



HAL
open science

Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes isolées à haute cadence

Corentin Picot

► **To cite this version:**

Corentin Picot. Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes isolées à haute cadence. Physique [physics]. Université Claude Bernard - Lyon I, 2024. Français. NNT: 2024LYO10161 . tel-04808840

HAL Id: tel-04808840

<https://theses.hal.science/tel-04808840v1>

Submitted on 28 Nov 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.

**THESE de DOCTORAT DE
L'UNIVERSITE CLAUDE BERNARD LYON 1**

**Ecole Doctorale N° 52
Physique et Astrophysique de Lyon**

Discipline : Physique

Soutenue publiquement le 02/10/2024, par :
Corentin Picot

**Génération et caractérisation
d'impulsions attosecondes isolées à
haute cadence**

Devant le jury composé de :

DEL FATTI Natalia, PR	Université Lyon 1, iLM	Présidente
KAZAMIAS Sophie, PR	Université Paris-Saclay, IJCB Lab	Rapporteuse
SALIÈRES Pascal, DR	Université Paris-Saclay, CEA	Rapporteur
MÉVEL Éric, PR	Université de Bordeaux, CELIA	Examineur
CONSTANT Éric, DR	Université Lyon 1, iLM	Directeur de thèse



École doctorale PHAST : physique et astrophysique

Institut Lumière Matière

THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'Université Claude Bernard Lyon 1

Spécialité doctorale "Physique"

présentée et soutenue publiquement par

Corentin Picot

le 2 octobre 2024

Génération et caractérisation d'impulsions attosecondes isolées à haute cadence

Membres du Jury

Mme. Natalia Del Fatti,	Professeure, UCBL 1, iLM Lyon	Présidente
Mme. Sophie Kazamias,	Professeure, Université Paris Saclay, IJCLab	Rapporteure
M. Pascal Salières,	Directeur de recherche, CEA Paris Saclay	Rapporteur
M. Éric Mével,	Professeur, CELIA Bordeaux	Examineur
M. Éric Constant,	Directeur de recherche CNRS, iLM Lyon	Directeur de thèse

Université Claude Bernard Lyon 1
Institut Lumière Matière
UMR CNRS 5306, Villeurbanne, France

T
H
È
S
E

Remerciements

La réalisation des travaux présentés dans cette thèse a uniquement été possible grâce au soutien indéfectible dont j'ai pu bénéficié pendant ces trois dernières années, même beaucoup plus. Je tiens donc à dédier quelques remerciements aux différentes personnes qui ont compté dans cette aventure.

Dans un premier temps, je veux remercier les membres de mon jury de soutenance, Sophie Kazamias, Pascal Salières, Éric Mével et Natalia Del Fatti. Je les remercie d'avoir accepté d'être membre pour mon jury de soutenance. Je les remercie aussi pour les discussions qui ont eu lieu lors de ma soutenance de thèse, qui s'est avérée plus qu'enrichissante pour moi. Je remercie plus particulièrement Sophie et Pascal pour leurs relectures précieuses et très détaillées de mon manuscrit de thèse.

Bien évidemment, je me dois de remercier mon directeur de thèse, Éric Constant. Je vous suis reconnaissant de m'avoir fait confiance il y a maintenant depuis plus de 3 ans, ainsi que pour votre encadrement au cours de cette thèse. J'ai eu la chance de pouvoir travailler et d'apprendre à vos côtés, recevoir vos conseils, allant de la réalisation scientifique de la thèse, aux aspects expérimentaux de la physique ultrarapide ou encore les aspects administratifs et techniques de la vie de laboratoire. Je vous suis reconnaissant de cet accompagnement qui m'a permis d'appréhender avec sérénité le monde de la recherche. J'espère rendre au travers de ce manuscrit un travail à la hauteur de votre investissement et votre confiance dans ma formation de jeune chercheur.

