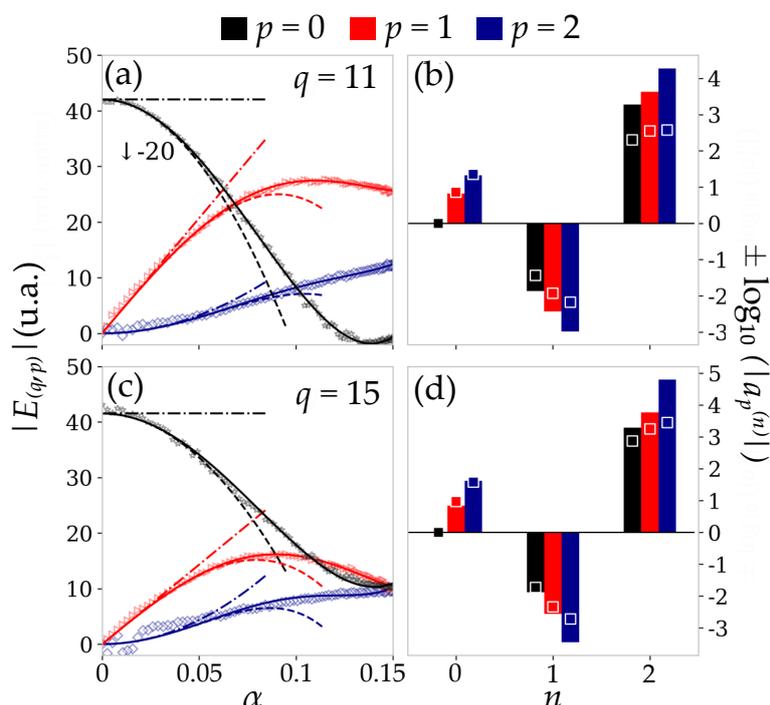


FIGURE 10.8 – (a,c) Amplitude expérimentale des champs électriques des ordres de diffraction $p = 0, 1$ et 2 pour les harmoniques 11 et 13. Ces courbes sont ajustées avec un (ligne pointillée-tirée), deux (ligne tiretée) ou trois (ligne pleine) termes du développement 10.14. les coefficients devant chaque terme sont ajustés sans contrainte. (b,d) Comparaison entre les coefficients d'ajustement expérimentaux (barres pleine) et les coefficients analytiques $a_p^{(n)}$ (marqueurs carrés). Un signe positif est imposé au premier coefficient $a_p^{(0)}$.

10.2.2 Régime non-perturbatif par rapport au second faisceau : saturation, extinction et oscillation

Nous étudions à présent les amplitudes des ordres de diffraction pour une grande plage de valeurs de α , de 0 à 1. Là encore, nous maintenons l'intensité du faisceau 1 constante et augmentons celle du faisceau 2. La figure 10.9.a montre ainsi l'évolution du profil vertical de l'harmonique 15. Nous comparons les mesures expérimentales à des simulations quantiques complètes basées sur l'équation d'onde paraxiale tridimensionnelle non adiabatique, dans lesquelles le terme source est donné par la solution de l'équation de Schrödinger dans l'approximation SFA⁴. Les résultats de la simulation sont montrés figure 10.9.b.

Bien que l'intensité totale de l'XUV augmente avec α , celle de chaque ordre de diffraction atteint un maximum pour une valeur donnée de α , et finit par s'éteindre. Les résultats de simulation SFA, valables pour des ordres harmoniques suffisamment

3. c'est-à-dire à partir d'un ratio d'intensité de 0.25% seulement !

4. Ces simulations numériques ont été réalisées par Thierry Auguste

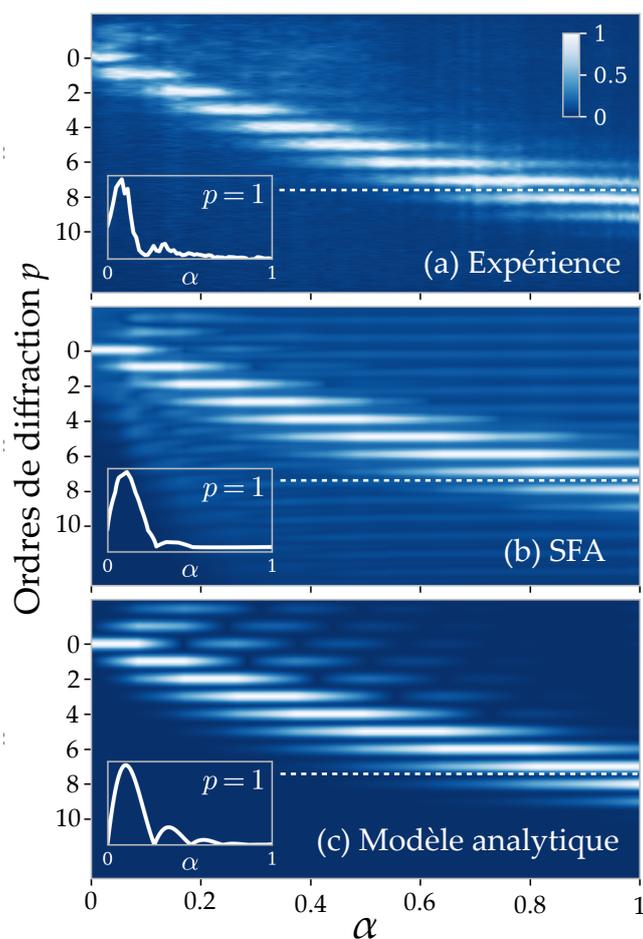


FIGURE 10.9 – Profil d'intensité de l'harmonique 15 en fonction de α mesuré expérimentalement (a), simulé par SFA (b) et obtenu analytiquement (c). L'intensité pic a été normalisée pour chaque colonne afin d'optimiser la lisibilité sur l'ensemble de la plage de α . Pour le calcul analytique, les valeurs de n jusqu'à 15 ont été utilisées dans l'équation 10.13. Les encarts montrent l'intensité du champ d'ordre $p = 1$, normalisés pour prendre en compte le changement de l'intensité totale du champ lorsque α varie. La ligne pointillée indique la bissectrice entre les faisceaux de génération.

élevés, reproduisent extrêmement bien ce comportement. Enfin, la figure 10.9.c montre les rendements calculés analytiquement à partir du développement 10.13, en le limitant aux termes $n \leq 15$. L'accord avec l'expérience et les calculs SFA est remarquable pour un modèle aussi simple. Comme le montrent les encarts, la forme générale du rendement de l'ordre $p = 1$ en fonction de α est bien reproduite par les simulations, y compris le faible pic secondaire suivant le pic principal. Sur les trois images, ces maxima secondaires inattendus ont tendance à s'estomper pour des valeurs de p plus élevées. Notre interprétation de la GHOE en termes d'interférences entre processus multiphotons est en accord à ces observations : lorsque l'intensité du faisceau 2 augmente, un nombre croissant de processus contribue au rendement total. Étant donné que les amplitudes successives sont déphasées de π , elles peuvent former des figures d'interférence. Lorsque seules quelques amplitudes sont significatives (c'est-à-dire pour les ordres de diffraction de faible p et $\alpha \ll 1$), ces interférences donnent lieu à des

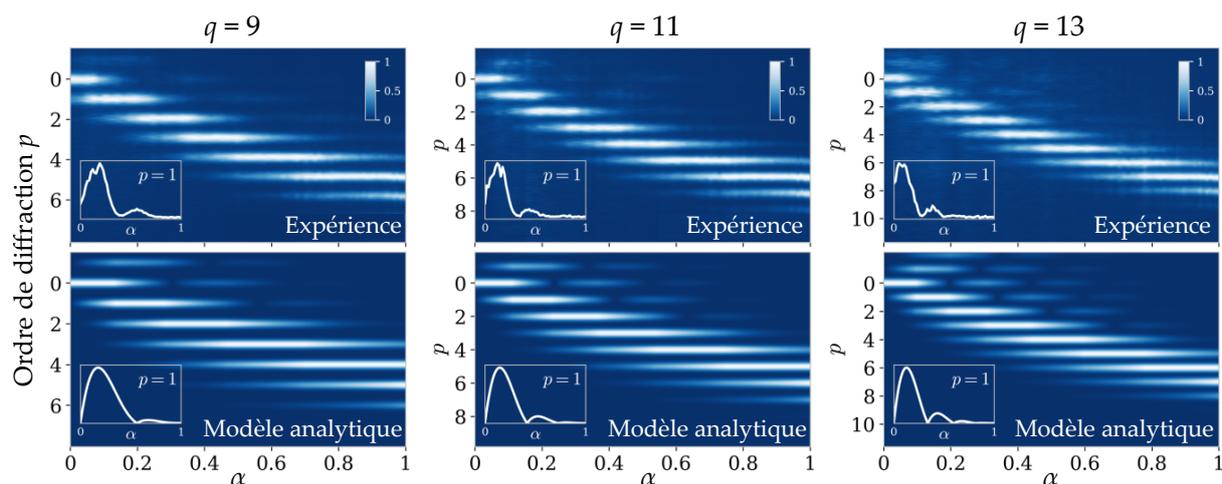


FIGURE 10.10 – Profil d’intensité des harmoniques 9 à 13 en fonction de α mesuré expérimentalement (ligne du haut) et obtenu analytiquement (ligne du bas). Pour le calcul analytique, les valeurs de n jusqu’à 15 ont été utilisées dans l’équation 10.13. Les encarts montrent l’intensité du champ d’ordre $p = 1$, normalisés pour prendre en compte le changement de l’intensité totale du champ lorsque α varie.

pics secondaires marqués et identifiables. Inversement, quand les contributions sont nombreuses, les interférences se brouillent et les structures secondaires disparaissent. Des résultats similaires sont obtenus pour les autres ordres harmoniques (figure 10.10), avec là encore un excellent accord entre l’expérience et le modèle analytique.

10.3 Couplage non-perturbatif de modes transverses

Ces résultats d’expériences confirment donc l’existence d’un grand nombre de chemins multi-photoniques menant à l’émission de l’ordre de diffraction p de l’harmonique q . L’amplitude associée à chacun de ces chemins suit une loi perturbative en $|E_2/E_1|^{p+2n}$, et l’interférence de tous les chemins explique la loi d’échelle non-perturbative observée.

Dans les expériences précédentes, les deux faisceaux IR étaient des modes transverse identiques, en l’occurrence le mode gaussien. On avait ainsi $|E_1(x, y)| = e^{-(x+y)^2/w_0^2}$ et $|E_2(x, y)| = \alpha e^{-(x+y)^2/w_0^2}$, si bien que le ratio des deux était une constante : $|E_2/E_1| = \alpha$. Ainsi, tous les ordres de diffraction avaient le même profil spatial gaussien.

Mais que se passerait-il si les faisceaux 1 et 2 se trouvaient dans des modes transverses différents ? Le ratio $|E_2/E_1|(x, y) = \alpha(x, y)$ serait structuré spatialement, si bien que mis à la puissance $|p| + 2n$ il donnerait des amplitudes dont le profil spatial dépendrait à la fois de p et de n . En régime perturbatif vis à vis du faisceau 2, seul le terme $n = 0$ contribue de manière significative, et donc l’ordre de diffraction p serait proportionnel à $\alpha(x, y)^p$. Pour de plus grandes valeurs de α , des termes d’ordre n supérieurs deviendraient non-négligeables, ce qui modifierait le profil transverse de chaque ordre de diffraction ! On disposerait donc d’une manière très visuelle d’observer la transition entre les deux régimes.

A ce stade, il nous faut remarquer deux choses primordiales. Tout d’abord, comme on l’a fait remarquer plus haut, la loi binomiale généralisée ayant permis d’obtenir le

développement non-perturbatif n'est valable que pour $|E_2| < |E_1|$, c'est-à-dire $\alpha < 1$. Pour $\alpha > 1$, la formule complémentaire doit être utilisée. Cette subtilité ne pose pas de problème lorsque les faisceaux 1 et 2 sont des modes transverses identiques (par exemple deux faisceaux gaussiens de même waist), car le rapport $\alpha = \left| \frac{E_2(x,y)}{E_1(x,y)} \right|$ est constant sur le plan transverse. Si les deux faisceaux ont des intensités transverses différentes, les équations 10.10 et 10.12 doivent être appliquées dans des régions complémentaires du plan transverse, et le calcul n'est alors plus faisable analytiquement. Toutefois, si l'un des deux faisceaux est bien plus intense que l'autre, utiliser une seule des deux formules sur tout le plan transverse fournit tout de même une approximation satisfaisante (figure 10.11). Dans la suite, on utilisera donc la notation $\bar{\alpha} = \sqrt{\frac{I_2}{I_1}}$, où I_1 et I_2 sont les intensités totales des deux faisceaux IR, pour désigner le rapport des amplitudes.

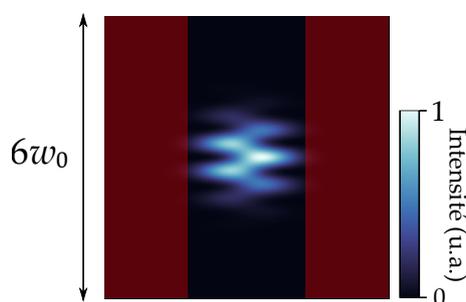


FIGURE 10.11 – Intensité du champ obtenu en superposant un faisceau 1 gaussien et un faisceau 2 non-colinéaire dans le mode \mathcal{HG}_{10} , pour $\bar{\alpha} = 0.4$. Les régions rouges correspondent aux zones où $|E_1| < |E_2|$. Elles ne contribuent que très peu à l'émission des harmoniques.

Deuxièmement, le développement 10.10 correspond au champ proche de l'harmonique q . Pour prédire l'allure des profils observés au niveau du détecteur, il faut propager cette amplitude jusqu'au champ lointain. Pour deux faisceaux de génération gaussiens cette étape est triviale car chacun des termes du développement correspond au même mode gaussien : chaque ordre de diffraction est donc un faisceau gaussien, invariant lors de sa propagation. Par contre, si les deux faisceaux ont des amplitudes transverses différentes, chaque ordre de diffraction est une superposition de modes transverses variés et va donc évoluer lors de la propagation.

Expérience de GHOE avec deux faisceaux structurés

Pour étudier l'effet de l'interférence entre processus multi-photons sur le profil transverse des harmoniques, on réalise une nouvelle expérience de GHOE à deux faisceaux non-colinéaires, dont le principe est détaillé figure 10.12. Le faisceau 1 est un mode gaussien, le faisceau 2 est dans le mode \mathcal{HG}_{10} , c'est-à-dire comprenant deux lobes d'intensité horizontaux déphasés de π (voir 2.2.1). Dans la suite, on ne considèrera que des modes du type \mathcal{HG}_{j0} , et on omettra donc de préciser la valeur de leur deuxième indice. Nous choisissons d'utiliser des modes de HG et non de LG car, comme on va le voir, l'analyse des profils obtenus sera plus aisée. L'interférence entre deux faisceaux IR donne encore une fois un réseau d'intensité et de phase au foyer. Dans le

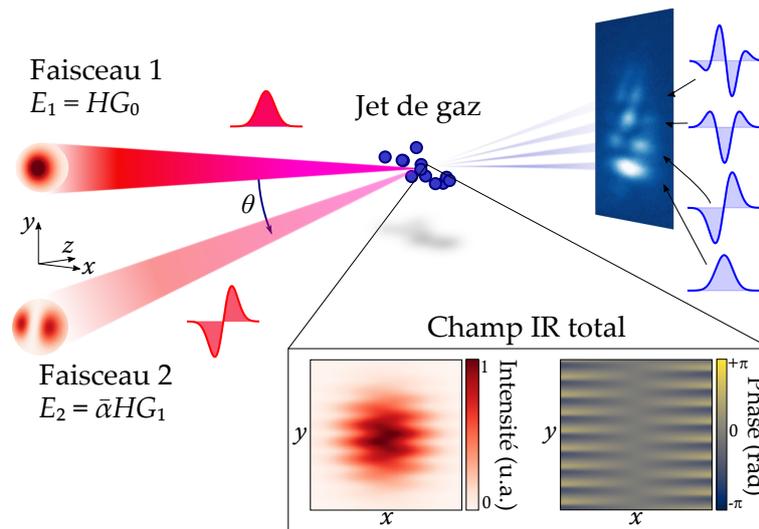


FIGURE 10.12 – Principe de la GHOE à deux faisceaux structurés spatialement.

cas présent, chaque frange se divise en deux au niveau de l'axe $x = 0$. La diffraction des harmoniques par ce réseau actif donne une série d'ordres de diffraction en champ lointain.

Dans la suite, on définit l'*amplitude* des modes de HG au foyer de la façon suivante

$$\mathcal{HG}_j(x/w_0) = C_j H_j \left(\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right) e^{-(x/w_0)^2}, \quad (10.16)$$

avec w_0 le waist du mode. Comme expliqué section 2.2.1, les fonctions H_j sont les polynômes d'Hermite dans la définition des physiciens, et $C_j = (2/\pi)^{1/4} / \sqrt{2^j j!}$ est un facteur de normalisation. L'intégrale du module carré de chacune de ces amplitudes vaut donc 1. La formule précédente donne l'amplitude du champ électrique au foyer, et en particulier nous n'avons pas écrit le terme de phase de Gouy. Après propagation en champ lointain, ces modes sont donnés par la même expression mais ont subi un déphasage global égal à $(j + 1)\pi/2$.

10.3.1 Régime (quasi)perturbatif par rapport au faisceau 2

Pour commencer, l'intensité du faisceau 2 est ajustée à $\bar{\alpha} = 0.17$. On parlera de régime quasi-perturbatif par rapport au faisceau 2, car cette valeur de α est trop élevée pour que le régime soit rigoureusement perturbatif (voir 10.2.1). La figure 10.13.a montre le profil d'intensité de l'harmonique 11 en champ lointain. Les autres harmoniques présentent un profil similaire.

Comme prévu, on observe des ordres de diffraction structurés de manière différente : l'ordre de diffraction p présente p lobes d'intensité horizontaux. Les ordres p pairs ont une intensité non-nulle au point $x = 0$, alors que les ordres impairs présentent à cet endroit un nœud d'intensité. En réalisant des ajustements des profils avec des modes de HG (figure 10.13.b), on trouve les décompositions suivantes. L'ordre $p = 0$ est un pure mode \mathcal{HG}_0 . De façon similaire, l'ordre $p = 1$ est un pure mode \mathcal{HG}_1 . Par contre, l'ordre $p = 2$ est une superposition des modes \mathcal{HG}_0 et \mathcal{HG}_2 de signes différents,

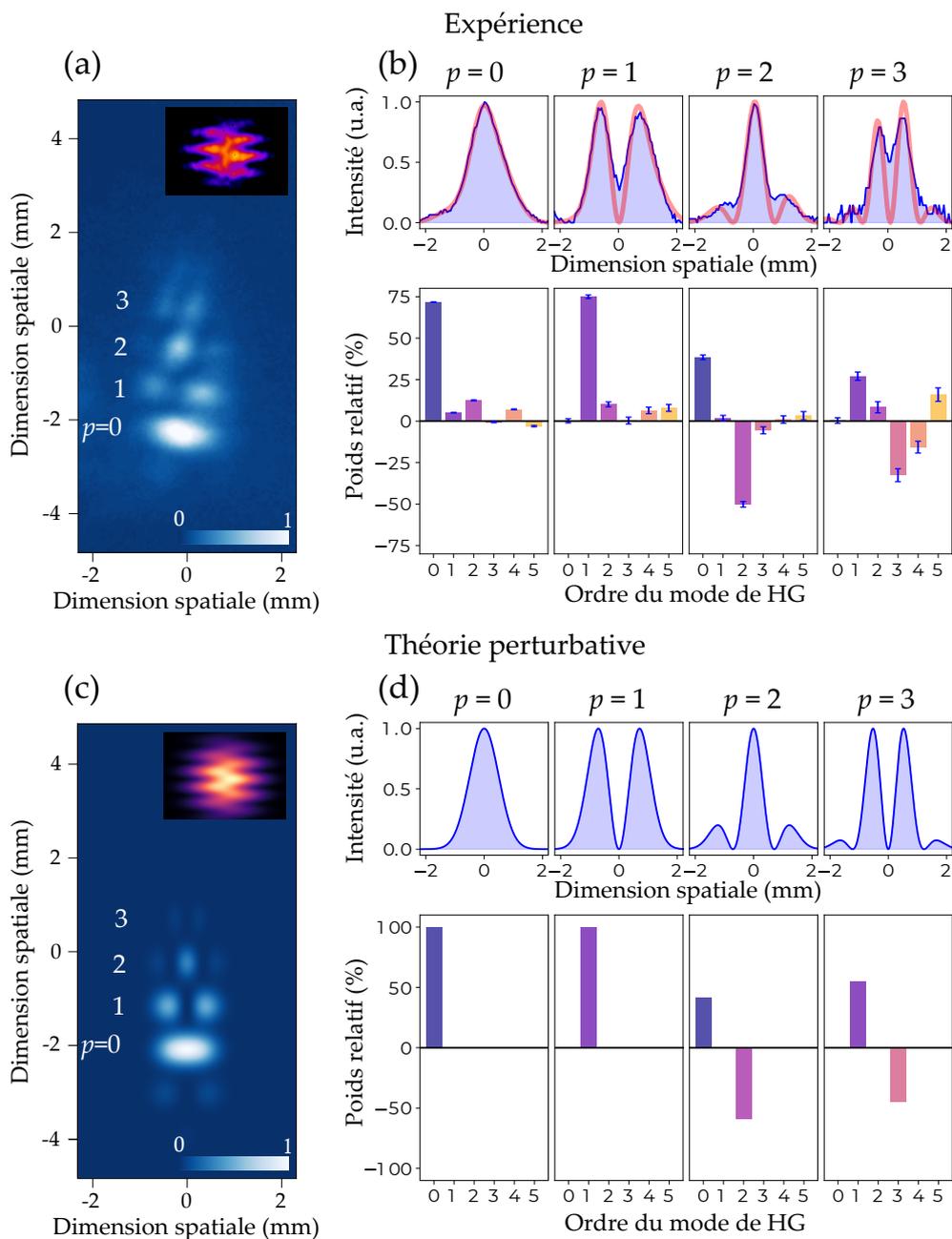


FIGURE 10.13 – (a) Profil d'intensité expérimental de l'harmonique 11, pour $\bar{\alpha} = 0.17$. (b) En haut : coupes horizontales des ordres de diffraction (bleu) et ajustements avec une somme des cinq premiers modes de HG (rouge). En bas : décompositions correspondantes sur la base des modes de HG. (c) Profil d'intensité simulé par le modèle du réseau actif. (d) Profils des ordres de diffraction et décompositions sur la base des modes de HG d'après l'expression 10.20, correspondant à une théorie perturbative. Les encarts en (a) et (c) montrent l'intensité transverse du champ de génération au foyer.

tandis que l'ordre $p = 3$ est constitué majoritairement des modes \mathcal{HG}_1 et \mathcal{HG}_3 , eux aussi en opposition de phase⁵.

5. Ainsi, les ordres de diffraction obtenus ressemblent à des modes \mathcal{HG}_p , mais n'en sont pas. En effet, pour les modes de HG les lobes d'intensité externes sont plus intenses que ceux proches de l'axe (figure

Pour comprendre ces résultats, revenons à l'équation 10.10. L'amplitude associée à l'ordre de diffraction p est donnée par

$$E_0^{(q,p)} = |E_1|^{q_{\text{eff}}} \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \left| \frac{E_2}{E_1} \right|^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^\perp y} e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2}. \quad (10.17)$$

Pour $\alpha \ll 1$, on peut négliger tous les termes de la somme sauf celui correspondant à $n = 0$, ce qui donne

$$E_0^{(q,p)} \approx |E_1|^{q_{\text{eff}}} a_p^{(0)} \left| \frac{E_2}{E_1} \right|^{|p|} e^{ip\Delta k^\perp y} e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2}. \quad (10.18)$$

Dans le cas présent, on a $E_1 = \mathcal{H}\mathcal{G}_0$ et $E_2 = \bar{\alpha}\mathcal{H}\mathcal{G}_1$, si bien que d'après l'équation 10.16 on a

$$\left| \frac{E_2}{E_1} \right|^{|p|} (x) = \bar{\alpha}^{|p|} \left| H_1 \left(\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right) \right|^{|p|}, \quad (10.19)$$

et l'amplitude des ordres de diffraction en champ proche s'exprime donc comme

$$E_0^{(q,p)} \approx |E_1|^{q_{\text{eff}}} a_p^{(0)} \bar{\alpha}^{|p|} \left(H_1 \left(\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right) \right)^{|p|}. \quad (10.20)$$

L'expression ci-dessus est obtenue en remarquant que pour les modes de HG, les termes $e^{i\phi_1}$ et $e^{i\phi_2}$ prennent uniquement les valeurs ± 1 .

Le profil de l'ordre de diffraction p en champ proche est donc une gaussienne multipliée par le polynôme H_1 mis à la puissance p . Ces profils et leurs décompositions sur la base des modes de HG sont représentés figure 10.13.d. L'accord avec les profils observés expérimentalement est remarquable.

Pour comprendre le spectre de modes de HG des ordres de diffraction, observons les premiers polynômes d'Hermite :

$$\begin{aligned} H_0(u) &= 1 \\ H_1(u) &= 2u \\ H_2(u) &= 4u^2 - 2 \\ H_3(u) &= 8u^3 - 12u. \end{aligned} \quad (10.21)$$

On obtient alors les puissances du polynôme H_1 en fonction des autres polynômes

$$\begin{aligned} (H_1)^0 &= 1 \\ (H_1)^1 &= H_1 \\ (H_1)^2 &= H_2 + 2H_0 \\ (H_1)^3 &= H_3 + 6H_1. \end{aligned} \quad (10.22)$$

$(H_1)^p$ est donc une somme de polynômes d'Hermite d'ordres inférieurs ou égaux à p , et de même parité que p [258]. Ceci est en accord avec les spectres de modes de

2.2), alors que c'est l'inverse ici.

HG de la figure 10.13.b⁶. Cependant, pour expliquer l'alternance de signe entre les modes de HG successifs observées expérimentalement, il faut prendre en compte la propagation en champ lointain. Le mode \mathcal{HG}_j acquiert la phase de Gouy $(j + 1)\pi/2$ lors de sa propagation. Étant donné que les modes de HG constituant chaque ordre de diffraction sont de même parité, les phases de Gouy de deux modes successifs diffèrent de π : ils sont bien de signes opposés.

On trouve donc bien que les ordres de diffraction 0 et 1 (et -1) sont des modes de HG, invariants lors de la propagation. Les autres ordres de diffraction se structurent au cours de leur propagation pour donner le nombre croissant de lobes observé dans les profils en champ lointain (figure 10.14).

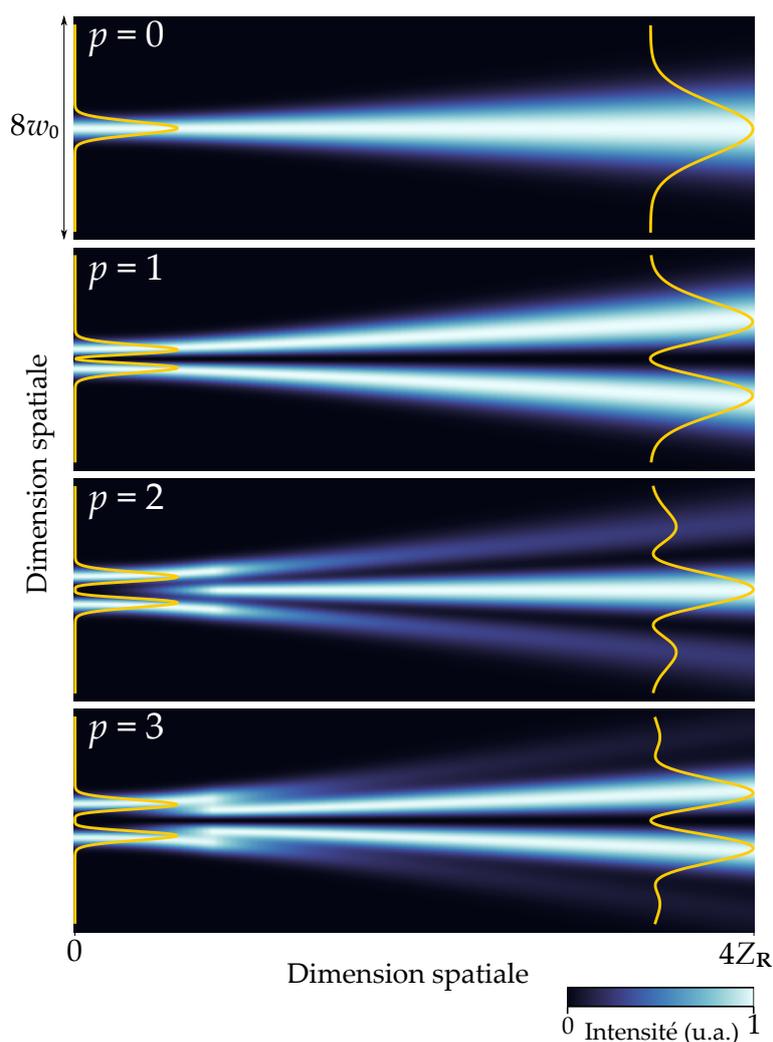


FIGURE 10.14 – Evolution des profils d'intensité de plusieurs ordres de diffraction lors de la propagation. Z_R est la longueur de Rayleigh, w_0 est le waist de l'ordre 0 au foyer.

En conclusion, pour $\bar{\alpha} \ll 1$, le développement perturbatif prédit avec une précision remarquable l'allure des ordres de diffraction observés. L'utilisation de différents modes transverses en GHOE à deux faisceaux permet de "lire" directement la loi de

6. Attention toutefois à ne pas confondre modes de HG et polynômes d'Hermite! Les coefficients des décompositions 10.22 ne correspondent pas aux poids relatifs des modes de HG dans les spectres de la figure 10.13.b, car il faut prendre en compte les facteurs de normalisation C_j dans l'expression 10.16.

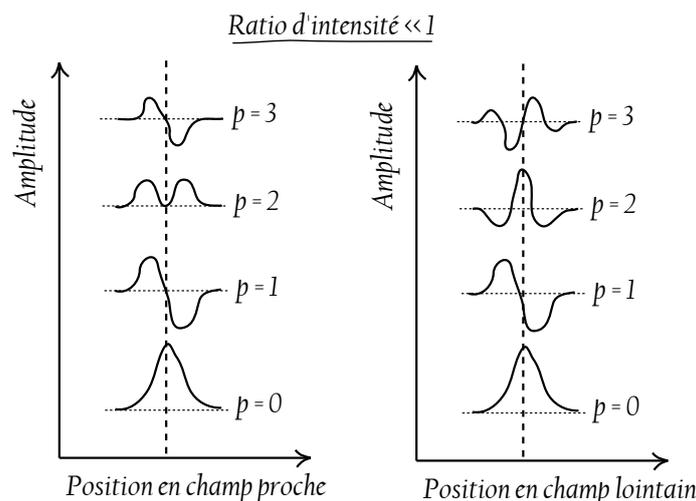


FIGURE 10.15 – L'amplitude transverse de chaque ordre de diffraction en champ proche (à gauche) est une fonction de même parité que p . La parité des ordres est bien entendue conservée lors de la propagation en champ lointain (à droite)

puissance perturbative dans les profils d'intensité en champ lointain.

Signalons enfin que des profils d'intensité similaires ont été observés en génération de seconde harmonique (perturbative) avec un mode de HG [259].

D'autres combinaisons de modes d'Hermite-Gauss

Par souci de complémentarité, la figure 10.16 montre les ordres de diffraction obtenus lorsque le faisceau 1 est dans le mode \mathcal{HG}_1 et le faisceau 2 dans le mode \mathcal{HG}_0 , et lorsque les deux faisceaux de génération sont dans le mode \mathcal{HG}_1 . Dans le premier cas on observe des profils d'intensité dont le nombre de lobes diminue cette fois avec $|p|$, en accord avec une loi du type

$$\left| E_0^{(q,p)} \right| \propto |\mathcal{HG}_1|^{q_{\text{eff}}-|p|} |\mathcal{HG}_0|^{|p|}. \quad (10.23)$$

L'effet est visible dans le spectre de modes de HG des ordres de diffraction : le barycentre de la décomposition tend vers les indices faibles à mesure que $|p|$ augmente.

Dans le second cas, le nombre et la densité de lobes semblent ne pas dépendre de p (le barycentre de la décomposition est le même pour tous les ordres de diffraction), ce qui correspond à la prédiction du modèle perturbatif

$$\left| E_0^{(q,p)} \right| \propto |\mathcal{HG}_1|^{q_{\text{eff}}-|p|} |\mathcal{HG}_1|^{|p|} = |\mathcal{HG}_1|^{q_{\text{eff}}}. \quad (10.24)$$

Nous pouvons comprendre ce dernier résultat d'une autre façon. Lorsque le faisceau 1, plus intense, est dans le mode \mathcal{HG}_1 , tout se passe comme si les harmoniques étaient diffractées par des fentes d'Young : le rayonnement XUV issu des deux lobes d'intensité interfère pour former une figure de diffraction comportant un grand nombre de franges d'intensité, et dont la décomposition contient donc des modes de HG d'indices élevés. La présence du faisceau 2 (dont le profil transverse est identique) ne fait qu'ajouter un réseau horizontal en champ proche, et a pour effet de dupliquer cette figure d'interférence aux positions attendues des ordres de diffraction.

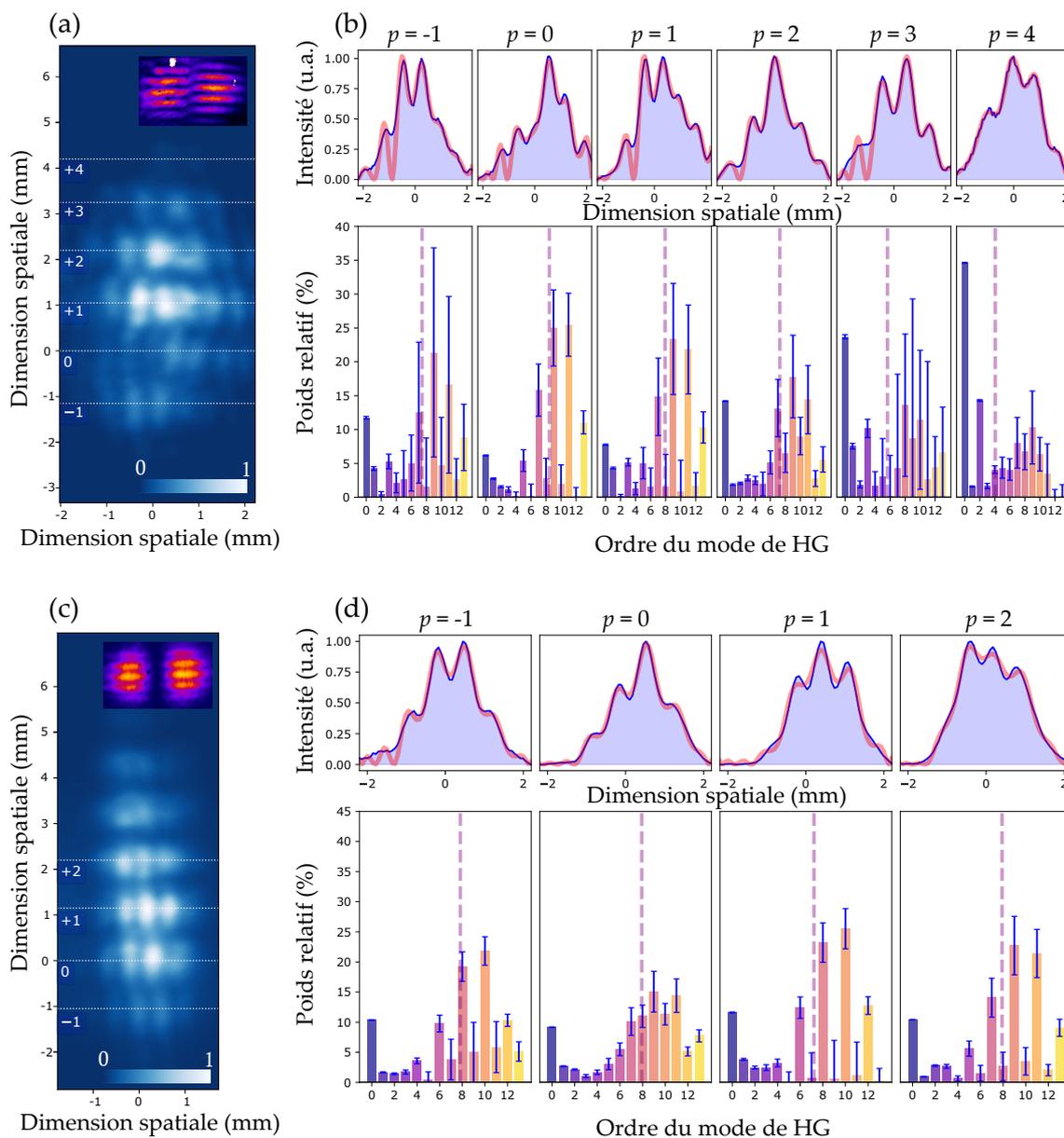


FIGURE 10.16 – (a) Profil d'intensité de l'harmonique 11 et (b) coupes des ordres de diffraction et spectres de modes de HG, dans le cas où le faisceau 1 est dans le mode \mathcal{HG}_1 et le faisceau 2 dans le mode \mathcal{HG}_0 . (c) Profil d'intensité de l'harmonique 11 et (d) coupes des ordres de diffraction et spectres de modes de HG, dans le cas où les deux faisceaux IR sont dans le mode \mathcal{HG}_1 . Les lignes pointillées verticales indiquent le barycentre de la décomposition sur les modes de HG.

10.3.2 Régime non-perturbatif par rapport au faisceau 2

A présent, nous considérons le cas où les deux faisceaux sont d'intensités similaires. Nous sommes toujours dans la configuration où le faisceau 1 est un mode \mathcal{HG}_0 et le faisceau 2 le mode \mathcal{HG}_1 . Nous faisons varier le ratio d'intensité de $\bar{\alpha} = 0$ à $\bar{\alpha} \approx 0.4$ en tournant la lame demi-onde devant le polariseur, et observons les profils des ordres de diffraction. Le résultat est montré figure 10.17.

Intéressons nous tout d'abord à l'ordre $p = 0$. Au fur et à mesure que $\bar{\alpha}$ augmente,

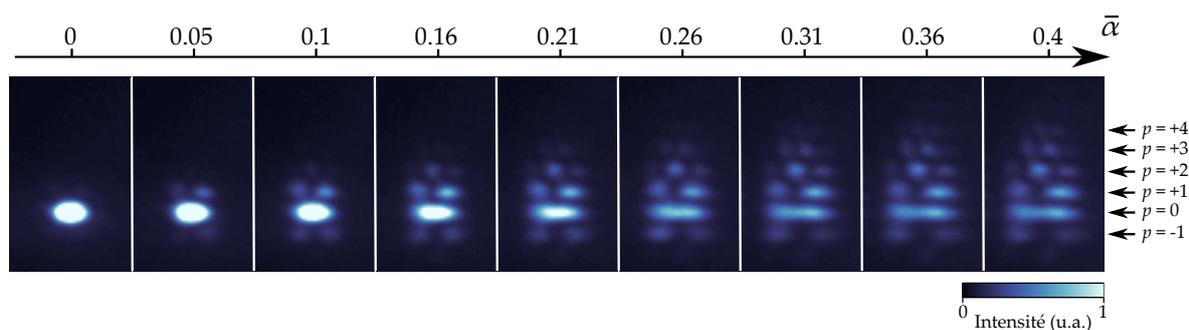


FIGURE 10.17 – Profil d'intensité de l'harmonique 11, pour différentes valeurs de $\bar{\alpha}$.

son profil transverse change de façon significative. Pour $\bar{\alpha} = 0$ il est bien entendu gaussien. Il s'élargit ensuite dans la direction horizontale, avant de se scinder en deux maxima d'intensité de valeurs égales. Quant aux autres ordres de diffraction, bien qu'ils soient structurellement invariants (le nombre de lobes d'intensité ne semble pas changer), ils subissent également un élargissement horizontal, les maxima d'intensité s'éloignant les uns des autres.

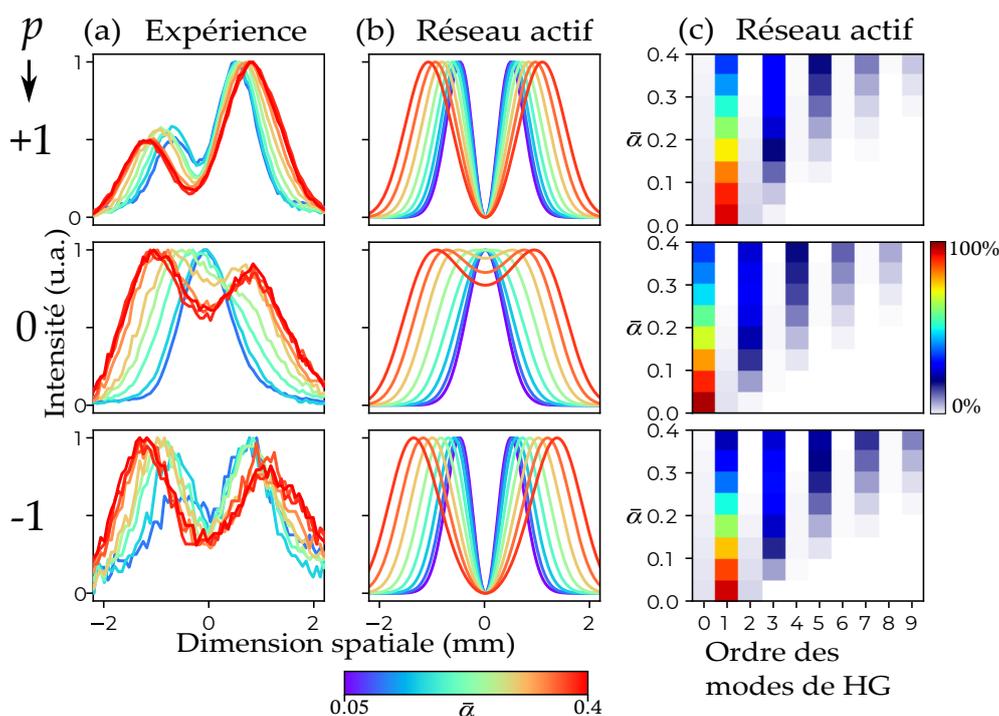


FIGURE 10.18 – (a,b) Profils d'intensité des ordres de diffraction $p = 0, 1$ et -1 d'après l'expérience et le modèle du réseau actif. (c) Spectre de mode sde HG des profils en (b).

La figure 10.18.a montre des coupes horizontales des ordres des images précédentes au niveau des ordres de diffraction $p = 0, 1$ et -1 . Le creusement de l'ordre $p = 0$, et l'écartement progressif des lobes des ordres 1 et -1 est bien visible. Mis à part une asymétrie dans le profil de l'ordre $p = 1$ attribué à un défaut de recouvrement spatial entre les faisceaux IR, les observations sont très bien reproduites par simulation de type "réseau actif" (figure 10.18.b). La figure 10.18.c montre également la décomposition de ces derniers sur la base des modes de HG. On constate que l'amplitude de chaque

ordre de diffraction p est une superposition des amplitudes $\mathcal{HG}_{|p|+2n}$, en accord avec le développement non-perturbatif de l'équation 10.13. La contribution des termes d'ordre $|p| + 2n$ élevés augmente avec $\bar{\alpha}^7$.