De manière plus globale, je veux remercier l'équipe Dynamo pour l'accueil qui m'a été réservé et pour l'environnement créé qui m'a permis de travailler dans les meilleures conditions. Merci à Franck et Isabelle pour m'avoir accueilli au sein de l'équipe. Merci pour la bonne humeur prodiguée, les blagues pour rassurer, l'initiation au tricot et d'avoir accepté que la teurgoule existe bien. Merci à Émilien pour les discussions que l'on a pu avoir, les conseils scientifiques en salle de manip, ainsi que pour la formation sur le terrain en plomberie, avec laquelle j'ai pu observer que le nettoyage de tuyaux peut faire beaucoup de mousse ! Merci à Alicia, pour m'avoir supporté en tant que co-bureau durant ces 3 ans, pour avoir essayé de comprendre mon sujet et pour ta gentillesse. Bonne chance pour la suite de ta rédaction et ta soutenance, je n'ai aucun doute sur ta réussite. Thank you Shreelakshmi, for your interest and your support. I have no doubt in your success for the following years of your PhD. Merci à Ozgur, Baptiste, Alexie et Yaowei pour toutes les discussions que l'on a pu avoir et leur accueil au sein de l'équipe. Merci à Vincent pour les discussions scientifiques ou non, ainsi que ses conseils sur les montages expérimentaux. Merci également à Saikat pour ses précieux conseils sur les expériences. Merci à Richard pour les discussions que l'on a pu avoir, scientifiques ou non, et pour ton soutien jusqu'à parfois tard après de longues journées. Merci Sandrine, Bruno, Christian et Gulabi pour votre soutien durant ces années de thèse. Enfin, je remercie Lucas, nouveau doctorant qui prend la suite de cette recherche. Merci de nous avoir choisi avec Éric pour ton stage et ta thèse. Je te souhaite bonne chance pour tout ce qui t'attend au cours de thèse, avec la certitude d'une réussite assurée. Ton

enthousiasme, ta volonté d'apprendre et de travailler ainsi que ta persévérance couplés à l'environnement de travail de l'équipe ne peuvent donner qu'une issue positive d'ici 4 ans !

Plus largement, je remercie les services techniques, administratifs et informatiques de l'iLM. Plus particulièrement, je remercie Ilias pour l'aspect réalisation mécanique, Christian et Marc pour le changement des pompes, Véronique et Christelle pour la gestion administrative ainsi que Marie-Jo.

Durant cette thèse, j'ai eu l'occasion de collaborer avec différentes équipes de recherche et différents laboratoires, en France et à l'étranger. Merci à Stefan Skupin, de l'institut Lumière Matière, pour son aide et son expertise sur les aspects théoriques reliées à nos expériences, notamment sur les effets de propagation et sur la porte de polarisation. Merci à Fabrice Catoire, du CELIA Bordeaux, pour le soutien théorique sur les configurations de la porte de polarisation, ainsi que ses conseils sur la rédaction d'articles. Merci à Éric Mével, Constance Valentin et Sylvain Prawdziak pour leur accueil au CELIA Bordeaux et pour le soutien et la réalisation scientifique de la mise en forme temporelle et spatiale de l'impulsion fondamentale. Merci à Amelle Zair et Benjamin Miller, du King's College à Londres, également pour porter cette collaboration. Merci à Inigo Sola et Benjamin Alonso, de l'université de Salamanque, pour leur appui théorique et leur travail sur la reconstruction temporelle d'enveloppes femtosecondes des harmoniques. Merci à Anne l'Huillier, Cord Arnold et Mathieu Gisselbrecht, du Lund Laser Center en Suède, pour leur accueil chaleureux au sein de la division de physique atomique de l'université de Lund et leur expertise scientifique lors de campagne LaserLab. Merci également à Daniel Diaz Rivas, Nedjma Ouahioune, Chen Guo et Dominik Hoff pour leur appui scientifique et expérimental ainsi que leur travail durant cette campagne, notamment sur la compréhension des données expérimentales ainsi que sur l'utilisation du système laser.

Pour conclure, je veux remercier toutes les personnes qui m'ont soutenu bien au-delà de la réalisation scientifique de ce manuscrit, mais sans qui je ne serais pas en train d'écrire ces remerciements aujourd'hui et qui ont plus que contribué au bon déroulement de cette thèse.

Merci à Louis, Justin, Nathaëlle, Gillian, Julien. Merci pour tout, toutes les soirées durant mes retours en Normandie et les excursions au Havre plus ou moins remplies de péripéties et événements mémorables, les combos cinéma/dell'Arte, les vacances à l'autre bout de la France, en montagne ou au camping, à faire du canyoning ou des randonnées en forêt. Merci pour m'avoir initié à l'escalade, même si cela m'a fait me rendre compte que je suis plus adapté aux déplacements avec les pieds bien ancrés au sol. Merci pour les soirées jeux à distance, qui m'ont permis de garder un lien avec vous malgré les 700 kilomètres, et qui ont été de très bons moments de rigolade et de détente. Merci pour toutes les après-midi à jouer au Mollky, au palet breton, à la pétanque ou encore au beach-volley, ce dernier sous un soleil normand qui était sûrement bien caché ce jour là. Merci d'avoir fait le déplacement pour venir m'écouter parler de lasers pendant 1h, vous voir dans l'amphithéâtre était un soutien plus que rassurant lors de la soutenance. Merci Louis pour tous les moments qu'on a pu passer ensemble, toutes les conneries que l'on a pu faire ou envisager de faire, les séances de sport ensemble, au tennis il y a déjà quelques années, jusqu'à la levée de fonte aujourd'hui. Merci Justin et Nathaëlle, pour tous les moments qu'on a pu passer chez vous, pour les vacances passées ensemble, pour les discussions que l'on a pu avoir sur tout et rien. Merci de cimenter la cohésion de ce groupe d'amis. Merci Gillian pour ton entrain à chaque après midi/soirée que l'on a pu passer ensemble, pour m'avoir fait