Pour comprendre cette évolution des profils d'intensité, il nous faut étudier un à un les termes du développement 10.10, que nous ré-écrivons ici pour l'ordre de diffraction p

$$\begin{aligned} E_0^{(q,p)} &= |E_1(x, y)|^{q_{\text{eff}}} \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \left| \frac{E_2(x, y)}{E_1(x, y)} \right|^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^+ y} e^{i(q-p)\phi_1} e^{ip\phi_2} \\ &= \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \bar{\alpha}^{|p|+2n} (\mathcal{HG}_0(x, y))^{q_{\text{eff}}-|p|-2n} (\mathcal{HG}_1(x, y))^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^+ y}. \end{aligned} \quad (10.25)$$

En utilisant l'expression 10.16, on trouve finalement

$$E_0^{(q,p)} = (\mathcal{HG}_0(x, y))^{q_{\text{eff}}} \sum_{n=0}^{+\infty} a_p^{(n)} \bar{\alpha}^{|p|+2n} \left(H_1 \left(\frac{\sqrt{2}x}{w_0} \right) \right)^{|p|+2n} e^{ip\Delta k^+ y}. \quad (10.26)$$

On constate grâce à cette équation que chaque ordre de diffraction p est une superposition de puissances du polynômes H_1 de même parité que p . En fait, en comparant avec l'équation 10.20, on s'aperçoit que le terme d'ordre n de la somme est absolument identique à l'amplitude de l'ordre de diffraction $|p| + 2n$ dans le régime *perturbatif*. En d'autres termes : calculer l'amplitude transverse d'un ordre de diffraction donné dans le cas *non-perturbatif* revient à sommer les amplitudes *perturbatives* des ordres de diffraction de même parité, avec les coefficients appropriés. Ces contributions d'ordres supérieurs sont des amplitudes dont le nombre de lobes croît avec n .

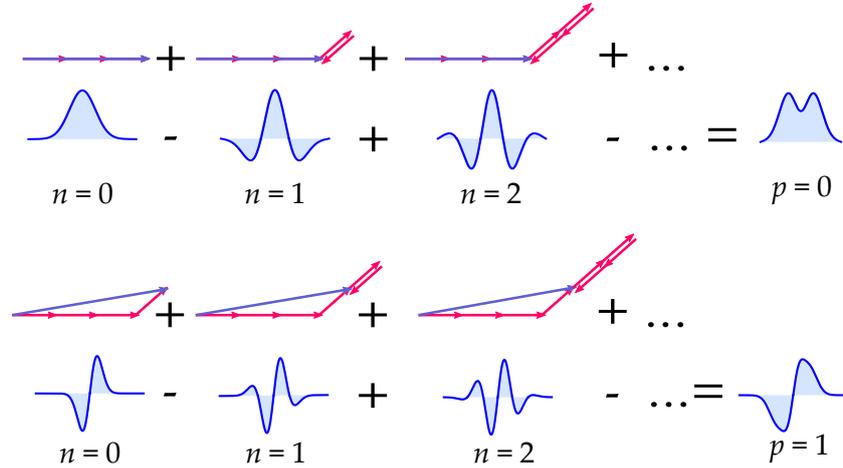


FIGURE 10.19 – Diagrammes correspondant à l'émission des ordres de diffraction $p = 0$ et $p = 1$, dans le cas où le faisceau 1 est gaussien et le faisceau 2 est le mode \mathcal{HG}_1 .

La figure 10.19 montre les amplitudes transverse associés aux premiers termes des développements non-perturbatifs des ordres $p = 0$ et 1. Considérons pour commencer

7. Notons qu'il ne faut pas confondre les coefficients de la décomposition sur la base des modes de HG avec les coefficients $a_p^{(n)}$. Chaque terme d'ordre $|p| + 2n$ du développement non-perturbatif est ici une somme de modes de HG, dont l'indice maximal est $|p| + 2n$.

l'ordre $p = 0$. Pour $\bar{\alpha} \ll 1$, seul le terme $n = 0$, qui est une amplitude gaussienne, contribue. Cependant, les amplitudes des termes d'ordres n supérieurs contiennent $2n + 1$ lobes d'intensité. Le lobe le plus intense est situé sur l'axe, et devient de plus en plus "piqué" lorsque n augmente. Cela signifie-t-il que le profil transverse final de l'ordre de diffraction, obtenu en sommant toutes ces amplitudes, comporte un "pic" central dont l'intensité croît avec $\bar{\alpha}$? Non, car les coefficients $a_p^{(n)}$ alternent en signe! Certains termes vont donc plutôt tendre à creuser le profil gaussien en son centre. Finalement, la synthèse de l'ensemble des processus est bien un étalement du profil, et un creusement en son centre. Pour les ordres $p > 0$, l'effet du développement non-perturbatif sera d'écartier petit à petit les lobes d'intensités. On constate ainsi en observant la figure 10.17 que pour $\bar{\alpha} = 0.4$, tous les ordres de diffraction ont pour ainsi dire la même extension horizontale, car ils sont des sommes d'une multitude d'amplitudes transverses de même largeur, contenant de nombreux lobes d'intensité.

10.3.3 Retour sur le cas de la GHOE avec des modes de LG

Nous avons étudié au chapitre 6 le transfert de MAO aux harmoniques d'ordre élevé lorsque nous mélangeons deux champs IR : un mode gaussien et un mode de LG de MAO $\ell = 1$. Pour une intensité faible du faisceau 2, une mesure du rayon des anneaux d'intensité montrait qu'ils étaient proches d'un mode de LG pur (figure 6.10). Par contre, cela n'était plus vrai pour des valeurs plus élevées de $\bar{\alpha}$ (figures 6.11 et 6.12). Pire, l'ordre de diffraction $p = 0$, initialement gaussien, devenait rapidement un anneau d'intensité!

Ces résultats troublants peuvent être expliqués par notre nouveau formalisme. Pour des valeurs plus élevées de $\bar{\alpha}$, des amplitudes proportionnelles aux puissances $|p| + 2n$ du module du mode \mathcal{LG}_1 interfèrent. Toutes les amplitudes contribuant à un ordre de diffraction p donné portent le même MAO $(q - p)\ell_1 + p\ell_2 = p$, la loi de conservation du moment angulaire reste donc vérifiée. Les diverses amplitudes prennent la forme d'anneaux de rayon plus ou moins grand, et diffractent lors de la propagation en champ lointain. Il faut alors toutes les sommer pour obtenir le profil de l'ordre de diffraction.

La figure 10.20 montre le module des 5 premières amplitudes à sommer en champ lointain, ainsi que la somme des 20 premières amplitudes, très proche du résultat correct, pour $\bar{\alpha} = 0.4$. Considérons tout d'abord l'ordre $p = 0$. Le développement non-perturbatif montre que pour l'harmonique 9 il reste proche d'une gaussienne, alors qu'il prend une forme d'anneau dans le cas de l'harmonique 15, en parfait accord avec les résultats expérimentaux du chapitre 6. L'interférence entre processus multi-photons est d'autant plus marquée que la différence entre q et q_{eff} est importante, car plus de termes contribuent alors significativement au développement 10.10 (voir figure 10.4).

Conclusion du chapitre

Grâce à un développement analytique du modèle du réseau actif, et de multiples résultats expérimentaux, nous proposons une façon de réconcilier l'interprétation de la GHOE à deux faisceaux en termes de processus multi-photons et celle basée sur le champ électromagnétique classique. Notre développement non-perturbatif est valable pour tous les ratios d'intensité des faisceaux de génération et, contrairement aux approches existantes, révèle que des processus impliquant une série d'absorptions et

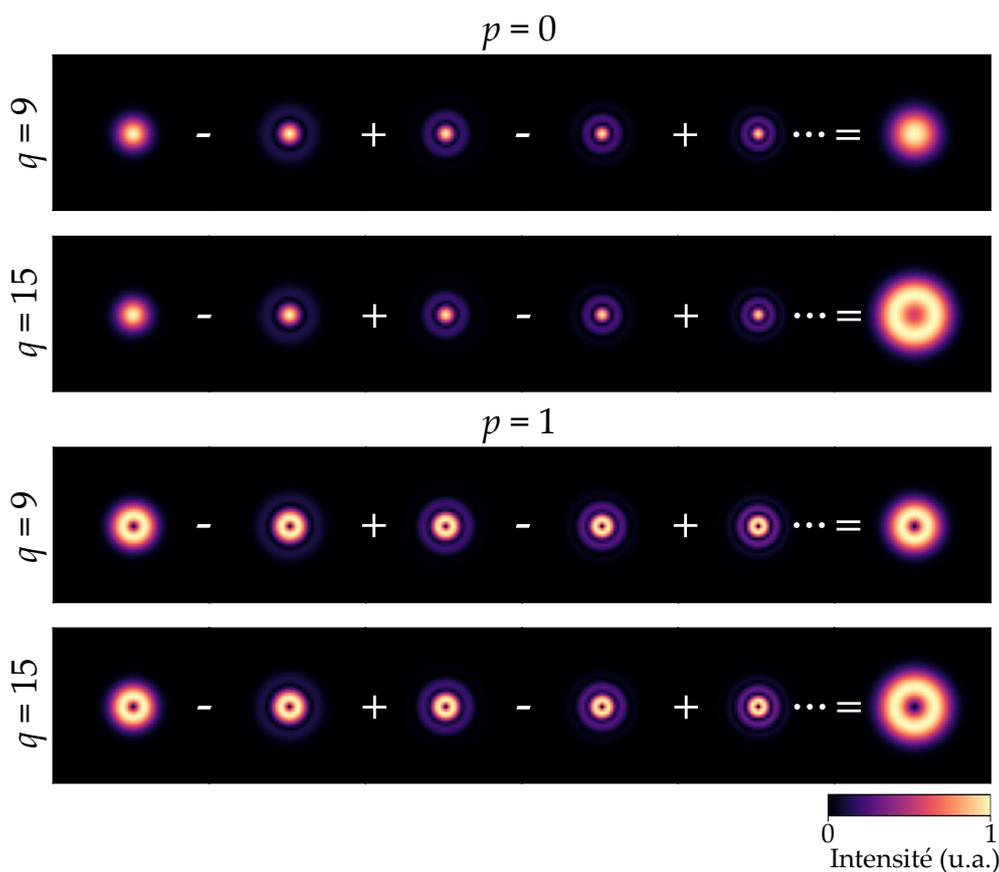


FIGURE 10.20 – Module des amplitudes *en champ lointain* des 5 premiers termes du développement non-perturbatif, et module de la somme des 20 premiers termes (à droite), dans le cas où le faisceau 1 est gaussien et le faisceau 2 le mode $\mathcal{L}\mathcal{G}_1$, pour les ordres de diffraction $p = 0$ et 1 des harmoniques 9 et 15.

d'émissions stimulées de photons IR jouent un rôle primordial. Ils donnent lieu à l'observation de comportements particulièrement riches, à la fois dans les intensités des canaux d'émission et dans leurs profils transverses.

Au cours des chapitres précédents, nous avons complètement négligé ces aspects et nous nous sommes contentés de tracer les diagrammes correspondant au premier terme du développement. Ceci ne nous a pas empêché de prédire avec exactitude diverses propriétés des faisceaux harmoniques : fréquence, impulsion, MAO et MAS. Ceci est dû au fait que le développement non-perturbatif n'affecte que l'intensité totale et le profil spatial des ordres de diffraction. La GHOE demeure un processus paramétrique eut égard aux grandeurs conservées associées aux photons.

Notons que des approches similaires, faisant intervenir des canaux d'émission "d'ordres supérieurs à q ", ont déjà été proposées pour affiner les descriptions perturbatives de certains phénomènes d'optique non-linéaire [260, 261, 262]. Signalons enfin qu'une véritable théorie quantique des champs décrivant la GHOE devrait être capable de retrouver à partir des premiers principes les coefficients $a_p^{(n)}$ calculés ici dans le cadre du modèle du réseau actif.

Quatrième partie

Magnéto-optique et moment angulaire de la lumière

Dichroïsme hélicoïdal magnétique en polarisation linéaire

Dans la partie précédente, nous avons étudié les lois de conservation qui gouvernent le transfert de moment angulaire d'un faisceau IR aux harmoniques d'ordre élevé. Cela nous a permis de générer des faisceaux XUV portant du MAO, du MAS, ou bien les deux à la fois, et présentant des topologies non-triviales. Dans cette nouvelle partie, on va s'intéresser à l'une des applications de tels faisceaux de lumière : l'observation de dichroïsmes de moment angulaire.

Le mot dichroïsme désigne le fait que l'absorption de la lumière par un matériau dépende l'état de polarisation du champ incident¹. On parle notamment de dichroïsme circulaire (DC) lorsque le matériau absorbe différemment les composantes circulaires gauche et droite (donc les photons de MAS ± 1) [263]. Le DC fut étudié pour la première fois par Cotton [264, 265], et il constitue aujourd'hui une méthode d'investigation très prisée dans le visible et l'infrarouge, par exemple pour sonder des molécules chirales ou des protéines [266]. Le signal de dichroïsme est souvent résolu spectralement afin de mettre en évidence différentes bandes d'absorption. Le DC est également utilisé de manière routinière pour caractériser des matériaux magnétiques [267], on parle alors de "dichroïsme circulaire magnétique" (DCM). Il est particulièrement marqué dans l'XUV et les rayons X, où se trouvent les seuils d'absorption des matériaux magnétiques.

Le dichroïsme circulaire faisant intervenir le MAS seul, il est naturel de se demander si un dichroïsme similaire existe pour le MAO. Un effet de "dichroïsme hélicoïdal" (DH) correspond alors à une absorption différenciée pour les MAO $\pm \ell$. Les observations de DH rapportées dans la littérature sont rares, et la plupart sont très récentes. On peut citer le cas de DH observés dans des molécules chirales désordonnées [268], des matériaux magnétiques [269], dans des nanostructures [270], et en optique non linéaire [271].

De façon générale, mesurer un DH est rendu difficile par la nature même du MAO. Dans une vision ondulatoire de la lumière, le MAO se manifeste par une variation azimutale *macroscopique* de l'amplitude du champ électrique. Par macroscopique, on entend que cette variation se produit à l'échelle de la largeur du faisceau. Ainsi, si l'on considère un faisceau laser ayant un waist de 100 microns, on ne s'attend pas

1. En optique, le même mot *dichroïsme* peut également désigner la propriété de certains éléments de séparer spatialement les différentes fréquences de la lumière.

à ce qu'une interaction (linéaire) avec des particules de taille nanométrique (atomes, molécules, etc...) dépende de la charge topologique du faisceau. En effet, à l'échelle des particules, la variation spatiale de l'amplitude est parfaitement négligeable et le MAO, contrairement au MAS, n'est pas supposé avoir d'effet sur la physique microscopique de l'interaction. Un effet est observable dans le cas de transitions électriques quadrupolaires, ayant lieu là où le gradient du champ incident est fort, tel qu'au centre d'un vortex optique [272].

Dans ce chapitre, on introduit un nouveau DH induit par la magnétisation (dichroïsme hélicoïdal magnétique, ou DHM). Pour décrire avec l'optique ondulatoire un couplage entre magnétisme et MAO, on va donc considérer des échantillons magnétiques dont la magnétisation varie à l'échelle du foyer du faisceau incident. De telles *textures* magnétiques, telles que les vortex [273, 274] et les skyrmions [275], de taille micro ou nanométrique, sont appelées à jouer un rôle dans nombre d'applications technologiques. Les skyrmions sont topologiquement protégés, ce qui les rend robustes face à des perturbations extérieures telles que des champs magnétiques ou de variations de température. En 2013, Romming *et al.* sont parvenus à écrire et à effacer des skyrmions [276]. Des skyrmions de taille sub-nanométrique ont été observés dans des films multicouches [277]. Toutes ces propriétés rendent les skyrmions particulièrement prometteurs pour le design de futures mémoires *racetrack*, et en général pour le stockage [273] ou le transfert de données [278]. L'étude des textures de magnétisation est aujourd'hui un champ de recherche particulièrement actif [279].

Dans ce contexte, il serait souhaitable de pouvoir caractériser la topologie de la magnétisation par la lumière, ou induire une texture de magnétisation avec un faisceau de lumière [280], ou bien inversement agir sur la lumière avec une texture magnétique. Les vortex optiques produits par GHOE en partie III sont des outils de choix pour l'étude de ces effets car, tout comme le DCM, le dichroïsme hélicoïdal magnétique est maximisé dans les domaines de fréquences XUV et X.

Ici, nous allons étudier la réflexion de vortex optiques sur des interfaces magnétiques. Le fait que le champ lumineux réfléchi par une interface magnétisée dépende de la magnétisation dans le matériau est appelé *effet Kerr magnéto-optique*, ou MOKE (*magneto-optical Kerr effect*). Dans ce chapitre, on va étudier, de façon théorique et expérimentale, la façon dont le MAO d'un faisceau de lumière polarisé linéairement est modifié lors de la réflexion sur une surface magnétisée. Pour cela, on présentera tout d'abord les équations fondamentales du MOKE. On les appliquera au cas de structures magnétiques *planaires* dont le vecteur magnétisation appartient au plan de la surface, tels que les vortex magnétiques. On identifiera alors un DHM associé à l'intensité transverse du faisceau réfléchi, qui dépend à la fois du MAO du faisceau incident et de la structure de magnétisation considérée. Des expériences utilisant des vortex XUV produits par un laser à électrons libres (LEL) viendront confirmer ces prédictions. Les cas d'une polarisation incidente quelconque, et d'une magnétisation tridimensionnelle, seront traités dans le chapitre suivant.

11.1 Formalisme de l'effet Kerr magnéto-optique

11.1.1 Tenseur de permittivité et coefficients de Fresnel

Un matériau magnétique présente une anisotropie due à la magnétisation. En plus de l'indice de réfraction n , qui détermine la réponse optique en l'absence de magnétisation, un matériau magnétique est caractérisé par une constante magnéto-optique Q , appelée paramètre de Voigt, ainsi que par la direction du vecteur magnétisation \mathbf{M} . Dans le cadre d'effets magnéto-optiques linéaires, Q est proportionnel à la magnétisation. Le tenseur de permittivité ϵ s'écrit alors [281, 282, 283, 284]

$$\epsilon = n^2 \begin{pmatrix} 1 & -iQm_z & iQm_y \\ iQm_z & 1 & -iQm_x \\ -iQm_y & iQm_x & 1 \end{pmatrix}, \quad (11.1)$$

où m_x , m_y et m_z sont les trois composantes cartésiennes de \mathbf{M} (Figure 11.1). Les termes non-diagonaux du tenseur traduisent la non-anisotropie du milieu magnétique². En résolvant les équations de Maxwell pour cette permittivité particulière, on obtient les coefficients de Fresnel à l'interface entre le milieu magnétique et l'extérieur, sous la forme d'une matrice de réflectivité [284]

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} R_{PP} & R_{PS} \\ R_{SP} & R_{SS} \end{pmatrix}, \quad (11.2)$$

écrite dans le base des composantes P et S de la polarisation (Figure 11.1). Le coefficient R_{ij} correspond au ratio de la composant polarisée j du champ incident et de la composante polarisée i du champ réfléchi. Les coefficients peuvent s'écrire de la façon suivante, en fonction des angles d'incidence θ_i et de réfraction θ_r

$$R_{PP} = \frac{n \cos \theta_i - \cos \theta_r}{n \cos \theta_i + \cos \theta_r} - 2iQ \frac{n \cos \theta_i \sin \theta_r}{n \cos \theta_i + \cos \theta_r} m_x, \quad (11.3)$$

$$R_{SP} = \frac{Q(m_y \sin \theta_r + m_z \cos \theta_r) \sin \theta_i}{(n \cos \theta_i + \cos \theta_r)(\cos \theta_i + n \cos \theta_r) \cos \theta_r}, \quad (11.4)$$

$$R_{PS} = \frac{Q(m_y \sin \theta_r - m_z \cos \theta_r) \sin \theta_i}{(n \cos \theta_i + \cos \theta_r)(\cos \theta_i + n \cos \theta_r) \cos \theta_r}, \quad (11.5)$$

$$R_{SS} = \frac{\cos \theta_i - n \cos \theta_r}{\cos \theta_i + n \cos \theta_r}. \quad (11.6)$$

Dans ces équations, on constate que le coefficient R_{PP} fait intervenir un terme constant et un terme proportionnel à la magnétisation transverse (m_x). Les coefficients R_{PS} et R_{SP} font intervenir les magnétisations longitudinale (m_y) et polaire (m_z), avec des signes opposés pour la magnétisation polaire. Enfin, le coefficient R_{SS} ne dépend pas de la magnétisation.

On peut ainsi écrire la matrice de réflectivité sous la forme

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} r_{PP} + \alpha m_x & \beta m_y + \gamma m_z \\ -\beta m_y + \gamma m_z & r_{SS} \end{pmatrix}, \quad (11.7)$$

2. On peut cependant noter que dans ce modèle, la constant magnéto-optique (Q) est la même pour les trois directions de la magnétisation. On parle d'*isotropie magnéto-optique* [281].

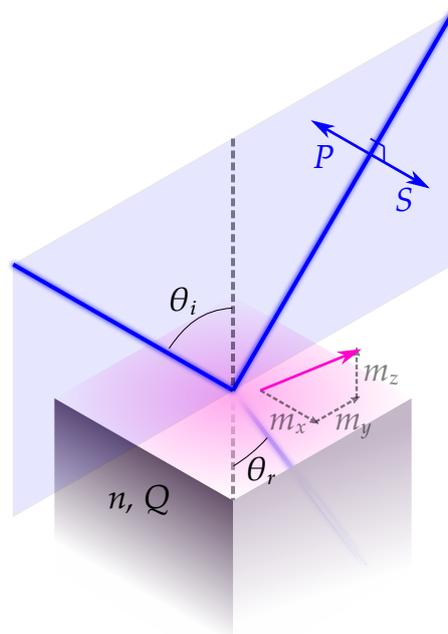


FIGURE 11.1 – Géométrie considérée. Un faisceau incident (bleu) est réfléchi par un matériau possédant une magnétisation (flèche violette). Le plan d'incidence est indiqué par la surface transparente bleue. La composante P du champ électromagnétique est dans ce plan, tandis que la polarisation S est normale au plan. La composante m_x de la magnétisation est dite *transverse*, car normale au plan d'incidence de la lumière. Les composantes m_y et m_z sont dites *longitudinales* et *polaires*.

où r_{PP} et r_{SS} sont les coefficients de Fresnel usuels, en l'absence de magnétisation. α , β et γ ³ sont des paramètres magnéto-optiques dépendant de θ_i , n (donc de la longueur d'onde) et Q . Ces deux dernières quantités étant complexes, α , β et γ sont complexes également. Dans ce chapitre et le suivant, c'est cette expression de la matrice de réflectivité qui sera utilisée dans les calculs.

Analysons un peu plus en détail les effets des trois composantes de la magnétisation. Une magnétisation purement transverse ($\mathbf{M} = (m_x, 0, 0)$) se traduit par une matrice de réflectivité diagonale ($R_{PS} = R_{SP} = 0$), donc un faisceau incident polarisé P (respectivement S) donne un faisceau réfléchi de même polarisation P (respectivement S). Cependant, à cause du terme proportionnel à la magnétisation αm_x , la composante P du faisceau réfléchi est déphasée de $\arg(r_{PP} + \alpha m_x) - \arg(r_{PP})$ par rapport à celle d'un faisceau réfléchi en l'absence de magnétisation.

Une magnétisation purement longitudinale ($\mathbf{M} = (0, m_y, 0)$) ou purement polaire ($\mathbf{M} = (0, 0, m_z)$) couple les composantes P et S . Un faisceau incident polarisé linéairement P ou S donnera donc en général un faisceau réfléchi polarisé elliptiquement.

3. Dans cette partie, les notations α et γ pour les constantes magnéto-optiques n'ont rien à voir avec celles des chapitres précédent, qui correspondaient respectivement à un rapport d'amplitudes et au paramètre topologique de la lumière.

11.1.2 Origine physique des effets magnéto-optiques

Les effets magnéto-optiques décrits ici, et notamment la matrice de réflectivité (Eq. 11.7), peuvent s'expliquer intuitivement à l'aide de l'électromagnétisme et de la mécanique classique de Lorentz [282].

La réponse optique du matériau (notamment l'amplitude et la phase du faisceau réfléchi) résulte de l'oscillation collective des charges électriques des atomes sous l'effet du champ laser incident. Pour un milieu magnétique, on fait l'hypothèse que ce déplacement périodique des charges se produit en présence d'un champ magnétique \mathbf{H} statique, dû à la magnétisation locale. On peut alors distinguer différents cas de figures en fonction de la direction de \mathbf{H} (Figure 11.2).

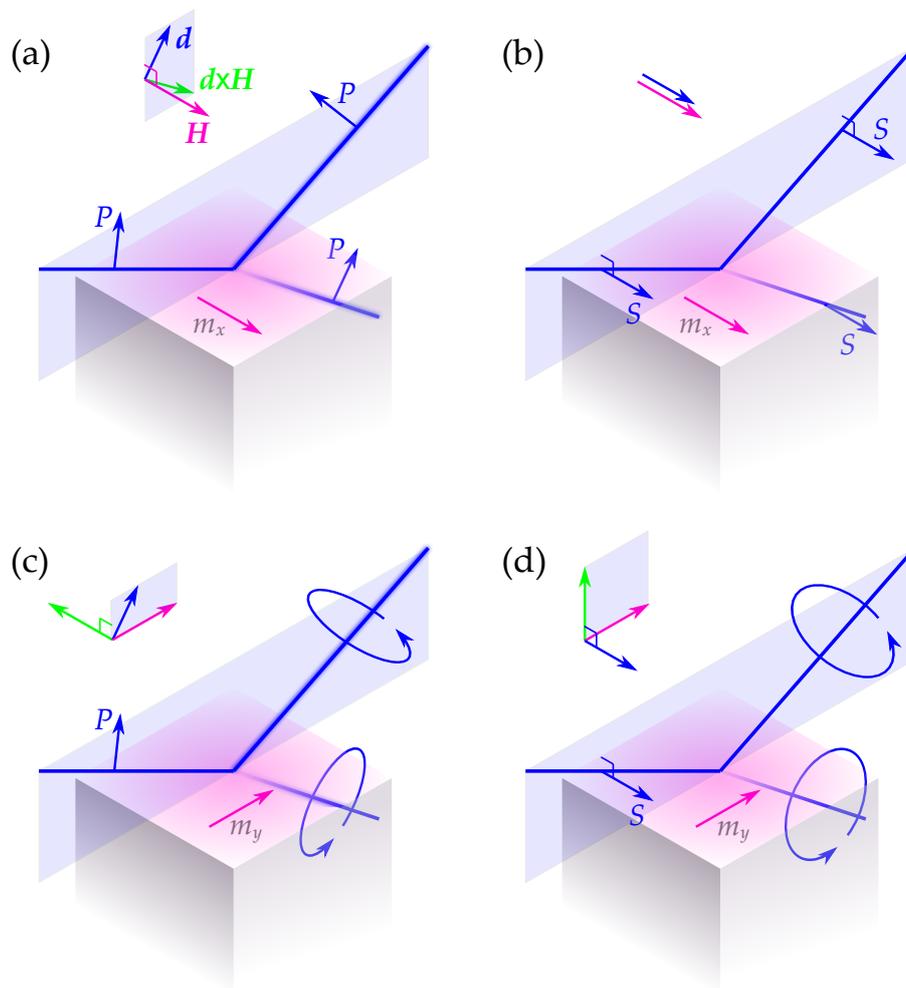


FIGURE 11.2 – Dans le cas du MOKE transverse, un faisceau incident P donne un faisceau réfléchi P (a), et un faisceau incident S donne un faisceau réfléchi S (b). En MOKE longitudinal, un faisceau incident P (c) ou S (d) donne un faisceau réfléchi polarisé elliptiquement. Les sous-figures montrent les trois vecteurs pertinents : champ magnétique (violet), dipôle excité par le champ réfracté (bleu) et force de Lorentz (vert).

Considérons une magnétisation transverse. Une onde incidente polarisée P se traduit par une onde réfractée mettant en mouvement les charges du solide dans une direction contenue dans le plan d'incidence. Pour un champ magnétique transverse, la

force de Lorentz $-e\mathbf{v} \times \mathbf{H}$, où \mathbf{v} est la vitesse de l'électron, est dans le plan d'incidence. En régime stationnaire, le dipôle électrique résultant n'aura pas de composante selon S . Ainsi, l'onde réfléchie sera polarisée P comme l'onde incidente, bien qu'elle puisse être modifiée en amplitude et en phase. Si l'onde incidente est S , alors la force de Lorentz est nulle car le champ magnétique et le dipôle induit par l'onde réfractée sont colinéaires. Pour résumer, la magnétisation transverse ne peut pas agir sur la polarisation S , et elle ne peut convertir une polarisation incidente P en un autre état de polarisation. On en déduit que le terme m_x ne peut apparaître que dans le coefficient R_{PP} de la matrice de réflectivité (équation 11.7).

Considérons à présent une magnétisation longitudinale. Si la polarisation incidente est P , les charges électriques dans le matériau subissent une force de Lorentz perpendiculaire au plan d'incidence, donc une composante S est obtenue. Inversement, une polarisation incidente S donne une force de Lorentz verticale, dans le plan d'incidence, et donc génère une composante réfléchie P . Une magnétisation polaire aurait un effet similaire. Ainsi, les termes proportionnels à m_y et m_z apparaissent hors de la diagonale de la matrice de réflectivité (équation 11.7).

11.2 Interaction entre un vortex optique et une structure magnétique

Comme on vient de le voir, le MOKE modifie l'amplitude (intensité et phase) et la polarisation d'un faisceau de lumière se réfléchissant sur la surface d'un matériau magnétique. En particulier, le MOKE transverse modifie l'amplitude du faisceau, et laisse sa polarisation inchangée. Le MAO d'un faisceau de lumière étant lié aux variations spatiales du champ électrique, on s'attend à ce qu'une magnétisation homogène induise simplement un déphasage ou bien un changement d'intensité ou d'état de polarisation global, sans effet sur le MAO. Inversement, un matériau présentant une magnétisation non uniforme peut potentiellement modifier le contenu en MAO du faisceau réfléchi. Pour cette raison, nous allons considérer dans la suite des structures magnétiques, au sein desquelles la magnétisation varie spatialement. Dans un souci de simplicité, on considère pour le moment une polarisation incidente linéaire P ou S , ainsi qu'une magnétisation dans le plan de l'échantillon, c'est-à-dire sans magnétisation polaire : $\mathbf{M} = (m_x, m_y, 0)$.

11.2.1 Dérivation analytique

Dans cette section, nous allons construire un modèle simple de l'interaction magnéto-optique et dégager quelques résultats importants. On considère un faisceau incident portant un MAO ℓ_i , exprimé sous la forme suivante

$$E_i = A(r)e^{i\ell_i\varphi} \begin{pmatrix} e_P \\ e_S \end{pmatrix}, \quad (11.8)$$

avec r le rayon dans le plan transverse du faisceau, et $A(r)$ une fonction radiale correspondant par exemple au profil d'un mode de LG d'indices $\ell = \ell_i$ et $\mathbf{p} = 0$. φ est l'angle azimutal dans le plan transverse du faisceau incident. On fait l'hypothèse que la surface de l'échantillon se trouve au foyer du faisceau incident.

L'échantillon magnétique est décrit par les constantes optiques r_{PP} et r_{SS} , les constantes magnéto-optiques α , β et γ , ainsi que le vecteur magnétisation à sa surface. Celui-ci dépend de la position \mathbf{r}' dans le plan de l'échantillon (figure 11.3). En coordonnées cartésiennes, la magnétisation $\mathbf{M}(r', \varphi')$ peut dépendre de la distance au centre de l'échantillon, ainsi que de l'angle azimutal.

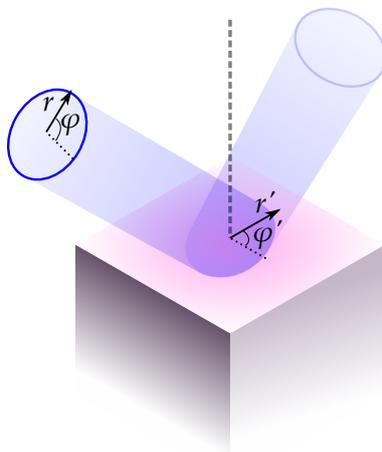


FIGURE 11.3 – Coordonnées dans le plan transverse du faisceau (r, φ) et dans le plan de l'échantillon (r', φ') .

Afin de simplifier les calculs, nous allons supposer dans cette section que le plan transverse du faisceau incident (et celui du faisceau réfléchi) peut être confondu avec le plan de l'échantillon, c'est-à-dire que $r = r'$ et $\varphi = \varphi'$. Cela revient à considérer une incidence quasi-normale. Notons que l'incidence ne peut pas être complètement normale, sans quoi on ne pourrait définir les composantes P et S de la polarisation. De plus, comme on le verra, les expériences de magnéto-optique nécessitent souvent de se placer à l'angle de Brewster (qui peut être loin de la normale) afin de maximiser les effets magnétiques par rapport aux effets purement optiques. Cependant, nous pourrions dans la section suivante comparer les résultats du calcul analytique avec des simulations réalistes en incidence loin de la normale, et conclure que les principaux enseignements de nos calculs restent valables. Le champ électrique réfléchi par le matériau magnétique s'écrit

$$\mathbf{E}_r = \mathbf{R}\mathbf{E}_i = A(r)e^{i\ell_i\varphi} \begin{pmatrix} e_P(r_{PP} + \alpha m_x(r, \varphi)) + e_S\beta m_y(r, \varphi) \\ -e_P\beta m_y(r, \varphi) + e_S r_{SS} \end{pmatrix}. \quad (11.9)$$

Il nous faut à présent exprimer la dépendance spatiale de la magnétisation. Commençons par un cas simple, avant d'établir une formule plus générale. On considère pour commencer un vortex magnétique, c'est-à-dire un tourbillon de magnétisation autour du point $r = 0$. On suppose que la magnétisation est de norme constante égale à $|m_0|$, et que seule sa direction varie à travers la surface du matériau. Un vortex correspond à

$$\begin{aligned} m_x &= m_0 \cos \varphi \\ m_y &= -m_0 \sin \varphi, \end{aligned} \quad (11.10)$$

où le signe de m_0 détermine le sens d'enroulement du vortex. En pratique, le vortex magnétique aura une taille limitée, et donc la magnétisation ne peut avoir une norme constante. On considère ici que la tache focale du faisceau incident est suffisamment petite par rapport à la taille du vortex magnétique pour négliger les effets de bord. Pour cette structure, on obtient, à l'aide de la formule d'Euler

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_r &= A(r) e^{i\ell_i \varphi} \begin{pmatrix} e_P(r_{PP} + \alpha m_0 \cos \varphi) - e_S \beta m_0 \sin \varphi \\ e_P \beta m_0 \sin \varphi + e_S r_{SS} \end{pmatrix} \\ &= A(r) \begin{pmatrix} e_P(r_{PP} e^{i\ell_i \varphi} + \frac{1}{2} \alpha m_0 (e^{i(\ell_i+1)\varphi} + e^{i(\ell_i-1)\varphi})) - \frac{1}{2i} e_S \beta m_0 (e^{i(\ell_i+1)\varphi} - e^{i(\ell_i-1)\varphi}) \\ \frac{1}{2i} e_P \beta m_0 (e^{i(\ell_i+1)\varphi} - e^{i(\ell_i-1)\varphi}) + e_S r_{SS} e^{i\ell_i \varphi} \end{pmatrix}. \end{aligned} \quad (11.11)$$

Finalement, pour un faisceau incident polarisé P ($e_P = 1, e_S = 0$), on a

$$\mathbf{E}_r = A(r) \begin{pmatrix} (r_{PP} e^{i\ell_i \varphi} + \frac{1}{2} \alpha m_0 (e^{i(\ell_i+1)\varphi} + e^{i(\ell_i-1)\varphi})) \\ \frac{1}{2i} \beta m_0 (e^{i(\ell_i+1)\varphi} - e^{i(\ell_i-1)\varphi}) \end{pmatrix} \quad (11.12)$$

et pour un faisceau incident polarisé S ($e_P = 0, e_S = 1$)

$$\mathbf{E}_r = A(r) \begin{pmatrix} -\frac{1}{2i} \beta m_0 (e^{i(\ell_i+1)\varphi} - e^{i(\ell_i-1)\varphi}) \\ r_{SS} e^{i\ell_i \varphi} \end{pmatrix}. \quad (11.13)$$

Spectre de MAO du faisceau réfléchi

Dans les deux cas ci-dessus, on constate que le mode de MAO ℓ_i incident a été redistribué sur les modes de MAO $\ell_i, \ell_i + 1$ et $\ell_i - 1$. Le spectre de MAO du faisceau réfléchi est donc plus étendu que celui du faisceau incident. Cependant, les poids des modes $\ell_i + 1$ et $\ell_i - 1$ étant égaux, le MAO moyen (par photon) reste égal à ℓ_i .

Le fait que le MAO moyen du faisceau ne soit pas modifié peut être compris de façon intuitive. Ici, c'est la magnétisation transverse m_x qui modifie la phase spatiale du faisceau lors de la réflexion. En effet, pour une polarisation incidente P , la composante P du faisceau réfléchi s'écrit comme la composante P incidente multipliée par le terme $r_{PP} + \alpha m_x$ (premier terme de l'équation 11.11). La composante P se voit donc déphasée de

$$\arg(r_{PP} + \alpha m_x) = \arg(r_{PP} + \alpha m_0 \cos \varphi) = \tan^{-1} \left(\frac{\mathcal{I}(r_{PP}) + \mathcal{I}(\alpha) m_0 \cos \varphi}{\mathcal{R}(r_{PP}) + \mathcal{R}(\alpha) m_0 \cos \varphi} \right), \quad (11.14)$$

ce qui a pour effet de modifier la densité locale de MAO. $\cos \varphi$ est successivement croissant (sur l'intervalle $] - \pi, 0[$) et décroissant (sur l'intervalle $] 0, \pi[$) lorsque φ augmente, et de plus la fonction $\tan^{-1} \left(\frac{a+bx}{c+dx} \right)$ est monotone quels que soient a, b, c et d (figure 11.4.a). Ainsi, la pente de phase imposée au faisceau réfléchi par le vortex magnétique est positive sur la moitié de l'intervalle $] - \pi, \pi[$, mais prend les valeurs opposées sur l'autre moitié. La 11.4.b montre la phase donnée par l'équation 11.14, pour des valeurs données de r_{PP} et α . Il s'agit du déphasage transverse imposé à la composante P du faisceau lors de sa réflexion sur le vortex magnétique. Ce déphasage intégrée le long d'une boucle entourant l'origine étant nulle, la réflexion sur un vortex magnétique ne change pas le MAO moyen - ni la charge topologique - d'un faisceau

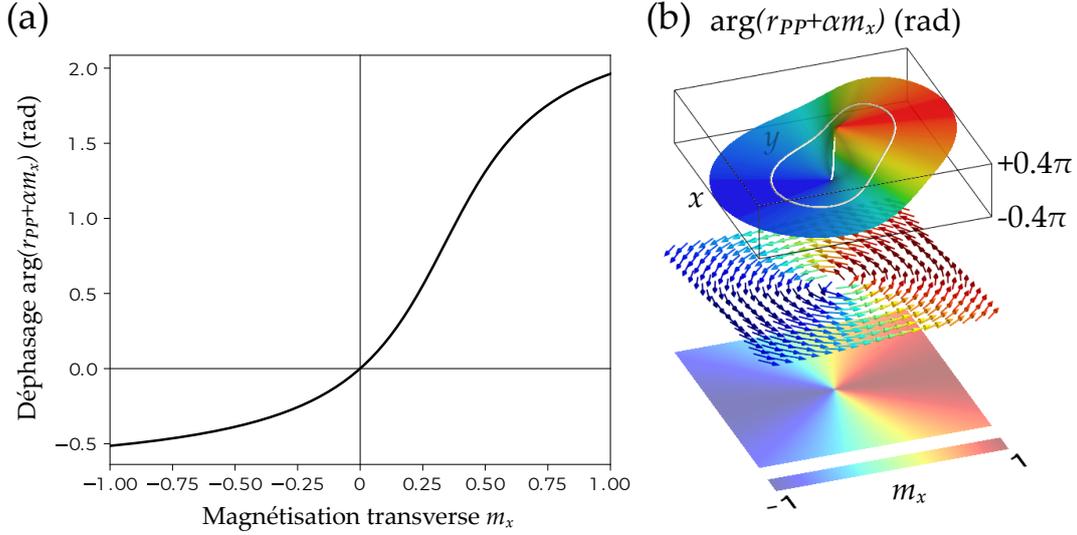


FIGURE 11.4 – (a) Phase de $r_{PP} + \alpha m_x$ en fonction de m_x . (b) Phase de $r_{PP} + \alpha m_x$, représentée sous la forme d'une surface courbe dont la couleur indique la hauteur, pour un vortex magnétique (représenté par les flèches tridimensionnelles, dont la couleur indique la valeur de la composante m_x). Il n'y a pas de variation nette de phase le long d'une boucle fermée enlaçant l'axe du faisceau réfléchi (courbe blanche). Les valeurs de r_{PP} et α correspondent au permalloy (alliage de nickel et de fer) à 52.8 eV à l'angle de Brewster $\theta_i = 48^\circ$.

incident polarisé P , mais élargit son spectre de MAO. Notons que la composante S du faisceau réfléchi étant simplement proportionnelle à la magnétisation longitudinale (équation 11.12), sa phase spatiale n'est pas modifiée lors du processus.

Expérimentalement, nous ne ferons pas de polarimétrie, la seule donnée accessible sera l'intensité du faisceau réfléchi en champ lointain, c'est-à-dire le carré du champ. Dans le cas d'un champ incident polarisé P (équation 11.12), on remarque la présence d'une somme d'un terme indépendant ($r_{PP}e^{i\ell_i\varphi}$) et d'un terme dépendant de la magnétisation ($\frac{1}{2}\alpha m_0(e^{i(\ell_i+1)\varphi} + e^{i(\ell_i-1)\varphi})$). L'expression de l'intensité du faisceau contiendra donc un terme croisé. Ce terme sera absent dans le cas d'une polarisation incidente S (équation 11.13). Comme on le verra plus loin, un champ incident polarisé P sera effectivement propice à l'observation de dichroïsmes hélicoïdaux intéressants. Ceux-ci auront pour origine l'interférence entre le mode de MAO ℓ_i et ceux de MAO $\ell_i \pm 1$.

Ces résultats peuvent être généralisés à une magnétisation possédant une dépendance azimutale quelconque. En effet, la magnétisation doit être une fonction périodique de φ , et on peut donc l'écrire sous la forme d'une série de Fourier azimutale

$$m_*(\varphi) = m_0 \sum_{n=-\infty}^{+\infty} m_*^{(n)} e^{in\varphi}, \quad (11.15)$$

où $*$ = x, y . Le champ réfléchi par la structure s'écrit alors

$$\mathbf{E}_r = A(r) \begin{pmatrix} e_P(r_{PP}e^{i\ell_i\varphi} + m_0 \sum_n (\alpha m_x^{(n)} e_P + \beta m_y^{(n)} e_S) e^{i(\ell_i+n)\varphi}) \\ e_S r_{SS} e^{i\ell_i\varphi} - e_P m_0 \beta \sum_n m_y^{(n)} e^{i(\ell_i+n)\varphi} \end{pmatrix}. \quad (11.16)$$

Pour un vortex magnétique tel que celui de l'équation 11.10, on a

$$\begin{aligned} m_x^{(n)} &= \begin{cases} \frac{1}{2}, & \text{si } n = \pm 1 \\ 0, & \text{si } n \neq \pm 1 \end{cases} \\ m_y^{(n)} &= \begin{cases} n \frac{i}{2}, & \text{si } n = \pm 1 \\ 0, & \text{si } n \neq \pm 1, \end{cases} \end{aligned} \quad (11.17)$$

et on retrouve bien le résultat attendu (équation 11.11).