découvrir le Music Bar au Havre, ainsi que tes soirées barbecues à l'appartement. Ton amour du Havre me rappelle chaque fois à quel point je suis attaché à revenir vous voir et visiter mes terres natales. Merci Julien, également pour tous ces moments. Merci de m'avoir écouté au sujet de mes lasers à de nombreuses reprises, d'avoir partagé des parties et sessions de jeux plus rocambolesques les unes que les autres. J'ai hâte de venir visiter ta nouvelle terre d'accueil en Allemagne ! Votre présence va bien au-delà de ces trois dernières années, représentant déjà un bon bout de chemin parcouru ensemble, chemin qui j'espère continuera encore pour très, très longtemps !

Merci également à toutes les personnes que j'ai pu rencontrer au travers du volley à l'ENS. Merci pour les entraînements, les matchs et tournois, les WECO, les ninja volleys, les kebabs post-entraînements et les bars post-matchs. Merci à Stéphane pour m'avoir fait entrevoir le monde de la fonte, le coaching sportif, les rigolades et les pétrons sur le terrain, les soirées mouvementées à Lyon ou ailleurs, les nombreuses discussions que l'on a pu avoir, ainsi que ton entrain à réaliser des idées plus ou moins farfelues, Montpellier et le WECO en tête notamment. Merci à Antoine, pour m'avoir montré qu'on peut se faire jouer les mains pendant tout un entraînement mais quand même revenir au suivant, pour les discussions que l'on a pu avoir, les soirées jeux, ainsi que pour toutes tes tentatives culinaires pour me faire aimer les légumes. Merci Théofle pour ta bonne humeur sans égal, ton soutien et pour les caviars à la mire que tu distilles depuis plusieurs d'années, j'ai hâte de voir tes talents de monteur sur le vlog du WECO. Merci Coco pour le soutien et ton accueil dès mon arrivée à l'ENS, j'ai eu le plaisir de jouer avec toi pendant quelques années et partager des soirées autour d'une bière à discuter de tout et de rien, ainsi que de très bons moments à Lyon ou ailleurs. Merci Mathilde pour le soutien durant ces dernières années, la découverte de Périgueux et les moments de rigolade à Lyon et Montpellier. Merci à Gab, pour ton positivisme et ton enthousiasme contagieux, merci pour la petite chansonnette qui résonne encore dans ma tête. Par contre, je suis vraiment désolé, le sabre laser, c'est pas pour tout de suite. Avec vous deux, je garde en mémoire la découverte du Péribus et son voyage plus que mouvementé. Merci à Saskia, pour les moments vécus sur le terrain mais aussi en dehors, au détour d'une soirée ici ou là-bas, à regarder un match rugby ou encore à jouer au spike ou au badminton. Merci de supporter le stade toulousain, en dépit de ce que certaines personnes supportant un autre club rouge et noir veulent en dire (il(s) se reconnaîtra(ont)). Merci Denis et Joss pour les grands moments de volley, beach-volley ou non-volley, vécus à Lyon pendant un an, puis certains à Montpellier, qui m'ont laissé des souvenirs impérissables. Merci Gauthier pour ton soutien et gentillesse durant ces dernières années, pour avoir partagé de nombreuses sessions sportives ou non à Lyon. Merci Ruben, YEPAAA, pour tous les moments qu'on a pu passer sur et en dehors du terrain, ainsi que la passion partagée pour la "bonne nourriture". Merci Joseph pour m'avoir fait (re)découvrir au travers du basket 3x3 que le cardio n'était pas un point fort, mais aussi pour tous les moments qu'on a pu passer ensemble. La liste de personnes que je pourrais remercier est longue, mais je veux remercier également Laurène, Juliette, Luigi, Simon, Vincent, Colin, Virgile, Kévin, Alfred, Robin, Ulysse, Adriel, Anatole, Louise, Valentine, Titouan, Léopold, Mariane. Merci de créer et perpétuer cette ambiance unique que l'on peut retrouver au volley à l'ENS. Merci également à Richard pour les années de pratique et les entraînements prodigués, et sa confiance durant les matchs.