En résumé, pour une magnétisation planaire avec une dépendance azimutale quelconque, sous un faisceau incident polarisé P ou S , le faisceau réfléchi s'écrit comme une somme de modes de MAO $\ell_i + n$, où n est l'indice des coefficients non-nuls de la série de Fourier azimutale de la magnétisation. La magnétisation étant une fonction réelle de φ , $m_x^{(-n)}$ est le complexe conjugué de $m_x^{(n)}$, donc le poids du mode de MAO $\ell_i + n$ est le même que celui du mode $\ell_i - n$. Ainsi, le spectre de MAO s'élargit mais reste bien centré sur ℓ_i . Pour un vortex magnétique planaire, seuls les MAO ℓ_i et $\ell_i \pm 1$ apparaissent dans le faisceau réfléchi.

Dichroïsme hélicoïdal magnétique (DHM)

La variation de phase spatiale imposée au faisceau lors de sa réflexion sur la surface magnétique va se traduire par une répartition différente de l'intensité dans le plan transverse après propagation en champ lointain. On s'attend ainsi à ce que l'intensité transverse observée soit différente selon que le faisceau incident porte un MAO positif, négatif ou nul, et selon le signe de m_0 . Par analogie avec le dichroïsme magnétique circulaire (DMC), on peut alors définir un dichroïsme hélicoïdal magnétique (DHM) comme la différence d'intensité transverse réfléchie pour différentes combinaisons de $(\ell, m_0) = (\pm \ell_i, \pm 1)$. Le DMC est auto-similaire, c'est-à-dire qu'on obtient le même signal de dichroïsme en inversant l'hélicité de la lumière incidente, ou en changeant le signe de la magnétisation. Comme on va le voir, ce ne sera pas le cas pour le DHM : inverser le MAO incident et la direction de la magnétisation ne sont pas deux actions équivalentes. On distingue ainsi trois types de DHM différents, selon qu'on change le signe de ℓ_i , de m_0 , où les deux simultanément

$$\begin{aligned} \text{DHM-}\ell &= I_{\ell_i, m_0} - I_{-\ell_i, m_0}, \\ \text{DHM-}m &= I_{\ell_i, m_0} - I_{\ell_i, -m_0}, \\ \text{DHM-}\ell m &= I_{\ell_i, m_0} - I_{-\ell_i, -m_0}. \end{aligned} \quad (11.18)$$

Pour chacun des trois DHM, il faut distinguer deux cas : ℓ_i et m_0 de même signe, ou de signe opposés. On obtient ainsi six images différentes. Comme on va le voir, les deux images correspondant à chacun des trois dichroïsmes seront tout de même reliées par des symétries.

L'expression des trois DHM peut être établie analytiquement en faisant l'hypothèse d'une incidence quasi-normale, bien que cela soit mathématiquement ardu. Le lecteur intéressé pourra se référer à l'article [285] (disponible à la fin du présent document). Ici, on se contentera de donner le résultat du calcul pour un vortex magnétique et pour

$\ell_i = \pm 1$ avec une polarisation incidente P :

$$\begin{aligned} \text{DHM-}\ell &\approx -m_0 \mathcal{R}(\alpha/r_{PP})(\mathcal{H}_1(r) + \mathcal{H}_{-1}(r)) \sin \varphi, \\ \text{DHM-}m &\approx m_0 |\alpha/r_{PP}| \sum_{n=\pm 1} \mathcal{H}_n(r) \sin(\varphi + n \cdot \arg(\alpha/r_{PP})), \\ \text{DHM-}\ell m &\approx m_0 \mathcal{I}(\alpha/r_{PP})(\mathcal{H}_{-1}(r) - \mathcal{H}_1(r)) \cos \varphi. \end{aligned} \quad (11.19)$$

où r et φ sont cette fois-ci les coordonnées polaires en champ lointain. Les fonctions $\mathcal{H}_n(r)$ dépendent uniquement du rayon r , de la longueur d'onde et de la distance de propagation entre le foyer et le champ lointain.

On constate tout d'abord que les expressions de ce DHM dépendent de la constante α décrivant le couplage entre le champ électromagnétique et la composante transverse de la magnétisation, alors que la constante β correspondant à la magnétisation longitudinale est absente. On retrouve ici l'idée que ce sont les variations azimutales de la magnétisation transverse qui ont une influence sur la phase spatiale du faisceau.

Ensuite, on constate que les DHM- ℓ et DHM- ℓm s'expriment simplement comme des fonctions sinusoïdales de φ , alors que le DHM- m aura une allure plus complexe, somme de deux sinus déphasés de $\arg(\alpha/r_{PP})$. La constante complexe α/r_{PP} pourra être déduite des observations conjointes des signaux de DHM- ℓ et DHM- ℓm , en les fittant avec les fonctions $\sin \varphi$ et $\cos \varphi$.

11.2.2 Simulations numériques du DHM

Nous allons à présent tester les précédentes prédictions à l'aide de simulations qui se veulent le plus réaliste possible, intégrant des constantes magnéto-optiques et des angles d'incidence réalistes. Dans la section 11.3, une expérience de DHM est réalisée sur du fer, matériau ferromagnétique dont le MOKE est bien connu et documenté dans la littérature. Dans les simulations qui suivent, nous modélisons l'interaction magnéto-optique dans le fer, afin de simuler fidèlement la situation expérimentale. Il nous faut tout d'abord déterminer un angle d'incidence et une longueur d'onde optimale pour observer les effets magnéto-optiques. Les métaux possèdent plusieurs seuils d'absorption, pour lesquels la réflectivité chute mais le module des constantes magnéto-optiques est optimisé. Dans ce chapitre on considère le seuil M du fer correspondant à l'excitation électronique $3p \rightarrow 3d$ ayant lieu pour une énergie de photon d'environ 50 eV, donc dans le domaine spectral XUV accessible typiquement par GHOE.

Détermination des constantes magnéto-optiques et choix de l'angle d'incidence et de la longueur d'onde

Les termes non magnétiques de la matrice de réflectivité sont les coefficients de Fresnel r_{PP} et r_{SS} , qui dépendent uniquement de l'indice complexe n et de l'angle d'incidence θ_i selon les équations 11.3 et 11.6. L'indice complexe du fer est tabulé à toutes les longueurs d'ondes, il est par exemple accessible dans la base de données CXRO (Center for X-ray Optics). Les termes proportionnels à la magnétisation (αm_x et βm_y) sont donnés par les équations 11.5 et 11.4. Mis à part n et θ_i , ils dépendent également du paramètre de Voigt Q . Pour obtenir la valeur de ce dernier, nous utilisons les valeurs de la rotation Faraday mesurées par Valencia *et al.* [286] pour différentes longueurs d'ondes au voisinage du seuil M du fer dans un l'alliage de fer et de nickel

$\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$ (permalloy), la relation entre rotation Faraday et Q étant fournie par T. Haider [287].

La figure 11.5 montre les modules des différentes constantes ainsi obtenues, en fonction de longueur d'onde et de l'angle d'incidence. On constate bien la présence d'un seuil aux alentours de 53 eV, correspondant à la résonance $3p$ du fer, pour lequel la réflectivité (i.e. les modules de r_{PP} et r_{SS}) chute. A cette énergie, les constantes magnéto-optiques α et β atteignent au contraire un maximum. Un autre seuil d'absorption, moins marqué, est observable aux alentours de 65 eV. Il est dû à la résonance du nickel. En ce qui concerne l'angle d'incidence, on constate bien la présence d'un angle dépendant de l'énergie) qui minimise r_{PP} , c'est l'angle de Brewster. De façon générale, et notamment pour des incidences rasantes, les modules de α est inférieur de presque deux ordres de grandeur à celui de r_{PP} . Cependant à l'énergie du seuil et à l'incidence de Brewster, α devient comparable en module à r_{PP} (figure 11.6). Ces conditions sont propices à l'observation du DHM car, comme on l'a vu plus haut, la modification de la phase azimutale du faisceau provient d'une interférence entre r_{PP} et αm_x . Dans la suite, et dans l'expérience rapportée dans la section 11.3, on se placera donc à l'énergie de résonance (52.8 eV), et à l'angle de Brewster $\theta_i = 48^\circ$.

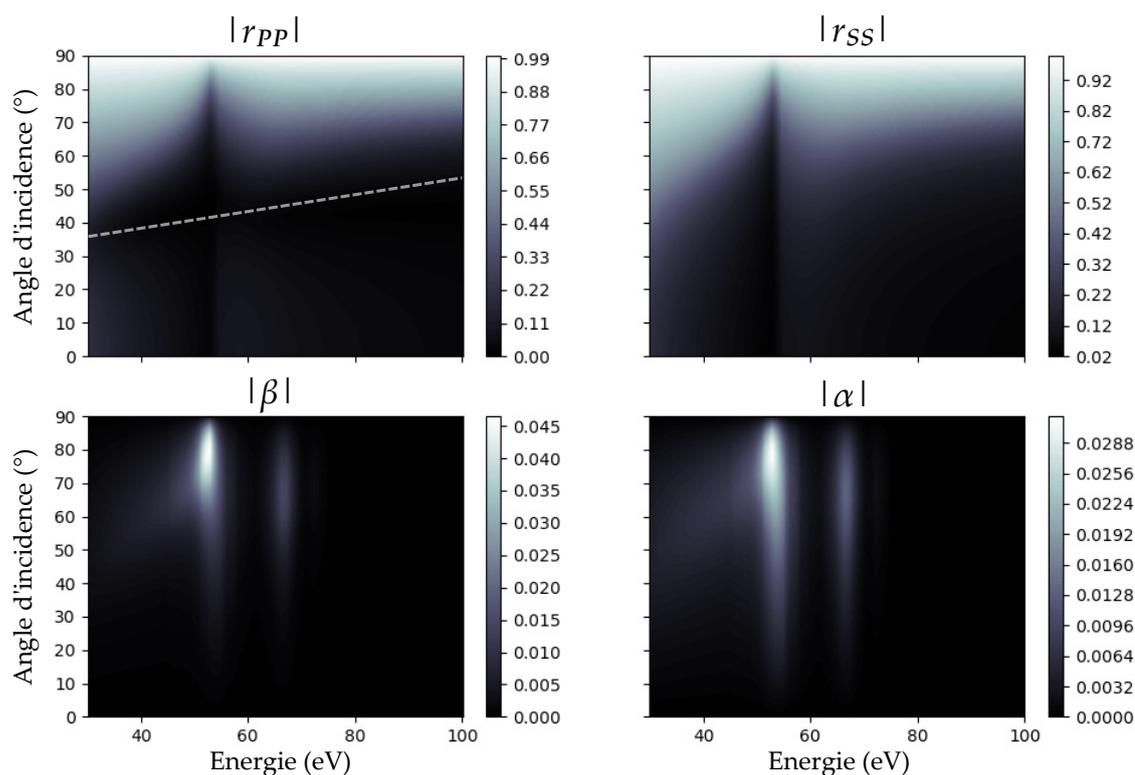


FIGURE 11.5 – Module des constantes magnéto-optiques r_{PP} , r_{SS} , α et β pour le permalloy, en fonction de l'angle d'incidence et de l'énergie de photon au voisinage du seuil $3p \rightarrow 3d$ du fer (53 eV). La ligne pointillée indique l'incidence de Brewster, pour laquelle le module de r_{PP} est minimal.

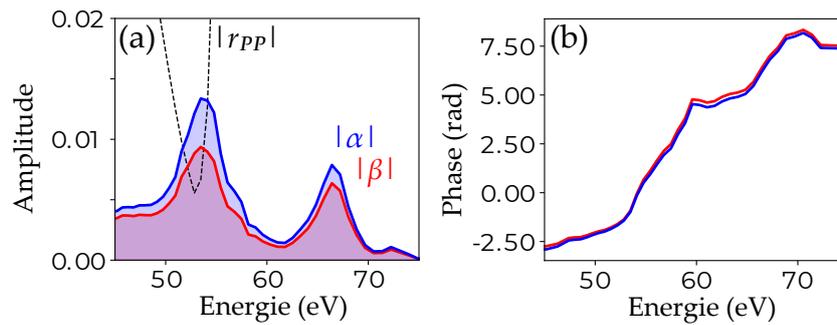


FIGURE 11.6 – (a) Modules des constantes MOKE α (en bleu) et β (en rouge) du permalloy au voisinage du seuil M du fer et du nickel. L'angle d'incidence est $\theta_i = 47.6^\circ$ (incidence de Brewster). (b) Phases de α (en bleu) et β (en rouge).

Modélisation de la situation physique

Le faisceau incident est un mode de LG pur d'indice azimutal ajustable. Sa longueur d'onde est supposée bien supérieure à la rugosité de la surface de la texture magnétique, qu'on suppose sub-nanométrique. Pour éviter d'avoir à traiter le cas où le faisceau diffracte sur le bord de la structure de magnétisation, on suppose que cette dernière a un diamètre plus grand que le waist du faisceau incident. Dans ces conditions, on couvre typiquement la plage de longueurs d'onde $10 \text{ nm} < \lambda < 1000 \text{ nm}$, qui contient les seuils d'absorption de la plupart des matériaux magnétiques d'intérêt. Dans ce chapitre, comme expliqué plus haut, on considère un échantillon de fer à 52.8 eV ($\lambda = 23.5 \text{ nm}$) à 48° d'incidence. Nous obtenons le champ réfléchi à la surface du métal en multipliant le champ incident par la matrice de réflectivité. La simulation ne fait pas l'hypothèse d'une incidence quasi-normale et est valide pour tous les angles d'incidence. Enfin, le champ réfléchi lointain (tel qu'il serait observé par une caméra) est obtenu en prenant la transformée de Fourier du champ réfléchi proche (voir [285] pour plus de détails sur la simulation).

Résultats de la simulation

La figure 11.7 montre l'intensité simulée en champ lointain, pour les quatre combinaisons possibles de $(\ell_i, m_0) = (\pm 1, \pm 1)$. On constate que chacune des quatre figures est reliées aux autres par des opérations de symétrie simples. Par exemple, $\{(1, 1), (-1, 1)\}$, $\{(1, -1), (-1, -1)\}$ ainsi que $\{(1, 1), (-1, -1)\}$ sont des couples d'images miroirs l'une de l'autre selon l'axe vertical ou horizontal. Au contraire, les images des couples $\{(1, 1), (1, -1)\}$ et $\{(-1, 1), (-1, -1)\}$ sont reliées par une rotation de 180° (ou de manière équivalente par inversions successives des axes verticaux et horizontaux). Nous verrons dans la section 11.4 comment comprendre ces symétries. Ainsi, les quatre images ont toute la même intensité totale. En s'attend donc à ce que les images de DHM soient nulles une fois intégrées spatialement. De plus, les images étant reliées par des symétries miroir et/ou de rotation autour de l'origine, le signal DHM au centre de l'image doit toujours être nul.

Finalement, la figure 11.8 présente les images de dichroïsme obtenues lorsqu'on calcule les différences des profils de la figure 11.7 deux à deux. Comme prévu, chacune des images est nulle une fois intégrée spatialement. La valeur maximale du DHM est élevée, de l'ordre de 85% de la valeur pic de l'intensité réfléchie. Les images de

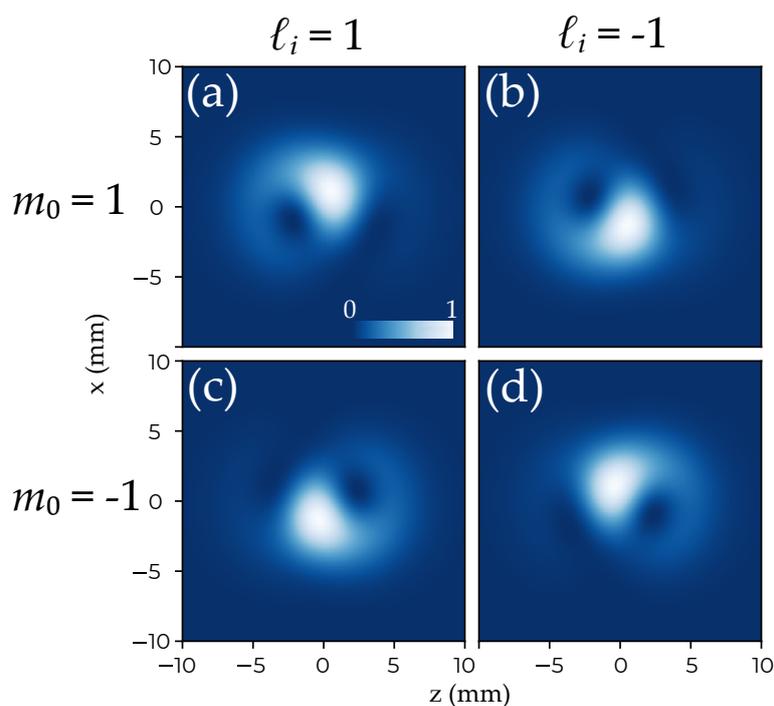


FIGURE 11.7 – Intensité transverse en champ lointain du faisceau réfléchi par un vortex magnétique planaire, pour $\ell_i = \pm 1$ et $m_0 = \pm 1$. Les quatre images partagent la même échelle de couleur.

DHM- ℓ et DHM- ℓm correspondent à ce qui avait été prédit théoriquement à faible incidence : elle prennent la forme d'un produit d'une fonction radiale et d'une fonction sinusoïdale de l'angle azimutal. L'image DHM- m a une allure de symbole yin-yang et ses dépendances radiale et azimutales ne peuvent pas être factorisées. Là encore, les deux images correspondant à chaque type de DHM sont reliées par des symétries miroir et des rotations, ce qui sera aussi expliqué dans la section 11.4.

11.3 Résultats expérimentaux

Afin de tester les précédentes prédictions, on réalise une expérience de réflexion d'un faisceau de lumière sur un vortex magnétique de taille micrométrique. L'expérience utilise la ligne DiProI (Diffraction and Projection Imaging) [288] du laser à électron libre (LEL) FERMI à Trieste, dédiée à l'imagerie par diffraction cohérente de domaines magnétiques. Le LEL est capable de fournir un faisceau de lumière cohérent très intense⁴, et de fréquence ajustable. On peut donc se placer exactement à l'énergie de la résonance.

11.3.1 Paramètres de l'expérience

L'échantillon de permalloy est un ellipsoïde pourvu d'une partie bisautée triangulaire (*pacman*, figure 11.10), fabriqué par pulvérisation cathodique et lithographie sur

4. De l'ordre de 2.5×10^{-5} J/impulsion, pour des impulsions d'environ 100 fs, contre moins de 10^{-8} J/impulsion pour une harmonique standard obtenue par GHOE.

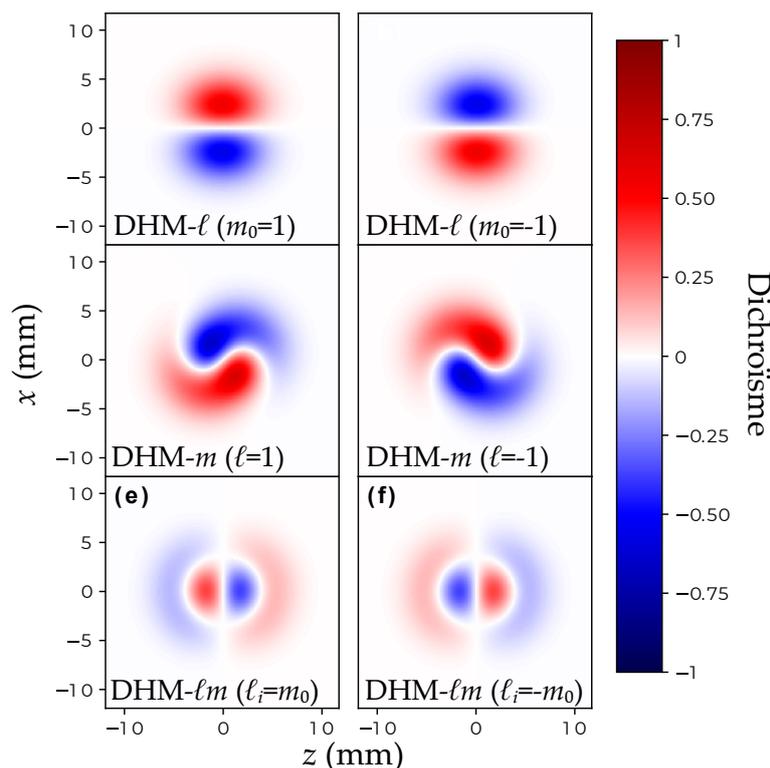


FIGURE 11.8 – DHM- l (première ligne), DHM- m (deuxième ligne) et DHM- lm (troisième ligne) pour un vortex magnétique dans du fer, à 52.8 eV 48° d'incidence.

un substrat de silicium, par nos collègues du CEA Grenoble. Son épaisseur est de 80 nm, son petit diamètre de 15 μm , et il est protégé par une couche d'aluminium de 3 nm, laquelle s'oxyde au contact de l'air. Si l'on sature la magnétisation du domaine de permalloy avec un champ magnétique externe uniforme perpendiculaire à la direction du biseau (figure 11.9), puis qu'on supprime ce champ, la magnétisation relaxe et forme une structure rémanente proche d'un vortex idéal. Le signe du champ magnétique externe détermine la direction d'enroulement du vortex magnétique. La forme exacte de l'échantillon a été optimisée par des calculs micro-magnétiques afin de garantir la création d'un unique vortex rémanent dont le diamètre est approximativement 15 μm . Dans l'expérience, le champ magnétique est généré par des bobines et vaut environ 20 mT au niveau de l'échantillon. Ce dernier peut être déplacé par des platines de translation précises à 100 nm près, afin d'aligner le faisceau incident sur le centre du vortex magnétique.

Le faisceau incident collimaté a une énergie de photon de 52.8 eV, et l'angle d'incidence sur l'échantillon (angle de Brewster) est de 48°. Ils nous faut focaliser le faisceau pour obtenir un foyer plus petit que le vortex magnétique. Pour cela, on place dans le faisceau une lame de zones spirale (LZS, figure 11.9) en silicone, fabriquée par nos collaborateurs de l'institut Paul Scherrer [107]. Une lame de zones est un réseau binaire annulaire, qui joue le rôle d'une lentille de focalisation pour l'XUV et les rayons-X. Puisqu'il fonctionne grâce à la diffraction, il s'agit d'un élément optique chromatique dont la distance focale dépend de la longueur d'onde. Si la lame à zone arbore une structure spiralante (figure 11.10.a), elle va simultanément focaliser le faisceau et lui transférer du MAO. Plus précisément, le foyer comportera un ordre de diffraction zéro

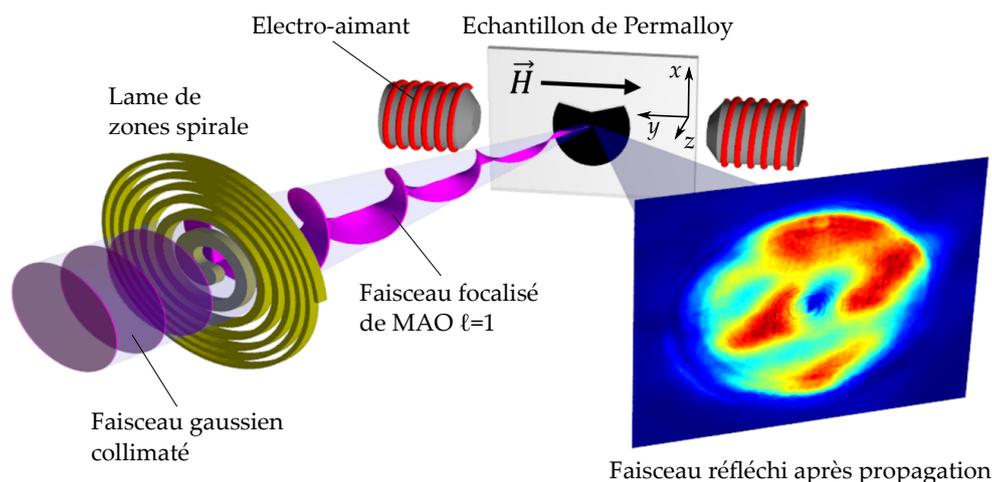


FIGURE 11.9 – Schéma du dispositif expérimental.

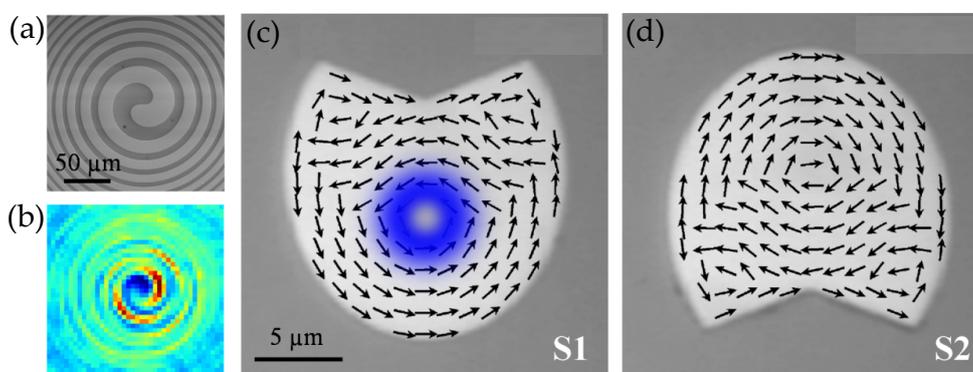


FIGURE 11.10 – (a) Image de la lame de zone de charge $\ell_i = 1$ au microscope électronique. (b) Figure d'interférence hors-foyer, correspondant à l'interférence entre un ordre 0 de diffraction gaussien et un ordre $\ell_i = 1$. (c,d) Images de deux échantillons de Permalloy de type "pacman" au microscope électronique, auxquelles on a superposé la magnétisation rémanente simulée pour un champ de saturation horizontal (flèches noires). Le profil estimé du faisceau incident est représenté en bleu.

gaussien, et un ordre de diffraction 1 portant un MAO égal à la charge topologique de la LZS (figure 11.10.b). Après filtrage de l'ordre zéro à l'aide d'une ouverture de $500 \mu\text{m}$ de diamètre placée 100 mm en aval de la LZS, on obtient un vortex optique focalisé. Dans notre cas la distance focale à 52.8 eV est de 133 mm , pour un waist d'environ $4 \mu\text{m}$ (figure 11.10.c).

11.3.2 Dichroïsmes hélicoïdaux mesurés

En pratique, mesurer le DHM- ℓ s'est révélé très peu reproductible et nous ne sommes pas parvenus à obtenir les images attendues. La raison est que dans toute mesure de DHM, le bon alignement du faisceau incident sur le centre du vortex magnétique est crucial. Or, pour inverser le signe de ℓ_i , il faut changer de LZS, ce qui oblige à recommencer la procédure d'alignement.

Au contraire, pour observer le DHM- m on se contente de changer la direction du

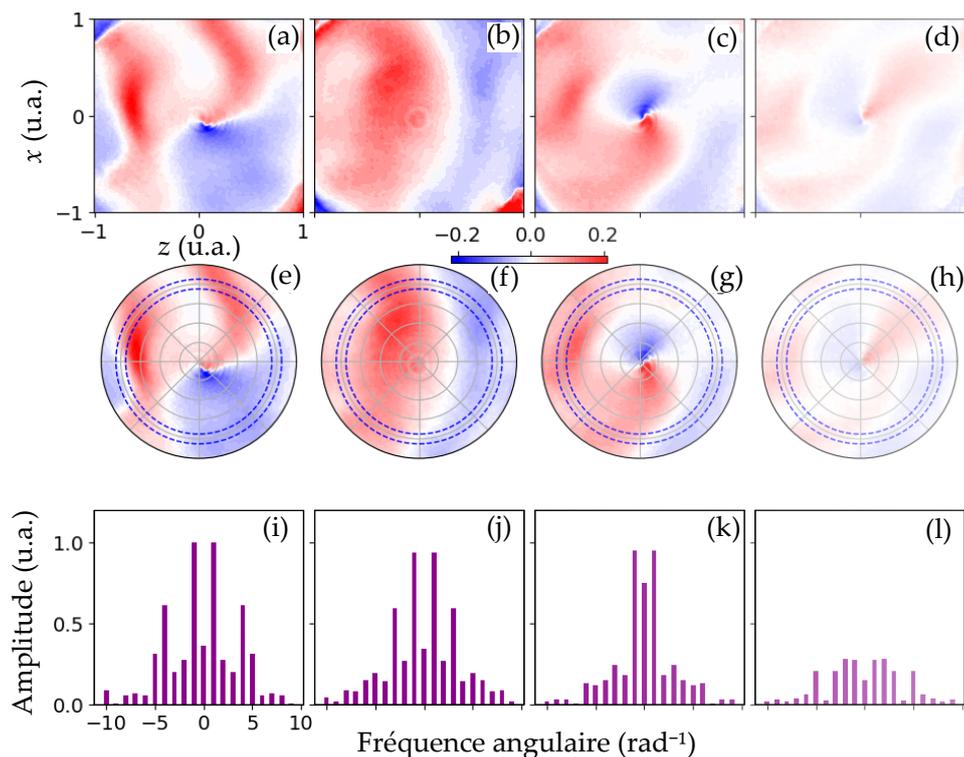


FIGURE 11.11 – (a-b) Images DHM- m brutes obtenues avec un vortex magnétique et correspondant à (a) $l_i = -1$, (b) $l_i = 0$, (c) $l_i = 1$ et (d) $l_i = 1$ mais une magnétisation saturée et quasi-uniforme. (e-h) Images interpolées en coordonnées polaires. (i-l) Transformées de Fourier azimutales des images interpolées, en intégrant entre les deux cercles pointillés bleu.

vortex magnétique. En pratique, on inverse pour cela le sens du courant dans la bobine magnétique. Cette action est bien reproductible et ne modifie pas l’alignement du faisceau. La figure 11.11 montre les images de DHM- m brutes obtenues en soustrayant les intensités en champ lointain correspondant à $m_0 = \pm 1$, pour $l_i = -1, 0, 1$. A ce stade, on peut déjà observer les symétries attendues. La mesure a également été effectuée en saturant uniformément la magnétisation de l’échantillon (donc en l’absence de vortex magnétique), ce qui donne une image bien moins contrastée (le signal de dichroïsme chute de $2/3$ environ) et ne présentant pas de symétrie évidente.

Afin de débruiter la figure, on applique la procédure suivante. L’image est interpolée sur une base polaire, puis une transformée de Fourier azimutale est effectuée (figure 11.11.i-l). Dans les spectres attendus théoriquement (figure 11.12.i-l), les composantes d’ordre supérieur à 3 contribuent à hauteur de moins de 3% du total, et sont donc négligeables. Nous les retirons donc du spectre expérimental, et après déconvolution nous obtenons les images de la figure 11.13.

Les images de DHM- m pour $l_i \neq 0$ présentent bien une forme en spirale, et l’image $l_i = -1$ est reliée à l’image $l_i = 1$ par une symétrie miroir horizontale. Un dichroïsme d’aspect plus trivial est également obtenu pour $l_i = 0$. Il devrait présenter un zéro de signal le long de la ligne verticale passant par l’origine, mais cette ligne est légèrement décalée à cause d’un alignement imparfait du faisceau incident sur le vortex magnétique. Afin de vérifier la cohérence de notre expérience, nous avons effectué la même

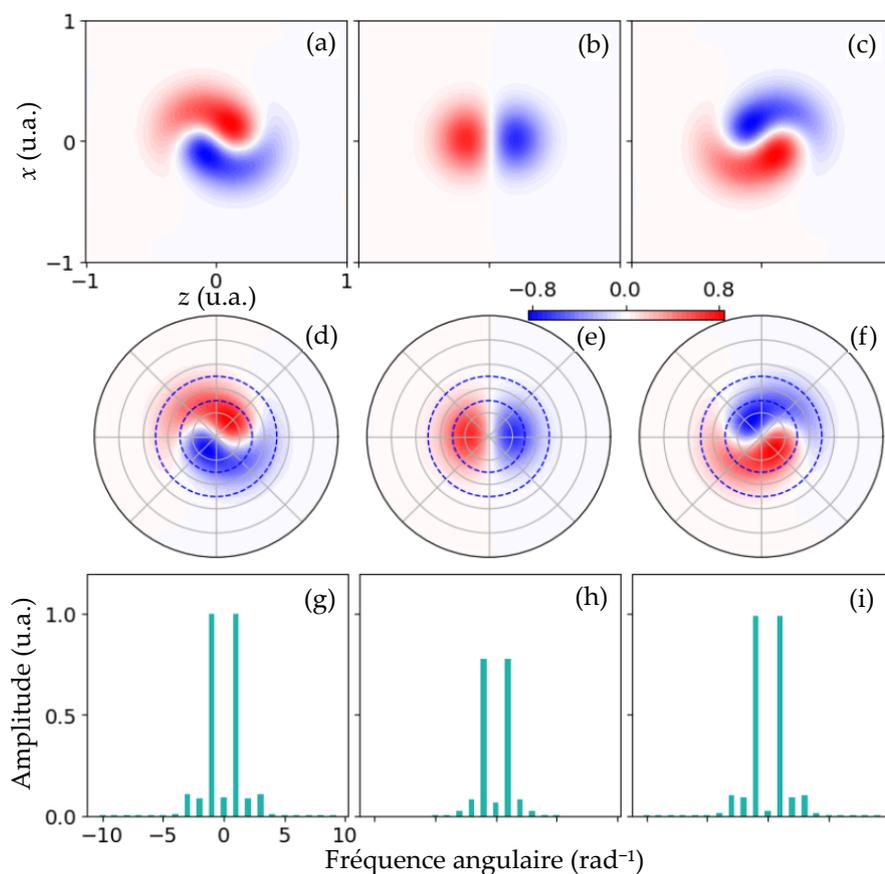


FIGURE 11.12 – (a-b) Images DHM- m simulées. (a) $\ell_i = -1$, (b) $\ell_i = 0$ et (c) $\ell_i = 1$. (e-h) Images interpolées en coordonnées polaires. (i-l) Transformées de Fourier azimutales des images interpolées, en intégrant entre les deux cercles pointillés bleu.

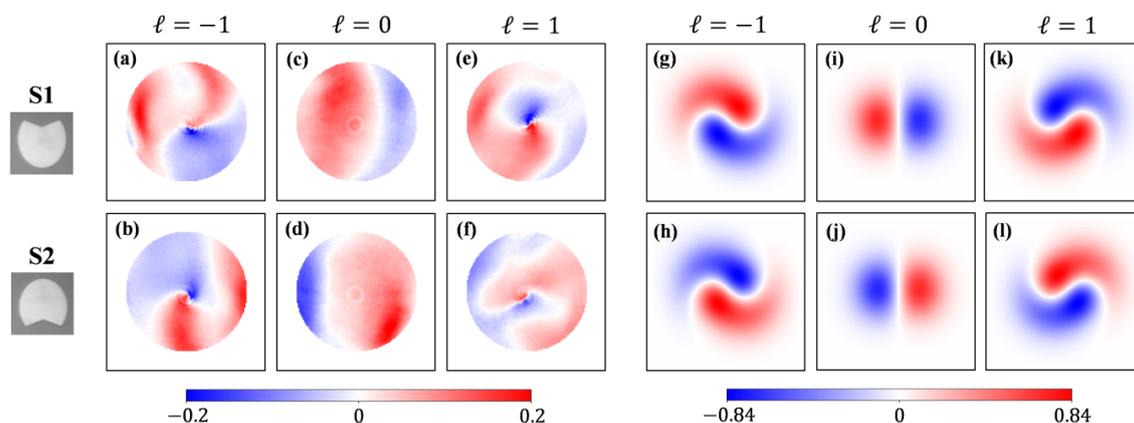


FIGURE 11.13 – (a-f) Dichroïsmes MHD- m mesurés expérimentalement, pour deux échantillons de permalloy pointant dans des directions opposées (voir figure 11.10, et pour $\ell_i = -1, 0, 1$. (g-l) Simulation pour les mêmes paramètres. Entre la première et la deuxième ligne d'images, le vortex magnétique a un sens opposé, ainsi les images du bas doivent être égales à l'opposé des images du haut.

mesure sur deux échantillons "pacman" tournés de 180° l'un par rapport à l'autre, c'est-à-dire avec des vortex magnétiques de directions d'enroulement opposées obte-

nus pour une même direction de champ magnétique externe. Cela revient à ajouter un signe moins devant toutes les images de dichroïsme, ce qui est compatible avec les résultats de la figure 11.13. Enfin, on constate un signal de dichroïsme expérimental près de 4 fois inférieur en intensité au dichroïsme prévu par la simulation ($\sim 20\%$ contre 84%). Cette différence peut être attribuée à la couche de 3 nm d'aluminium oxydé protégeant les échantillons magnétiques, qui n'est pas prise en compte dans la simulation (voir le *supplementary materials* de la ref.[42]).

11.4 Dichroïsme hélicoïdal magnétique et symétries

Nous allons maintenant tenter de comprendre les symétries des différentes images obtenues en champ lointain pour différentes combinaisons (ℓ_i, m_0) , ce qui nous permettra d'interpréter les symétries des images DHM. La figure 11.14 résume ces symétries. Nous devons tout d'abord déterminer quelles transformations associer au fait d'inverser le MAO incident ($\ell_i \rightarrow -\ell_i$) et au fait d'inverser le sens du vortex magnétique ($m_0 \rightarrow -m_0$).

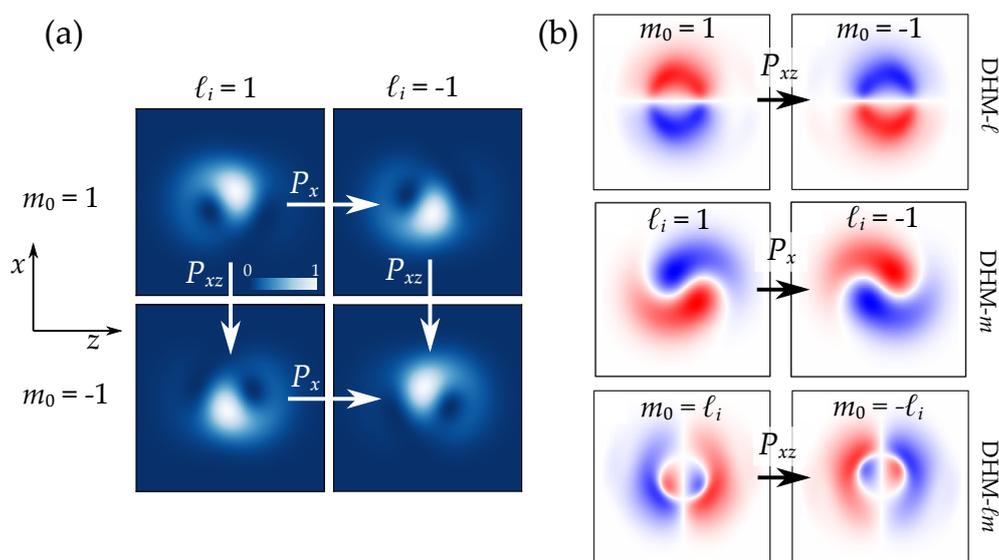


FIGURE 11.14 – Opérations de symétrie reliant les différentes images en champ lointain (a), ainsi que les images de dichroïsme (b). P_* désigne l'inversion de la coordonnée $*$.

11.4.1 Moment angulaire, vraie et fausse chiralité

On considère que les lois de la physique doivent être invariantes sous trois opérations de symétries discrètes : la parité, le renversement du temps, et la conjugaison de la charge électrique [289]. Ici seules les deux premières opérations nous intéressent. On note P_{xyz} l'opération de parité qui consiste à inverser le vecteur position $(x, y, z) \rightarrow (-x, -y, -z)$. Cette opération est équivalente à une réflexion par un miroir plan suivie d'une rotation de 180° autour d'un axe normal au miroir. Par extension, on note P_x , P_y et P_z les opérations qui inversent seulement l'une des trois coordonnées

spatiales. Le renversement du temps est noté P_t ⁵. Il faut l'interpréter comme une inversion du mouvement des particules d'un système, plutôt que de considérer un système qui remonte le temps.

L'opération de parité P_{xyz} est intimement liée à la notion de *chiralité*, que nous n'avons pas réellement discuté jusqu'ici. Lord Kelvin introduit ce terme en 1898, et définit un objet chiral comme étant non-superposable à son image dans un miroir plan. Les deux versions de l'objet chiral, reliées par symétries miroir (et donc par parité P_{xyz}) furent historiquement appelées *chiroides*. On parle désormais plutôt d'énantiomères, notamment dans le cas de molécules chirales. Pour être plus précis, il faut distinguer *vraie chiralité* et *fausse chiralité* [289]. La première est associée à des énantiomères qui sont échangés par l'opération de parité P_{xyz} , mais pas par renversement du temps P_t suivie d'une rotation appropriée. La seconde concerne des énantiomères échangés par P_{xyz} mais également par P_t suivie d'une rotation.

Que se passe-t-il - en termes de symétries - lorsqu'on inverse le moment angulaire (MAS ou MAO) d'un faisceau de lumière? Deux faisceaux de MAO ℓ et $-\ell$ (ou bien de MAS -1 et 1) sont images miroirs l'un de l'autre, et sont donc impairs sous l'action de P_x, P_y, P_z ainsi que sous l'action des trois opérations combinées P_{xyz} . On pourrait s'attendre à ce que le MAO soit également invariant selon P_t , car inverser le sens du temps inverse la direction de rotation du champ électrique pour le MAS, et le sens de rotation du profil de phase pour le MAO. Cependant, inverser le sens du temps a aussi pour effet d'inverser la direction de propagation du faisceau. Finalement, ces deux effets combinés s'annulent et le moment angulaire est invariant (pair) lorsqu'on inverse le signe du temps (figure 11.15).

En conclusion, le moment angulaire de la lumière est impair sous P_{xyz} et pair sous P_t , c'est donc une quantité à laquelle on associe une *vraie* chiralité [13].

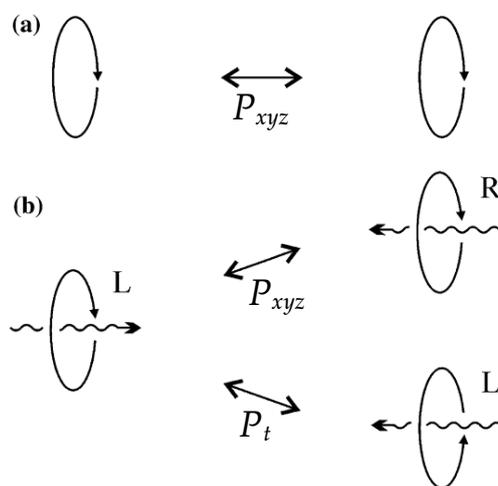


FIGURE 11.15 – Effet de la parité P_{xyz} et du renversement du temps P_t sur le mouvement de (a) une particule tournante et (b) une particule tournante animée d'un mouvement de translation. La parité transforme une orbite orientée gauche (L) en une orbite orientée droite (R). Extrait de Barron *et al.* [289].

5. Et non pas T , pour le différentiel de \mathbf{T} , le moment torique que nous allons introduire plus loin.

11.4.2 Vortex magnétiques et moment torique

Intéressons nous à présent aux symétries de la structure magnétique, ici un vortex magnétique planaire. Commençons par observer comment le champ magnétique \mathbf{H} créé par une petite spire de courant est modifié par les opérations de parité et de renversement du temps (figure 11.16). Supposons que \mathbf{H} est parallèle à l'axe y . L'opération P_y ne change pas le champ magnétique car elle laisse la boucle de courant invariante. Au contraire, les opérations P_x et P_z renversent le signe du champ. Ainsi, la transformation P_{xyz} laisse le champ \mathbf{H} inchangé, contrairement au renversement du temps P_t qui inverse le courant dans la boucle, et donc le champ magnétique.