Enfin, je veux remercier ma famille, sans qui rien de tout ça n'aurait été possible. Merci à Thibaud, mon petit frère, qui a eu à me supporter depuis quasiment 25 ans. Même si je passe la plupart de mon temps à t'embêter et taquiner sur énormément

d'aspects, je pense que tu y es pour beaucoup dans la réussite de cette thèse. L'adage qui dit que le petit frère est toujours plus difficile à supporter que le grand frère n'est pas forcément vrai dans notre cas. Merci à mes grands-parents, Grand-Père et Grand-Mère, merci de m'avoir soutenu et conseillé durant ces dernières années. Merci de m'avoir accueilli à Saint-Romain à chacun de mes retours en Normandie. Merci d'avoir voulu comprendre mon sujet, d'avoir posé toutes ces questions et de porter autant d'intérêt au bon déroulement de mes études mais aussi de ma vie en général. Merci Papa et Maman, pour votre soutien, sur absolument tous les aspects de ma vie, allant de la simple aide sur comment bien faire cuire un gâteau au soutien incommensurable durant la période des études, des partiels, de l'installation loin de chez soi, en passant par les épisodes de démarches administratives et de stress. Vous avez toujours été là, quels que soient la situation, la difficulté, le temps. Une maison ne peut être construite que sur des fondations solides, et je m'estime chanceux d'avoir pu me reposer et me baser sur les piliers que vous êtes pour pouvoir avancer.

Merci à tous d'avoir fait ce "mini-marathon" à mes côtés, de m'avoir soutenu, épaulé, de m'avoir changé les idées, écouté. "Merci" est énormément répété dans ces derniers paragraphes, mais c'est le mot plus simple et le plus efficace pour exprimer ma gratitude et ma reconnaissance envers vous.

Table des matières

Liste des figures	8
1 Introduction et concepts fondamentaux	33
2 Caractérisation des impulsions femtosecondes et contrôle spectral des spectres IR et XUV	41
2.1 Caractérisation des impulsions IR femtosecondes	41
2.1.1 Contexte et introduction	41
2.2 Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse	42
2.2.1 Automodulation de phase et postcompression : principes primaires	42
2.2.2 Mise en place expérimentale : obtention d'impulsions de quelques cycles optiques, $\tau_{IR} = 7$ fs	44
2.2.3 Caractérisation temporelle des impulsions femtosecondes	48
2.3 Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV	58
2.3.1 Dispersion scan pour harmonique d'ordres élevés : accordabilité des fréquences XUV	58
2.3.2 Interférences spectrales à deux impulsions : accordabilité du spectre XUV	72
3 Confinement temporel de l'émission XUV : Porte de polarisation pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés	81
3.1 Principe général de la porte de polarisation	81
3.1.1 Mise en place expérimentale de la porte de polarisation	81
3.1.2 Mesure de la dépendance en ellipticité et de ϵ_{thr}	83
3.2 Porte de polarisation "asymétrique"	86
3.2.1 Simulations de la porte de polarisation par le formalisme de Jones	86
3.2.2 Mesures expérimentales avec des impulsions "longues" $\tau_{IR} = 28$ fs	89
3.2.3 Comparaison avec des simulations : dipole modèle et simulations SFA	96
3.2.4 Utilisation d'impulsions plus courtes, de durée $\tau_{IR} = 16.5$ fs . .	101
3.2.5 Confinement temporel par la porte de polarisation symétrique : Porte "large" et porte "étroite"	109
3.3 Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation	118
4 Génération de continuum spectral XUV : configurations compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées	131
4.1 Du continuum spectral aux impulsions attosecondes isolées	131