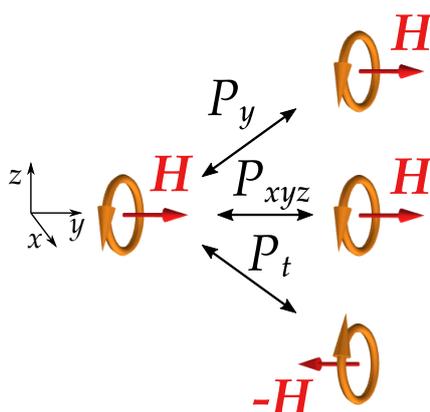


FIGURE 11.16 – Propriétés de symétries du champ magnétique \mathbf{H} généré par une boucle de courant.

Considérons à présent un vortex magnétique dans le plan (x, y) . On peut l'imaginer comme étant généré par une série de spires de courant formant un tore (figure 11.17). On associe à ce tore un *moment torique*, noté \mathbf{T} , orienté selon l'axe z . On pourrait penser que l'image du vortex magnétique dans un miroir plan vertical (opération P_x ou P_y) donnerait un vortex magnétique de sens opposé. Cependant, une telle réflexion laisse l'ensemble de spires invariant : certaines spires voient leur courant inversé, mais leurs positions sont également inversée. Par contre, l'opération P_z renverse le courant de toutes les spires, et inverse donc le moment torique. Finalement, \mathbf{T} est donc impair sous l'action de P_{xyz} . \mathbf{T} est également impair sous l'action de P_t . Ainsi, le moment torique d'un vortex magnétique (qui n'est pas un objet chiral) ne possède pas les mêmes symétries que le moment angulaire de la lumière. On retiendra que changer le sens du vortex magnétique (i.e. le signe de m_0) revient à renverser le sens du temps. Le comportement des différentes quantités vectorielles est résumé dans le tableau 11.1.

TABLE 11.1 – Symétries de différentes quantités qui nous intéressent.

$P_t \backslash P_{xyz}$	Pair	Impair
Pair	×	Vraie chiralité (ex : moment angulaire \mathbf{J}) Champ électrique \mathbf{E}
Impair	Champ magnétique \mathbf{H}	Fausse chiralité Moment torique \mathbf{T}

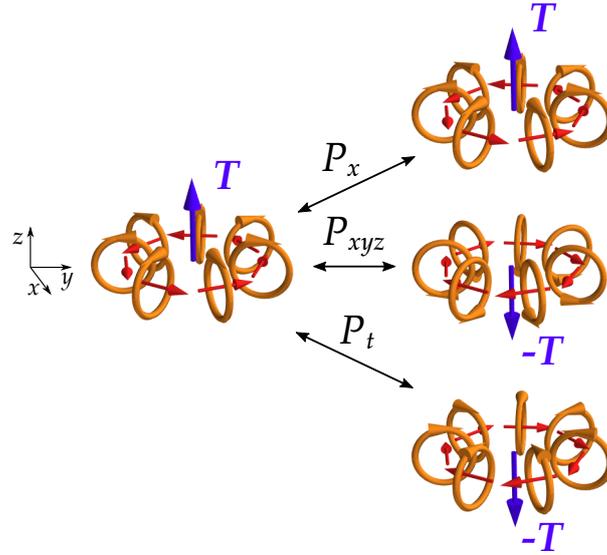


FIGURE 11.17 – Propriétés de symétries du moment torique T créé par un tore formé de spires de courant.

11.4.3 Interprétation des symétries des images

Considérons à présent les symétries de notre expérience globale. On considère que le vortex magnétique se trouve dans le plan (x, y) , que le plan d'incidence est (y, z) et que le plan du détecteur est (x, z) (figure 11.18). Réaliser une mesure de DHM- ℓ consiste à inverser le signe du MAO ℓ_i sans modifier la structure magnétique ou les autres paramètres de l'expérience, c'est-à-dire réaliser l'opération $(\ell_i, m_0) \rightarrow (-\ell_i, m_0)$. On sait désormais qu'une telle opération est réalisée par P_x . Ceci explique pourquoi les images (ℓ_i, m_0) et $(-\ell_i, m_0)$ sont reliées par une inversion de la coordonnée x . De même, les deux images DHM- m étant obtenues pour des valeurs opposées de ℓ_i , elles doivent être également être échangées lorsqu'on inverse la coordonnée x . C'est bien ce qu'on observe figure 11.14.b. Enfin, on peut comprendre la symétrie des images DHM- ℓ individuelles en observant que

$$\begin{aligned}
 \text{DHM-}\ell(x, z) &= I_{\ell_i, m_0}(x, z) - I_{-\ell_i, m_0}(x, z) \\
 &= I_{\ell_i, m_0}(x, z) - I_{\ell_i, m_0}(-x, z) \\
 \Rightarrow \text{DHM-}\ell(-x, z) &= I_{\ell_i, m_0}(-x, z) - I_{\ell_i, m_0}(x, z) \\
 &= -\text{DHM-}\ell(x, z)
 \end{aligned} \tag{11.20}$$

Ainsi, les arguments de symétrie expliquent pourquoi les images DHM- ℓ présentent une antisymétrie haut/bas (figure 11.14.b).

Réaliser une mesure de DHM- m consiste à inverser le moment torique du vortex magnétique en laissant les autres paramètres invariants, ce qui revient à changer le sens du temps. Comme on peut le voir sur la figure 11.18, les situations (1) et (3) sont reliées par une rotation de 180° de l'ensemble du système, à condition que l'on suppose que la même physique décrit un faisceau incident *au-dessous* et *au-dessus* de l'interface magnétique. Cette hypothèse est valable, car la matrice de réflectivité ne suppose pas la position du faisceau incident par rapport à l'interface, mais spécifie seulement l'angle et le plan d'incidence. Ainsi, on comprend pourquoi les images (ℓ_i, m_0) et $(\ell_i, -m_0)$ sont reliées par une rotation de 180° (figure 11.14.a). C'est également le cas des deux images

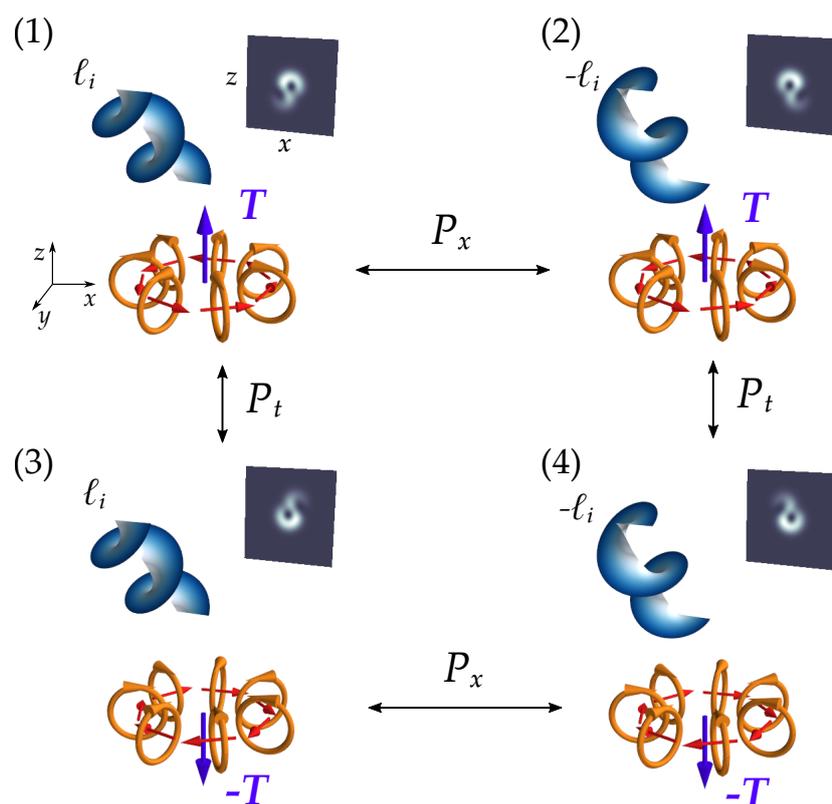


FIGURE 11.18 – La situation initiale (1) correspond à un MAO incident ℓ_i et un vortex magnétique de moment torique \mathbf{T} . En réalisant une inversion de la coordonnée x (miroir plan P_x), on réalise l'opération $\ell_i \rightarrow -\ell_i$, $\mathbf{T} \rightarrow \mathbf{T}$, et on obtient la situation (2). P_x correspond donc au DHM- ℓ . En inversant le sens du temps (P_t), on réalise l'opération $\ell_i \rightarrow \ell_i$, $\mathbf{T} \rightarrow -\mathbf{T}$ qui permet de passer de (1) à (3) et correspond au DHM- m . Cette opération fait tourner l'image obtenue de 180° .

DHM- ℓ (figure 11.14.b), obtenues pour des valeurs opposées de m_0 . Enfin, on en déduit les symétries des images DHM- m individuelles

$$\begin{aligned}
 \text{DHM-}m(x, z) &= I_{\ell_i, m_0}(x, z) - I_{\ell_i, -m_0}(x, z) \\
 &= I_{\ell_i, m_0}(x, z) - I_{\ell_i, m_0}(-x, -z) \\
 \Rightarrow \text{DHM-}m(-x, -z) &= I_{\ell_i, m_0}(-x, -z) - I_{\ell_i, m_0}(x, z) \\
 &= -\text{DHM-}m(x, z)
 \end{aligned} \tag{11.21}$$

La forme spiralée des images DHM- m présente bien une antisymétrie sous rotation de 180° (figure 11.14.b).

Enfin, réaliser une mesure de DHM- ℓm revient à effectuer les opérations P_x et P_t successivement, donc à combiner une inversion de x et une rotation de 180° . Cette dernière opération étant égale à une inversion simultanée de x et de z , la transformation totale est simplement une inversion de la coordonnée z . C'est effectivement ce qu'on peut observer entre les images (ℓ_i, m_0) et $(-\ell_i, -m_0)$ (figure 11.14.a), ainsi qu'entre les deux images de DHM- ℓm (figure 11.14.b). Les images DHM- ℓm individuelles obéissent

donc à

$$\begin{aligned}
 \text{DHM-}\ell m(x, z) &= I_{\ell_i, m_0}(x, z) - I_{-\ell_i, -m_0}(x, z) \\
 &= I_{\ell_i, m_0}(x, z) - I_{\ell_i, m_0}(x, -z) \\
 \Rightarrow \text{DHM-}\ell m(x, -z) &= I_{\ell_i, m_0}(x, -z) - I_{\ell_i, m_0}(x, z) \\
 &= -\text{DHM-}\ell m(x, z),
 \end{aligned} \tag{11.22}$$

ce qui explique pourquoi les images DHM- ℓm présentent une antisymétrie gauche/droite (figure 11.14.b).

Conclusion du chapitre

Au cours de ce chapitre, nous avons étudié l'interaction magnéto-optique entre un faisceau de lumière portant le MAO ℓ_i (mais pas de MAS) et une texture magnétique planaire de type vortex. Pour cela, il nous a tout d'abord fallu introduire les équations fondamentales du MOKE, notamment la matrice de réflectivité dans la base des polarisations P et S . Ensuite, en supposant une incidence presque normale et en considérant la série de Fourier azimutale du vecteur magnétisation, nous avons calculé analytiquement le contenu en MAO du faisceau réfléchi. Pour un vortex magnétique planaire, le faisceau réfléchi est une superposition de modes de MAO ℓ_i et $\ell_i \pm 1$, mais le MAO moyen par photon ainsi que la charge topologique du faisceau restent égaux à ℓ_i . Des simulations réalistes, prenant en compte l'angle d'incidence ainsi que les constantes magnéto-optiques du fer, viennent confirmer ces prédictions. De plus, l'interférence entre les modes de MAO ℓ_i et $\ell_i \pm 1$ lors de la propagation en champ lointain mène à des intensités transverses différentes selon le signe et la valeur de ℓ_i , et selon la direction d'enroulement du vortex magnétique. Nous prédisons ainsi un dichroïsme hélicoïdal magnétique (DHM) différentiel, observable en prenant la différence des images obtenues pour différentes valeurs de ℓ_i et m_0 . Ces images, ainsi que les transformations les reliant les unes aux autres, découlent des symétries de notre expérience sous inversion des coordonnées spatiales et temporelle.

Le DHM a été observé avec des vortex optiques générés dans l'XUV par le laser à électrons libres FERMI [42]. L'accord entre théorie et expérience est correct. Dans les années à venir, des expériences de DHM similaires sont prévues dans notre laboratoire à ATTOLAB, utilisant les faisceaux XUV porteurs de MAO et de MAS du chapitre 11. Toute la difficulté est de parvenir à re-focaliser les harmoniques jusqu'à obtenir une tache focale de quelques microns seulement, plus petite que les textures magnétiques que nous pouvons fabriquer. Pour cela, les futures expériences utiliseront un jeu de deux miroirs cylindriques dans une configuration de Kirkpatrick-Baez (KB) [290].

Dans le chapitre suivant, nous étendons le DHM au cas d'une polarisation incidente quelconque et de textures avec un vecteur magnétisation tridimensionnel, tels que des skyrmions. Nous verrons que cette généralisation amène une grande diversité de phénomènes tels que des couplages spin-orbite optiques, des transferts de moment angulaire entre la lumière et la matière, et des DHM nets observables sur l'axe optique du faisceau réfléchi.

Couplage spin-orbite optique induit par les textures magnétiques

Comme nous l'avons évoqué au chapitre 3 (section 3.4), des couplages entre MAS et MAO sont attendus lorsque la lumière interagit avec un milieu à la fois anisotrope et inhomogène [291, 292]. Lors de la propagation, le contenu en MAO peut alors dépendre de la valeur (du signe notamment) du MAS du faisceau en entrée du système, et vice-versa. Ces effets de couplage ou d'interaction spin-orbite (ISO) sont par exemple exploités par les q-plates (voir section 2.3.4) pour contrôler le MAO avec la polarisation du faisceau incident [109, 110].

La matière magnétisée est, bien entendu, anisotrope. De plus, la direction de la magnétisation peut être inhomogène : c'est le cas dans les textures de magnétisation. On peut donc s'attendre à observer une ISO lorsque un faisceau de lumière interagit avec un vortex ou un skyrmion magnétique. L'observation de cet ISO pourrait être utile pour "lire" les skyrmions avec la lumière, c'est-à-dire détecter leur présence et mesurer leurs propriétés avec un faisceau de très petite tache focale, dans le domaine des rayons X par exemple. Pourtant, les études des ISO induites par le magnétisme en général sont rares [293, 294].

Dans ce chapitre, on se propose de montrer qu'une ISO a bien lieu lors de la réflexion d'un faisceau de lumière sur une texture magnétique. Alors que le chapitre précédent s'intéressait au DHM en lumière polarisée linéairement, ici on va considérer un faisceau incident portant un MAS $\pm\hbar$ par photon. Si, au chapitre précédent, on observait bien des modifications du spectre de MAO de la lumière, le MAO moyen restait inchangé, ce qui ne sera pas le cas ici. Le MAO moyen porté par les photons peut augmenter ou diminuer lors de la réflexion, et le signe de la variation est contrôlé par le MAS du faisceau incident. Comme on le verra, ce nouvel effet d'ISO en magnéto-optique a pour origine une interférence azimutale entre les effets magnéto-optiques longitudinal et transverse, qui sont couplés par les deux composantes de la polarisation circulaire incidente. Nous allons montrer que les vortex et skyrmions magnétiques sont des textures idéales pour observer ces effets, qui se traduisent par un signal de DHM *net* sur l'axe du faisceau réfléchi.

Nous n'avons pas pu mener d'expériences visant à observer cette ISO durant cette thèse. Ce chapitre est donc purement théorique.

Choix de la longueur d'onde et de l'angle d'incidence

La taille typique des skyrmions étant de l'ordre de la centaine de nanomètres, nous devons diminuer la taille du foyer du faisceau incident. A 52 eV, la limite de diffraction est d'environ 24 nm, ce qui est trop grand pour considérer des situations réalistes. Nous décidons donc de réaliser nos calculs et simulations au seuil L du fer, à 710 eV environ. La limite de diffraction est alors de 1.7 nm seulement.

Le modèle que nous considérons est le même qu'au chapitre précédent, mais l'angle de Brewster, et donc les constantes optiques r_{PP} et r_{SS} , et les constantes magnéto-optiques α , β et γ , ont des valeurs différentes. On considère un angle d'incidence de 52° . La figure 12.1 montre l'amplitude et la phase des constantes magnéto-optiques aux alentours du seuil. On retiendra que les constantes ont approximativement la même amplitude, et que α et β sont parfaitement en phase (les deux courbes ne sont pas distinguables sur la figure). Ce fait aura des conséquences importantes.

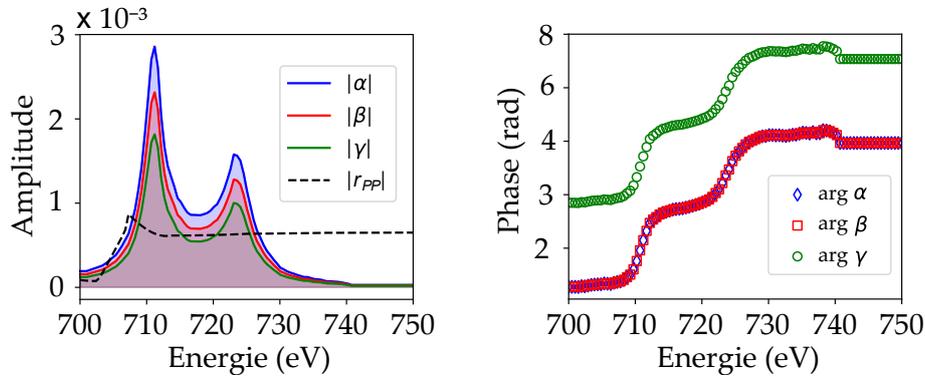


FIGURE 12.1 – Module (gauche) et phase (droite) des constantes magnéto-optiques au voisinage de seuil L du fer, dans un alliage de Permalloy. Les constantes magnéto-optiques obtenues comme au chapitre précédent en combinant les indices optiques issus de CXRO et de dichroïsme circulaire [295].

12.1 Calculs du changement de MAO moyen

Nous considérons, pour ces calculs analytiques, une incidence quasi normale. Le champ incident est donné par l'équation 11.8. Nous reprenons le calcul à partir de l'équation 11.9, en y ajoutant cette fois l'effet de la magnétisation polaire. Le champ réfléchi s'écrit en fonction des trois composantes de la magnétisation selon

$$\mathbf{E}_r = \mathbf{R}\mathbf{E}_i = A(r)e^{it_i\varphi} \begin{pmatrix} e_P(r_{PP} + \alpha m_x(r, \varphi)) + e_S(\beta m_y(r, \varphi) + \gamma m_z(r, \varphi)) \\ e_P(-\beta m_y(r, \varphi) + \gamma m_z(r, \varphi)) + e_S r_{SS} \end{pmatrix}. \quad (12.1)$$

Regardons de plus près les composantes P et S du champ réfléchi. Pour une polarisation incidente elliptique, des termes correspondant aux effets MOKE transverse, longitudinal et polaire contribuent à la composante P du champ réfléchi, tandis que la composante S comporte uniquement des contributions des effets MOKE longitudinal et polaire. Nous verrons dans la suite que l'ISO recherchée résulte de l'interférence entre deux termes MOKE variant azimuthalement. Pour les vortex magnétiques ou les skyrmions, qui n'ont pas de magnétisation polaire variant azimuthalement, les effets de

la magnétisation transverse et longitudinale sont couplés (c'est-à-dire *interfèrent spatialement*) si la polarisation du champ incident possède à la fois des composantes P et S non nulles. En particulier, ce sera le cas si le champ incident est polarisé circulairement : on aura alors $(e_P, e_S) = (1, \sigma i) = (1, \pm i)$. On devine donc que le MAS du faisceau incident va gouverner le signe du couplage. Inversement, nous n'attendons aucune variation du MAO moyen par photon si le champ incident est polarisé linéairement selon P ou S : ce cas a été traité au chapitre précédent, et ne mène à aucune variation de la charge topologique du faisceau (voir figure 11.4).

Décomposons la magnétisation en ses composantes de Fourier. L'équation 12.1 devient, en omettant la dépendance radiale $A(r)$

$$\mathbf{E}_r = \begin{pmatrix} e_P r_{PP} e^{i\ell_i \theta} + m_0 \sum_n (\alpha m_x^{(n)} e_P + (\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)}) e_S) e^{i(\ell_i+n)\theta} \\ e_S r_{SS} e^{i\ell_i \theta} + m_0 \sum_n e_P (-\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)}) e^{i(\ell_i+n)\theta} \end{pmatrix}. \quad (12.2)$$

On remarque que le MAO incident ℓ_i a été redistribué sur les modes $\ell_i + n$, le poids de chacun de ces modes étant proportionnel à $|\alpha m_x^{(n)} e_P + (\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)}) e_S|^2 + |e_P (-\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)})|^2$ pour $n \neq 0$. On peut exprimer l'intensité totale réfléchie I_r (proportionnelle au nombre total de photons réfléchis) comme suit

$$I_r = |e_P r_{PP}|^2 + |e_S r_{SS}|^2 + |m_0|^2 \sum_n \left(|\alpha m_x^{(n)} e_P + (\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)}) e_S|^2 + |e_P (-\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)})|^2 \right). \quad (12.3)$$

Le MAO moyen après réflexion est donc

$$\bar{\ell}_r = \frac{1}{I_r} \left[(\ell_i (|e_P r_{PP}|^2 + |e_S r_{SS}|^2) + |m_0|^2 \sum_n (\ell_i + n) \left(|\alpha m_x^{(n)} e_P + (\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)}) e_S|^2 + |e_P (-\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)})|^2 \right) \right], \quad (12.4)$$

et la variation du MAO moyen entre le champ incident et le champ réfléchi est

$$\Delta \bar{\ell} = \bar{\ell}_r - \ell_i = \frac{|m_0|^2}{I_r} \sum_n n \left(|\alpha m_x^{(n)} e_P + (\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)}) e_S|^2 + |e_P (-\beta m_y^{(n)} + \gamma m_z^{(n)})|^2 \right). \quad (12.5)$$

De manière intéressante, nous constatons que la variation de MAO ne dépend pas de la direction de la magnétisation, c'est-à-dire du signe de m_0 . Pour les vortex et skyrmions planaires, il n'y a pas de variation azimutale de m_z , donc $m_z^{(n)} = 0$, et seuls les termes $n = \pm 1$ contribuent aux autres composantes de l'aimantation (équation 11.10). Ainsi, dans le cas des vortex et des skyrmions magnétiques, le faisceau réfléchi est dans une superposition de modes de MAO ℓ_i , $\ell_i + 1$ et $\ell_i - 1$. La modification du MAO moyen se réduit alors à

$$\Delta \bar{\ell}_{\text{Sk}} = \frac{|m_0|^2}{2I_r} \left(|e_P \alpha + i e_S \beta|^2 - |e_P \alpha - i e_S \beta|^2 \right). \quad (12.6)$$

A partir d'ici nous pouvons distinguer différents cas, selon l'état de polarisation incident. Si le faisceau incident est polarisé linéairement (c'est-à-dire polarisée P , polarisée S , ou linéaire dans n'importe quelle direction), on trouve $\Delta\bar{\ell}_{\text{Sk}} = 0$, comme au chapitre précédent. Ceci provient du fait que les constantes α et β ont la même phase (figure 12.1), de sorte que $|e_P\alpha + ie_S\beta|^2 = |e_P\alpha - ie_S\beta|^2$, pour toutes valeurs réelles de e_P et e_S . Par contre, si la polarisation incidente est circulaire, nous trouvons

$$\Delta\bar{\ell}_{\text{Sk}} = \frac{\sigma|m_0|^2(\alpha^*\beta + \alpha\beta^*)}{2I_r} \sim \frac{\sigma|m_0|^2|\alpha\beta|}{I_r}. \quad (12.7)$$

Pour les constantes magnéto-optiques considérées ici à 711.2 eV, on trouve $\Delta\bar{\ell}_{\text{Sk}} \approx \sigma \times 0.39 \approx \pm 40\%$ ¹. Nous avons donc bien à faire à une forme de couplage spin-orbite, puisque le changement de MAO $\Delta\bar{\ell}_{\text{Sk}}$ peut être positif ou négatif selon l'hélicité σ du champ incident σ . Notons que le changement de MAO se produit uniquement dans la composante P du faisceau, la composante S demeure un mode de MAO ℓ_i .

Pour comprendre cet effet de couplage plus simplement, observons la composante P du champ de l'équation 12.1. Elle contient notamment le terme $e_P\alpha m_x + e_S\beta m_y$. Pour un champ incident circulaire, ce terme vaut $\alpha m_x \pm i\beta m_y$. Si les composantes m_x et m_y varient comme $\cos\varphi$ et $\sin\varphi$, ce terme s'écrit $\alpha \cos\varphi \pm i\beta \sin\varphi \approx e^{\pm i\varphi}$, car α et β sont presque égaux. On trouve donc bien qu'une variation de phase hélicoïdale $\pm\varphi$ est imposée à la composante P du faisceau réfléchi. Plus généralement, si l'on considère des vortex ou des skyrmions d'ordre N_{Sk} , tels que m_x et m_y varient comme $\cos N_{\text{Sk}}\varphi$ et $\sin N_{\text{Sk}}\varphi$, alors la variation de phase de la composante P du faisceau est $\pm N_{\text{Sk}}\varphi$.

La figure 12.2 montre la variation de phase imposée à la composante P du faisceau lors de la réflexion pour un vortex magnétique, pour différentes polarisation incidentes et $N_{\text{Sk}} = 1, 2$. On trouve bien une variation de charge topologique nulle pour un champ incident polarisé linéairement, positive pour un champ circulaire droit et négative pour un champ circulaire gauche.

12.2 Simulations de l'interaction spin-orbite

Dans cette section, nous reprenons la simulation du chapitre précédent, en implémentant les nouvelles constantes magnéto-optiques. L'énergie de photon du faisceau incident est de 711.2 eV, et l'angle d'incidence est de 52° (angle de Brewster). Les autres paramètres de la simulation (en particulier la modélisation exacte de l'échantillon et du substrat magnétique) sont les mêmes qu'au chapitre précédent.

12.2.1 Skyrmions

Pour modéliser la texture magnétique, nous utilisons l'ansatz de skyrmion suivant [296, 297]

$$\mathbf{m}_{\text{Sk}} = (m_x, m_y, m_z) = (C(\theta) \sin\{f(r)\}, S(\theta) \sin\{f(r)\}, \cos\{f(r)\}), \quad (12.8)$$

1. Notons qu'il s'agit seulement d'une estimation. En effet, pour obtenir ce chiffre, nous avons utilisé les valeurs des constantes magnéto-optiques correspondant à une incidence de Brewster, alors que le calcul a été effectué en supposant une incidence normale.

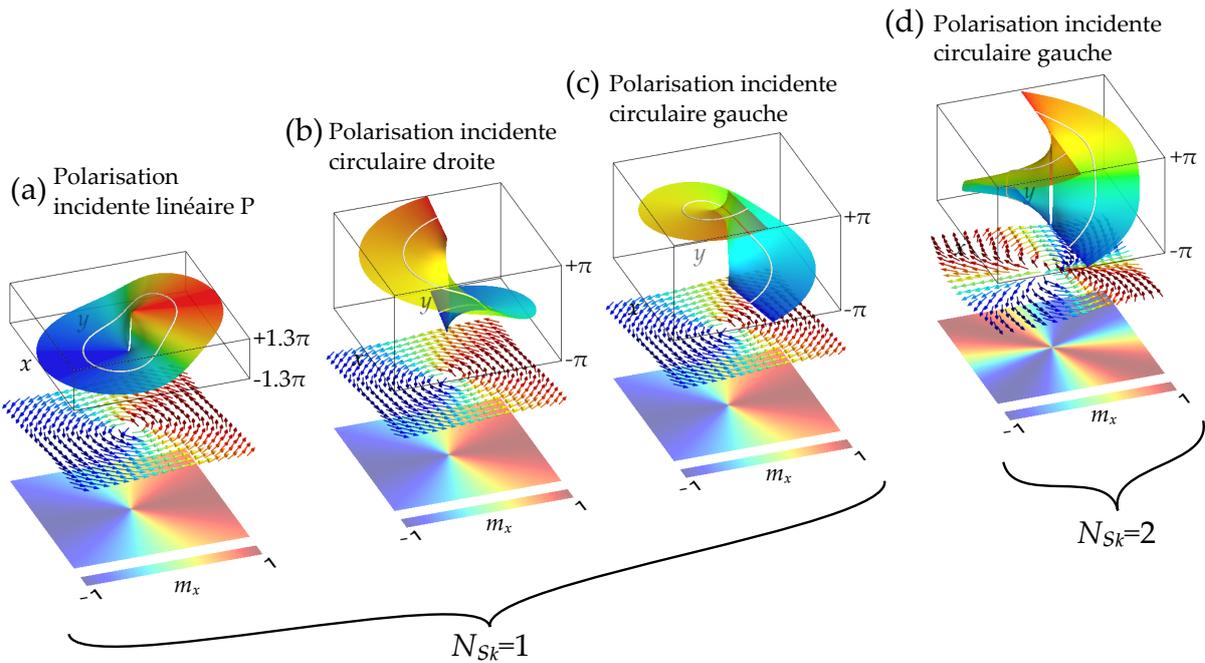


FIGURE 12.2 – Déphasage spatial de la composante P du champ lors de la réflexion sur un vortex de magnétisation. La couleur de l'isosurface indique la phase locale, tandis que les images du bas montrent l'amplitude de la magnétisation transverse m_x . (a) Pour un champ incident polarisé P . La variation de la charge topologique est nulle, car le déphasage net le long d'une boucle entourant l'axe optique (courbe blanche) est nulle. (b,c) Pour un champ incident circulaire droit ($\sigma = 1$) et circulaire gauche ($\sigma = -1$), il y a un déphasage net de $\pm 2\pi$ le long de la boucle blanche, et donc une variation positive (b) ou négative (c) de la charge topologique. (d) Les vortex d'ordre supérieur induisent des variations plus importantes de la charge topologique. Ici, nous obtenons une variation de phase azimutale de 4π avec un vortex magnétique d'ordre $N_{Sk} = 2$.

avec $C(\theta) = \cos(N_{Sk}\theta + h)$ et $S(\theta) = \sin(N_{Sk}\theta + h)$. Le paramètre h est appelé *héllicité*², et détermine le type du skyrmion. $h = 0, \pi$ correspond à la solution de type *Néel* (la magnétisation n'a alors pas de composante azimutale) et $h = \pm\pi/2$ donne une solution de type *Bloch* (ressemblant à un vortex). N_{Sk} est appelée *charge* du skyrmion, et vaut 1 pour les vortex magnétique et les skyrmions de Bloch et de Néel. Une bonne approximation de la fonction $f(r)$ est [297]

$$f(r) = 4 \tan^{-1} \left(e^{\frac{r}{\Lambda}} \right), \quad (12.9)$$

où Λ détermine l'extension spatiale du skyrmion. Dans la suite, on prendra $\Lambda = 100$ nm, afin d'être en accord avec les tailles des skyrmions observées expérimentalement [277]. Le waist du faisceau incident vaut lui aussi 100 nm.

12.2.2 Calcul de la densité de MAS et de MAO du faisceau réfléchi

Comme au chapitre précédent, le champ réfléchi est obtenu par produit du champ incident par la matrice de réflectivité, puis propagé jusqu'au détecteur par l'opérateur

2. À ne pas confondre avec l'héllicité du champ électromagnétique.

de Fraunhofer. Nous souhaiterions calculer les densités de MAS et de MAO du champ réfléchi, afin de quantifier les variations prédites par le calcul analytique. Nous utilisons pour cela les formules obtenues par Bliokh *et al.* [298], données en unité gaussiennes. Dans ce formalisme, la densité d'énergie du champ électromagnétique, de fréquence ω , est donnée par l'équation 1.40

$$U = \frac{g\omega}{2}(|\mathbf{E}|^2 + |\mathbf{B}|^2), \quad (12.10)$$

où $g = \frac{1}{8\pi\omega}$ en unités gaussiennes. La densité d'impulsion est alors donnée par

$$\mathbf{p} = \frac{g}{2} \mathcal{I} [\mathbf{E}^* \cdot (\nabla) \mathbf{E} + \mathbf{B}^* \cdot (\nabla) \mathbf{B}], \quad (12.11)$$

avec

$$\mathbf{E}^* \cdot (\nabla) \mathbf{E} = \begin{pmatrix} \sum_j E_j^* \frac{\partial E_j}{\partial x} \\ \sum_j E_j^* \frac{\partial E_j}{\partial y} \\ \sum_j E_j^* \frac{\partial E_j}{\partial z} \end{pmatrix}. \quad (12.12)$$

Finalement, les densités de MAO et de MAS projetés sur z sont respectivement données par

$$L_z = (\mathbf{r} \times \mathbf{p}) \cdot \mathbf{u}_z, \quad (12.13)$$

$$S_z = \frac{g}{2} \mathcal{I} [\mathbf{E}^* \times \mathbf{E} + \mathbf{B}^* \times \mathbf{B}] \cdot \mathbf{u}_z. \quad (12.14)$$

12.2.3 Résultats de la simulation

La figure 12.3 montre le résultat de la simulation pour un mode de LG de MAO $\ell_i = 1$ et de MAS $\sigma = -1$ et $\sigma = 1$, incident sur un skyrmion de Bloch.

Pour $\sigma = -1$, nous observons dans les intensités et phases des composantes P et S (figure 12.3.a,c), que la composante P a été presque entièrement convertie en un mode gaussien $\ell = 0$, étant donné qu'elle arbore un maximum d'intensité sur l'axe, et une phase spatiale plate. De son côté, la composante S conserve la phase hélicoïdale du faisceau incident, correspondant au MAO $\ell_i = 1$. La valeur moyenne du MAO par photon, obtenue en pondérant le MAS moyen (figure 12.3.e) par l'intensité locale et en intégrant le résultat sur le plan transverse, est $\bar{\ell}_{\text{sk}} = 0.79\hbar$. Ainsi, le MAO moyen par photon a été réduit de 21% durant l'interaction magnéto-optique. Cela correspond à environ la moitié de la valeur prédite par le modèle analytique, la raison de cette différence étant attribuée au fait que le modèle analytique suppose une incidence normale. Inversement, pour $\sigma = +1$, le MAO moyen par photon après la réflexion est $\bar{\ell} = 1.21\hbar$, donc plus grand que celui du faisceau incident (figure 12.3.f). Cette augmentation du MAO est visible dans la phase de la composante P du champ réfléchi, qui arbore une variation de 4π avec l'azimut typique d'un MAO de 2 (figure 12.3.b). Ces observations sont en accord avec les conclusions du modèle analytique, prédisant que le MAS du champ incident détermine le signe de la variation de MAO. Bien entendu, le champ réfléchi obtenu n'est pas un mode de LG pur : si l'on observe bien les phases hélicoïdales attendues, les profils d'intensité sont assez torturés.

La figure 12.4 montre la même analyse, cette fois pour un skyrmion de Néel. Les effets observés sont les mêmes. Comme expliqué plus haut, l'utilisation de skyrmions

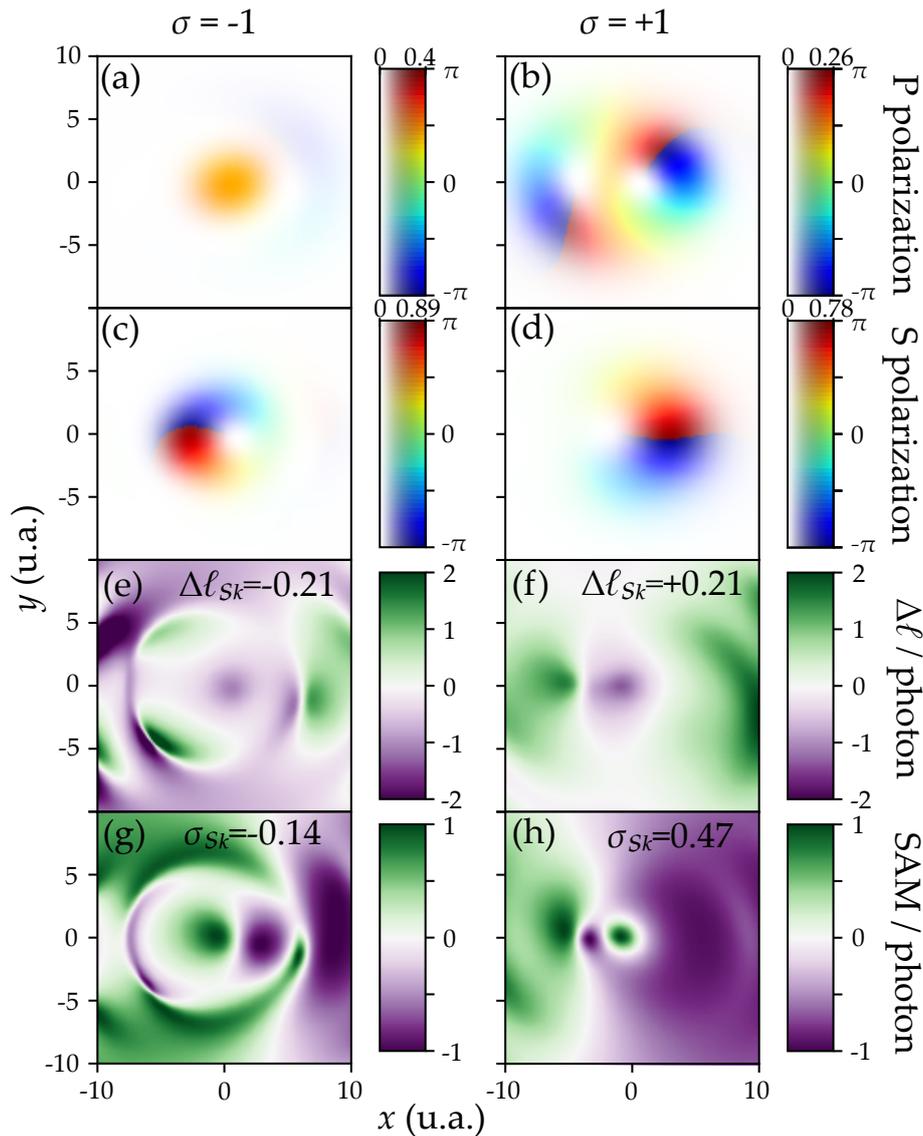


FIGURE 12.3 – Analyse du champ lointain réfléchi par un skyrmion de Bloch, pour un faisceau incident portant le MAO $\ell_i = 1$ et polarisé circulaire gauche ($\sigma = -1$, colonne de gauche) ou circulaire droite ($\sigma = 1$, colonne de droite). (a,b) Composante P . (c,d) Composante S . La phase est indiquée par la couleur, et l'intensité locale correspond à la luminosité. (e,f) Densité de MAO. (g,h) Densité de MAS. L'intensité pic du faisceau en champ lointain est normalisée à 1.

d'ordre supérieur ($N_{\text{Sk}} > 1$) permet de modifier le MAO de la composante P du faisceau de plus d'une unité. La figure 12.5 montre le cas d'un skyrmion de Bloch de charge $N_{\text{Sk}} = 2$. Pour $\sigma = -1$, le MAO de la composante P est changé de 1 à -1 lors de la réflexion. Pour $\sigma = 1$, il est changé de 1 à 3. La variation de MAO moyen est bien de $\sim 40\%$, soit deux fois celle observée pour $N_{\text{Sk}} = 1$.

Échange de moment angulaire avec la matière

Grâce à ces simulations, nous constatons que le changement de MAO par photon lors de la réflexion n'est pas compensé par le changement de MAS. Considérons par

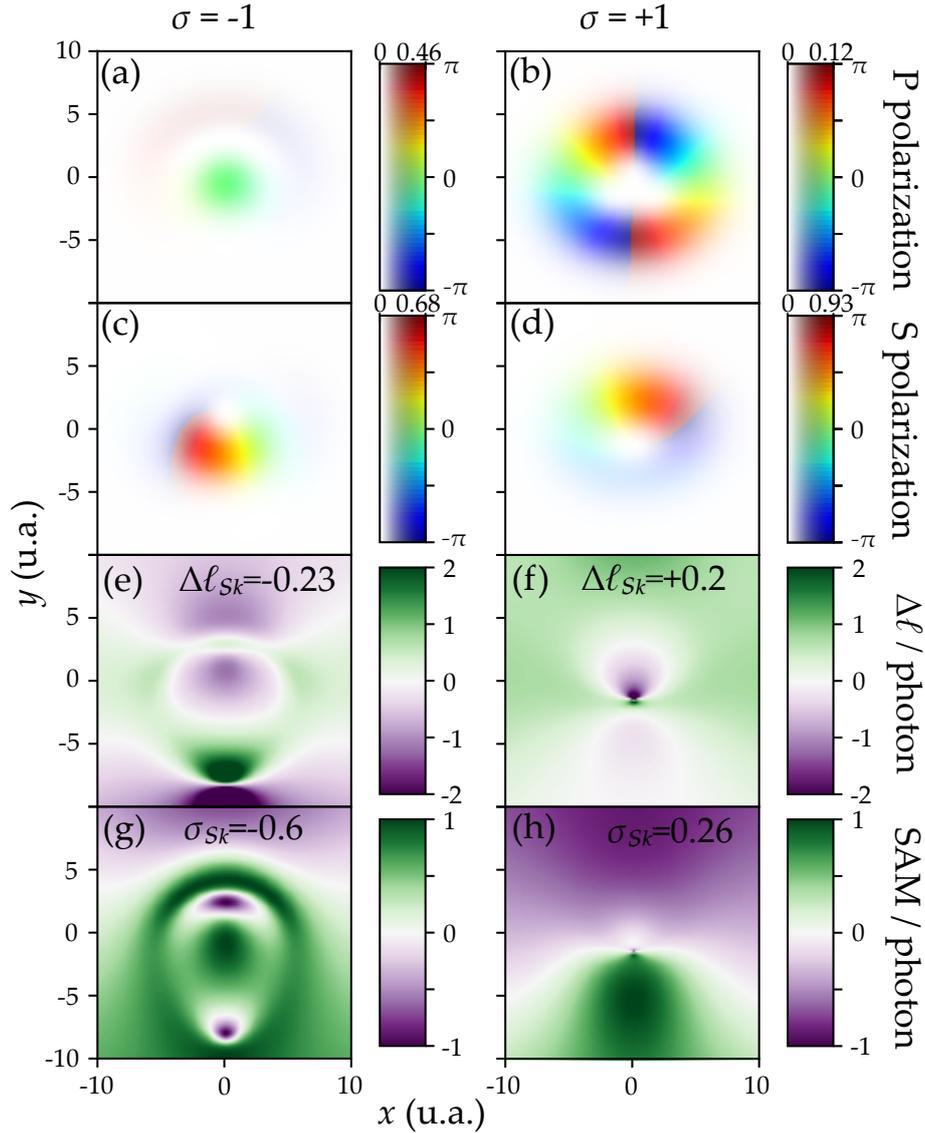


FIGURE 12.4 – Analyse du champ lointain réfléchi par un skyrmion de Néel, pour un faisceau incident portant le MAO $\ell_i = 1$ et polarisé circulaire gauche ($\sigma = -1$, colonne de gauche) ou circulaire droite ($\sigma = 1$, colonne de droite). (a,b) Composante P . (c,d) Composante S . La phase est indiquée par la couleur, et l'intensité locale correspond à la luminosité. (e,f) Densité de MAO. (g,h) Densité de MAS. L'intensité pic du faisceau en champ lointain est normalisée à 1.

exemple la situation de la figure 12.3. Le MAO moyen du faisceau incident est 1, et celui du faisceau réfléchi est 1 ± 0.21 . En intégrant la densité de MAS pondérée par l'intensité sur le plan transverse, nous trouvons numériquement que la MAS moyen par photon du champ réfléchi est $\bar{\sigma}_{Sk}\hbar \approx -0,14\hbar$ pour $\sigma = -1$, et $\bar{\sigma}_{Sk}\hbar \approx 0,47\hbar$ pour $\sigma = +1$, indépendamment de la direction d'enroulement du vortex magnétique et du MAO du champ incident. Nous concluons qu'une certaine quantité de moment angulaire est transférée à la matière durant le processus. Notons que cette conversion *partielle* de MAS en MAO était attendue : étant donnée que l'échantillon magnétique n'est pas symétrique par rotation (en raison de l'anisotropie induite par les coefficients de réflectivité de Fresnel r_{PP} et r_{SS}), il n'y a aucune raison pour que le moment an-

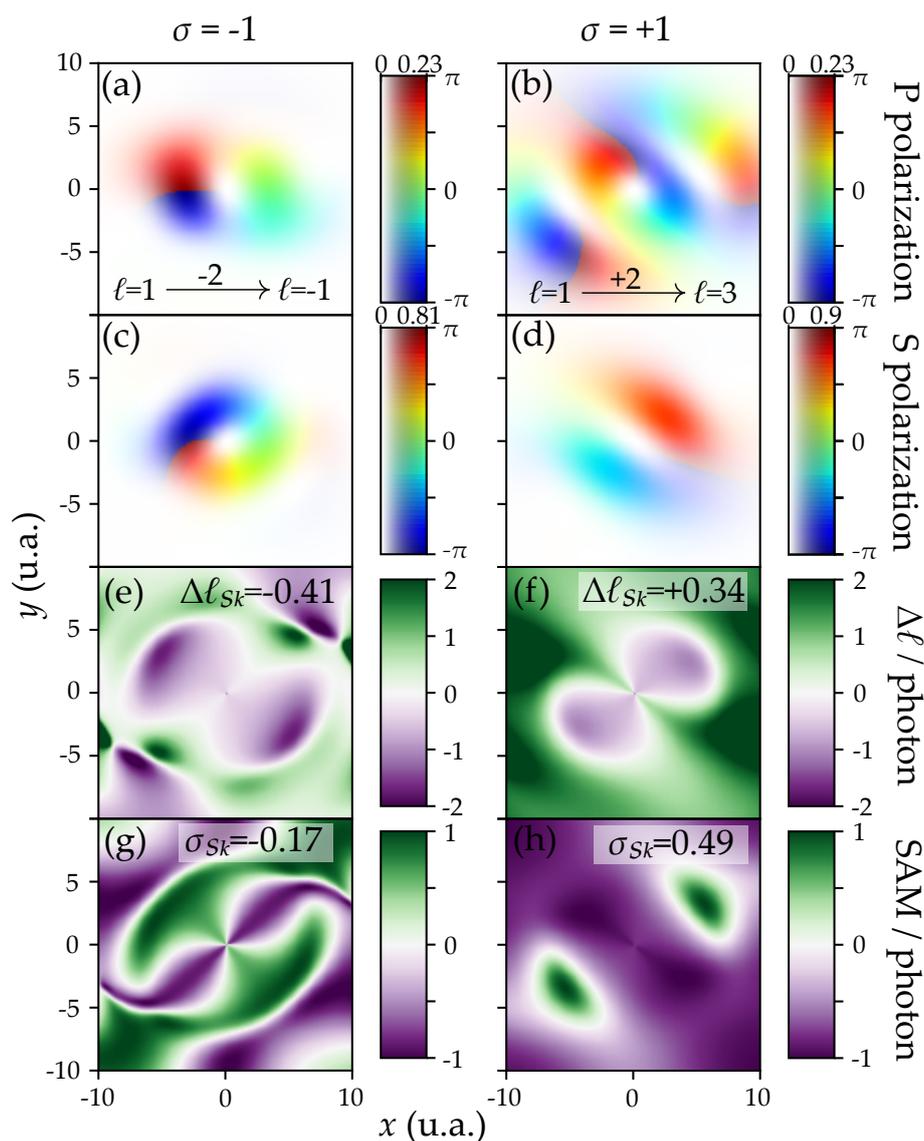


FIGURE 12.5 – Analyse du champ lointain réfléchi par un skyrmion de Bloch de charge $N_{Sk} = 2$, pour un faisceau incident portant le MAO $\ell_i = 1$ et polarisé circulaire gauche ($\sigma = -1$, colonne de gauche) ou circulaire droite ($\sigma = 1$, colonne de droite). (a,b) Composante P . (c,d) Composante S . La phase est indiquée par la couleur, et l'intensité locale correspond à la luminosité. (e,f) Densité de MAO. (g,h) Densité de MAS. L'intensité pic du faisceau en champ lointain est normalisée à 1.

gulaire total de la lumière (MAS+MAO) soit conservé pendant l'interaction. Encore une fois, ceci est analogue aux q-plates qui n'ont pas de symétrie de rotation, et qui ne permettent pas une conversion totale du MAS en MAO [109]. La façon exacte dont s'opère le transfert du moment angulaire lumière-matière dans notre cas - s'agit-il d'un mécanisme microscopique impliquant le moment angulaire des électrons dans le solide, ou d'un couple mécanique macroscopique exercé sur l'échantillon? - n'est pas décrite par notre modèle, et fera l'objet de futurs travaux.

12.3 Dichroïsme circulaire magnétique sur l'axe

Pour un faisceau incident portant le MAO $\ell_i = 1$ se réfléchissant sur un skyrmion, le faisceau réfléchi contient - ou non - une contribution de MAO $\ell = 0$, selon que le MAS du faisceau incident vaut -1 ou $+1$. En examinant la figure 12.3.a, nous remarquons que l'absence de singularité de phase dans la composante P du champ réfléchi conduit à observer un profil d'intensité de type gaussien, c'est-à-dire possédant un maximum d'intensité au centre du faisceau (sur l'axe optique du champ réfléchi). Inversement, la présence d'une singularité optique (figure 12.3.b) induit une très faible intensité sur l'axe. Ainsi, une mesure dichroïsme de circulaire magnétique (DCM), consistant à soustraire les images en champ lointain obtenues pour $\sigma = 1$ et $\sigma = -1$, tout en gardant le MAO incident fixé à $\ell_i = 1$, devrait présenter un signal mesurable sur l'axe. Ce dernier est positif ou négatif, selon le signe du couplage spin-orbite. La figure 12.6 montre les images de dichroïsme circulaire prédites pour les MAO incidents $\ell_i = \pm 1$.

Toutes les images DCM sont nulles en moyenne. Pourtant, comme prévu, elles présentent un signal positif sur l'axe pour $\ell_i = 1$, et un signal négatif pour $\ell_i = -1$, indépendamment de l'hélicité (c'est-à-dire du sens d'enroulement) du skyrmion, car l'ISO est indépendante du signe de m_0 (équation 12.7). L'amplitude maximale du signal est forte : elle vaut 93% de l'intensité maximale du faisceau réfléchi, tandis que le signal sur l'axe oscille entre environ 30% et 50%. Les images DCM sont donc un moyen d'observer l'interaction spin-orbite. Expérimentalement, il s'agirait donc de basculer entre les polarisations incidentes circulaire gauche et circulaire droite, ce qui peut être réalisé facilement sur certaines lignes synchrotron.

Contrairement aux images de dichroïsme hélicoïdal magnétique (DHM) présentées dans le chapitre précédent, ici la signature de l'ISO n'est pas contenue dans la "forme" globale de l'image, mais dans sa valeur nette - positive ou négative - dans une région localisée de l'espace (le centre du faisceau). Cependant, le profil transverse des images DCM est également porteur d'informations. Par exemple, la figure 12.6 montre clairement que l'antisymétrie gauche/droite de l'image est échangée lorsque l'on change l'hélicité h du skyrmion de Bloch. Pour un skyrmion de Néel, on observe plutôt une antisymétrie haut/bas (figure 12.7). Les mesures de DCM ou de DHM pourraient donc être utilisées comme une sonde du type et de l'hélicité du skyrmion.

Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons prédit théoriquement une forme d'interaction spin-orbite optique se produisant lorsque la lumière interagit avec un matériau magnétique non-homogène. À notre connaissance, cet effet de couplage n'avait pas été rapporté jusqu'à présent. Nous avons montré que le MAS du champ incident peut affecter le contenu en MAO et le MAO moyen des photons du champ réfléchi. Cet effet est la conséquence d'une interférence entre les effets MOKE transverse, longitudinal et polaire, couplés par les deux composantes de la polarisation du faisceau incidente.

La modification du MAO de la lumière n'est pas accompagnée d'une variation opposée du MAS qui donnerait une variation nulle du moment angulaire total. Nous concluons donc qu'une partie du moment angulaire de la lumière a été déposée dans la matière, en plus du moment angulaire des photons simplement absorbés lors du processus. Nous nous sommes concentrés sur les skyrmions magnétiques, qui constituent une texture de magnétisation idéale pour observer ce nouveau couplage spin-orbite de

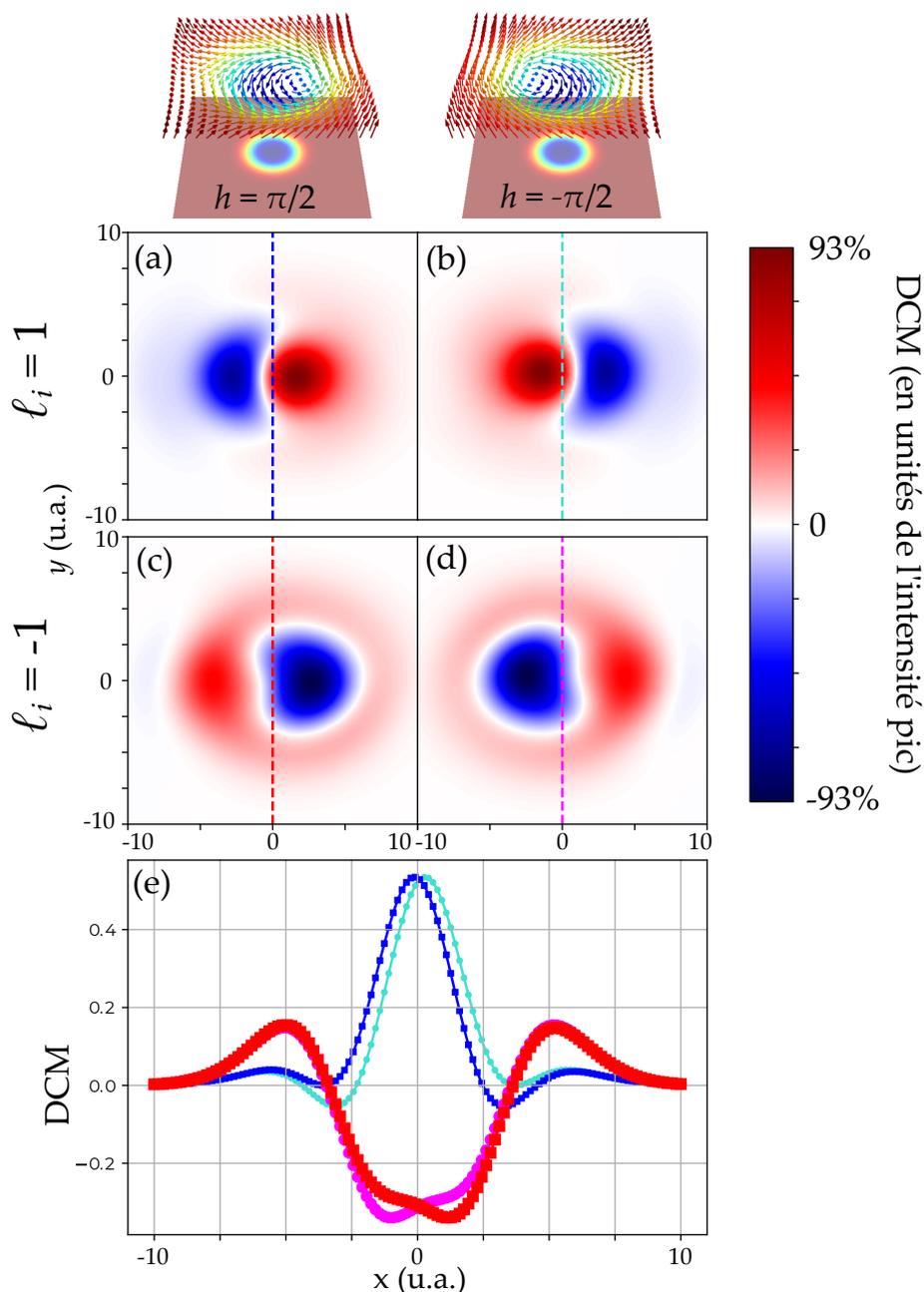


FIGURE 12.6 – Images de dichroïsme circulaire magnétique pour des skyrmions de Bloch d'hélicité $h = \pm\pi/2$ (images en haut), et pour un MAO incident $\ell_i = -1$ (a, b) et $\ell_i = 1$ (c, d). (e) Coupes des images DCM selon les lignes pointillées correspondantes dans (a-d). Le signal de dichroïsme est donné en pourcentage de l'intensité pic.

la lumière.

Le principal enseignement de ce chapitre pourrait être le suivant. Lors du calcul du bilan de moment angulaire à l'issue de l'interaction d'un faisceau de lumière avec un matériau magnétique, il ne faut pas négliger la contribution du MAO. Si la magnétisation est non-homogène, le MAS et le MAO sont couplés lors du processus, et seule la projection du moment angulaire total du système (MAS optique, MAO optique et moment angulaire de la matière) est conservée durant l'interaction magnéto-optique.

Nous n'avons pas pu effectuer au cours de cette thèse d'expériences mettant en

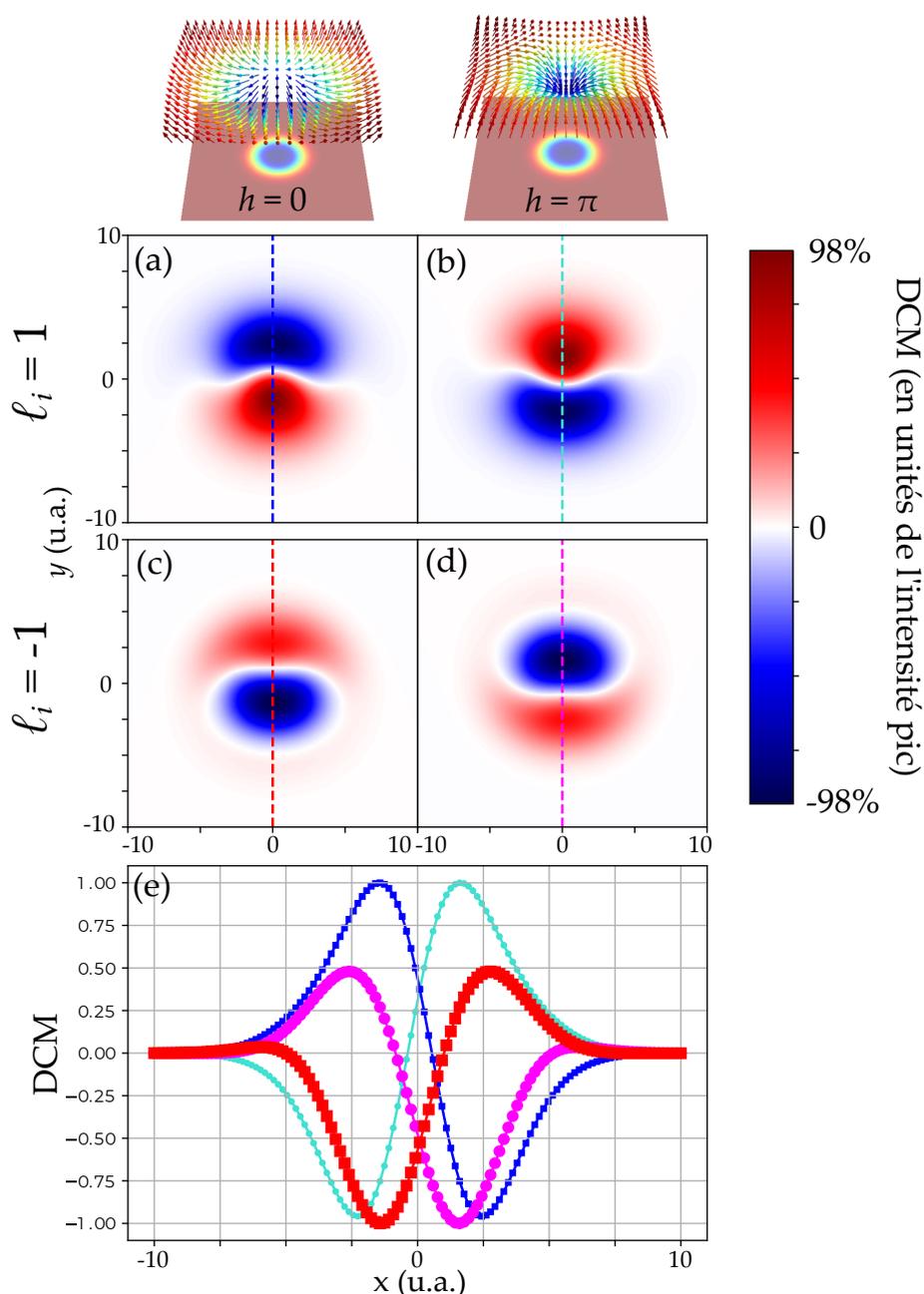


FIGURE 12.7 – Images de dichroïsme circulaire magnétique pour des skyrmions de Néel d’hélicité $h = 0$ et $h = \pi$ (images en haut), et pour un MAO incident $\ell_i = -1$ (a, b) et $\ell_i = 1$ (c,d). (e) Coupes des images DCM selon les lignes pointillées correspondantes dans (a-d). Le signal de dichroïsme est donné en pourcentage de l’intensité pic.

évidence les effets décrits dans ce chapitre. Une campagne d’une semaine a bien eu lieu en Juin 2022 sur la ligne Sextant du synchrotron Soleil, mais nous n’avons pas été en mesure de réunir les conditions expérimentales nécessaires dans le temps imparti. Nous espérons que de nouvelles expériences, sur synchrotron ou ligne de lumière basées sur la GHOE, permettront dans un futur proche d’observer le couplage spin-orbite prédit ici. Un dispositif expérimental similaire à celui du chapitre précédent [42] pourrait être utilisé pour obtenir les figures de dichroïsme circulaire (figures 12.6 et 12.7). Le présent chapitre pourra alors servir de base théorique pour l’interprétation

des résultats de ces expériences.

Ce travail nous permet d'imaginer que des textures magnétiques possédant des topologies appropriées pourraient servir à l'avenir dans des dispositifs de mise en forme de faisceaux MAO, de manière similaire aux q-plates dans le domaine visible. Par rapport aux q-plates, les textures magnétiques ont l'avantage prometteur d'être contrôlables par des champs magnétiques ou électriques externes, et de présenter une réponse dynamique rapide (à l'échelle de la picoseconde). De plus, nos résultats permettent d'envisager la fabrication de "lecteurs" de skyrmions basés sur le moment angulaire de la lumière. Inversement, on pourrait façonner des skyrmions magnétiques avec des faisceaux de lumière portant du MAS et/ou du MAO [299, 280], ce qui ouvrirait la voie à des applications dans le codage et le traitement des données. En utilisant des lasers à électrons libres [300] ou les montages de GHOE décrits en détail dans la partie précédente de cette thèse, des impulsions lumineuses ultracourtes de l'ordre de la femtoseconde ou de l'attoseconde, portant du moment angulaire, peuvent être synthétisées, ce qui nous laisse envisager des expériences de dichroïsme aux échelles de temps naturelles des dynamiques de spin dans les solides.

Conclusion et perspectives

Après deux premières parties introductives, consacrées au moment angulaire de la lumière (dans sa définition classique, puis quantique) et aux fondements théoriques et expérimentaux de la GHOE, nous avons dans la partie III présenté des résultats d'expériences de GHOE avec des faisceaux portant du MAS et/ou du MAO. Les principales conclusions de ces expériences sont les suivantes.

- Nous sommes capables de générer des harmoniques d'ordre élevé portant un MAO quelconque, et une polarisation circulaire d'hélicité ajustable (chapitres 6 et 7), en exploitant les lois de conservation du MAO et du MAS. Cependant, nous n'avons pas été en mesure de réaliser des mesures de polarimétrie harmonique. Une expérience de dichroïsme circulaire magnétique, sur des films de fer, a été tentée mais n'a pas donné de résultat. Ces expériences ont mis à jour l'incapacité des approches perturbatives à prédire les intensités relatives ainsi que le contenu en modes transverses des faisceaux d'harmoniques.
- Dans le cas où MAS et MAO sont simultanément impliqués, il est possible de définir un nouveau moment angulaire, J_γ , ce qui permet de simplifier les lois de conservation (chapitres 8 et 9). De façon étonnante, J_γ peut prendre des valeurs fractionnaires. La caractérisation de la charge j_γ des harmoniques a consisté à mesurer leur MAO par conversion de modes, et à caractériser leur MAS par une méthode indirecte.
- Les intensités et profils spatiaux des harmoniques ont pu être expliqués par une interférence entre de très nombreux processus multi-photons (chapitre 10). Ce nouveau formalisme sera probablement utile pour ajuster finement les propriétés du rayonnement XUV, et pourrait aider au développement de théories "tout quantique" de la GHOE.

Dans la partie IV, nous avons décrit une des premières expériences d'application utilisant des faisceaux XUV portant du MAO. Les deux principales conclusions de ces études sont les suivantes.

- Les faisceaux porteurs de MAO sont prometteurs pour l'imagerie cohérente et la caractérisation de textures magnétiques. Les symétries combinées du faisceau incident et de la structure magnétique dictent l'aspect des images obtenues (chapitre 11).
- Nous avons identifié de façon théorique un couplage spin-orbite optique induit

par le magnétisme, causé par le fait qu'une texture magnétique présente une anisotropie inhomogène (chapitre 12). Cet effet devrait pouvoir être observé expérimentalement par des mesures de dichroïsme circulaire dans l'XUV, en utilisant des faisceaux portant du MAO et une polarisation circulaire ajustable.

Dans la suite de ce chapitre de conclusion, nous détaillons les possibles conséquences, extensions et perspectives de nos résultats.

I Utilisation de la GHOE comme source de rayonnement portant du MAS ou du MAO

Les dispositifs présentés dans les chapitres 6 et 7 constituent des sources de rayonnement compactes et relativement aisées à mettre en oeuvre. Hickstein *et al.* [65] ont par exemple démontré que le schéma de GHOE à deux faisceaux non-colinéaires de MAS ± 1 rend possible des expériences de dichroïsme circulaire magnétique aux fréquences XUV. En mettant en place un schéma pompe-sonde, de telles expériences pourraient être réalisées avec une résolution femtoseconde, voire attoseconde. De même, le dispositif du chapitre 6 fournit des faisceaux XUV de MAO ajustable, potentiellement très proches de modes de LG purs, qui pourraient être utilisés dans des mesures de dichroïsme hélicoïdal [44, 42].

Récemment, plusieurs groupes ont utilisé des vortex XUV produits par GHOE en imagerie par diffraction cohérente [301, 45, 46], ou en ptychographie. On a ainsi pu montrer que la variation rapide de la phase des faisceaux portant du MAO, combinée à leur divergence importante, permet d'augmenter significativement la fidélité de la caractérisation d'objets périodiques [47].

Ces sources de lumière pourraient être rendues plus fiables en intégrant des dispositifs de stabilisation et de contrôle du pointé du faisceau. Par exemple, pour réaliser une expérience de DHM telle que celle présentée au chapitre 11, il faut pouvoir changer rapidement le signe du MAO du faisceau incident, sans modifier significativement le profil d'intensité. Pour cela, on pourrait imaginer basculer entre les ordres de diffraction $p = \pm 1$ (voir figure 6.9), à l'aide de miroirs motorisés et programmés. Pour augmenter la stabilité, des schémas colinéaires, où les deux faisceaux IR sont mis en forme en parallèle, et focalisés par une unique lentille, sont également pertinents [302, 303].

II Perspectives ouvertes par la manipulation de J_γ en GHOE

II.I Le MAG porté par les champs polychromatiques en GHOE

Dans les chapitres 8 et 9, on a exploité le lien profond qui existe entre les symétries du champ et les quantités conservées au cours des processus d'optique non-linéaire. Notamment, on a pu associer à des champs électriques polarisés elliptiquement des valeurs de moment angulaire demi-entières, ce qui découle du fait qu'une ellipse est invariante par rotation d'un angle multiple de π (soit un demi-tour sur elle même).

On peut deviner qu'un champ électrique n'ayant pas les mêmes symétries que l'ellipse peut se voir attribuer un moment angulaire quantifié différemment. Par exemple, une polarisation qui serait invariante sous rotation d'une fraction $1/k$ (avec k entier) de 2π correspondrait à des valeurs de moment angulaire multiples de $1/k$ [219, 245]. De tels états de polarisation sont naturellement produits lorsque l'on superpose deux champs de lumière de fréquences commensurables. On a en effet vu au chapitre 7 que le mélange de deux ondes de polarisations circulaires croisées, et de fréquences ω et 2ω , produisait un champ électrique en forme de trèfle à trois feuilles [62]. Un tel champ retourne à lui-même lorsqu'on le fait pivoter d'un tiers de tour. De façon générale, une superposition de deux champs bi-circulaires, de fréquences $k\omega$ et $j\omega$, avec k et j premiers entre eux, produit une figure de Lissajous présentant une symétrie de rotation discrète d'ordre $k+j$ (figure 12.8). Dans la suite, on appellera un tel champ une superposition *bi-chromatique bi-circulaire*. On peut typiquement la noter $|\omega, \ell, \sigma\rangle = |\omega_1, \ell_1, +1\rangle + |\omega_2, \ell_2, -1\rangle$. Si les deux composantes du champ portent du MAO, la figure de Lissajous tracée par le vecteur polarisation va subir une rotation sur elle-même lorsqu'on se déplace dans le plan transverse. Le nombre de tours qu'elle réalise lorsque la coordonnée azimutale varie de 0 à 2π détermine la topologie de la polarisation, et la valeur du paramètre γ correspondant.

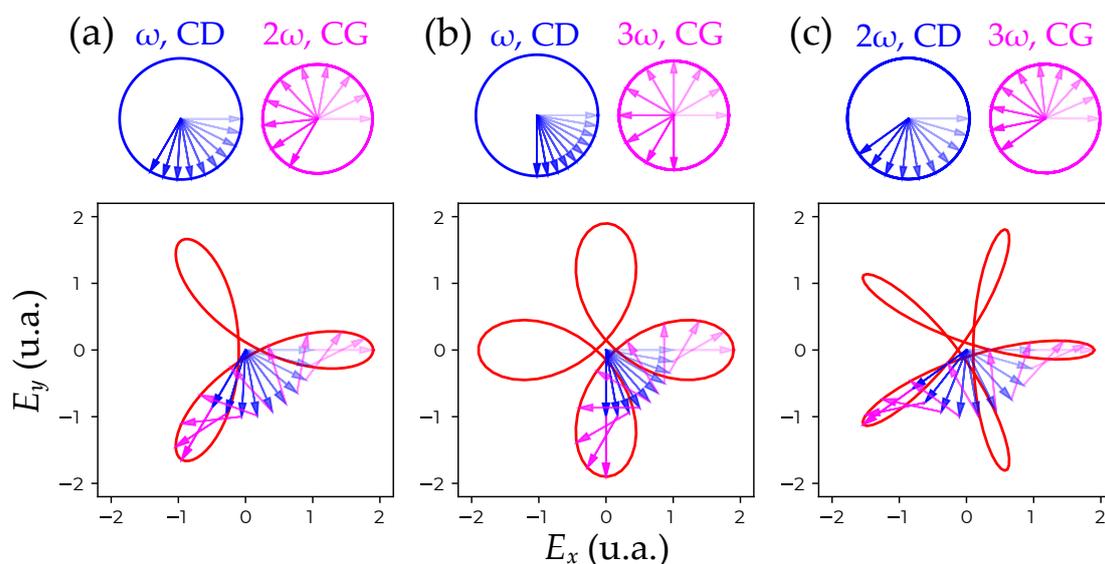


FIGURE 12.8 – Figures de Lissajous obtenues en superposant deux champs de fréquences multiples d'une fréquence fondamentale ω , de polarisations circulaires croisées (CD : circulaire droite et CG : circulaire gauche) et d'amplitudes 1 et 0.9. Les flèches bleues et roses correspondent respectivement aux champs de fréquence ω et 2ω . (a) Combinaison $\omega-2\omega$, avec les champs électriques représentés sur un tiers de période du champ à ω . (b) Combinaison $\omega-3\omega$, avec les champs électriques représentés sur un quart de période du champ à ω . (c) Combinaison $2\omega-3\omega$, avec les champs électriques représentés sur un cinquième de période d'un champ à ω .

Pour trouver la valeur du paramètre γ , écrivons la superposition bi-chromatique bi-circulaire dans la base (x, y) du plan transverse, comme nous l'avons fait pour les champs monochromatiques (équation 8.17)

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = e^{i(\ell_1\varphi + \omega_1 t)} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + e^{i(\ell_2\varphi + \omega_2 t)} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}. \quad (12.15)$$

Nous appliquons à ce champ une rotation coordonnée de paramètre γ et d'angle θ , et obtenons un nouveau champ \mathbf{E}' . Le même calcul que celui menant à l'équation 8.19 permet de montrer que

$$\mathbf{E}'(\mathbf{r}, t) = e^{i(\ell_1\varphi + \omega_1 t)} e^{i(\ell_1 + \gamma)\theta} \begin{pmatrix} 1 \\ i \end{pmatrix} + e^{i(\ell_2\varphi + \omega_2 t)} e^{i(\ell_2 - \gamma)\theta} \begin{pmatrix} 1 \\ -i \end{pmatrix}. \quad (12.16)$$

Le champ \mathbf{E} est laissé invariant par la rotation coordonnée si et seulement si la transformation l'a uniquement avancé dans le temps, d'une durée $\tau\theta$, avec τ une constante de temps à déterminer. Les deux termes de la somme oscillant à des fréquences différentes ω_1 et ω_2 , cette condition est réalisée si et seulement si

$$\begin{cases} (\ell_1 + \gamma)\theta = \omega_1\tau\theta \\ (\ell_2 - \gamma)\theta = \omega_2\tau\theta, \end{cases} \quad (12.17)$$

et on obtient donc [219]

$$\frac{\ell_1 + \gamma}{\omega_1} = \frac{\ell_2 - \gamma}{\omega_2} \Rightarrow \gamma = \frac{\ell_2\omega_1 - \ell_1\omega_2}{\omega_1 + \omega_2}. \quad (12.18)$$

La superposition bi-chromatique $|\omega, \ell, \sigma\rangle = |\omega_1, \ell_1, +1\rangle + |\omega_2, \ell_2, -1\rangle$ est donc invariante sous rotation coordonnée de paramètre

$$\gamma = \frac{\ell_2\omega_1 - \ell_1\omega_2}{\omega_1 + \omega_2}. \quad (12.19)$$

et d'angle θ . Cette transformation équivaut alors à une translation dans le temps d'une durée $\tau\theta$ avec

$$\tau = \frac{\ell_1 + \ell_2}{\omega_1 + \omega_2}. \quad (12.20)$$

Pour $\omega_1 = \omega_2$, on retrouve bien les équations du cas monochromatique. Pour $\omega_2 = 2\omega_1$ il vient $\gamma = \frac{\ell_2 - 2\ell_1}{3}$, c'est à dire que le paramètre γ , tout comme la charge de MAG j_γ , prend des valeurs multiples de $1/3$. Dans le cas général, la charge de MAG peut être n'importe quelle fraction rationnelle.

Quelle topologie peut-on associer aux champs qui sont vecteurs propres de l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$ dans le cas $\omega-2\omega$, soit γ multiple de $1/3$? Il ne s'agit plus du simple ruban de Möbius, mais d'une extension de ce dernier à des topologies plus complexes. Comme nous l'avons fait dans le cas monochromatique, observons la figure 12.9 qui montre la surface tracée par la figure de Lissajous lorsqu'on la déroule en fonction de l'azimut φ , pour $(\ell_1 = 0, \ell_2 = 1)$. Le trèfle à trois feuilles pivote d'un tiers de tour pour revenir à lui-même. Les chemins tracés par les trois lobes du trèfle forment une unique courbe (figure 12.9) : on peut constater qu'il faut effectuer trois tours autour de l'objet ainsi créé pour que la courbe boucle sur elle-même.

La figure 12.10 présente d'autres situations. Pour $(\ell_1 = 1, \ell_2 = 2)$ et $(\ell_1 = 0, \ell_2 = 3)$, le paramètre γ prend des valeurs entières, les trois lobes du trèfle traçant trois courbes distinctes, qui sont dissociées dans le premier cas et liées dans le second. Pour $(\ell_1 = 0, \ell_2 = 2)$, la courbe obtenue comporte un nœud, et puisqu'elle est contenue dans la surface d'un tore, ce nœud appartient à la famille des *noeuds toriques*. Pour cette raison, l'opérateur MAG est parfois appelé *moment angulaire noeud torique* [219], à cause de la topologie "nouée" du champ. Ici on a considéré le cas $\omega-2\omega$, mais ces conclusions sont

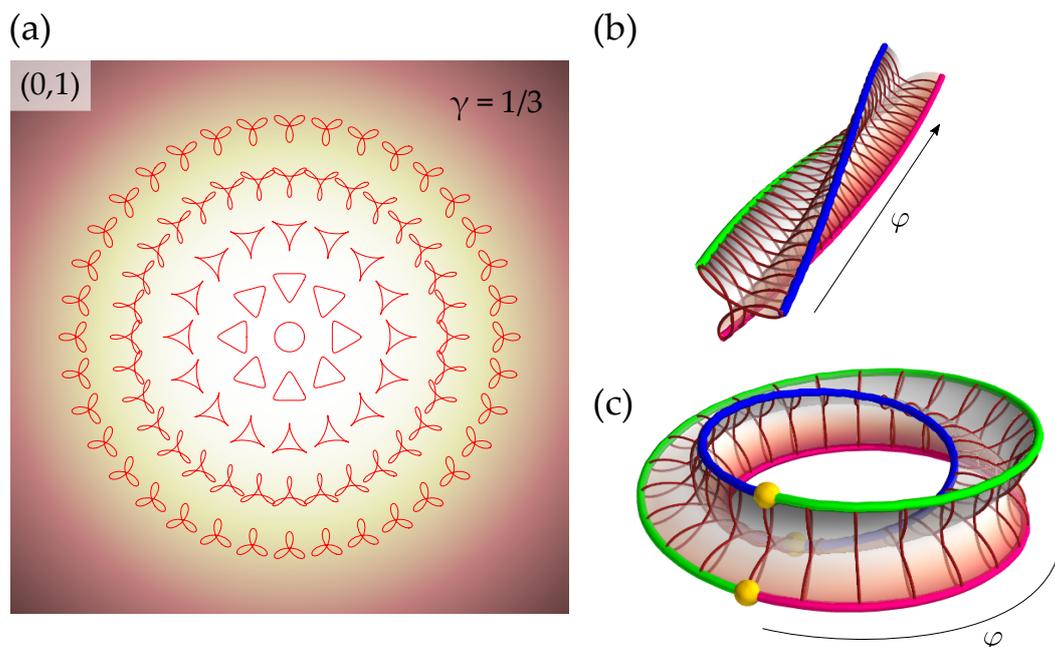


FIGURE 12.9 – (a) Polarisation en différents points du plan transverse, pour la superposition de deux faisceaux bi-circulaires, de fréquences ω et 2ω . Les MAO portés par les faisceaux sont ici $\ell_1 = 0$, $\ell_2 = 1$ (indiqués dans le coin en haut à gauche) et la valeur correspondante du paramètre topologique est $\gamma = 1/3$. (b) Figures de Lissajous graphées sur l'intervalle d'angle azimutal $]0, 2\pi[$ formant une surface ouverte. (c) Surface obtenue en connectant les deux extrémités de (b). Les chemins tracés par les trois extremums de la figure de Lissajous sont représentés par les courbes bleue, rouge et verte. Étant connectées au niveau des sphères jaunes, elles forment en réalité un unique curve.

applicables à tout champ bi-chromatique $k\omega + j\omega$ bi-circulaire : le paramètre γ prend alors des valeurs multiples de $1/(k + j)$ et la topologie correspondante peut présenter des noeuds d'ordres plus ou moins élevés.

La figure 12.11 montre le formalisme du MAG en action dans le cas bi-chromatique. Il s'agit de résultats de simulation de la GHOE effectuées par Pisanty *et al.* [245] avec un champ de génération dans l'état $|\omega, \ell, \sigma\rangle = |\omega, 1, +1\rangle + |2\omega, 1, -1\rangle$, correspondant à $\gamma = \frac{\ell_2 - 2\ell_1}{3} = -\frac{1}{3}$. Comme on a pu le voir plus haut, toutes les harmoniques paires et impaires du champ à ω sont générées, sauf celles d'ordres multiples de 3. Les harmoniques polarisées circulairement droite (respectivement gauche) portent le MAO $\ell^{(q)} = (2q + 1)/3$ (respectivement $\ell^{(q)} = (2q - 1)/3$). Cela donne par exemple $\ell^{(13)} = \ell^{(14)} = 9$, $\ell^{(16)} = \ell^{(17)} = 11$, $\ell^{(19)} = \ell^{(21)} = 13$, etc. (figure 12.11.a). Par contre, la charge j_γ varie linéairement avec q . On a en effet $j_\gamma^{(q)} = 2q/3 = qj_\gamma^{IR, \omega}$ (figure 12.11.b).

Le MAG des champs bi-chromatiques a été introduit théoriquement par Pisanty *et al.* [219, 245]. À ce jour, aucune expérience n'est venue étayer la loi multiplicative de la charge j_γ dans ce cas. Dorney *et al.* [68] ont utilisé des champs IR portant des MAG tiers d'entiers en GHOE, mais n'ont pas mesuré les MAO portés par les harmoniques. La vérification expérimentale de la conservation du MAG en GHOE dans le cas bi-chromatique est une perspective ouverte par la présente thèse. Pour ce faire, il suffirait de modifier notre schéma expérimental en introduisant un cristal doubleur de

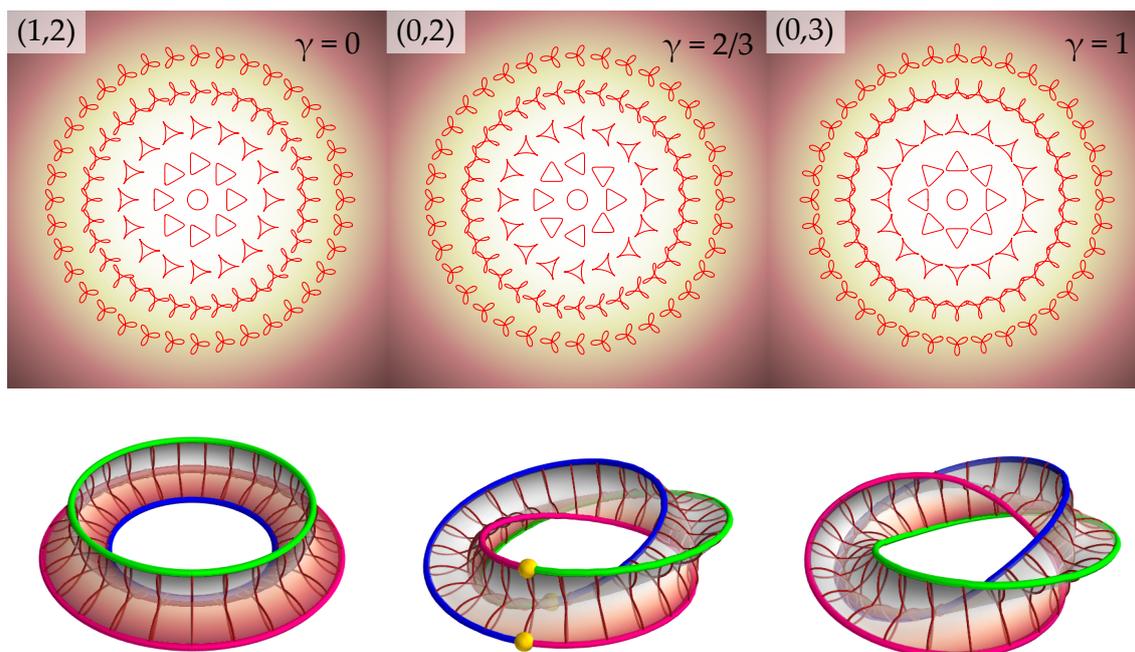


FIGURE 12.10 – Structures de polarisation dans le plan transverse (ligne du haut) et noeuds toriques correspondant (ligne du bas) pour une superposition bi-chromatique ω - 2ω bi-circulaire. Les valeurs (ℓ_1, ℓ_2) des MAO portés par chacun des faisceaux sont indiquées en haut à gauche de chaque figure.

fréquence dans l'un des bras de l'interféromètre. De plus, l'expérience pourrait être réalisée dans un schéma colinéaire car les canaux photoniques sont séparés spectralement et n'ont donc pas besoin d'être isolés angulairement.

II.II Brisure de la symétrie de rotation du milieu

Le formalisme du MAG que nous avons introduit au chapitre 8 s'appuie sur les symétries du champ laser de génération. Cependant, les quantités conservées au cours du processus de GHOE sont déterminées par les symétries de l'ensemble {champ de génération + milieu non-linéaire}. Jusqu'à présent nous avons laissé de côté le milieu de génération, car on considérait un gaz d'atomes isotrope et uniforme. Une bonne façon d'élargir notre point de vue est d'étudier ce qui se passe lorsqu'on brise la symétrie du milieu non-linéaire. Nous esquissons ici de possibles expériences sur le sujet.

On peut par exemple considérer un milieu de génération non-isotrope. Ce cas de figure apparaît naturellement en GHOE dans les solides cristallins [304]. On observe en effet une efficacité de génération dépendant très fortement de l'angle d'orientation de la polarisation linéaire incidente. Si cette dernière est alignée avec l'un des axes du cristal, la GHOE est favorisée [305]. Une expérience typique consiste donc à générer des harmoniques dans le volume ou à la surface d'un cristal à l'aide d'un faisceau infrarouge polarisé linéairement, et à scanner l'intensité des harmoniques émises en fonction de l'angle de la polarisation incidente. Une telle mesure permet de remonter aux symétries du cristal, ou au contraire à celles du champ électrique du laser si le cristal est connu (figure 12.12).