4.2	Signatures spectrales du confinement temporel de l'émission XUV . . .	135
4.2.1	Réalisation expérimentale : sans stabilisation de la CEP, impulsions de durée $\tau_{IR} \approx 7$ fs	135
4.3	Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs	143
4.3.1	Conditions expérimentales et mise en place	143
4.3.2	Calibration de la lame biréfringente d'épaisseur variable et mesure du délai zéro	147
4.3.3	Implémentation de la porte de polarisation sur le système CEP stable	151
4.3.4	Décalage temporel en propagation entre polarisation s et p : Effet Goos-Hänchen	169
5	Caractérisations temporelles d'impulsions XUV	181
5.1	Méthodes de caractérisations temporelles XUV	181
5.2	Méthode RABBITT : caractérisation des trains d'impulsions attosecondes via interférences XUV/IR à deux photons	182
5.3	Reconstruction de profils temporels XUV avec le spectromètre CIEL . .	191
5.4	L'ellipticité comme sonde pour l'émission XUV	195
5.4.1	Principe général de la méthode : perturbation de l'émission XUV par modulation d'ellipticité	195
5.4.2	Simulations de la perturbation du signal XUV par porte d'ellipticité	196
5.4.3	Méthode de reconstruction du profil XUV femtoseconde	201
5.4.4	Réalisation expérimentale à l'ILM : impulsions IR de 30 fs	203
5.4.5	Utilisation d'impulsions de quelques cycles optiques : $\tau_{IR} \approx 5.4$ fs	210
5.4.6	Reconstruction d'enveloppes harmoniques à partir de données expérimentales	226
5.5	Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV	231
5.5.1	Introduction à la méthode SWING XUV	231
5.5.2	Réalisation expérimentale de mesures XUV SWING avec une lame multiordre épaisse	233
5.5.3	Influence du déphasage sur la mesure XUV SWING	241
5.5.4	Influence de l'intensité étudiée par la mesure SWING	249
6	Conclusion générale	267
Annexe 1 : Caractérisation des lames biréfringentes : positions des axes et épaisseurs/retards		275
Annexe 2 : Caractéristiques du spectromètre XUV champ plan		281
Annexe 3 : Probabilités et taux d'ionisation dans les gaz rares		287
Références		291

Table des figures

1.1	Spectre électromagnétique et longueurs d'onde usuelles. Le domaine visible se limite à des longueurs d'onde de 400 à 800 nm.	34
1.2	Illustration d'un spectre d'harmoniques typique (a)) avec le train d'impulsions attosecondes correspondant (b) pour toutes les harmoniques en phase. Les zones typiques de coupure (entre H23 et H27) et de plateau (entre H13 et H21) sont visibles dans le spectre harmonique. Le train d'impulsion attosecondes contient une impulsion attoseconde par demi-cycle optique. Ces simulations sont effectuées pour une longueur d'onde centrale de 800 nm, donc un cycle optique de 2.66 fs.	35
1.3	Illustration du modèle en 3 étapes. Le potentiel de l'atome est dessiné en trait plein noir, et le potentiel imposé par le champ laser intense est dessiné en pointillés gris. La fonction d'onde électronique est représentée en trait plein rouge.	36
2.1	Évolution du changement de fréquence $\frac{\omega-\omega_0}{\omega_0}$ pour les deux valeurs de n_2 du néon en fonction du temps : $0.15 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ (pointillés bleus) et $0.85 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ (trait plein bleu) . Le profil d'intensité IR est dessiné en trait plein rouge. Les paramètres pour la simulation sont : $\tau_{IR} = 30 \text{ fs}$, une longueur de capillaire de $L = 1.2 \text{ m}$, $P = 6.5 \text{ W}$ en entrée de capillaire, un $w_0 = 80 \mu\text{m}$, $I_0 = 4.3 \times 10^{14} \text{ W} \cdot \text{cm}^{-2}$	44
2.2	Évolution de la longueur d'onde instantanée calculée à partir de l'évolution en Figure 2.1 pour $n_2 = 0.15 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$. L'élargissement est symétrique avec un profil symétrique Gaussien IR. L'évolution est dessinée en trait plein bleu et le profil IR utilisé pour les simulations en trait plein rouge.	45
2.3	Profil spatial du faisceau en sortie de capillaire. Les intégrations spatiales sont dessinées respectivement en jaune et en blanc. Le profil est assez symétrique et régulier, d'où l'effet de filtrage spatial que l'on évoque dans cette partie. Il est donné pour deux jours différents à une semaine d'intervalle.	46
2.4	Évolution du spectre IR normalisé par le maximum en sortie de capillaire en fonction de la pression de néon dans le capillaire. L'énergie de l'impulsion reste inchangée en entrée. La stabilisation du pointé de faisceau est active.	47