Très récemment, une expérience de GHOE en réflexion sur une surface solide a

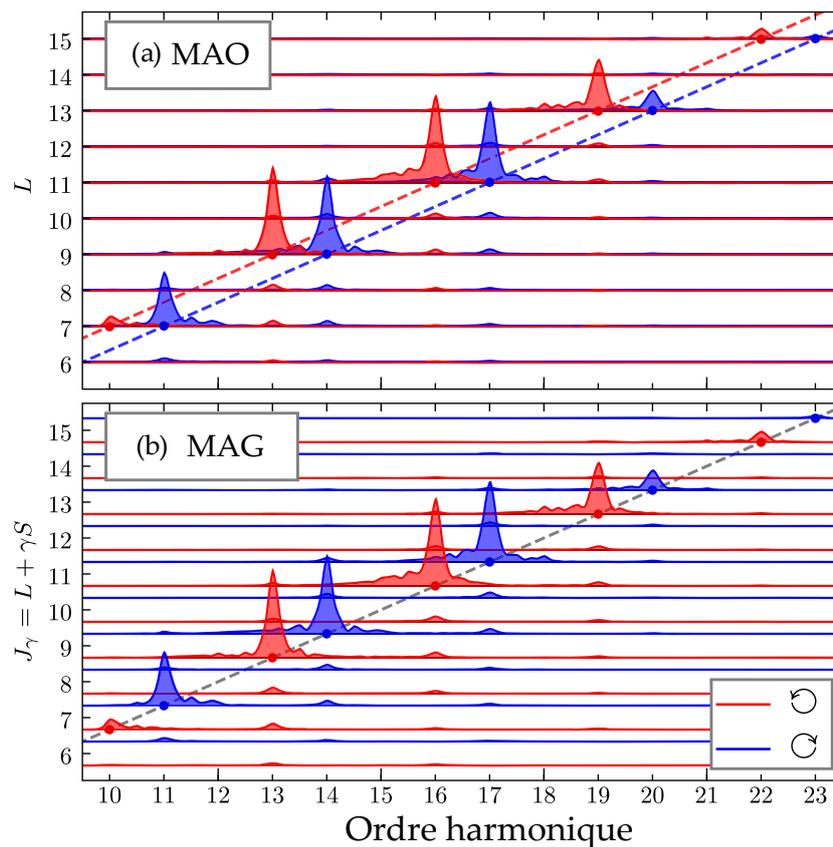


FIGURE 12.11 – Spectre de GHOE simulé des composantes circulaire gauche (bleu) et droites (rouge) de la polarisation, pour un champ de génération bi-chromatique bi-circulaire avec $l_1 = l_2 = 1$. On compare (a) le spectre de MAO et (b) le spectre de MAG, avec $\gamma = -1/3$. Pour le spectre MAG, la charge de MAO des composantes droite et gauche est décalée de γ fois le MAS. La conservation du MAG est clairement lisible dans la variation linéaire de ce dernier avec l'ordre harmonique. Adapté de [245].

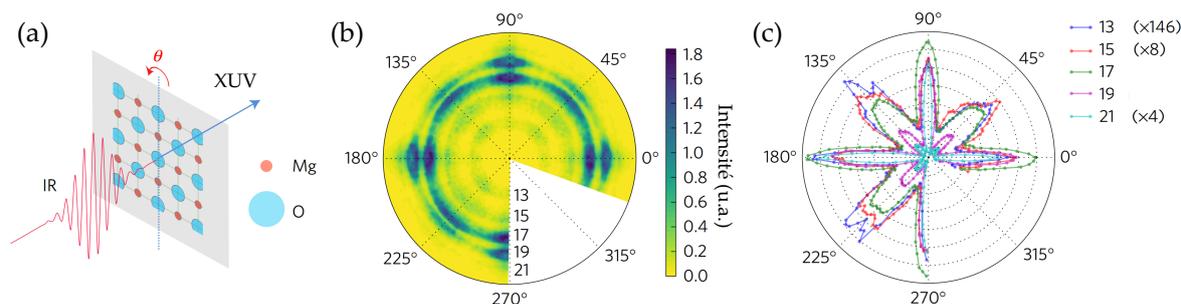


FIGURE 12.12 – (a) Un faisceau IR intense de longueur d'onde $1.3 \mu\text{m}$ est focalisé dans un cristal de MgO pour générer un peigne d'harmoniques XUV. Le cristal peut-être pivoté d'un angle quelconque par rapport à la polarisation du laser. (b) Spectre mesuré pour différentes orientations du cristal. Une forte intensité est observée dans les 4 directions des liaisons atomiques du cristal. (c) Intensité intégrée de différentes harmoniques en fonction de l'orientation de la polarisation du laser incident. Figure extraite de [305].

été réalisée avec un champ de génération bi-chromatique bi-circulaire $\omega-2\omega$ [306].

Le trèfle à trois feuilles obtenu présente une symétrie d'ordre 3 (figure 12.8.a), et les auteurs étudient les harmoniques émises dans le quartz et l'oxyde de magnésium, pour des symétries cristallines d'ordre 3, 4 et 6. De plus, les harmoniques émises portent du MAS, ce qui permet des mesures de dichroïsme induit par la chiralité des propriétés électroniques du cristal. Tout comme dans le cas d'un faisceau incident monochromatique, l'expérience consiste à scanner l'angle de la polarisation incidente : dans ce cas il suffit de faire varier le délai entre les composantes à ω et 2ω (figure 12.13). Pour une symétrie cristalline d'ordre 3, on observe bien 3 maxima d'intensité lorsque l'angle de la figure de Lissajous est balayé de 360° , signe que le champ IR possède la même symétrie discrète que le cristal.

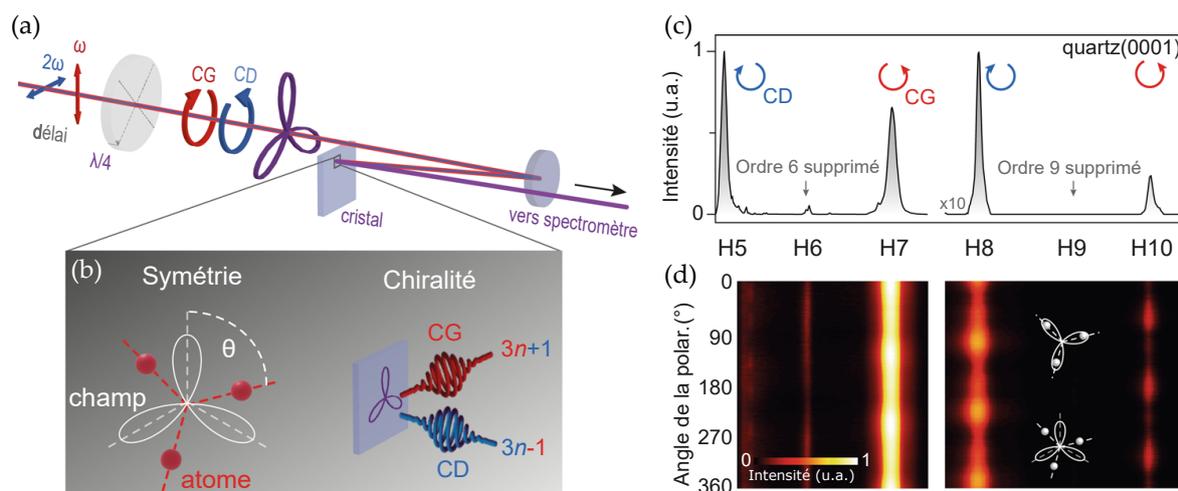


FIGURE 12.13 – GHOE chirale dans les solides. (a) L'orientation de la figure de Lissajous du champ ω - 2ω est contrôlée par le retard entre les deux champs linéaires avant la lame quart d'onde. (b) Principe de sondage de la matière par symétrie et chiralité. (c) Spectre d'harmoniques obtenu dans le quartz. (d) Spectrogramme en fonction de l'orientation de la figure de Lissajous, avec trois battements pour une rotation de 360° . Figure extraite de [306].

Les faisceaux portant du MAG sont particulièrement prometteurs dans ce genre d'expérience, car l'orientation ψ de leur polarisation varie naturellement dans le plan transverse. Plutôt qu'un scan de l'angle de la polarisation, on pourrait donc obtenir les mêmes informations en une seule image, sur laquelle l'angle de la polarisation serait encodé azimutalement. De plus, en jouant sur la valeur de γ (via les valeurs des MAO l_1 et l_2), on peut ajuster à volonté le nombre de régions du plan transverse où la polarisation est alignée sur les axes du cristal. Bien entendu une telle expérience nécessite des vortex optiques très homogènes, et un spectromètre capable d'imager le profil spatial des harmoniques.

On peut adapter notre modèle du réseau actif pour simuler grossièrement la GHOE dans un cristal avec des faisceaux MAG monochromatiques. Pour reproduire les résultats de You *et al.*, l'intensité des harmoniques à la sortie du milieu non-linéaire est multipliée empiriquement par le terme $1 + a_q \cos(2n\psi)$, avec ψ l'angle de l'ellipse de polarisation du champ IR, n l'ordre de la symétrie du cristal, et $-1 < a_q < 1$ (on prendra typiquement $a_q \approx 0.75$) une constante dépendant de l'harmonique considérée. L'ordre de non-linéarité effectif du processus q_{eff} est proche en ordre de grandeur de celui de la GHOE dans les gaz, on prendra $q_{\text{eff}} = 3.5$. Enfin, l'efficacité de la GHOE dans les solides

diminue avec l'ellipticité du champ IR, mais bien moins rapidement que pour la GHOE dans les gaz, on prendra une ellipticité seuil $\epsilon_0 = 0.8$ telle que pour une polarisation circulaire, l'intensité des harmoniques générées est multipliée par 0.2 environ. On fait l'hypothèse que l'état de polarisation des harmoniques générées en champ proche est le même que celui de l'infrarouge. La figure 12.14 montre le résultat de la simulation pour un faisceau de génération RMP avec $\gamma = 1/2$, en géométrie colinéaire. Il y a bien trois régions du plan focal où l'ellipse de polarisation est alignée avec l'un des axes du cristal. Cette symétrie discrète d'ordre 3 est préservée lors de la propagation, et on obtient bien des anneaux d'intensité avec trois lobes en champ lointain (figure 12.14.b pour $j_\gamma = 1/2$). En augmentant la charge MAG, on augmente la divergence des harmoniques, ce qui semble améliorer la lisibilité de la symétrie du profil d'intensité (figure 12.14.c pour $j_\gamma = 5/2$).

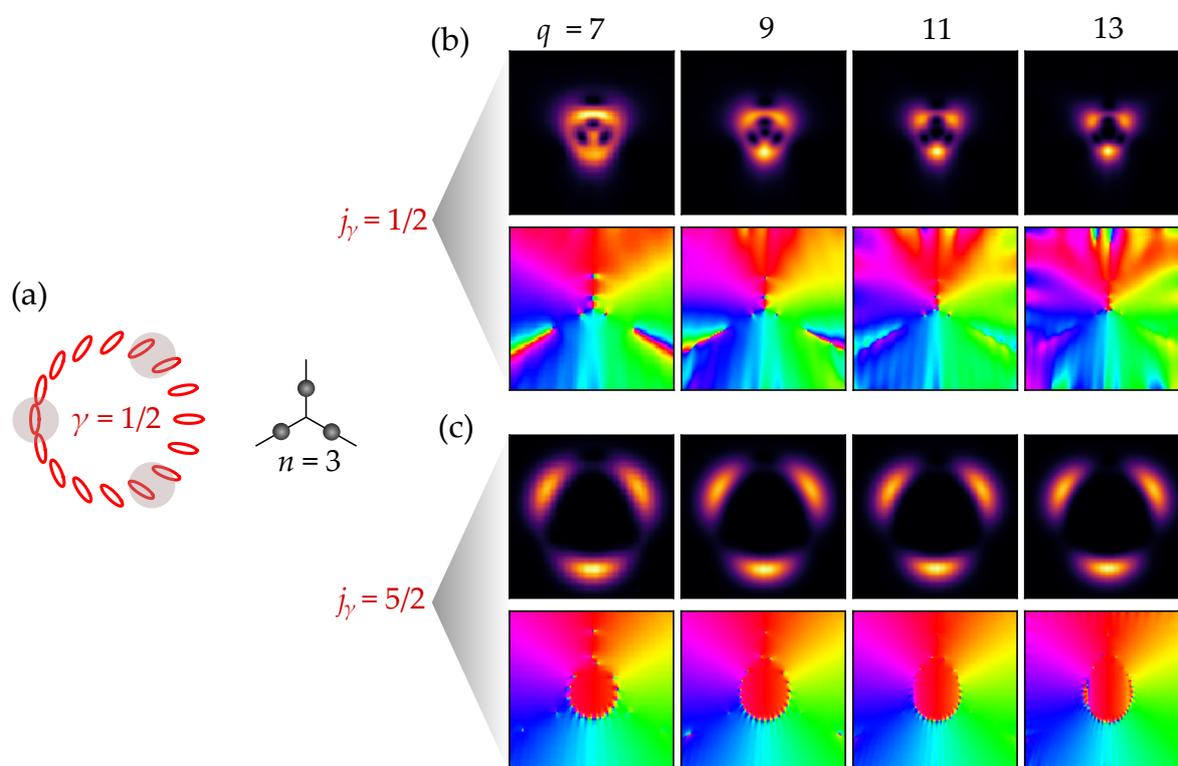


FIGURE 12.14 – GHOE avec des faisceaux MAG dans un cristal possédant une symétrie de rotation d'ordre 3. (a) Pour $\gamma = 1/2$, il y a trois régions du plan transverse (zones grises) où la polarisation du faisceau de génération est alignée avec l'un des axes du cristal. (b) Champ lointain des harmoniques 7 à 13 pour $j_\gamma = 1/2$ et (c) pour $j_\gamma = 5/2$. Les lignes du bas et du haut montrent respectivement l'intensité et l'orientation de l'ellipse ψ du champ XUV.

En jouant sur le facteur γ et la charge MAG j_γ , il serait possible d'établir un lien clair entre les symétries du cristal et celle du profil spatial des harmoniques. Bien évidemment, les champs montrés figure 12.14 ne sont plus vecteurs propres de l'opérateur $\hat{J}_{\gamma,z}$: la symétrie de rotation coordonnée du système {champ de génération + milieu non-linéaire} étant brisée, la charge j_γ n'a plus de raison d'être conservée. Toutefois, il serait probablement possible d'établir un modèle photonique du phénomène, dans lequel les canaux d'émission seraient contraints par les symétries de l'expérience.

Des expériences plus élaborées pourraient avoir lieu dans des gaz de molécules alignées. Un premier faisceau structuré en polarisation (par exemple un état propre de $\hat{J}_{z,\gamma}$) viendrait aligner les molécules, comme cela a déjà été fait dans des molécules de CO_2 pour "stocker" l'état d'un faisceau de lumière [307]. Une seconde impulsion, plus intense, génèrerait des harmoniques. Le milieu non-linéaire présentant une anisotropie inhomogène, on pourrait assister à des effets de couplage spin-orbite optique en GHOE. De tels couplages, causés par le manque de symétrie du milieu de génération, n'ont à ce jour jamais été observés, bien que quelques études théoriques existent [308, 309].

III Statistique photonique des faisceaux portant un moment angulaire j_γ demi-entier

L'une des perspectives les plus enthousiasmantes ouvertes par les moments angulaires optiques demi-entiers est la possibilité de *simuler* des comportements normalement associés aux fermions avec des faisceaux de lumière. Des statistiques fermioniques ou anyoniques ont déjà été simulées avec des photons intriqués lors de divers processus photoniques [310, 311, 312, 313]. On peut naturellement se demander s'il serait possible de faire de même avec des faisceaux portant un moment angulaire j_γ fractionnaire. Cette question, posée par Ballantine *et al.* [217], n'a à notre connaissance fait l'objet d'aucune recherche. Clairement, les expériences d'optique non-linéaire en champ fort présentées au chapitre 9 ne nous permettent pas de trancher. La réponse est sans doute plutôt à chercher du côté de l'optique quantique.

IV Extensions de l'interprétation multi-photonique de la GHOE

Au chapitre 7, nous avons étudié le transfert de MAS en GHOE. Lorsque les harmoniques sont générées par un champ elliptique, l'efficacité du processus décroît de façon exponentielle avec l'ellipticité du champ. Cette tendance est reproduite par une loi de puissance perturbative. Par contre, cette dernière prédit que l'ellipticité des harmoniques générées est égale à celle de l'infrarouge. Des expériences de polarimétrie dans l'XUV ont pourtant montré que l'ellipticité des harmoniques doit être inférieure à celle du champ IR [208]. En générant des harmoniques avec deux faisceaux non-colinéaires de polarisations circulaires croisées, nous avons pu mesurer les rendements des canaux d'émission de spin +1 et -1, effectuant ainsi une mesure d'ellipticité "effective" en accord avec la littérature.

Grâce au formalisme présenté au chapitre 10, nous disposons désormais d'une théorie non-perturbative de la GHOE à deux faisceaux. Il est tentant de l'appliquer au cas de deux faisceaux de MAS ± 1 , afin de reproduire les résultats des figures 7.13 et 7.14. Cependant, nous avons obtenu le développement non-perturbatif 10.10 en considérant un champ de génération polarisé linéairement, si bien que notre modèle n'est *a priori* pas capable de prédire l'intensité des ordres de diffraction lorsque la polarisation du champ IR est elliptique.

En fait, la conservation du MAS en GHOE s'applique dans tous les cas, même pour des faisceaux de génération polarisés linéairement. En effet, rappelons nous, un champ

électromagnétique polarisé linéairement contient des photons dans une superposition d'états de MAS $+\hbar$ et $-\hbar$. Ainsi, les diagrammes que nous dessinions au cours de ce chapitre étaient en fait des synthèses d'un certain nombre de processus multi-photons menant à l'émission d'un photon XUV de spin $\pm\hbar$. La figure 12.15 montre ainsi les quatre diagrammes "cachés" derrière celui représentant le terme $n = 0$ dans le développement de l'amplitude de l'ordre de diffraction $p = 1$ de l'harmonique 3. Les champs de génération linéaires contenant des contributions égales des modes de polarisation circulaire droite et gauche, les processus notés (1) et (2) sont plus probables que les processus (3) et (4)³. Notons que les processus (1) et (3) mènent au même état final, qui est différent de celui des processus (2) et (4). Pour calculer la probabilité du processus total (diagramme de gauche), il faut donc prendre le carré de la somme des amplitudes des processus (1) et (3), et lui ajouter le carré de la somme des amplitudes des processus (2) et (4).

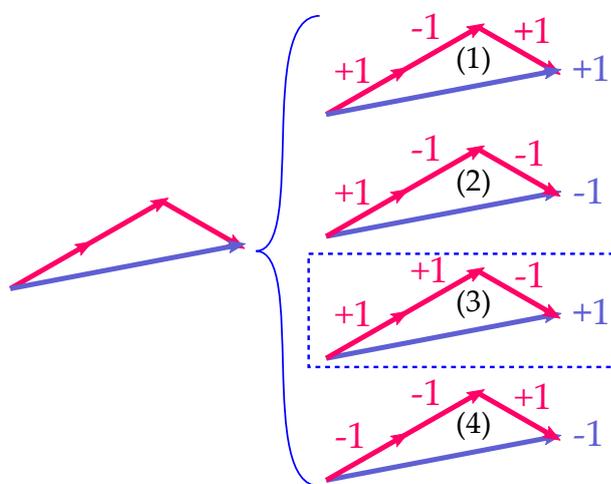


FIGURE 12.15 – Diagrammes correspondant à l'émission de l'ordre de diffraction $p = 1$ de l'harmonique 3. Quand les deux faisceaux de génération sont polarisés linéairement, on trace le diagramme de gauche, qui décrit le terme d'ordre $n = 0$ du développement non-perturbatif. Ce diagramme est en fait la synthèse de 4 diagrammes correspondant à l'émission de photons de spin $\pm\hbar$. Seul le processus entouré par un rectangle a lieu lorsque le faisceau 1 porte des photons de MAS $+\hbar$, et le faisceau 2 des photons de MAS $-\hbar$. C'est le cas dans les expériences décrites dans le chapitre 7.

A moins de faire des hypothèses supplémentaires, notre modèle n'est donc, en l'état, pas capable de prédire les amplitudes associées à chacun des processus (1), (2), (3) et (4). La prise en compte du MAS dans le calcul du développement 10.10 fera l'objet de futurs travaux qui, nous l'espérons, fourniront un modèle multi-photons cohérent de la GHOE en polarisation elliptique.

Le fait que le modèle actuel ne prenne pas en compte l'accord de phase [155] est

3. Pour l'harmonique d'ordre 3, il y a une probabilité de 50% d'absorber deux photons, l'un étant de spin $+\hbar$ et l'autre de spin $-\hbar$ (processus (1) et (2)), alors qu'il n'y a que 25% de chances d'en absorber deux de spin $+\hbar$ ou deux de spin $-\hbar$ (processus (4)). De plus, pour ces deux derniers processus, une fois sur deux, l'absorption du troisième photon donne une situation interdite par la conservation du MAS. Dans les cas (1) et (2), toutes les absorptions en plus sont autorisées. Finalement, (1) et (2) donnent au total 50% des possibilités, alors que (3) et (4) donnent chacun 12.5% de contributions. Les 25% restant sont des processus interdits.

une autre lacune qu'il nous faudra combler. Le lecteur pourra consulter la thèse de Mekha Vimal pour une discussion détaillée des effets d'accord de phase en GHOE à deux faisceaux.

Enfin, notre interprétation non-perturbative de la GHOE présente des similarité frappantes avec les conclusions de travaux sur les ordres de non linéarité supérieurs dans l'effet Kerr [314, 315]. On peut se demander si, dans le futur, des ponts fructueux pourront être établis entre ces deux formalismes.

V Moment angulaire et supercontinuum XUV

Comme nous l'avons expliqué au chapitre 4, la présence d'harmoniques discrètes dans le spectre de GHOE est une conséquence de la périodicité temporelle de l'émission XUV par les atomes de gaz, qui se traduit par la génération de trains d'impulsions attosecondes. Pour un certain nombre d'applications, par exemple en spectroscopie par absorption transitoire [316], il est plutôt souhaité de disposer d'un continuum de fréquences XUV et d'impulsions attosecondes uniques [144]. Un tel rayonnement peut être obtenu en faisant en sorte qu'il n'y ait qu'un seul événement de recombinaison de l'électron durant le passage de l'impulsion infrarouge. Pour cela, la technique la plus efficace est d'utiliser des impulsions IR mono-cycle. Ces dernières peuvent être obtenues par post-compression d'impulsions plus longues, le plus souvent par auto-modulation de phase dans des fibres creuses remplies de gaz. D'autres méthodes existent, basées par exemple sur des portes de polarisation [317].

Dans ce régime particulier de GHOE, que devient la conservation du moment angulaire? Toute les analyses présentées dans cette thèse partaient du principe que le champ IR était quasi-monochromatique, et donc que l'absorption de q photons IR menait à l'émission d'un photon XUV de fréquence précise, égale à $q\omega$. Pour une impulsion mono-cycle, l'inégalité d'Heisenberg temps-énergie implique que l'énergie des photons IR n'est pas précisément définie, et donc que l'absorption d'un nombre q de ces photons peut amener l'émission d'un photon XUV de fréquence très dispersée également.

Pour tester les lois de conservation du moment angulaire dans ce régime, il faut disposer d'impulsions mono-cycles portant un MAS ou un MAO bien défini (c'est à dire que chaque composante fréquentielle doit porter le même moment angulaire). S'il est relativement facile d'obtenir des impulsions mono-cycle polarisées circulairement [67], ce n'est pas le cas pour le MAO. En effet, les éléments optiques communément utilisés pour communiquer du MAO aux faisceaux de lumière sont hautement chromatiques. Par exemple, les LPS imposent un déphasage azimutal qui dépend de la fréquence. De plus, leur épaisseur variable spatialement induit une dispersion qui dépend elle aussi de la position, et donc dégrade la durée et la qualité de l'impulsion IR. Récemment, des schémas inédits ont permis de contrôler le MAO d'impulsions large-bande [318], mais il n'est pas encore certain qu'ils puissent être utilisés sur des faisceaux de haute intensité.

Pour dépasser ces limitations, nous avons mis au point un montage de post-compression basé sur une fibre creuse, dans lequel le MAO est communiqué au faisceau *en amont* de la fibre, alors qu'il est encore presque monochromatique, de longueur d'onde 800 nm. Nous pensons que l'auto-modulation de phase ayant lieu dans la fibre transfère ce MAO à toutes les nouvelles composantes fréquentielles. Pour caractériser

les impulsions vortex en sortie de fibre, nous avons réalisé une expérience de spectroscopie par transformée de Fourier. La figure 12.16 montre le profil d'intensité du faisceau au foyer, à diverses longueurs d'onde, dans le cas où un faisceau de MAO $\ell = 1$ est injecté dans la fibre. On observe bien un anneau d'intensité large-bande. La même mesure est ensuite réalisée en insérant une fente triangulaire avant la focalisation (voir 2.4). Une figure de diffraction typique, comportant trois lobes, est observée à toutes les longueurs d'onde, ce qui indique que chacune d'entre elle porte le même MAO, égal à 1.

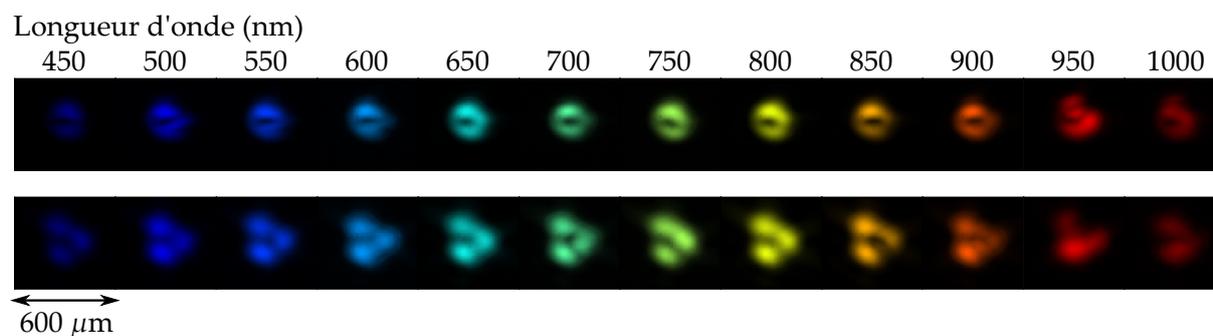


FIGURE 12.16 – Continuum de fréquences visibles portant le MAO $\ell = 1$, obtenu sur la ligne FAB-1bis. En haut : intensité transverse du vortex au foyer d'un miroir sphérique, pour chaque longueur d'onde. En bas : figure de diffraction au foyer après propagation à travers une ouverture triangulaire, à chaque longueur d'onde. Pour des raisons de lisibilité, les images sont normalisées et affichées en fausses couleurs.

La figure 12.17 montre le profil spatio-temporel d'un tel rayonnement infrarouge, si sa phase spectrale était parfaitement contrôlée (par le biais du miroirs chirpés), et le compare à l'impulsion en entrée de fibre. Il s'agirait d'un vortex optique de durée inférieure à 4 fs. De façon remarquable, la phase CEP de cette impulsion varie avec l'angle azimutal⁴ : utilisée en GHOE, elle générerait donc des impulsions attosecondes isolées en certains points du profil, et des groupes de deux ou trois impulsions en d'autres points [55]. Ce balayage azimutal de la phase CEP pourrait potentiellement être observé dans le spectre de GHOE, sous forme d'une modulation spatio-spectrale.

A l'issue de cette thèse, nous n'avons pas pu démontrer le contrôle de la phase spectrale des vortex large-bande infrarouges. Ces expériences sont toujours en cours.

VI Des faisceaux de lumière plus exotiques encore...

Dans cette thèse nous avons utilisé des vortex optiques possédant un MAO longitudinal, parallèle à la direction de propagation, et possédant une phase hélicoïdale dans le plan transverse (x, y) . Il est possible, dans certaines conditions, d'obtenir des champs de lumière dont la phase varie azimutalement dans le plan (x, t) ou (y, t) : ce sont des vortex spatio-temporels (ou STOV, pour *spatio-temporal optical vortices*) [298, 319, 320]. De tels faisceaux sont nécessairement polychromatiques (figure 12.18.a,b), et peuvent se voir associer un MAO *transverse* (MAOT), c'est à dire pointant dans la direction x

4. C'est un effet de la phase spatiale azimutale $\ell\varphi$, combinée avec une enveloppe temporelle ultra-brève ne dépendant pas de φ .

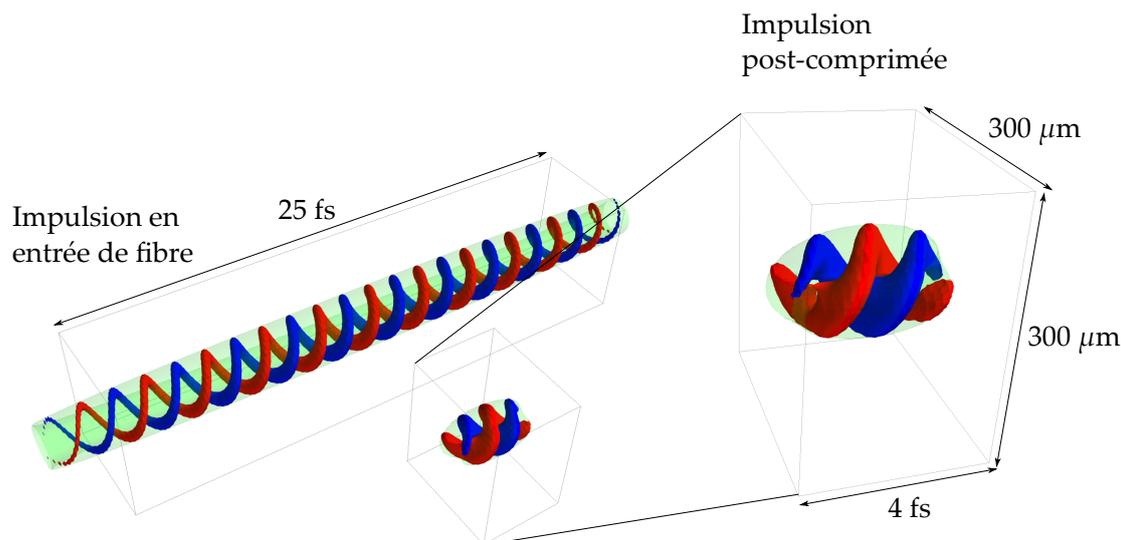


FIGURE 12.17 – Comparaison entre l’impulsion IR de MAO $\ell = 1$ en entrée de fibre, et la limite de Fourier du rayonnement de la figure 12.16 (on suppose une phase spectrale constante). Les surfaces opaques délimitent les volumes à l’intérieur desquels la norme du champ excède sa valeur maximale multipliée par $1/\sqrt{2}$. Le rouge et le bleu correspondent respectivement aux valeurs de champ positives et négatives. La surface verte transparente est un contour de l’intensité lumineuse à la moitié de sa valeur maximale.

ou y . Le MAOT est conservé lors de la propagation du faisceau, et des expériences montrent qu’il est conservé lors de la génération de seconde harmonique [321, 322].

La conservation du MAOT en GHOE, bien que prédite [323], n’a jamais été observée. La figure 12.18.c montre le spectre de GHOE attendu pour un STOV de génération portant le MAOT $\ell_T = 1$, en champ proche, donc avant propagation. De façon remarquable, on observe des structures ressemblant à des modes de HG, dans le domaine spatio-spectral. Ceci est dû au fait que le spectre est obtenu par transformée de Fourier du rayonnement temporel : un STOV subit alors une transformée de Fourier selon une seule des deux coordonnées (la coordonnée t) du plan (x, t) . Par analogie avec la conversion de mode astigmatique observée au chapitre 9, un profil de mode de LG dans le plan (x, t) devient donc un mode de HG basculé de 45° dans l’espace (x, ω) , et d’ordre égal au MAOT du STOV de génération. Le profil spatio-spectral du rayonnement fournirait donc une observable expérimentale de la conservation du MAOT en GHOE.

Au delà du MAS et du MAO, des études très récentes ont mis à jour toute une zoologie de faisceaux de lumière structurés [324, 325, 326] : *vortex toriques* [327, 328], *skyrmions* et *hopfions* optiques [329], etc. Les comportements de ces quasi-particules en optique non-linéaire étant encore inexplorés, nous espérons que les résultats de cette thèse participeront à stimuler de futures recherches sur le sujet.

En conclusion, la physique très non-linéaire de la GHOE est un terrain fertile pour l’étude de ces nouveaux états de la lumière, probablement car elle nous force à réfléchir non seulement dans le domaine fréquentiel, mais aussi dans le domaine temporel. Cela explique peut-être pourquoi certaines découvertes récentes [219, 60], relevant de

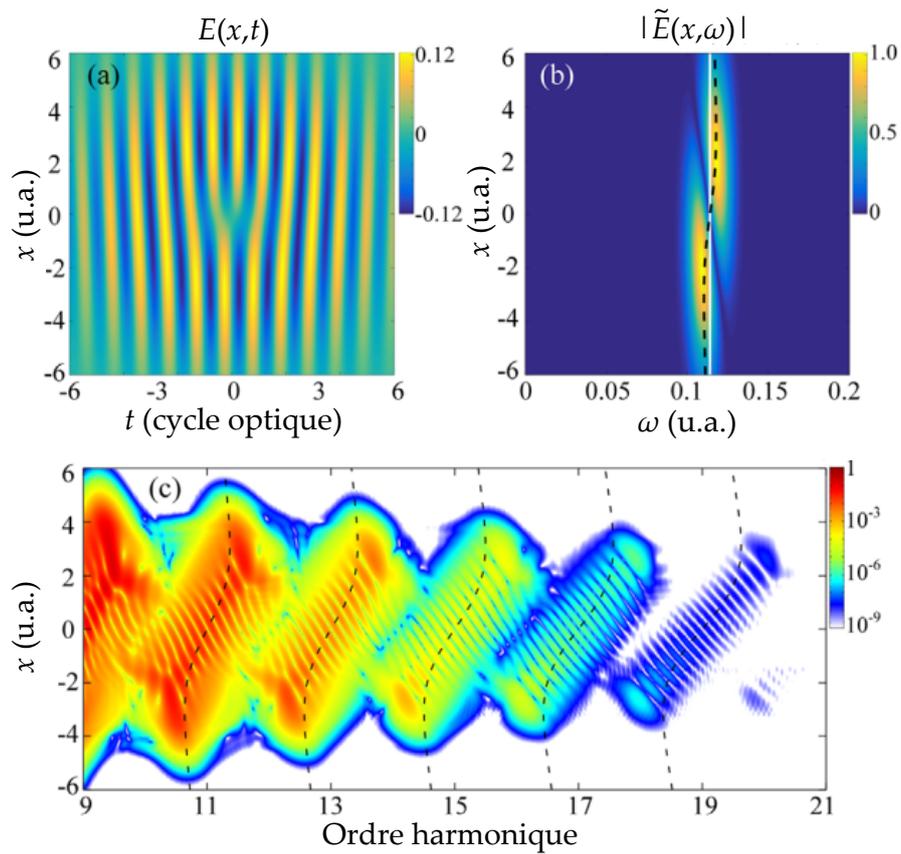


FIGURE 12.18 – (a) Distribution spatio-temporelle du champ électrique du STOV de génération, de MAOT $\ell_T = 1$. (b) Profil spatio-fréquentiel du STOV, montrant un chirp spatial. (c) Simulation du spectre de GHOE correspondant en champ proche, dans l'espace (x, ω) . Figure extraite de [323].

L'optique fondamentale, ont été faites dans le cadre de la physique de champ fort. Nous espérons que nos travaux auront contribué à cet effort de recherche, et ouvert quelques perspectives enthousiasmantes.

Moment angulaire du condensateur cylindrique

Nous nous proposons de vérifier que le couple mécanique exercé sur le condensateur cylindrique de la figure 1.1 compense bien la perte de moment angulaire du champ lors de la décharge du condensateur.

Notons d la hauteur du condensateur, R_1 son rayon intérieur et R_2 son rayon extérieur. La charge de la plaque externe est Q , celle de la plaque interne est $-Q$. Le champ magnétique externe est $\mathbf{B} = B\mathbf{u}_z$. Calculons pour commencer le moment angulaire du champ électromagnétique dans le condensateur. L'équation de Maxwell-Gauss donne le champ électrique dans le condensateur¹

$$\mathbf{E}(r) = -\frac{Q}{2\pi\epsilon_0 d} \frac{1}{r} \mathbf{u}_r. \quad (\text{A.1})$$

La densité de moment angulaire du champ est donc

$$\mathbf{l} = \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E}(r) \times \mathbf{B}) = \frac{QB}{2\pi d} \mathbf{u}_z. \quad (\text{A.2})$$

Elle est uniforme dans l'espace entre les plaques, et donc le moment angulaire total du champ électromagnétique est

$$\mathbf{L}_{\text{champ}} = \int \mathbf{l} dV = \frac{QB}{2} (R_2^2 - R_1^2) \mathbf{u}_z. \quad (\text{A.3})$$

Lorsqu'on laisse le condensateur se décharger par le biais du fil conducteur reliant les plaques, tout en maintenant le champ \mathbf{B} statique, la variation de moment angulaire du champ est donc

$$\frac{d\mathbf{L}_{\text{champ}}}{dt} = \frac{dQ}{dt} \frac{B}{2} (R_2^2 - R_1^2) \mathbf{u}_z. \quad (\text{A.4})$$

Maintenant, calculons le couple exercé par la force de Lorentz sur le fil conducteur. Soit ρ la densité des charges dans le fil, et a sa section. On note $\mathbf{v} = v\mathbf{u}_r$ la vitesse des charges. Le courant total dans le fil s'écrit

$$\frac{dQ}{dt} = \rho v a \Rightarrow v = \frac{1}{\rho a} \frac{dQ}{dt} \quad (\text{A.5})$$

1. On néglige les effets de bord dans ce calcul.

Considérons alors la force de Lorentz s'exerçant sur une longueur infinitésimale de fil située à la distance r de l'axe du condensateur. Elle s'écrit, en utilisant le résultat précédent

$$d\mathbf{F} = (\rho a dr) (\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) = (\rho a dr) \left(E \mathbf{u}_r - \frac{dQ}{dt} \frac{B}{\rho a} \mathbf{u}_\varphi \right). \quad (\text{A.6})$$

Le petit élément de longueur exerce alors le couple mécanique infinitésimal

$$d\boldsymbol{\tau} = \mathbf{r} \times d\mathbf{F} = -r dr \frac{dQ}{dt} B \mathbf{u}_z, \quad (\text{A.7})$$

et le couple exercé sur le fil entier est

$$\boldsymbol{\tau} = \int d\boldsymbol{\tau} = -\frac{dQ}{dt} \frac{B}{2} (R_2^2 - R_1^2) \mathbf{u}_z. \quad (\text{A.8})$$

En comparant les équations A.8 et A.4, on constate que le moment angulaire total (champ+ système mécanique) est conservé au cours du temps

$$\frac{d}{dt} (\mathbf{L}_{\text{champ}} + \mathbf{L}_{\text{mécanique}}) = 0. \quad (\text{A.9})$$

Interféromètre utilisé pour la GHOE à deux faisceaux et procédure d'alignement

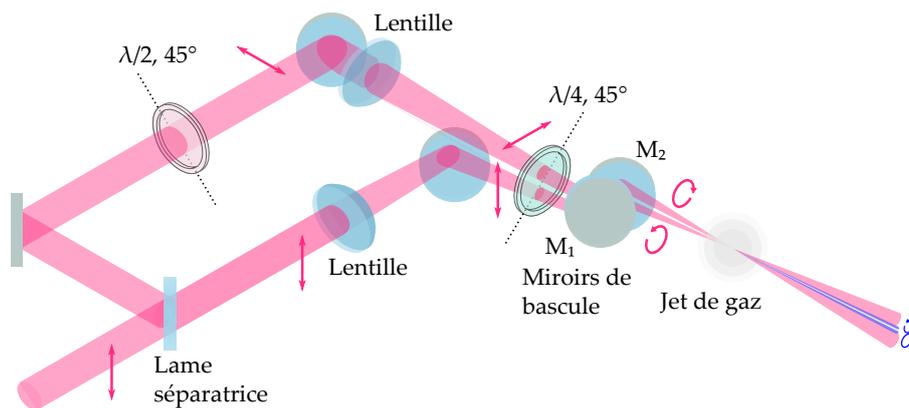


FIGURE B.1 – Schéma de l'expérience de GHOE avec deux faisceaux non-colinéaires de polarisation circulaires croisées. Les flèches rouges montrent l'état de polarisation du faisceau. Un atténuateur est placé dans le bras du faisceau 2.

Le fait que les deux seuls ordres de diffractions autorisés par la conservation du MAS se trouvent de part et d'autre de la bissectrice des deux faisceaux IR (figure 7.5) nous complique la tâche. En effet, lors de nos expériences de GHOE à deux faisceaux de polarisation linéaire, nous commençons par générer des harmoniques avec le faisceau 1 seul se propageant horizontalement et aligné dans le spectromètre. Dans un second temps seulement, nous lui superposons le faisceau 2, et observons les ordres de diffractions des harmoniques. Cependant, seuls les premiers ordres de diffraction (jusqu'à $p = 3$) sont alors détectés, car les ordres supérieurs sont émis avec un angle trop grand pour être collectés par le réseau de diffraction et/ou le miroir sphérique de refocalisation (voir figure B.3). En effet, en considérant un angle typique entre les deux faisceaux IR $\theta = 30$ mrad et une distance de propagation de deux mètres jusqu'au détecteur, la distance entre les harmoniques générées par le faisceau 1 et la bissectrice est d'environ $30 \times 10^{-3} \times 2 = 6$ cm, ce qui excède largement la hauteur de notre réseau

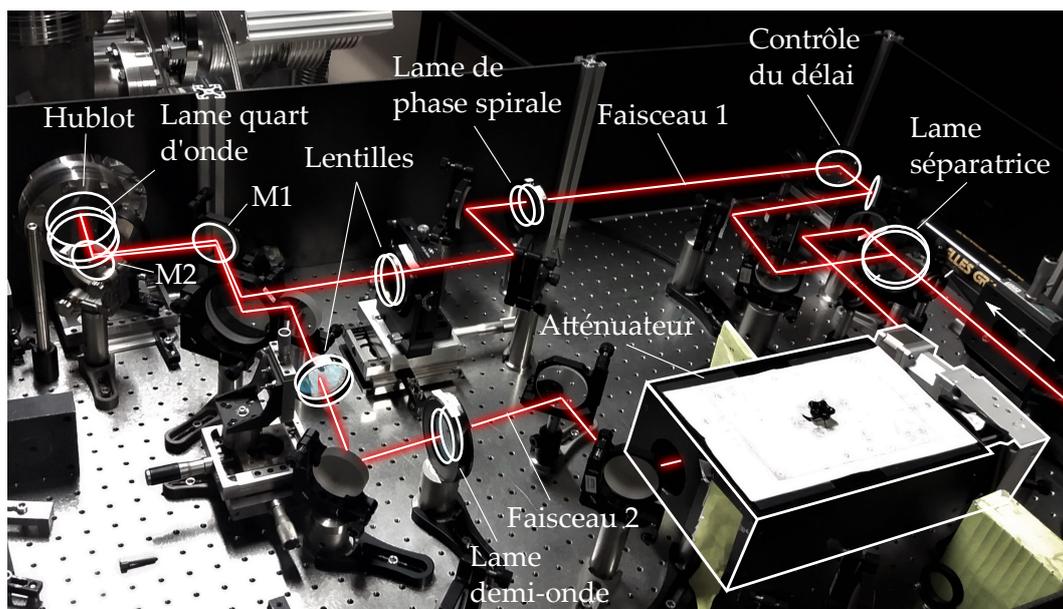


FIGURE B.2 – Trajet du faisceau dans l'interféromètre de Mach-Zender lors des expériences de la partie III.

(~ 4 cm) ou le rayon du miroir sphérique (~ 1.5 cm)¹.

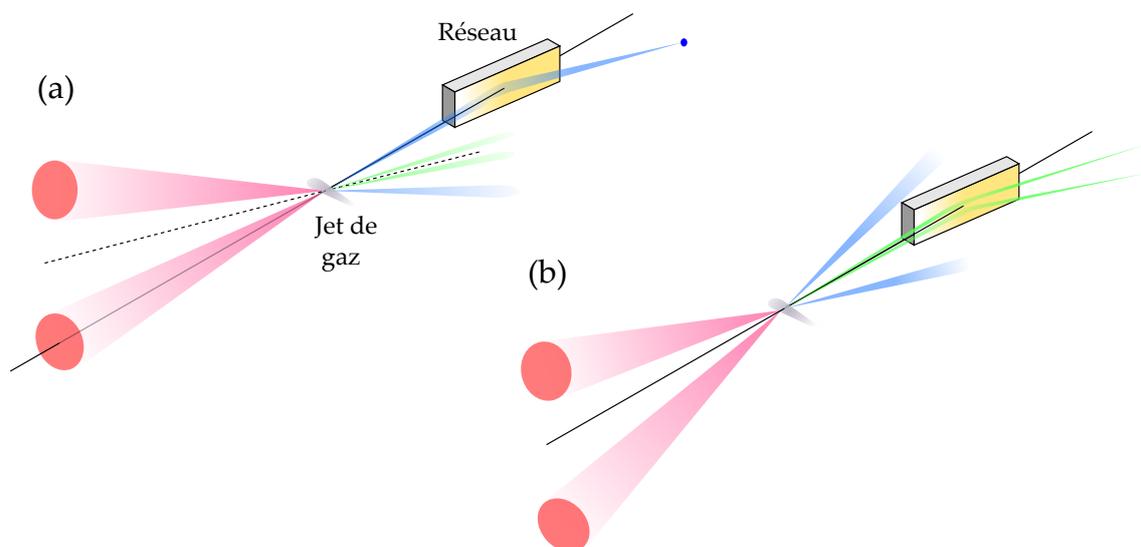


FIGURE B.3 – (a) Cas où le faisceau 1 est horizontal, la bissectrice entre les faisceaux 1 et 2 est indiquée par la ligne pointillée. Les harmoniques générées par le faisceau 1 seul (bleu) sont détectées, mais pas celles générées par le faisceau 2 seul. Les ordres de diffraction $p = (q \pm 1)/2$ (verts) ne sont pas non-plus détectés. (b) Cas où la bissectrice entre les deux faisceaux est horizontale. Les ordres de diffraction $p = (q \pm 1)/2$ sont détectés, mais pas les harmoniques générées par les faisceaux 1 ou 2 seuls.

Pour observer les ordres situés de part et d'autre de la bissectrice, il nous faut donc

1. Dans de rares cas, il sera pourtant possible de détecter simultanément l'ordre $p = 0$ et la bissectrice entre les deux faisceaux, car la distance de propagation est en réalité un peu inférieure à 2 m, et l'angle θ sera plus faible que 30 mrad.

placer cette dernière horizontalement. Pour ce faire, nous plaçons deux miroirs M_1 et M_2 de deux pouces à la sortie de l'interféromètre de Mach-Zender, juste avant la lame quart d'onde (figure B.1 et B.2). Ces deux miroirs étant communs aux deux faisceaux, ils permettent de modifier l'angle que leur bissectrice fait avec l'horizontale sans modifier leur angle relatif θ . Dans la suite, nous les appellerons "miroirs de bascule". La procédure que nous suivons est alors la suivante.

- (1) On commence par générer des harmoniques avec le faisceau 1. Ce dernier se propage horizontalement, et l'alignement du spectromètre XUV est effectué à l'air libre en ouvrant les chambres à vide.
- (2) On ajoute ensuite le faisceau 2, et on optimise le recouvrement spatio-temporel des impulsions en observant les harmoniques.
- (3) A l'aide du miroir M_1 , on oriente les deux faisceaux vers le bas. Ce faisant, on perd très rapidement le signal des harmoniques sur les MCP car les faisceaux IR "ratent" le jet de gaz.
- (4) On utilise le miroir M_2 pour redresser les deux faisceaux et générer de nouveaux les harmoniques et leurs ordres de diffraction.
- (5) En répétant ces deux dernières étapes, on rapproche peu à peu la bissectrice des faisceaux IR de l'axe horizontal.

Comment savoir quand s'arrêter? Pour savoir si la bissectrice est visible sur le détecteur, on peut compter les ordres de diffraction. La bissectrice est à équidistance des ordres de diffraction $p = \frac{q-1}{2}$ et $p = \frac{q+1}{2}$, donc juste après l'ordre $p = 4$ pour $q = 9$, $p = 5$ pour $q = 11$, etc. Une manière plus visuelle de faire est de repérer une ligne horizontale pour laquelle l'intensité de toutes les harmoniques s'annule (figure 7.8.a).

La procédure ci-dessus est laborieuse, car les deux miroirs M_1 et M_2 sont relativement proches l'un de l'autre, ce qui est dû au faible espace disponible sur la table optique. La bascule progressive de ces deux miroirs peut s'opérer - avec un peu d'entraînement - en une vingtaine de minutes. Cependant, il faut garder à l'esprit que lorsque la procédure est terminée, les harmoniques générées par chacun des deux faisceaux IR lorsque l'autre est bloqué ne sont plus détectées! Cela signifie que si le recouvrement spatial et temporel des faisceaux IR est perdu, plus aucun signal harmonique ne peut être détectée ... ce qui oblige alors à rouvrir la chambre du spectromètre et à recommencer l'alignement de zéro².

2. En pratique, l'interféromètre se déréglaient suffisamment au cours de la nuit pour nous obliger à ouvrir la chambre chaque matin.

Solution de l'équation d'invariance 8.12

On se propose de démontrer pourquoi un faisceau de lumière invariant par rotation coordonnée s'exprime comme une somme de deux modes de MAS opposés et de MAO différents. On reprend la démarche de la ref. [219], en partant de l'équation 8.12. Le champ $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t)$ est invariant par rotation coordonnée de paramètre γ ssi

$$\mathbf{R}^{-1}(\gamma\theta) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}(\theta) \cdot \mathbf{r}, t) = \mathbf{E}(\mathbf{r}, t + \tau\theta), \quad (\text{C.1})$$

pour tout angle de rotation θ . En utilisant l'expression 8.18 de la matrice de rotation $\mathbf{R}(\theta)$ dans la base (x, y) et en dérivant par rapport à θ , on obtient la paire d'équations différentielles couplées suivante

$$\begin{aligned} -\frac{\partial E_x}{\partial \varphi} - \gamma E_y &= \tau \frac{\partial E_x}{\partial t}, \\ -\frac{\partial E_y}{\partial \varphi} + \gamma E_x &= \tau \frac{\partial E_y}{\partial t}. \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

En utilisant le changement de variable $u = \varphi + t/\tau$, $v = \varphi - t/\tau$, et en calculant $\frac{\partial}{\partial \varphi}$ et $\frac{\partial}{\partial t}$ en fonction de $\frac{\partial}{\partial u}$ et $\frac{\partial}{\partial v}$, ce système se réduit à une seule équation complexe

$$\left(-\frac{\partial}{\partial u} + \frac{1}{2}i\gamma \right) (E_x + iE_y) = 0, \quad (\text{C.3})$$

où la variable v n'apparaît plus. Sa solution s'écrit sous la forme

$$E_x + iE_y = A(v)e^{\frac{1}{2}i\gamma u} = A(\varphi - t/\tau)e^{\frac{1}{2}i\gamma(\varphi+t/\tau)}. \quad (\text{C.4})$$

Pour être physique, la somme $E_x + iE_y$ doit être continue avec φ , donc être 2π -périodique. Or, selon la valeur de γ , le terme $e^{\frac{1}{2}i\gamma(\varphi+t/\tau)}$ autorise des exposants fractionnaires. On peut trouver une expression plus commode en écrivant $A(v)$ comme

$$A(v) = \tilde{A}(v)e^{-\frac{1}{2}\gamma v}, \quad (\text{C.5})$$

où \tilde{A} est une fonction 2π -périodique série de Fourier, et on obtient

$$E_x + iE_y = \sum_{\ell=-\infty}^{+\infty} \tilde{A}_\ell e^{i\ell\varphi} e^{i\frac{(\gamma-\ell)t}{\tau}}. \quad (\text{C.6})$$

Il s'agit d'une somme de modes de MAO $e^{i\ell\varphi}$, aux fréquences $\frac{(\gamma-\ell)}{\tau}$. Les fréquences négatives et positives correspondent respectivement aux polarisation circulaires droite et gauche (un champ électrique circulaire gauche peut-être vu comme un champ circulaire droite de fréquence opposée). Si le champ est de fréquence ω , seuls les deux termes de MAO ℓ_1 et ℓ_2 donnant les dépendances temporelles $e^{i\omega t}$ et $e^{-i\omega t}$ contribuent. Pour les fréquences négatives, le MAO prend par convention un signe moins, et on obtient bien

$$\omega = \frac{\gamma - \ell_2}{\tau} = \frac{-\gamma + \ell_1}{\tau} \Rightarrow \gamma = \frac{\ell_2 - \ell_1}{2}. \quad (\text{C.7})$$

Cette expression autorise donc γ à prendre des valeurs entières ou demi-entières. Finalement, les champs solutions de l'équation 8.12 sont les superpositions d'un champ polarisé circulairement gauche, de MAO ℓ_1 quelconque, et d'un champ polarisé circulairement gauche, de MAO $\ell_2 = \ell_1 + 2\gamma$.

Déphasage des ordres de diffraction en fonction de celui des faisceaux IR

Dans cette annexe, on s'intéresse à l'effet du déphasage entre les deux faisceaux IR sur la figure de franges inter-vortex des harmoniques générées par deux faisceaux IR non-colinéaires de MAO différents. La figure D.1 montre le profil d'intensité de l'harmonique 13 prédit par le modèle du réseau actif pour différentes valeurs de ce déphasage, qu'on note $\delta\phi_{IR}$. Un déphasage de π translate les franges d'une demi-période de la figure d'interférence, pour toutes les directions d'émission simultanément. Cette particularité est assez étonnante, car jusqu'à présent on n'a pas observé d'effets de la phase relative entre les faisceaux IR sur le profil d'intensité XUV en champ lointain.

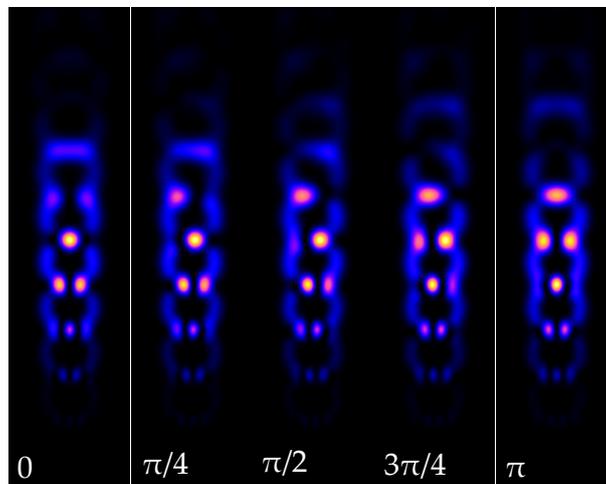


FIGURE D.1 – Profils d'intensité de l'harmonique 13, simulés avec le modèle du réseau actif. Le déphasage $\delta\phi_{IR}$ entre les deux faisceaux IR est indiqué en bas à gauche de chaque image.

Cet effet est en fait une propriété fondamentale des réseaux de diffraction, et n'est pas causée par la présence de MAO dans les faisceaux XUV. Pour le voir, notons que l'amplitude $E_\infty^{(q)}(u)$ du champ électrique de l'harmonique d'ordre q en champ lointain est donnée par la transformée de Fourier son amplitude en champ proche $E_0^{(q)}(y)$, et que la coordonnée u est reliée à l'angle θ_y en champ lointain selon $u = 2\pi q\theta_y/\lambda_{IR}$, avec λ_{IR} la longueur d'onde du champ de génération. En GHOE à deux faisceaux

non-colinéaires, le champ XUV proche prend la forme d'un réseau de diffraction de période $\Lambda \sim \lambda_{IR}/\theta_0$, avec θ_0 l'angle (petit) entre les deux faisceaux IR. L'effet d'un déphasage entre les deux faisceaux est simplement de translater spatialement le réseau d'intensité IR (le réseau XUV en champ proche est alors translaté de la même façon). En particulier, un déphasage $\delta\phi_{IR}$ translate le réseau d'une distance a

$$a \approx \frac{\delta\phi_{IR}\lambda_{IR}}{2\pi\theta_0}. \quad (\text{D.1})$$

Or, par propriété de la transformée de Fourier, cette variation de la coordonnée spatiale en champ proche induit un déphasage proportionnel à u en champ lointain. En effet, pour toute fonction $A(x)$, on a

$$\mathcal{F}\{A(x - a)\}(u) = \mathcal{F}\{A(x)\}(u)e^{iau}, \quad (\text{D.2})$$

où \mathcal{F} est la transformée de Fourier. Appliquée à la mise en forme d'impulsions laser, cette propriété explique qu'une phase spectrale linéaire induise une translation de l'impulsion dans le temps. Dans le cas présent de la GHOE à deux faisceaux, elle se traduit par le fait que chaque direction d'émission (correspondant à une valeur donnée de u) subit un déphasage différent lorsque le réseau en champ proche est translaté. Le champ lointain de l'harmonique q pour une translation a du réseau s'écrit donc

$$E_\infty^{(q)}(u) = E_\infty^{(q)}(u, a = 0)e^{iau}. \quad (\text{D.3})$$

Considérons l'ordre de diffraction p du réseau. On sait qu'il est émis à l'angle

$$\theta_y^{(p)} \sim -\frac{p\theta_0}{q}, \quad (\text{D.4})$$

lequel correspond donc à la coordonnée $u^{(p)} = 2\pi p\theta_0/\lambda_{IR}$. En injectant les expressions de $u^{(p)}$ et de a (équation D.1) dans l'équation D.3, on obtient finalement l'amplitude du $p^{\text{ième}}$ ordre de diffraction :

$$E_\infty^{(q,p)}(u) = E_\infty^{(q,p)}(u, a = 0)e^{ip\delta\phi_{IR}} \quad (\text{D.5})$$

Ainsi, en accord avec les résultats de simulation de la figure D.1, on trouve que deux ordres de diffractions consécutifs p et $p + 1$ subissent un déphasage $\delta\phi_{IR}$, égal à celui entre les deux faisceaux IR. Ce résultat n'a pas été vérifié expérimentalement au cours de cette thèse, mais nous espérons qu'une telle expérience pourra être conduite dans le futur.

Annexe **E**

Expression des modes de Laguerre-Gauss en fonction des modes d'Hermite-Gauss

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \operatorname{Re}\{\mathcal{L}\mathcal{G}_{\ell,p}\} = (-1)^p \sum_{n=0}^p \sum_{m=0}^{[\ell/2]} (-1)^m \binom{p}{n} \binom{\ell}{2m} \\
 \quad \times \sqrt{\frac{(2(n-m)+\ell)!(2(p-n+m))!}{2^{2p+\ell-1}p!(p+\ell)!(1+\delta_{0\ell})}} \mathcal{H}\mathcal{G}_{2(n-m)+\ell,2(p-n+m)} \\
 \operatorname{Im}\{\mathcal{L}\mathcal{G}_{\ell,p}\} = (-1)^p \sum_{n=0}^p \sum_{m=0}^{[(\ell-1)/2]} (-1)^m \binom{p}{n} \binom{\ell}{2m+1} \\
 \quad \times \sqrt{\frac{(2(n-m)+\ell-1)!(2(p-n+m)+1)!}{2^{2p+\ell-1}p!(p+\ell)!(1+\delta_{0\ell})}} \mathcal{H}\mathcal{G}_{2(n-m)+\ell-1,2(p-n+m)+1}
 \end{array} \right. \quad (\text{E.1})$$

Remerciements

Tout d'abord, je remercie les rapporteurs de ma thèse, Édouard Hertz et Yann Mairesse, notamment pour avoir lu ce manuscrit en détail malgré ses trois-cent pages. Vos corrections l'ont grandement amélioré. Merci à vous et aux autres membres de mon jury, Anne L'Huillier, Sophie Kazamias, Étienne Brasselet et Fabien Quéré, pour vos encouragements et les échanges passionnants que nous avons eus durant la soutenance. C'était un plaisir de vous voir à Saclay ce 30 Juin.

Je remercie mon directeur de thèse, Thierry Ruchon. Je crois qu'au fil de ces trois ans nous sommes devenus amis en plus d'être collègues. Lorsque je t'ai rencontré fin 2018, alors à la recherche d'un stage de fin d'étude, j'ai tout de suite eu envie de travailler à tes côtés. Merci pour les encouragements et la grande liberté que tu m'as donnée, même lorsque je me perdais dans de vains calculs ou expériences. Je me souviendrai de cette journée où nous avons fait le lien entre les résultats de manips et le formalisme du MAG, sans doute un bel exemple de la manière dont les avancées peuvent se faire à tâtons. J'espère que nous serons amenés à explorer d'autres sujets ensemble un jour. Merci pour ton enthousiasme et ta bonne humeur à toute épreuve.

Mes remerciements s'adressent également à mon co-directeur Pascal Salières, pour les discussions scientifiques que nous avons pu avoir. Je remercie chaleureusement nos collègues de l'équipe laser : Pad'ol, Jean-François Hergott, Olivier Tcherbakoff et Fabien Lepetit – grâce à qui nous disposons d'impulsions femtoseconde de grande qualité, ainsi que Thierry Auguste pour les belles simulations. Je souhaite également remercier les autres collègues du LIDYL pour toute l'aide apportée, notamment Pierre Schumacher, Caroline Lebe, Sylvie Jubera, Pascal Monot, Phillippe Martin et Catalin Miron.

Pendant ma thèse j'ai eu la chance de collaborer avec différents groupes de recherche à travers le monde. Mes remerciements vont à Maurizio Sacchi du synchrotron SOLEIL, ainsi qu'à nos collaborateurs de SpinTech à Grenoble, du synchrotron Elletra à Trieste, de l'université de Nova Garica en Slovénie, ainsi que de l'institut Paul Scherrer à Villigen. Je remercie également Carlos Hernández-García, Emilio Pisanty et Antonio Zelaquett-Khoury. Nous devons encore célébrer le papier du MAG autour d'une bière!

Si c'était toujours un plaisir de venir au laboratoire, c'est avant tout grâce aux personnes avec qui j'ai travaillé. En premier lieu Otitis/Mekha. Thank you for your venerable wisdom, papillon de ciel. J'ai aussi eu la chance de travailler aux côtés de David Bresteau, Mauro Fanciulli et Romain Généaux. Vous m'avez tous trois beaucoup appris, merci pour les bons moments passés dans et hors du labo. Je remercie également Matthieu, Romain et Titouan : c'était très enrichissant de vous accueillir au

labo, et je suis impatient de voir les belles expériences que vous ferez dans les années à venir. Pendant ma thèse, j'ai également passé de nombreux moments inoubliables avec Éloïse, mais aussi avec Alice, Mariusz, Dominique, Guillaume, Constant et Lucie. Merci pour vos mots chaleureux à l'issue de la soutenance. Enfin, je tiens à remercier les collègues que je croisais dans les couloirs, en particulier Christian pour les discussions scientifiques enflammées durant le trajet Saclay-Le Guichet.

Merci à mes amis de prépas, notamment Valentin, Nessim et Yaël, et à mes colocos Syrielle, Ale, Hyunwoo (qu'est ce qu'on était biens à BLR!). Merci aussi à mes amis de l'ENSTA, en particulier Alexandre, Juliette et JF. Ces années à Paris n'auraient pas été aussi belles sans vous tous. J'ai également une pensée pour mes vieux amis : Paul, Marin et les autres.

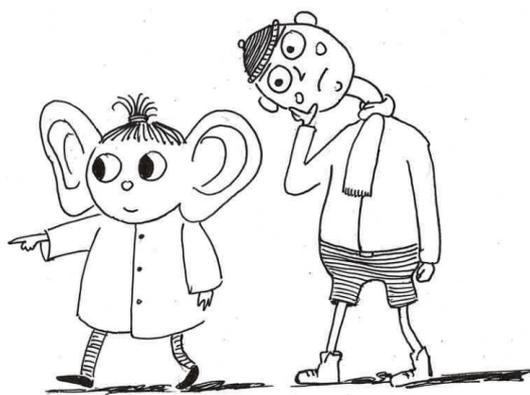
Je vais tenter de remercier ma famille en quelques lignes, ce qui est impossible. Mes parents, pour nous avoir toujours offert une maison chaleureuse et un soutien indéfectible. Ces trois années ont aussi été marquées par de belles aventures en montagne, merci pour ça. Merci à mes frères et soeurs Petit Gui, Florinette, Pitou et Jeanou. Merci à Brigitte et Claire, et Manu et Jérémie, pour le voyage express à Paris pour ma soutenance. Cela m'a fait très plaisir de me savoir autant soutenu. Je pense aussi à mes grands-parents, Gine, Dada, Clarisse et Rémy. Clarisse, merci pour les merveilleux moments à Saverne et ailleurs, en particulier lors de la finalisation de mon manuscrit de thèse. Merci aussi à Philippe et Corinne pour leur accueil chaleureux.

Amélie... je ne peux pas non plus te remercier en seulement quelques lignes. Sache que ces deux dernières années ont sans doute été les plus heureuses de ma vie. Merci de m'avoir patiemment accompagné durant la conclusion de cette thèse. Je fourmille d'impatience en pensant à nos futures aventures.

Enfin, ma dernière pensée va à mon grand-père Rémy, instituteur, esprit libre et aventurier. Ton regard bienveillant nous accompagne depuis les cîmes.

À tous, un grand merci !

PS : Merci pour les cadeaux ! Le petit friend vert est déjà allé se ficher dans les fissures au dessus du glacier d'Argentière.



Bibliographie

- [1] J. C. MAXWELL. "VIII. A dynamical theory of the electromagnetic field". *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 155 (1865), p. 459-512 (cf. p. [11](#), [28](#)).
- [2] 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 of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 82.557 (1909), p. 560-567 (cf. p. [11](#), [31](#)).
- [3] A. KASTLER. "Non existence d'un spin des photons". *J. Phys. Radium* 2.5 (1931), p. 159-164 (cf. p. [11](#)).
- [4] E. P. WIGNER. "Relativistic Invariance and Quantum Phenomena". *Rev. Mod. Phys.* 29 (1957), p. 255-268 (cf. p. [11](#)).
- [5] S. V. ENK et G. NIENHUIS. "Commutation Rules and Eigenvalues of Spin and Orbital Angular Momentum of Radiation Fields". *Journal of Modern Optics* 41.5 (1994), p. 963-977 (cf. p. [11](#), [12](#), [57](#), [72](#), [73](#), [150](#)).
- [6] S. M. BARNETT et al. "On the natures of the spin and orbital parts of optical angular momentum". *Journal of Optics* 18.6, 064004 (2016), p. 064004 (cf. p. [11](#), [12](#), [58](#), [158](#)).
- [7] S. BOSE. "Plancks Gesetz und Lichtquantenhypothese". *Zeitschrift für Physik* 26 (1924), p. 178-181 (cf. p. [11](#)).
- [8] C. V. RAMAN et S. BHAGAVANTAM. "Evidence for the Spin of the Photon from Light-Scattering." *Nature* 128.3220 (1931), p. 114-115 (cf. p. [11](#)).
- [9] C. V. RAMAN et S. BHAGAVANTAM. "Experimental Proof of the Spin of the Photon." *Nature* 129.3244 (1932), p. 22-23 (cf. p. [11](#)).
- [10] R. A. BETH. "Mechanical Detection and Measurement of the Angular Momentum of Light". *Phys. Rev.* 50 (1936), p. 115-125 (cf. p. [11](#), [31](#), [32](#)).
- [11] C. G. DARWIN. "Notes on the theory of radiation". *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 136.829 (1932), p. 36-52 (cf. p. [11](#), [45](#), [58](#)).
- [12] L. ALLEN et al. "Orbital angular momentum of light and the transformation of Laguerre-Gaussian laser modes". *Phys. Rev. A* 45 (1992), p. 8185-8189 (cf. p. [12](#), [13](#), [41](#), [45](#), [46](#)).

- [13] R. P. CAMERON et al. "Chirality and the angular momentum of light". *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 375.2087 (2017), p. 20150433 (cf. p. 13, 236).
- [14] Y. SHEN et al. "Optical vortices 30 years on : OAM manipulation from topological charge to multiple singularities". *Light : Science & Applications* 8.1, 90 (2019), p. 90 (cf. p. 13, 45).
- [15] J. WANG et al. "Orbital angular momentum and beyond in free-space optical communications". *Nanophotonics* 11.4 (2022), p. 645-680 (cf. p. 13).
- [16] L. LI et al. "High-Capacity Free-Space Optical Communications Between a Ground Transmitter and a Ground Receiver via a UAV Using Multiplexing of Multiple Orbital-Angular-Momentum Beams". *Scientific Reports* 7, 17427 (2017), p. 17427 (cf. p. 13).
- [17] M. KRENN et al. "Communication with spatially modulated light through turbulent air across Vienna". *New Journal of Physics* 16.11 (2014), p. 113028 (cf. p. 13).
- [18] C. LIU et al. "Single-End Adaptive Optics Compensation for Emulated Turbulence in a Bi-Directional 10-Mbit/s per Channel Free-Space Quantum Communication Link Using Orbital-Angular-Momentum Encoding". *Research* 2019 (2019) (cf. p. 13).
- [19] A. E. WILLNER et al. "Underwater optical communications using orbital angular momentum-based spatial division multiplexing". *Optics Communications* 408 (2018). *Optical Communications Exploiting the Space Domain*, p. 21-25 (cf. p. 13).
- [20] J. ZHANG et al. *Nanophotonics* 11.4 (2022), p. 873-884 (cf. p. 13).
- [21] A. MAIR et al. "Entanglement of the orbital angular momentum states of photons". *Nature* 412.6844 (2001), p. 313-316 (cf. p. 13).
- [22] R. FICKLER et al. "Quantum Entanglement of High Angular Momenta". *Science* 338.6107 (2012), p. 640-643 (cf. p. 13).
- [23] M. KRENN et al. "Orbital angular momentum of photons and the entanglement of Laguerre–Gaussian modes". *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 375.2087 (2017), p. 20150442 (cf. p. 13).
- [24] M. E. J. FRIESE et al. "Optical angular-momentum transfer to trapped absorbing particles". *Phys. Rev. A* 54 (1996), p. 1593-1596 (cf. p. 13).
- [25] M. E. J. FRIESE et al. "Optical alignment and spinning of laser-trapped microscopic particles". *Nature* 394.6691 (1998), p. 348-350 (cf. p. 13).
- [26] K. D. WULFF, D. G. COLE et R. L. CLARK. "Controlled rotation of birefringent particles in an optical trap". *Applied Optics* 47.34 (2008), p. 6428 (cf. p. 13).
- [27] M. G. DONATO et al. "Light-induced rotations of chiral birefringent microparticles in optical tweezers". *Scientific Reports* 6, 31977 (2016), p. 31977 (cf. p. 13).
- [28] H. HE et al. "Direct Observation of Transfer of Angular Momentum to Absorptive Particles from a Laser Beam with a Phase Singularity". *Phys. Rev. Lett.* 75 (1995), p. 826-829 (cf. p. 13).

- [29] N. B. SIMPSON et al. "Mechanical equivalence of spin and orbital angular momentum of light : an optical spanner". *Opt. Lett.* 22.1 (1997), p. 52-54 (cf. p. 13).
- [30] A. T. O'NEIL et al. "Intrinsic and Extrinsic Nature of the Orbital Angular Momentum of a Light Beam". *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), p. 053601 (cf. p. 13).
- [31] S. W. HELL et J. WICHMANN. "Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission : stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy". *Opt. Lett.* 19.11 (1994), p. 780-782 (cf. p. 13).
- [32] M. RITSCH-MARTE. "Orbital angular momentum light in microscopy". *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series A* 375.2087, 20150437 (2017), p. 20150437 (cf. p. 13).
- [33] L. YAN, P. KRISTENSEN et S. RAMACHANDRAN. "Vortex fibers for STED microscopy". *APL Photonics* 4.2 (2019), p. 022903 (cf. p. 13).
- [34] M. P. J. LAVERY et al. "Detection of a Spinning Object Using Light's Orbital Angular Momentum". *Science* 341.6145 (2013), p. 537-540 (cf. p. 13).
- [35] F. TAMBURINI et al. "Twisting of light around rotating black holes". *Nature Physics* 7.3 (2011), p. 195-197 (cf. p. 13).
- [36] E. H. T. COLLABORATION. "First Sagittarius A* Event Horizon Telescope Results. I. The Shadow of the Supermassive Black Hole in the Center of the Milky Way". *The Astrophysical Journal Letters* 930.2 (2022), p. L12 (cf. p. 13).
- [37] J. STÖHR. "X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy of transition metal thin films". *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 75 (1995). Future Perspectives for Electron Spectroscopy with Synchrotron Radiation, p. 253-272 (cf. p. 14).
- [38] G. A. GARCIA et al. "Circular dichroism in the photoelectron angular distribution from randomly oriented enantiomers of camphor". *The Journal of Chemical Physics* 119.17 (2003), p. 8781-8784 (cf. p. 14).
- [39] A. FERRÉ et al. "A table-top ultrashort light source in the extreme ultraviolet for circular dichroism experiments". *Nature Photonics* 9.2 (2015), p. 93-98 (cf. p. 14).
- [40] S. BEAULIEU et al. "Probing ultrafast dynamics of chiral molecules using time-resolved photoelectron circular dichroism". *Faraday Discuss.* 194 (2016), p. 325-348 (cf. p. 14).
- [41] A. PICÓN et al. "Photoionization with orbital angular momentum beams". *Opt. Express* 18.4 (2010), p. 3660-3671 (cf. p. 14).
- [42] M. FANCIULLI et al. "Observation of Magnetic Helicoidal Dichroism with Extreme Ultraviolet Light Vortices". *Phys. Rev. Lett.* 128 (2022), p. 077401 (cf. p. 14, 235, 240, 252, 256).
- [43] M. R. McCARTER et al. "Antiferromagnetic real-space configuration probed by dichroism in scattered x-ray beams with orbital angular momentum". *Phys. Rev. B* 107 (2023), p. L060407 (cf. p. 14).
- [44] J. R. ROUXEL et S. MUKAMEL. "Molecular Chirality and Its Monitoring by Ultrafast X-ray Pulses". *Chemical Reviews* 122.22 (2022). PMID : 36148922, p. 16802-16838 (cf. p. 14, 256).

- [45] B. WANG et al. "Coherent Fourier scatterometry using orbital angular momentum beams for defect detection". *Opt. Express* 29.3 (2021), p. 3342-3358 (cf. p. [14](#), [256](#)).
- [46] W. ESCHEN et al. "Material-specific high-resolution table-top extreme ultraviolet microscopy". *Light : Science & Applications* 11.1, 117 (2022), p. 117 (cf. p. [14](#), [256](#)).
- [47] B. WANG et al. *High-fidelity ptychographic imaging of highly periodic structures enabled by vortex high harmonic beams*. 2023 (cf. p. [14](#), [256](#)).
- [48] J. BAHRDT et al. "First Observation of Photons Carrying Orbital Angular Momentum in Undulator Radiation". *Phys. Rev. Lett.* 111 (2013), p. 034801 (cf. p. [14](#)).
- [49] E. HEMSING et al. "Coherent optical vortices from relativistic electron beams". *Nature Physics* 9.9 (2013), p. 549-553 (cf. p. [14](#)).
- [50] A. MCPHERSON et al. "Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases". *J. Opt. Soc. Am. B* 4.4 (1987), p. 595-601 (cf. p. [14](#), [79](#)).
- [51] M. FERRAY et al. "Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases". *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* 21.3 (1988), p. L31-L35 (cf. p. [14](#), [79](#)).
- [52] M. ZÜRCH et al. "Strong-field physics with singular light beams". *Nature Physics* 8.10 (2012), p. 743-746 (cf. p. [15](#), [113](#)).
- [53] G. GARIEPY et al. "Creating High-Harmonic Beams with Controlled Orbital Angular Momentum". *Phys. Rev. Lett* 113.15, 153901 (2014), p. 153901 (cf. p. [15](#), [113](#), [116](#), [119](#), [126](#)).
- [54] R. GÉNEAUX et al. "Synthesis and characterization of attosecond light vortices in the extreme ultraviolet". *Nature Communications* 7, 12583 (2016), p. 12583 (cf. p. [15](#), [113](#), [115](#), [116](#), [126](#), [128](#), [129](#), [181](#)).
- [55] C. HERNÁNDEZ-GARCÍA et al. "Attosecond Extreme Ultraviolet Vortices from High-Order Harmonic Generation". *Phys. Rev. Lett.* 111 (2013), p. 083602 (cf. p. [15](#), [113](#), [126](#), [267](#)).
- [56] F. SANSON et al. "Hartmann wavefront sensor characterization of a high charge vortex beam in the extreme ultraviolet spectral range". *Opt. Lett.* 43.12 (2018), p. 2780-2783 (cf. p. [15](#), [113](#), [114](#), [116](#)).
- [57] F. KONG et al. "Controlling the orbital angular momentum of high harmonic vortices". *Nature Communications* 8, 14970 (2017), p. 14970 (cf. p. [15](#), [116](#), [121](#), [123](#)).
- [58] D. GAUTHIER et al. "Tunable orbital angular momentum in high-harmonic generation". *Nature Communications* 8, 14971 (2017), p. 14971 (cf. p. [15](#), [121](#), [123](#)).
- [59] W. PAUFLER, B. BÖNING et S. FRITZSCHE. "High harmonic generation with Laguerre–Gaussian beams". *Journal of Optics* 21.9 (2019), p. 094001 (cf. p. [15](#)).
- [60] L. REGO et al. "Generation of extreme-ultraviolet beams with time-varying orbital angular momentum". *Science* 364.6447 (2019), p. 9486 (cf. p. [15](#), [268](#)).
- [61] L. REGO et al. "Necklace-structured high-harmonic generation for low-divergence, soft x-ray harmonic combs with tunable line spacing". *Science Advances* 8.5 (2022), eabj7380 (cf. p. [15](#)).

- [62] A. FLEISCHER et al. "Spin angular momentum and tunable polarization in high-harmonic generation". *Nature Photonics* 8.7 (2014), p. 543-549 (cf. p. [15](#), [136](#), [257](#)).
- [63] E. PISANTY, S. SUKIASYAN et M. IVANOV. "Spin conservation in high-order-harmonic generation using bicircular fields". *Phys. Rev. A* 90 (2014), p. 043829 (cf. p. [15](#), [133](#), [137](#), [200](#)).
- [64] T. FAN et al. "Bright circularly polarized soft X-ray high harmonics for X-ray magnetic circular dichroism". *Proceedings of the National Academy of Sciences* 112.46 (2015), p. 14206-14211 (cf. p. [15](#), [141](#), [200](#)).
- [65] D. D. HICKSTEIN et al. "Non-collinear generation of angularly isolated circularly polarized high harmonics". *Nature Photonics* 9.11 (2015), p. 743-750 (cf. p. [15](#), [137](#), [146](#), [147](#), [256](#)).
- [66] C. HERNÁNDEZ-GARCÍA et al. "Schemes for generation of isolated attosecond pulses of pure circular polarization". *Phys. Rev. A* 93 (2016), p. 043855 (cf. p. [15](#), [146](#)).
- [67] P.-C. HUANG et al. "Polarization control of isolated high-harmonic pulses". *Nature Photonics* 12.6 (2018), p. 349-354 (cf. p. [15](#), [266](#)).
- [68] K. M. DORNEY et al. "Controlling the polarization and vortex charge of attosecond high-harmonic beams via simultaneous spin-orbit momentum conservation". *Nature Photonics* 13.2 (2019), p. 123-130 (cf. p. [15](#), [173](#), [259](#)).
- [69] F. KONG et al. "Spin-constrained orbital-angular-momentum control in high-harmonic generation". *Physical Review Research* 1.3, 032008 (2019), p. 032008 (cf. p. [15](#)).
- [70] A. de las HERAS et al. "Extreme-ultraviolet vector-vortex beams from high harmonic generation". *Optica* 9.1 (2022), p. 71-79 (cf. p. [15](#), [173](#)).
- [71] A. V. BOGATSKAYA et al. "Polarization response in extreme nonlinear optics : when can the semiclassical approach be used ?" *Laser Physics Letters* 13.4 (2016), p. 045301 (cf. p. [15](#), [193](#)).
- [72] I. A. GONOSKOV et al. "Quantum optical signatures in strong-field laser physics : Infrared photon counting in high-order-harmonic generation". *Scientific Reports* 6, 32821 (2016), p. 32821 (cf. p. [15](#), [193](#)).
- [73] L. LI et al. "Scaling Law of High Harmonic Generation in the Framework of Photon Channels". *Phys. Rev. Lett.* 120 (2018), p. 223203 (cf. p. [15](#), [193](#), [200](#)).
- [74] A. GORLACH et al. "The quantum-optical nature of high harmonic generation". *Nature Communications* 11, 4598 (2020), p. 4598 (cf. p. [15](#), [193](#)).
- [75] M. LEWENSTEIN et al. "Generation of optical Schrödinger cat states in intense laser-matter interactions". *Nature Physics* 17.10 (2021), p. 1104-1108 (cf. p. [15](#), [193](#)).
- [76] P. STAMMER et al. "Quantum Electrodynamics of Intense Laser-Matter Interactions : A Tool for Quantum State Engineering". *PRX Quantum* 4 (2023), p. 010201 (cf. p. [15](#), [193](#)).
- [77] J. PEREZ. *Théorie des champs, les équations de la physique*. Les Presses de l'Ensta, 2022 (cf. p. [22](#), [24](#), [25](#)).

- [78] D. TONG. *Lectures on Classical Dynamics*. University of Cambridge, 2015 (cf. p. [22](#), [25](#)).
- [79] R. FEYNMAN. *The Principle of Least Action in Quantum Mechanics*. Princeton University, 1942 (cf. p. [23](#)).
- [80] E. NOETHER. "Invariante variationsprobleme". *Nachr. Akad. Wiss. Goett.* 2 (1918), p. 235-57 (cf. p. [24](#)).
- [81] J. H. POYNTING et J. W. STRUTT. "XV. On the transfer of energy in the electromagnetic field". *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 175 (1884), p. 343-361 (cf. p. [29](#)).
- [82] J. D. JACKSON et R. F. FOX. "Classical Electrodynamics, 3rd ed." *American Journal of Physics* 67.9 (1999), p. 841-842 (cf. p. [29](#)).
- [83] R. FEYNMAN, R. LEIGHTON et M. SANDS. *The Feynman Lectures on Physics, Vol. II : The New Millennium Edition : Mainly Electromagnetism and Matter*. The Feynman Lectures on Physics. 2011 (cf. p. [29](#)).
- [84] E. HECHT. "Optics", 4th edition. 2011 (cf. p. [29](#)).
- [85] C. N. COHEN-TANNOUJJI. "Nobel Lecture : Manipulating atoms with photons". *Reviews of Modern Physics* 70.3 (1998), p. 707-719 (cf. p. [29](#)).
- [86] F. C. SPEIRITS et S. M. BARNETT. "Do Waves Carrying Orbital Angular Momentum Possess Azimuthal Linear Momentum?" *Phys. Rev. Lett.* 111 (2013), p. 103602 (cf. p. [30](#)).
- [87] G. M. GRAHAM et D. G. LAHOZ. "Observation of static electromagnetic angular momentum in vacua". *Nature* 285.5761 (1980), p. 154-155 (cf. p. [31](#)).
- [88] M. MANSURIPUR. "Angular momentum of circularly polarized light in dielectric media". *Opt. Express* 13.14 (2005), p. 5315-5324 (cf. p. [37](#)).
- [89] J. HUMBLET. "Sur le moment d'impulsion d'une onde électromagnétique". *Physica* 10.7 (1943), p. 585-603 (cf. p. [38](#), [45](#), [58](#)).
- [90] D. KIANG et K. YOUNG. "The angular momentum of photons in a circularly polarized beam". *American Journal of Physics* 76.11 (2008), p. 1012-1014 (cf. p. [38](#)).
- [91] L. W. DAVIS. "Theory of electromagnetic beams". *Phys. Rev. A* 19 (1979), p. 1177-1179 (cf. p. [39](#)).
- [92] M. R. DENNIS et M. A. ALONSO. "Swings and roundabouts : optical Poincaré spheres for polarization and Gaussian beams". *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 375.2087 (2017), p. 20150441 (cf. p. [39](#), [40](#)).
- [93] A. E. SIEGMAN. *Lasers*. 1986 (cf. p. [40](#)).
- [94] W. N. PLICK et M. KRENN. "Physical meaning of the radial index of Laguerre-Gauss beams". *Phys. Rev. A* 92 (2015), p. 063841 (cf. p. [42](#)).
- [95] P. COULLET, L. GIL et F. ROCCA. "Optical vortices". *Optics Communications* 73.5 (1989), p. 403-408 (cf. p. [45](#)).
- [96] K. VOLKE-SEPULVEDA et al. "Orbital angular momentum of a high-order Bessel light beam". *Journal of Optics B : Quantum and Semiclassical Optics* 4.2 (2002), S82 (cf. p. [45](#)).

- [97] J. C. GUTIÉRREZ-VEGA, M. D. ITURBE-CASTILLO et S. CHÁVEZ-CERDA. "Alternative formulation for invariant optical fields : Mathieu beams". *Opt. Lett.* 25.20 (2000), p. 1493-1495 (cf. p. 45).
- [98] F. BELINFANTE. "On the current and the density of the electric charge, the energy, the linear momentum and the angular momentum of arbitrary fields". *Physica* 7.5 (1940), p. 449-474 (cf. p. 45).
- [99] J. LEACH et al. "Direct measurement of the skew angle of the Poynting vector in a helically phased beam". *Opt. Express* 14.25 (2006), p. 11919-11924 (cf. p. 45).
- [100] N. MATSUMOTO et al. "Generation of high-quality higher-order Laguerre-Gaussian beams using liquid-crystal-on-silicon spatial light modulators". *J. Opt. Soc. Am. A* 25.7 (2008), p. 1642-1651 (cf. p. 49).
- [101] M. PADGETT, J. COURTIAL et L. ALLEN. "Light's Orbital Angular Momentum". *Physics Today* 57.5 (2004), p. 35-40 (cf. p. 50).
- [102] V. BAZHENOV et M. SOSKIN. "Laser beams with screw dislocations in their wavefronts". *JETP Lett* 52 (1990), p. 429-31 (cf. p. 50).
- [103] V. BAZHENOV, M. SOSKIN et M. VASNETSOV. "Screw Dislocations in Light Wavefronts". *Journal of Modern Optics* 39.5 (1992), p. 985-990 (cf. p. 50).
- [104] B. TERHALLE et al. "Generation of extreme ultraviolet vortex beams using computer generated holograms". *Opt. Lett.* 36.21 (2011), p. 4143-4145 (cf. p. 50).
- [105] S. LI et Z. WANG. "Generation of optical vortex based on computer-generated holographic gratings by photolithography". *Applied Physics Letters* 103.14 (2013), p. 141110 (cf. p. 50).
- [106] J. S. WOODS et al. "Switchable X-Ray Orbital Angular Momentum from an Artificial Spin Ice". *Phys. Rev. Lett.* 126 (2021), p. 117201 (cf. p. 50).
- [107] P. Ž. REBERNIK RIBI Č et al. "Extreme-Ultraviolet Vortices from a Free-Electron Laser". *Phys. Rev. X* 7 (2017), p. 031036 (cf. p. 50, 231).
- [108] M. BEIJERSBERGEN et al. "Astigmatic laser mode converters and transfer of orbital angular momentum". *Optics Communications* 96.1 (1993), p. 123-132 (cf. p. 51).
- [109] L. MARRUCCI, C. MANZO et D. PAPARO. "Optical Spin-to-Orbital Angular Momentum Conversion in Inhomogeneous Anisotropic Media". *Phys. Rev. Lett.* 96 (2006), p. 163905 (cf. p. 51, 241, 249).
- [110] M. RAFAYELYAN et E. BRASSELET. "Laguerre-Gaussian modal q-plates". *Opt. Lett.* 42.10 (2017), p. 1966-1969 (cf. p. 51, 241).
- [111] R. C. DEVLIN et al. "Arbitrary spin-to-orbital angular momentum conversion of light". *Science* 358.6365 (2017), p. 896-901 (cf. p. 52).
- [112] J. M. HICKMANN et al. "Unveiling a Truncated Optical Lattice Associated with a Triangular Aperture Using Light's Orbital Angular Momentum". *Phys. Rev. Lett.* 105 (2010), p. 053904 (cf. p. 53).
- [113] L. YONGXIN et al. "Detecting the topological charge of vortex beams using an annular triangle aperture". *Optics & Laser Technology* 43.7 (2011), p. 1233-1236 (cf. p. 54).