2.5	(a) Schéma illustratif du montage de Dispersion Scan. (b) Schéma illustratif de l'autocorrélateur monocoup. Le doublage s'effectue via le cristal de BBO. Le filtre bleu permet de retirer l'infrarouge et d'observer uniquement le spectre doublé. La dispersion est introduite via les prismes en silice. Les flèches en rouge indiquent que les prismes en silice sont mobiles, permettant d'introduire une épaisseur contrôlée de silice fondue.	49
2.6	Évolution du signal d'autocorrélation au niveau du cristal doubleur. Le délai entre les deux répliques créées par les bi-miroirs plans est inscrit sur la dimension transverse du cristal de BBO. Plus on s'écarte du centre du recouvrement, plus le délai est grand.	50
2.7	Exemple d'image d'autocorrélation sur le cristal de BBO. L'image est à deux dimensions, et le profil d'autocorrélation est obtenu par intégration sur la dimension spatiale. Le profil d'autocorrélation est dessiné en jaune. La dimension temporelle est calibrée à 0.68 fs par pixels. Sur le bas de l'image, l'absence de signal correspond au bord du cristal doubleur.	50
2.8	Traces Dscan obtenues respectivement pour 1 paire (vert), 2 paires (rouge) et 3 paires (bleu) de miroirs chirpés supplémentaires. Les profils reconstruits à partir de ces traces sont aussi indiqués. Les durées respectives sont de $\tau_{IR} = 6.6 \pm 0.8$ fs, $\tau_{IR} = 6.4 \pm 0.8$ fs $\tau_{IR} = 6.3 \pm 0.8$ fs.	52
2.9	Évolution de la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation respectivement pour une situation avec 1 paire (vert), 2 paires (bleu) et 3 paires (rouge) de miroirs chirpés supplémentaires. Les courbes ont été décalées pour avoir le minimum de durée pour la même épaisseur.	53
2.10	Cartes d'autocorrélation pour un profil à deux impulsions comme présenté en Figure 2.11. Les cartes correspondent respectivement à la carte simulée de départ, la carte reconstruite et la différence entre les deux cartes d'autocorrélation. L'erreur entre les deux est de moins d'1 % au maximum. L'accord pour la reconstruction est très bon.	55
2.11	Profils simulés initiaux (traits pleins) et profils reconstruits à partir de l'autocorrélation multidispersive (losanges). Les profils considérés sont : Gaussien (noir) , flat top (rouge), double impulsion avec amplitudes différentes (bleu). L'accord est bon, avec une erreur de 1 à 3 % pour chaque reconstruction.	56
2.12	Reconstructions des profils temporels à partir des cartes d'autocorrélations expérimentales. La figure présente le profil reconstruit comparé au profil Fourier Limité obtenu à partir du spectre fondamental pour les configurations : avec 2 miroirs chirpés, 4 miroirs chirpés et 6 miroirs chirpés. Les durées associées sont données dans le Tableau 2.3. Les durées retrouvées sont en bon accord avec les mesures précédentes.	57
2.13	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur ajoutée de silice (en mm). L'épaisseur de silice correspond au contrôle la dispersion de l'impulsion fondamentale. Le spectre montré se limite aux harmoniques H15 à H27. Deux spectres harmoniques obtenus pour $e_{SiO_2} = 6.6$ mm et $e_{SiO_2} = 7.8$ mm sont tracés respectivement en jaune et en blanc. Le signal intégré spectralement est dessiné en cyan à la verticale. La durée minimale est obtenue pour $e_{SiO_2} = 6.9$ mm.	59