- [114] S. ZHENG et J. WANG. "Measuring Orbital Angular Momentum (OAM) States of Vortex Beams with Annular Gratings". *Scientific Reports* 7, 40781 (2017), p. 40781 (cf. p. 53).
- [115] I. KIMEL et L. R. ELIAS. "Relations between Hermite and Laguerre gaussian modes". *IEEE Journal of quantum electronics* 29.9 (1993), p. 2562-2567 (cf. p. 53, 181).
- [116] A. T. O'NEIL et J. COURTIAL. "Mode transformations in terms of the constituent Hermite–Gaussian or Laguerre–Gaussian modes and the variable-phase mode converter". *Optics Communications* 181.1 (2000), p. 35-45 (cf. p. 53, 182).
- [117] S. N. ALPERIN et al. "Quantitative measurement of the orbital angular momentum of light with a single, stationary lens". *Opt. Lett.* 41.21 (2016), p. 5019-5022 (cf. p. 53).
- [118] F. A. STARIKOV et al. "Wavefront reconstruction of an optical vortex by a Hartmann-Shack sensor". *Opt. Lett.* 32.16 (2007), p. 2291-2293 (cf. p. 54).
- [119] S. M. BARNETT. "Rotation of electromagnetic fields and the nature of optical angular momentum". *Journal of Modern Optics* 57.14 (2010). Publisher : Taylor & Francis _eprint : <https://doi.org/10.1080/09500341003654427>, p. 1339-1343 (cf. p. 58, 152).
- [120] A. ASPECT et P. GRANGIER. *Optique quantique : photons et atomes*. École Polytechnique, Département de Physique, 2019 (cf. p. 60, 61, 67).
- [121] D. L. ANDREWS et M. BABIKER. "Quantum electrodynamics, angular momentum and chirality". *The Angular Momentum of Light*. Sous la dir. de D. L. ANDREWS et M. BABIKER. Cambridge University Press, 2012, p. 246-263 (cf. p. 71).
- [122] C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC et G. GRYNBERG. *Introduction à l'électrodynamique quantique*. Les Ulis : EDP Sciences, 1987 (cf. p. 72, 91).
- [123] T. H. MAIMAN. "Stimulated Optical Radiation in Ruby". *Nature* 187.4736 (1960), p. 493-494 (cf. p. 77).
- [124] P. A. FRANKEN et al. "Generation of Optical Harmonics". *Phys. Rev. Lett.* 7 (1961), p. 118-119 (cf. p. 77).
- [125] W. KAISER et C. G. B. GARRETT. "Two-Photon Excitation in $\text{CaF}_2 : \text{Eu}^{2+}$ ". *Phys. Rev. Lett.* 7 (1961), p. 229-231 (cf. p. 77).
- [126] P. D. MAKER, R. W. TERHUNE et C. M. SAVAGE. "Optical Third Harmonic Generation". *Quantum Electronics*. Sous la dir. d'I. AGARBICEANU et al. 1964, p. 1559 (cf. p. 77).
- [127] S. E. HARRIS, M. K. OSHMAN et R. L. BYER. "Observation of Tunable Optical Parametric Fluorescence". *Phys. Rev. Lett.* 18 (1967), p. 732-734 (cf. p. 77).
- [128] G. MAINFRAY et C. MANUS. "Les transitions multiphotoniques". *Journal de Physique Colloques* 39.C1 (1978), p. C1-1-C1-16 (cf. p. 77, 78).
- [129] D. STRICKLAND et G. MOUROU. "Compression of amplified chirped optical pulses". *Optics Communications* 56.3 (1985), p. 219-221 (cf. p. 77).
- [130] P. AGOSTINI et al. "Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms". *Phys. Rev. Lett.* 42 (1979), p. 1127-1130 (cf. p. 78).

- [131] P. AGOSTINI et al. "Multiphoton ionisation involving multiphoton continuum-continuum transitions". *Journal of Physics B : Atomic and Molecular Physics* 14.15 (1981), p. L491 (cf. p. 78).
- [132] G. G. PAULUS et al. "Plateau in above threshold ionization spectra". *Phys. Rev. Lett.* 72 (1994), p. 2851-2854 (cf. p. 78).
- [133] P. B. CORKUM. "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization". *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993), p. 1994-1997 (cf. p. 80).
- [134] K. J. SCHAFER et al. "Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff". *Phys. Rev. Lett.* 70 (1993), p. 1599-1602 (cf. p. 80).
- [135] D. BAUER et P. MULSER. "Exact field ionization rates in the barrier-suppression regime from numerical time-dependent Schrödinger-equation calculations". *Phys. Rev. A* 59 (1999), p. 569-577 (cf. p. 81).
- [136] A. SHINER et al. "High harmonic cutoff energy scaling and laser intensity measurement with a 1.8 μm laser source". *Journal of Modern Optics* 60.17 (2013), p. 1458-1465 (cf. p. 81).
- [137] L. V. KELDYSH. "Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave". *J. Exp. Theor. Phys.* 20.5 (1965), p. 1307-1314 (cf. p. 82).
- [138] H. G. KURZ et al. "Revealing the Microscopic Real-Space Excursion of a Laser-Driven Electron". *Phys. Rev. X* 6 (2016), p. 031029 (cf. p. 83).
- [139] R. GENEUX. "Le moment angulaire de la lumière en génération d'harmoniques d'ordre élevé". Theses. Université Paris Saclay (COMUE), 2016 (cf. p. 84, 100, 115, 117, 128, 129, 135).
- [140] T. POPMINTCHEV et al. "Bright Coherent Ultrahigh Harmonics in the keV X-ray Regime from Mid-Infrared Femtosecond Lasers". *Science* 336.6086 (2012), p. 1287-1291 (cf. p. 85).
- [141] M. LEWENSTEIN et al. "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields". *Phys. Rev. A* 49 (1994), p. 2117-2132 (cf. p. 85, 86).
- [142] P. SALIÈRES et al. "Feynman's Path-Integral Approach for Intense-Laser-Atom Interactions". *Science* 292.5518 (2001), p. 902-905 (cf. p. 86).
- [143] D. WELLS et H. QUINEY. "A fast and adaptable method for high accuracy integration of the time-dependent Schrödinger equation". *Scientific Reports* 9, 782 (2019), p. 782 (cf. p. 87).
- [144] M. CHINI, K. ZHAO et Z. CHANG. "The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses". *Nature Photonics* 8.3 (2014), p. 178-186 (cf. p. 88, 266).
- [145] G. FARKAS et C. TÓTH. "Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases". *Physics Letters A* 168.5 (1992), p. 447-450 (cf. p. 88).
- [146] T. RUCHON. *High Harmonic Generation and Attosecond Light Pulses, An introduction for newcomers*. URL : <https://iramis.cea.fr/Pisp/thierry.ruchon/data/LectureRuchon.pdf> (cf. p. 88).
- [147] S. KAZAMIAS et P. BALCOU. "Intrinsic chirp of attosecond pulses : Single-atom model versus experiment". *Phys. Rev. A* 69 (2004), p. 063416 (cf. p. 89).

- [148] Y. MAIRESSE et al. "Optimization of Attosecond Pulse Generation". *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), p. 163901 (cf. p. 89).
- [149] K. VARJÚ et al. "Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses". *Journal of Modern Optics* 52.2 (2005), p. 379-394 (cf. p. 90).
- [150] P. SALIÈRES, A. L'HUILLIER et M. LEWENSTEIN. "Coherence Control of High-Order Harmonics". *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995), p. 3776-3779 (cf. p. 91).
- [151] S. KAZAMIAS et al. "Global Optimization of High Harmonic Generation". *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003), p. 193901 (cf. p. 91).
- [152] P. BALCOU et al. "Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces". *Phys. Rev. A* 55 (1997), p. 3204-3210 (cf. p. 92).
- [153] C.-G. WAHLSTRÖM et al. "High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser". *Phys. Rev. A* 48 (1993), p. 4709-4720 (cf. p. 93).
- [154] L. REGO et al. "Ultrashort Extreme Ultraviolet Vortices". *Vortex Dynamics and Optical Vortices*. Sous la dir. de H. PEREZ-DE-TEJADA. Rijeka : IntechOpen, 2017. Chap. 9 (cf. p. 93).
- [155] C. M. HEYL et al. "Macroscopic Effects in Noncollinear High-Order Harmonic Generation". *Phys. Rev. Lett.* 112 (2014), p. 143902 (cf. p. 93, 265).
- [156] C. CHAPPUIS. "Génération d'harmoniques d'ordre élevé à deux faisceaux portant du moment angulaire". Theses. Université Paris Saclay (COMUE), 2019 (cf. p. 94).
- [157] D. BRESTEAU et al. "FAB10 : a user-oriented bandwidth-tunable extreme ultraviolet lightsource for investigations of femtosecond to attosecond dynamics in gas and condensed phases". *European Physical Journal Special Topics* (2023) (cf. p. 95, 105, 108).
- [158] A. GOLINELLI et al. "CEP-stabilized, sub-18 fs, 10 kHz and TW-class 1 kHz dual output Ti :Sa laser with wavelength tunability option". *Opt. Express* 27.10 (2019), p. 13624-13636 (cf. p. 95).
- [159] A. CAMPER et al. "Quantum-Path-Resolved Attosecond High-Harmonic Spectroscopy". *Phys. Rev. Lett.* 130 (2023), p. 083201 (cf. p. 96).
- [160] D. ATTWOOD et A. SAKDINAWAT. *X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation : Principles and Applications*. 2^e éd. Cambridge University Press, 2017 (cf. p. 97, 98).
- [161] J. LADISLAS WIZA. "Microchannel plate detectors". *Nuclear Instruments and Methods* 162.1 (1979), p. 587-601 (cf. p. 97).
- [162] T. HARADA et al. "Optimum Design of a Grazing-Incidence Flat-Field Spectrograph with a Spherical Varied-Line-Space Grating". *Appl Opt.* 38.13 (1999), p. 2743-2748 (cf. p. 98).
- [163] A. I. GONZALEZ et al. "Spatio-spectral structures in high harmonic generation driven by tightly focused high repetition rate lasers". *J. Opt. Soc. Am. B* 35.4 (2018), A6-A14 (cf. p. 99, 117).
- [164] H. RUF. "Dynamique moléculaire par imagerie attoseconde". Available at <http://www.theses.fr/2012BOR14651>. Thèse de doct. 2012 (cf. p. 100).

- [165] C. BOURASSIN-BOUCHET. "Optiques pour les impulsions attosecondes". Theses. Université Paris Sud - Paris XI, 2011 (cf. p. 100).
- [166] F. CALEGARI et al. "Advances in attosecond science". *Journal of Physics B Atomic Molecular Physics* 49.6, 062001 (2016), p. 062001 (cf. p. 101).
- [167] K. UEDA et al. "Roadmap on photonic, electronic and atomic collision physics : I. Light-matter interaction". *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* 52.17 (2019), p. 171001 (cf. p. 101).
- [168] Y. MAIRESSE et al. "Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays". *Science* 302.5650 (2003), p. 1540-1543 (cf. p. 101, 128).
- [169] R. LÓPEZ-MARTENS et al. "Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses". *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), p. 033001 (cf. p. 101, 128).
- [170] M. SWOBODA et al. "Intensity dependence of laser-assisted attosecond photoionization spectra". *Laser Physics* 19.8 (2009), p. 1591-1599 (cf. p. 101).
- [171] V. VÉNIARD, R. TAÏEB et A. MAQUET. "Phase dependence of (N+1)-color (N>1) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics". *Phys. Rev. A* 54 (1996), p. 721-728 (cf. p. 101).
- [172] L. GALLMANN et al. "Photoemission and photoionization time delays and rates". *Structural Dynamics* 4.6 (2017), p. 061502 (cf. p. 103).
- [173] C. CIRELLI et al. "Anisotropic photoemission time delays close to a Fano resonance". *Nature Communications* 9, 955 (2018), p. 955 (cf. p. 103).
- [174] J. JOSEPH et al. "Angle-resolved studies of XUV-IR two-photon ionization in the RABBITT scheme". *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics* 53.18 (2020), p. 184007 (cf. p. 103, 105).
- [175] M. FANCIULLI et al. "Spin, time, and angle resolved photoemission spectroscopy on WTe₂". *Phys. Rev. Research* 2 (2020), p. 013261 (cf. p. 103).
- [176] M. DENDZIK et al. "Observation of an Excitonic Mott Transition through Ultrafast Core-cum-Conduction Photoemission Spectroscopy". *Phys. Rev. Lett.* 125 (2020), p. 096401 (cf. p. 103).
- [177] S. J. WEBER et al. "Flexible attosecond beamline for high harmonic spectroscopy and XUV/near-IR pump probe experiments requiring long acquisition times". *Review of Scientific Instruments* 86.3 (2015), p. 033108 (cf. p. 103, 106).
- [178] A. ZAÏR et al. "Ultrastable collinear delay control setup for attosecond IR-XUV pump-probe experiment". *J. Opt. Soc. Am. B* 35.5 (2018), A110-A115 (cf. p. 103).
- [179] M. HUPPERT, I. JORDAN et H. J. WÖRNER. "Attosecond beamline with actively stabilized and spatially separated beam paths". *Review of Scientific Instruments* 86.12 (2015), p. 123106 (cf. p. 103, 106).
- [180] F. BÖTTCHER et al. "Interferometric long-term stabilization of a delay line : a tool for pump-probe photoelectron-photoion-coincidence spectroscopy on the attosecond time scale". *Appl. Phys. B* 91 (2008), p. 287-293 (cf. p. 103, 106).
- [181] M. SABBAR et al. "Combining attosecond XUV pulses with coincidence spectroscopy". *Review of Scientific Instruments* 85.10 (2014), p. 103113 (cf. p. 103, 106).

- [182] M. FIEß et al. "Versatile apparatus for attosecond metrology and spectroscopy". *Review of Scientific Instruments* 81.9 (2010), p. 093103 (cf. p. 103, 104).
- [183] M. CHINI et al. "Delay control in attosecond pump-probe experiments". *Opt. Express* 17.24 (2009), p. 21459-21464 (cf. p. 103, 106).
- [184] H. MASHIKO et al. "Tunable frequency-controlled isolated attosecond pulses characterized by either 750 nm or 400 nm wavelength streak fields". *Opt. Express* 18.25 (2010), p. 25887-25895 (cf. p. 103).
- [185] J. VAUGHAN et al. "Design of an optically-locked interferometer for attosecond pump-probe setups". *Opt. Express* 27.21 (2019), p. 30989-31000 (cf. p. 103, 104, 106).
- [186] M. LUTTMANN et al. "In Situ Sub-50-Attosecond Active Stabilization of the Delay Between Infrared and Extreme-Ultraviolet Light Pulses". *Phys. Rev. Appl.* 15 (2021), p. 034036 (cf. p. 103, 108).
- [187] V. V. KRISHNAMACHARI et al. "An active interferometer-stabilization scheme with linear phase control". *Opt. Express* 14.12 (2006), p. 5210-5215 (cf. p. 104).
- [188] G. JOTZU et al. "Continuous phase stabilization and active interferometer control using two modes". *Journal of Modern Optics* 59.1 (2012), p. 42-45 (cf. p. 104).
- [189] A. A. FRESCHI et J. FREJLICH. "Adjustable phase control in stabilized interferometry". *Opt. Lett.* 20.6 (1995), p. 635-637 (cf. p. 104).
- [190] <https://github.com/CEMES-CNRS/PyMoDAQ> (cf. p. 106).
- [191] F. SCHLAEPFER et al. "Phase stabilization of an attosecond beamline combining two IR colors". *Opt. Express* 27.16 (2019), p. 22385-22392 (cf. p. 106).
- [192] T. GAUMNITZ et al. "Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver". *Opt. Express* 25.22 (2017), p. 27506-27518 (cf. p. 106).
- [193] P. K. MAROJU et al. "Attosecond pulse shaping using a seeded free-electron laser". *Nature* 578.7795 (2020), p. 386-391 (cf. p. 107).
- [194] C. KRÜGER et al. "Attosecond resolution from free running interferometric measurements". *Opt. Express* 28.9 (2020), p. 12862-12871 (cf. p. 107).
- [195] K. KLÜNDER et al. "Probing Single-Photon Ionization on the Attosecond Time Scale". *Phys. Rev. Lett.* 106 (2011), p. 143002 (cf. p. 108).
- [196] J. ITATANI et al. "Attosecond Streak Camera". *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), p. 173903 (cf. p. 108).
- [197] Y. MAIRESSE et F. QUÉRE. "Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts". *Phys. Rev. A* 71 (2005), p. 011401 (cf. p. 108).
- [198] M. LUTTMANN, D. BRESTEAU et T. RUCHON. "Pump-Probe Delay Controlled by Laser-dressed Ionization with Isolated Attosecond Pulses". *European Physical Journal Web of Conferences*. T. 255. European Physical Journal Web of Conferences. 2021, 13004, p. 13004 (cf. p. 108).
- [199] A. K. PANDEY et al. "Characterization of Extreme Ultraviolet Vortex Beams with a Very High Topological Charge". *ACS Photonics* 9.3 (2022), p. 944-951 (cf. p. 114, 118, 119).

- [200] R. GÉNEAUX et al. "Radial index of Laguerre-Gaussian modes in high-order-harmonic generation". *Phys. Rev. A* 95 (2017), p. 051801 (cf. p. 114, 116).
- [201] F. SANSON et al. "Highly multimodal structure of high topological charge extreme ultraviolet vortex beams". *Opt. Lett.* 45.17 (2020), p. 4790-4793 (cf. p. 116).
- [202] A. K. PANDEY et al. "Shack-Hartmann Wavefront Sensing of Ultrashort Optical Vortices". *Sensors* 22.1 (2022) (cf. p. 116).
- [203] F. CATOIRE et al. "Complex structure of spatially resolved high-order-harmonic spectra". *Phys. Rev. A* 94 (2016), p. 063401 (cf. p. 117).
- [204] S. FRANKE-ARNOLD et al. "Uncertainty principle for angular position and angular momentum". *New Journal of Physics* 6.1 (2004), p. 103 (cf. p. 118).
- [205] J. B. BERTRAND et al. "Ultrahigh-Order Wave Mixing in Noncollinear High Harmonic Generation". *Phys. Rev. Lett.* 106 (2011), p. 023001 (cf. p. 121, 192, 200).
- [206] G. PARIENTE et F. QUÉRÉ. "Spatio-temporal light springs : extended encoding of orbital angular momentum in ultrashort pulses". *Opt. Lett.* 40.9 (2015), p. 2037-2040 (cf. p. 128).
- [207] K. S. BUDIL et al. "Influence of ellipticity on harmonic generation". *Phys. Rev. A* 48 (1993), R3437-R3440 (cf. p. 133, 134).
- [208] P. ANTOINE et al. "Polarization of high-order harmonics". *Phys. Rev. A* 55 (1997), p. 1314-1324 (cf. p. 135, 138, 264).
- [209] B. VODUNGBO et al. "Polarization control of high order harmonics in the EUV photon energy range". *Opt. Express* 19.5 (2011), p. 4346-4356 (cf. p. 134, 173).
- [210] X. ZHOU et al. "Elliptically Polarized High-Order Harmonic Emission from Molecules in Linearly Polarized Laser Fields". *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009), p. 073902 (cf. p. 135).
- [211] Y. MAIRESSE et al. "High Harmonic Spectroscopy of Multichannel Dynamics in Strong-Field Ionization". *Phys. Rev. Lett.* 104 (2010), p. 213601 (cf. p. 135).
- [212] H. EICHMANN et al. "Polarization-dependent high-order two-color mixing". *Phys. Rev. A* 51 (1995), R3414-R3417 (cf. p. 135, 136).
- [213] D. B. MILO ŠEVIĆ, W. BECKER et R. KOPOLD. "Generation of circularly polarized high-order harmonics by two-color coplanar field mixing". *Phys. Rev. A* 61 (2000), p. 063403 (cf. p. 136).
- [214] S. LONG, W. BECKER et J. K. McIVER. "Model calculations of polarization-dependent two-color high-harmonic generation". *Phys. Rev. A* 52 (1995), p. 2262-2278 (cf. p. 136).
- [215] D. BAYKUSHEVA et al. "Bicircular High-Harmonic Spectroscopy Reveals Dynamical Symmetries of Atoms and Molecules". *Phys. Rev. Lett.* 116 (2016), p. 123001 (cf. p. 137).
- [216] P. ANTOINE et al. "Theory of high-order harmonic generation by an elliptically polarized laser field". *Phys. Rev. A* 53 (1996), p. 1725-1745 (cf. p. 138).
- [217] K. E. BALLANTINE, J. F. DONEGAN et P. R. EASTHAM. "There are many ways to spin a photon : Half-quantization of a total optical angular momentum". *Science Advances* 2.4 (2016), e1501748 (cf. p. 149, 156, 167, 264).

- [218] J. M. LEINAAS et J. MYRHEIM. "On the theory of identical particles". *Nuovo Cimento B Serie* 37.1 (1977), p. 1-23 (cf. p. [150](#), [167](#)).
- [219] E. PISANTY et al. "Knotting fractional-order knots with the polarization state of light". *Nature Photonics* 13.8 (2019), p. 569-574 (cf. p. [150](#), [158](#), [173](#), [257-259](#), [268](#), [277](#)).
- [220] T. KONRAD et A. FORBES. "Quantum mechanics and classical light". *Contemporary Physics* 60.1 (2019), p. 1-22 (cf. p. [150](#), [155](#)).
- [221] M. V. BERRY. "Paraxial beams of spinning light". *International Conference on Singular Optics*. Sous la dir. de M. S. SOSKIN. T. 3487. International Society for Optics et Photonics. SPIE, 1998, p. 6-11 (cf. p. [150](#)).
- [222] J. F. NYE. "Lines of circular polarization in electromagnetic wave fields". *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* 389.1797 (1983), p. 279-290 (cf. p. [153](#), [154](#), [161](#)).
- [223] M. V. BERRY. "Index formulae for singular lines of polarization". *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* 6.7 (2004), p. 675-678 (cf. p. [153](#), [154](#)).
- [224] M. V. BERRY et J. H. HANNAY. "Umbilic points on Gaussian random surfaces". *Journal of Physics A : Mathematical and General* 10.11 (1977), p. 1809-1821 (cf. p. [154](#)).
- [225] C. V. S. BORGES et al. "Bell-like inequality for the spin-orbit separability of a laser beam". *Phys. Rev. A* 82 (2010), p. 033833 (cf. p. [155](#)).
- [226] A. TURPIN et al. "Conical refraction : fundamentals and applications". *Laser & Photonics Reviews* 10.5 (2016), p. 750-771 (cf. p. [156](#)).
- [227] M. V. BERRY, M. R. JEFFREY et M. MANSURIPUR. "Orbital and spin angular momentum in conical diffraction". *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* 7.11 (2005), p. 685-690 (cf. p. [156](#)).
- [228] A. TURPIN et al. "Polarization tailored novel vector beams based on conical refraction". *Opt. Express* 23.5 (2015), p. 5704-5715 (cf. p. [156](#)).
- [229] E. PISANTY. "Knotted topologies in the polarization state of bichromatic light". *Laser Beam Shaping XXI*. Sous la dir. d'A. DUDLEY et A. V. LASKIN. T. 11818. International Society for Optics et Photonics. SPIE, 2021, p. 52-62 (cf. p. [156](#)).
- [230] I. FREUND. "Optical Möbius strips and twisted ribbon cloaks". *Opt. Lett.* 39.4 (2014), p. 727-730 (cf. p. [157](#)).
- [231] E. J. GALVEZ et al. "Multitwist Möbius Strips and Twisted Ribbons in the Polarization of Paraxial Light Beams". *Scientific Reports* 7, 13653 (2017), p. 13653 (cf. p. [157](#), [174](#)).
- [232] T. BAUER et al. "Optical Polarization Möbius Strips and Points of Purely Transverse Spin Density". *Phys. Rev. Lett.* 117.1, 013601 (2016), p. 013601 (cf. p. [158](#)).
- [233] K. Y. BLOKH et al. "Polarization singularities and Möbius strips in sound and water-surface waves". *Physics of Fluids* 33.7 (2021), p. 077122 (cf. p. [158](#)).
- [234] I. FREUND. "Cones, spirals, and Möbius strips, in elliptically polarized light". *Optics Communications* 249.1-3 (2005), p. 7-22 (cf. p. [158](#)).

- [235] T. BAUER et al. "Observation of optical polarization Möbius strips". *Science* 347.6225 (2015), p. 964-966 (cf. p. 158).
- [236] *Formule de Baker–Campbell–Hausdorff*. URL : https://en.wikipedia.org/wiki/Baker%E2%80%93Campbell%E2%80%93Hausdorff_formula#The_Zassenhaus_formula (cf. p. 159).
- [237] M. DENNIS. "Polarization singularities in paraxial vector fields : morphology and statistics". *Optics Communications* 213.4 (2002), p. 201-221 (cf. p. 161).
- [238] F. WILCZEK. "Magnetic Flux, Angular Momentum, and Statistics". *Phys. Rev. Lett.* 48 (1982), p. 1144-1146 (cf. p. 167).
- [239] H. BARTOLOMEI et al. "Fractional statistics in anyon collisions". *Science* 368.6487 (2020), p. 173-177 (cf. p. 167).
- [240] H. L. STORMER, D. C. TSUI et A. C. GOSSARD. "The fractional quantum Hall effect". *Rev. Mod. Phys.* 71 (1999), S298-S305 (cf. p. 167).
- [241] M. V. BERRY. "Quantal phase factors accompanying adiabatic changes". *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* 392.1802 (1984), p. 45-57 (cf. p. 167).
- [242] J. WANG et al. "Experimental observation of Berry phases in optical Möbius-strip microcavities". *Nature Photonics* 17.1 (2023), p. 120-125 (cf. p. 167).
- [243] M. WANG et al. "Fractional Optical Angular Momentum and Multi-Defect-Mediated Mode Renormalization and Orientation Control in Photonic Crystal Microring Resonators". *Phys. Rev. Lett.* 129 (2022), p. 186101 (cf. p. 167).
- [244] B. MINNEKER et al. "Torus-knot angular momentum in twisted attosecond pulses from high-order harmonic generation". *Phys. Rev. A* 104 (2021), p. 053116 (cf. p. 169).
- [245] E. PISANTY et al. "Conservation of Torus-knot Angular Momentum in High-order Harmonic Generation". *Phys. Rev. Lett.* 122 (2019), p. 203201 (cf. p. 173, 257, 259, 261).
- [246] I. FREUND. "Multitwist optical Möbius strips". *Optics Letters* 35.2 (2010), p. 148 (cf. p. 174).
- [247] M. A. BANDRES et J. C. GUTIÉRREZ-VEGA. "Ince–Gaussian beams". *Opt. Lett.* 29.2 (2004), p. 144-146 (cf. p. 182).
- [248] B. PINHEIRO DA SILVA et al. "Spin to orbital angular momentum transfer in frequency up-conversion". *Nanophotonics* 11.4, 493 (2021), p. 493 (cf. p. 183, 189).
- [249] C. HERNÁNDEZ-GARCÍA et al. "High-order harmonic propagation in gases within the discrete dipole approximation". *Phys. Rev. A* 82 (2010), p. 033432 (cf. p. 187).
- [250] A. TURPIN et al. "Extreme Ultraviolet Fractional Orbital Angular Momentum Beams from High Harmonic Generation". *Scientific Reports* 7 (2017), p. 43888 (cf. p. 189).
- [251] E. BRASSELET et al. "Dynamics of optical spin-orbit coupling in uniaxial crystals". *Opt. Lett.* 34.7 (2009), p. 1021-1023 (cf. p. 189).
- [252] H. ZHU et al. "Efficient second harmonic generation of femtosecond laser at 1 μm ". *Opt. Express* 12.10 (2004), p. 2150-2155 (cf. p. 191).

- [253] *Formule du binôme généralisée*. URL : https://fr.wikipedia.org/wiki/Formule_du_bin%C3%B4me_g%C3%A9n%C3%A9ralis%C3%A9 (cf. p. 195).
- [254] M. POLLNAU. "Phase aspect in photon emission and absorption". *Optica* 5.4 (2018), p. 465-474 (cf. p. 197).
- [255] D. BHARTI et al. "Decomposition of the transition phase in multi-sideband schemes for reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions". *Phys. Rev. A* 103 (2021), p. 022834 (cf. p. 197).
- [256] L. J. ZIPP, A. NATAN et P. H. BUCKSBAUM. "Probing electron delays in above-threshold ionization". *Optica* 1.6 (2014), p. 361-364 (cf. p. 197).
- [257] M. BERTOLINO et J. M. DAHLSTRÖM. "Multiphoton interaction phase shifts in attosecond science". *Phys. Rev. Res.* 3 (2021), p. 013270 (cf. p. 197).
- [258] F. AGUILLON. "Effects of spatial modes in harmonic generation in isotropic media". *IEEE Journal of Quantum Electronics* 25.5 (1989), p. 917-923 (cf. p. 207).
- [259] T. HASEGAWA et T. SHIMIZU. "Frequency-doubled Hermite–Gaussian beam and the mode conversion to the Laguerre–Gaussian beam". *Optics Communications* 160.1 (1999), p. 103-108 (cf. p. 209).
- [260] J. F. WARD. "Calculation of Nonlinear Optical Susceptibilities Using Diagrammatic Perturbation Theory". *Rev. Mod. Phys.* 37 (1965), p. 1-18 (cf. p. 214).
- [261] N. L. MANAKOV et V. D. OVSYANNIKOV. "Higher-order nonlinear susceptibilities for generation of optical radiation harmonics in atomic gases". *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* 52 (1980), p. 895 (cf. p. 214).
- [262] L. PAN, K. T. TAYLOR et C. W. CLARK. "Perturbation theory study of high-harmonic generation". *J. Opt. Soc. Am. B* 7.4 (1990), p. 509-516 (cf. p. 214).
- [263] S. S. ANDREWS et J. TRETTON. "Physical Principles of Circular Dichroism". *Journal of Chemical Education* 97.12 (2020), p. 4370-4376 (cf. p. 217).
- [264] A. COTTON. "Absorption inégale des rayons circulaires droit et gauche dans certains corps actifs". *C. r. hebd. séances Acad. sci.* 120 (1895), p. 989 (cf. p. 217).
- [265] A. COTTON. "Recherches sur l'absorption et la dispersion de la lumière par les milieux doués du pouvoir rotatoire". *J. Phys. Theor. Appl.* 5.1 (1896), p. 237-244 (cf. p. 217).
- [266] S. M. KELLY, T. J. JESS et N. C. PRICE. "How to study proteins by circular dichroism". *Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Proteins and Proteomics* 1751.2 (2005), p. 119-139 (cf. p. 217).
- [267] T. FUNK et al. "X-ray magnetic circular dichroism—a high energy probe of magnetic properties". *Coordination Chemistry Reviews* 249.1 (2005). *Synchrotron Radiation in Inorganic and Bioinorganic Chemistry*, p. 3-30 (cf. p. 217).
- [268] J. R. ROUXEL et al. "Hard X-ray helical dichroism of disordered molecular media". *Nature Photonics* 16.8 (2022), p. 570-574 (cf. p. 217).
- [269] A. A. SIRENKO et al. "Terahertz Vortex Beam as a Spectroscopic Probe of Magnetic Excitations". *Phys. Rev. Lett.* 122 (2019), p. 237401 (cf. p. 217).
- [270] J. NI et al. "Giant Helical Dichroism of Single Chiral Nanostructures with Photonic Orbital Angular Momentum". *ACS Nano* 15.2 (2021). PMID : 33497201, p. 2893-2900 (cf. p. 217).

- [271] J.-L. BÉGIN et al. "Nonlinear helical dichroism in chiral and achiral molecules". *Nature Photonics* 17.1 (2023), p. 82-88 (cf. p. 217).
- [272] C. T. SCHMIEGELOW et al. "Transfer of optical orbital angular momentum to a bound electron". *Nature Communications* 7, 12998 (2016), p. 12998 (cf. p. 218).
- [273] K. YAMADA et al. "Electrical switching of the vortex core in a magnetic disk". *Nature Materials* 6.4 (2007), p. 270-273 (cf. p. 218).
- [274] N. LOCATELLI et al. "Efficient Synchronization of Dipolarly Coupled Vortex-Based Spin Transfer Nano-Oscillators". *Scientific Reports* 5, 17039 (2015), p. 17039 (cf. p. 218).
- [275] S. MÜHLBAUER et al. "Skyrmion Lattice in a Chiral Magnet". *Science* 323.5916 (2009), p. 915-919 (cf. p. 218).
- [276] N. ROMMING et al. "Writing and Deleting Single Magnetic Skyrmions". *Science* 341.6146 (2013), p. 636-639 (cf. p. 218).
- [277] A. SOUMYANARAYANAN et al. "Tunable room-temperature magnetic skyrmions in Ir/Fe/Co/Pt multilayers". *Nature Materials* 16.9 (2017), p. 898-904 (cf. p. 218, 245).
- [278] H. S. CHOI et al. "Spin nano-oscillator-based wireless communication". *Scientific Reports* 4, 5486 (2014), p. 5486 (cf. p. 218).
- [279] B. GÖBEL, I. MERTIG et O. A. TRETIAKOV. "Beyond skyrmions : Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles". *Physics Reports* 895 (2021). Beyond skyrmions : Review and perspectives of alternative magnetic quasiparticles, p. 1-28 (cf. p. 218).
- [280] J. ISHIHARA et al. "Imprinting Spatial Helicity Structure of Vector Vortex Beam on Spin Texture in Semiconductors". *Phys. Rev. Lett.* 130 (2023), p. 126701 (cf. p. 218, 253).
- [281] J. A. ARREGI, P. RIEGO et A. BERGER. "What is the longitudinal magneto-optical Kerr effect?" *Journal of Physics D : Applied Physics* 50.3 (2016), 03LT01 (cf. p. 219).
- [282] M. FREISER. "A survey of magneto-optic effects". *IEEE Transactions on Magnetics* 4.2 (1968), p. 152-161 (cf. p. 219, 221).
- [283] Z. Q. QIU et S. D. BADER. "Surface magneto-optic Kerr effect (SMOKE)". *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 200.1-3 (1999), p. 664-678 (cf. p. 219).
- [284] C.-Y. YOU et S.-C. SHIN. "Derivation of simplified analytic formulae for magneto-optical Kerr effects". *Applied Physics Letters* 69.9 (1996), p. 1315-1317 (cf. p. 219).
- [285] M. FANCIULLI et al. "Electromagnetic theory of helicoidal dichroism in reflection from magnetic structures". *Phys. Rev. A* 103 (2021), p. 013501 (cf. p. 226, 229).
- [286] S. VALENCIA et al. "Faraday rotation spectra at shallow core levels : 3p edges of Fe, Co, and Ni". *New Journal of Physics* 8.10 (2006), p. 254 (cf. p. 227).
- [287] T. HAIDER. "A Review of Magneto-Optic Effects and Its Application". *International Journal of Electromagnetics and Applications* 7.1 (2017), p. 17-24 (cf. p. 228).
- [288] F. CAPOTONDI et al. "Invited Article : Coherent imaging using seeded free-electron laser pulses with variable polarization : First results and research opportunities". *Review of Scientific Instruments* 84.5 (2013), p. 051301 (cf. p. 230).

- [289] L. D. BARRON. "True and false chirality and absolute enantioselection". *Rendiconti Lincei* 24 (2013), p. 179-189 (cf. p. [235](#), [236](#)).
- [290] P. KIRKPATRICK et A. V. BAEZ. "Formation of Optical Images by X-Rays". *J. Opt. Soc. Am.* 38.9 (1948), p. 766-774 (cf. p. [240](#)).
- [291] K. Y. BLOKH et al. "Spin-orbit interactions of light". *Nature Photonics* 9.12 (2015), p. 796-808 (cf. p. [241](#)).
- [292] E. BRASSELET. "Tunable High-Resolution Macroscopic Self-Engineered Geometric Phase Optical Elements". *Phys. Rev. Lett.* 121 (2018), p. 033901 (cf. p. [241](#)).
- [293] M. LEVY et D. KARAKI. "Nonreciprocal Transverse Photonic Spin and Magnetization-Induced Electromagnetic Spin-Orbit Coupling". *Scientific Reports* 7, 39972 (2017), p. 39972 (cf. p. [241](#)).
- [294] X. LEI et al. *Nanophotonics* 10.14 (2021), p. 3667-3675 (cf. p. [241](#)).
- [295] C. T. CHEN et al. "Soft-x-ray magnetic circular dichroism at the $L_{2,3}$ edges of nickel". *Phys. Rev. B* 42 (1990), p. 7262-7265 (cf. p. [242](#)).
- [296] R. BREARTON, G. van der LAAN et T. HESJEDAL. "Magnetic skyrmion interactions in the micromagnetic framework". *Phys. Rev. B* 101 (2020), p. 134422 (cf. p. [244](#)).
- [297] A. O. LEONOV et al. "The properties of isolated chiral skyrmions in thin magnetic films". *New Journal of Physics* 18.6 (2016), p. 065003 (cf. p. [244](#), [245](#)).
- [298] K. Y. BLOKH et F. NORI. "Transverse and longitudinal angular momenta of light". *Physics Reports* 592 (2015). Transverse and longitudinal angular momenta of light, p. 1-38 (cf. p. [246](#), [267](#)).
- [299] O. P. POLYAKOV et al. "Generation of magnetic skyrmions by focused vortex laser pulses". *Journal of Applied Physics* 127.7 (2020), p. 073904 (cf. p. [253](#)).
- [300] N. HUANG et H. DENG. "Generating X-rays with orbital angular momentum in a free-electron laser oscillator". *Optica* 8.7 (2021), p. 1020-1023 (cf. p. [253](#)).
- [301] L. LOETGERING et al. "Generation and characterization of focused helical x-ray beams". *Science Advances* 6.7 (2020), eaax8836 (cf. p. [256](#)).
- [302] O. KFIR et al. "Nanoscale magnetic imaging using circularly polarized high-harmonic radiation". *Science Advances* 3.12 (2017), eaao4641 (cf. p. [256](#)).
- [303] B. KIM et al. *Optics-less beam control of EUV high harmonics generated from solids*. 2021 (cf. p. [256](#)).
- [304] S. GHIMIRE et al. "Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal". *Nature Physics* 7.2 (2011), p. 138-141 (cf. p. [260](#)).
- [305] Y. S. YOU, D. A. REIS et S. GHIMIRE. "Anisotropic high-harmonic generation in bulk crystals". *Nature Physics* 13.4 (2017), p. 345-349 (cf. p. [260](#), [261](#)).
- [306] T. HEINRICH et al. "Chiral high-harmonic generation and spectroscopy on solid surfaces using polarization-tailored strong fields". *Nature Communications* 12, 3723 (2021), p. 3723 (cf. p. [261](#), [262](#)).
- [307] F. TRAWI et al. "Molecular Quantum Interface for Storing and Manipulating Ultrashort Optical Vortex". *Laser & Photonics Reviews* 17.2 (2023), p. 2200525 (cf. p. [264](#)).

- [308] A. GARCÍA-CABRERA et al. "Light Spin-Orbit Coupling in High-Order Harmonic Generation via Graphene's Band Anisotropy". *2021 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference*. Optica Publishing Group, 2021 (cf. p. 264).
- [309] L. PLAJA et al. "Multi-beam vortex generation induced by the non-linear optical anisotropy of graphene". *European Physical Journal Web of Conferences*. T. 266. European Physical Journal Web of Conferences. 2022, 08012, p. 08012 (cf. p. 264).
- [310] C.-Y. LU et al. "Demonstrating Anyonic Fractional Statistics with a Six-Qubit Quantum Simulator". *Phys. Rev. Lett.* 102 (2009), p. 030502 (cf. p. 264).
- [311] M. P. van EXTER et al. "Bosonic, fermionic, and anyonic symmetry in two-photon random scattering". *Phys. Rev. A* 85 (2012), p. 033823 (cf. p. 264).
- [312] J. C. F. MATTHEWS et al. "Observing fermionic statistics with photons in arbitrary processes". *Scientific Reports* 3, 1539 (2013), p. 1539 (cf. p. 264).
- [313] S. FRANCESCONI et al. "Anyonic Two-Photon Statistics with a Semiconductor Chip". *ACS Photonics* 8.9 (2021), p. 2764-2769 (cf. p. 264).
- [314] V. LORiot et al. "Measurement of high order Kerr refractive index of major air components". *Opt. Express* 17.16 (2009), p. 13429-13434 (cf. p. 266).
- [315] J. K. WAHLSTRAND et H. M. MILCHBERG. "Effect of a plasma grating on pump-probe experiments near the ionization threshold in gases". *Opt. Lett.* 36.19 (2011), p. 3822-3824 (cf. p. 266).
- [316] R. GENEaux et al. "Transient absorption spectroscopy using high harmonic generation : a review of ultrafast X-ray dynamics in molecules and solids". *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 377.2145 (2019), p. 20170463 (cf. p. 266).
- [317] I. J. SOLA et al. "Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating". *Nature Physics* 2.5 (2006), p. 319-322 (cf. p. 266).
- [318] M. GHADIMI NASSIRI et E. BRASSELET. "Multispectral Management of the Photon Orbital Angular Momentum". *Phys. Rev. Lett.* 121 (2018), p. 213901 (cf. p. 266).
- [319] A. CHONG et al. "Generation of spatiotemporal optical vortices with controllable transverse orbital angular momentum". *Nature Photonics* 14.6 (2020), p. 350-354 (cf. p. 267).
- [320] K. Y. BLOKH. "Orbital angular momentum of optical, acoustic, and quantum-mechanical spatiotemporal vortex pulses". *Phys. Rev. A* 107 (2023), p. L031501 (cf. p. 267).
- [321] G. GUI et al. "Second-harmonic generation and the conservation of spatiotemporal orbital angular momentum of light". *Nature Photonics* 15.8 (2021), p. 608-613 (cf. p. 268).
- [322] S. W. HANCOCK, S. ZAHEDPOUR et H. M. MILCHBERG. "Second-harmonic generation of spatiotemporal optical vortices and conservation of orbital angular momentum". *Optica* 8.5 (2021), p. 594-597 (cf. p. 268).
- [323] Y. FANG, S. LU et Y. LIU. "Controlling Photon Transverse Orbital Angular Momentum in High Harmonic Generation". *Phys. Rev. Lett.* 127 (2021), p. 273901 (cf. p. 268, 269).

- [324] Y. SHEN et al. *Roadmap on spatiotemporal light fields*. 2022 (cf. p. [268](#)).
- [325] C. HE, Y. SHEN et A. FORBES. "Towards higher-dimensional structured light". *Light : Science & Applications* 11.1, 205 (2022), p. 205 (cf. p. [268](#)).
- [326] K. Y. BLOKH et al. *Roadmap on structured waves*. 2023 (cf. p. [268](#)).
- [327] C. WAN et al. "Toroidal vortices of light". *Nature Photonics* 16.7 (2022), p. 519-522 (cf. p. [268](#)).
- [328] A. ZDAGKAS et al. "Observation of toroidal pulses of light". *Nature Photonics* 16.7 (2022), p. 523-528 (cf. p. [268](#)).
- [329] D. SUGIC et al. "Particle-like topologies in light". *Nature Communications* 12, 6785 (2021), p. 6785 (cf. p. [268](#)).