2.14	Superposition de spectres harmoniques pour 5 épaisseurs de SiO_2 différentes : 5.6 mm (rouge), 6.1 mm (vert), 6.6 mm (bleu), 7.1 mm (magenta) et 7.8 mm (noir).	59
2.15	Spectre infrarouge de l'impulsion fondamentale en sortie de capillaire. La longueur d'onde moyenne est indiquée sur la figure, avec $\lambda_{moy} = 752$ nm. Le spectre a été lissé avec un lissage Gaussien sur 4 points.	60
2.16	Évolution de la largeur à mi-hauteur spectrale et de l'énergie centrale des harmoniques H21, H23 et H25 en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée.	61
2.17	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée pour les deux puissances mesurées : $P = 1.08$ W (a) et $P = 0.72$ W (b) (au foyer, les intensités estimées sont respectivement $I_0 = 5.4 \times 10^{14}$ $W.cm^{-2}$ et $I_0 = 3,6 \times 10^{14}$ $W.cm^{-2}$). Deux spectres harmoniques sont dessinés à l'horizontale en jaune $e_{SiO_2} = 3.96$ mm et en blanc pour $e_{SiO_2} = 5.28$ mm. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en cyan à la verticale. Les harmoniques sont générées dans l'argon avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 10$ fs au minimum (pour $e_{SiO_2} = 4.8$ mm). La pression dans la cellule est de 20 mbar.	63
2.18	Évolution du spectre harmonique pour plusieurs épaisseurs de SiO_2 ajoutées. L'accordabilité est présente au niveau des harmoniques du plateau et de la coupure. La comparaison avec le spectre IR de l'impulsion fondamentale est faite avec la Figure 2.21. La durée minimum et obtenue pour $e_{SiO_2} = 4.7$ mm.	64
2.19	Évolution de l'énergie centrale pour les harmoniques 21 (rouge), 23 (vert) et 25 (bleu) en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. La série correspondant à la puissance d'entrée $P = 1.08$ W est dessinée en trait plein, et la série correspondant à $P = 0.72$ W est dessinée en trait pointillé.	65
2.20	Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques 21 (rouge), 23 (vert) et 25 (bleu) en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. La série correspondant à la puissance d'entrée $P = 1.08$ W est dessinée à gauche, et la série correspondant à $P = 0.72$ W est dessinée à droite.	66
2.21	Évolution du spectre infrarouge diffusé sur la fente d'entrée du spectromètre XUV champ plan en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. Les épaisseurs choisies correspondent à celles choisies pour la superposition des spectres sur la Figure 2.18. Ici, on regarde l'évolution du spectre pour $P = 1.08$ W, là où les effets non linéaires doivent être maximum, avec une pression de cellule de 20 mbar.	67
2.22	Évolution du spectre harmonique simulé avec uniquement le chemin court considéré pour les harmoniques. Les impulsions IR ont un spectre Gaussien de 100 nm, correspondant à une durée d'environ $\tau_{IR} = 10$ fs à dispersion nulle. L'intensité pic est fixée à $I_0 = 5.4 \times 10^{14} W.cm^{-2}$, qui correspond à une puissance d'entrée de $P = 1.1$ W.	69
2.23	Évolution du spectre harmonique simulé avec uniquement le chemin court considéré pour les harmoniques. Les impulsions IR ont un spectre Gaussien de 100 nm, correspondant à une durée d'environ $\tau_{IR} = 10$ fs à dispersion nulle. L'émission XUV est limitée au front montant uniquement. L'intensité pic est fixée à $I_0 = 5.4 \times 10^{14} W.cm^{-2}$ à dispersion nulle, qui correspond à une puissance d'entrée de $P = 1.1$ W.	70

2.24	Superposition de spectres harmoniques simulés, extraits de la Figure 2.23. Les impulsions ont au départ un spectre Gaussien de 100 nm, correspondant à une durée d'environ $\tau_{IR} = 10$ fs à dispersion nulle. L'émission est limitée au front montant uniquement. Le spectrogramme du dessous est le spectrogramme du dessus normalisé spectre par spectre. L'intensité pic est fixée à $I_0 = 5.4 \times 10^{14} \text{W.cm}^{-2}$ à dispersion nulle, qui correspond à une puissance d'entrée de $P = 1.1$ W.	72
2.25	Évolution du spectre IR modulé par les interférences temporelles entre les deux répliques de l'impulsion fondamentale, en fonction du délai δ . L'évolution de la longueur d'onde moyenne est dessinée en pointillés blancs. Les paramètres de la simulation sont les suivants : $\tau_{IR} = 20$ fs, $\delta \in [15 : 25]$ fs, $\lambda_0 = 800$ nm, donc $\omega_0 = 2.35 \times 10^{15}$ rad.s ⁻¹	74
2.26	Évolution du profil d'intensité temporel après séparation en deux répliques en fonction de δ . Le signal intégré temporellement est dessiné en blanc à la verticale. Les paramètres de la simulation sont les suivants : $\tau_{IR} = 20$ fs, $\delta \in [15 : 25]$ fs, $\lambda_0 = 800$ nm, donc $\omega_0 = 2.35 \times 10^{15}$ rad.s ⁻¹	74
2.27	Photo du montage expérimental servant à créer les deux répliques décalées temporellement et à caractériser le profil temporel résultant. Les prismes biréfringents sont placés sur un montant à 45°. Les axes neutres des prismes sont respectivement selon la grande et la petite dimension des prismes. La polarisation est linéaire horizontale avant passage dans les prismes.	75
2.28	(a) Évolution du spectre harmonique en fonction du délai entre les deux répliques IR. Un focus est fait sur les harmoniques H19 à H25. Sur la figure (b), un zoom est effectué sur une des accordabilités. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon. La durée des impulsions avant séparation est de $\tau_{IR} = 40$ fs. Le signal intégré spectralement et spatialement est dessiné en jaune à la verticale.	76
2.29	Évolution du signal intégré spectralement et spatialement pour quelques harmoniques du spectre XUV en fonction de la position des prismes biréfringents. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon. La durée des impulsions avant séparation est de $\tau_{IR} = 40$ fs.	77
2.30	Évolution de l'énergie centrale des harmoniques pour H19 à H25 en fonction de la position des prismes biréfringents. Les courbes en trait plein correspondent aux énergies centrales de chaque harmonique. Le signal intégré spectralement et spatialement est dessiné en pointillés noirs sur la figure pour donner la tendance d'évolution du signal.	78
2.31	Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques 19 à 25, extraite des résultats présentés en Figure 2.28. Les traits pleins correspondent aux largeurs spectrales, et les pointillés noirs correspondent au signal intégré spatialement et spectralement.	78
3.1	Illustration d'une création de porte de polarisation avec combinaison d'une lame biréfringente multiordre et d'une lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro. La configuration représentée ici est la configuration dite "porte étroite", là où le confinement temporel de l'émission XUV est maximum. L'axe d'intensité représente l'évolution du profil d'intensité à chaque étape. L'axe de polarisation représente l'évolution temporelle de la polarisation.	82

3.2	Évolution des spectres harmoniques en fonction de l'ellipticité ϵ du champ IR. Une ligne correspond à un spectre harmonique.	84
3.3	Signaux intégrés normalisés pour chaque harmonique, et interpolations Gaussiennes de ces signaux. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon de 6 mm ($P = 15$ mbar), avec des impulsions d'une durée de $\tau_{IR} = 30$ fs. Évolution de l'ellipticité critique mesurée en fonction de l'ordre harmonique.	84
3.4	Évolution de l'ellipticité critique ϵ_{thr} pour différentes conditions de génération (puissances différentes, durées différentes). On utilise ici 3 durées τ_{IR} différentes et deux puissances/intensités différentes pour une même durée.	85
3.5	Profil d'intensité (vert plein) et ellipticité (bleu plein) en fonction de l'orientation θ_{MO} de la première lame, respectivement $\theta_{MO} = 25^\circ$, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{MO} = 65^\circ$, avec $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$	87
3.6	(a) Position du centre (noir, symbole rond) et largeur de la porte (noir, symbole carré et ligne continue) et intensité normalisée (par l'intensité maximum dans la porte) au centre de la porte (rouge, symbole croix) en fonction de l'orientation θ_{MO} . La largeur de la porte est constante tandis que la position du centre évolue de manière symétrique par rapport à la position de la porte centrée symétrique ($\theta_{MO} = 45^\circ$). (b) Intensité normalisée dans la porte en fonction de la position de la porte.	88
3.7	Montage expérimental utilisé à l'ILM. Les lames sont placées juste avant la chambre de génération, avec un miroir de renvoi à incidence quasi normale avant la focalisation par le miroir sphérique. L'angle entre le miroir de renvoi et le miroir de focalisation est gardé aussi petit que possible pour éviter les aberrations.	90
3.8	Spectrogramme représentant le spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} . La courbe blanche verticale représente le signal intégré total en fonction de θ_{MO}	91
3.9	Spectrogramme représentant le spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} , normalisée autour de chaque harmonique cette fois.	92
3.10	Image spatiospectrale pour $\theta_{MO} = 53^\circ$. Les chemins longs et courts sont identifiés en jaune et rouge respectivement, bien visibles pour les harmoniques H11 et H13.	93
3.11	Image spatiospectrale pour $\theta_{MO} = 37^\circ$. Les chemins longs et courts sont identifiés en jaune et rouge respectivement, bien visibles pour les harmoniques H11 et H13.	93
3.12	Fréquence centrale des harmoniques en fonction de θ_{MO} . On remet l'évolution des chemins longs et courts lorsque c'est possible de les séparer facilement, donc H11 et H13 dans notre cas.	94
3.13	Simulations de la contribution du chemin court dans le spectre harmonique via le dipôle modèle avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs.	97
3.14	Simulations de la contribution du chemin long dans le spectre harmonique via le dipôle modèle avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs.	97
3.15	Simulations du centre de la porte et de sa largeur (pour H13), avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs.	98
3.16	Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques H11 à H19 sur un cadran $\theta_{MO} \in [0 : 90]^\circ$, pour le chemin court (trait plein rouge) et pour le chemin long (trait plein bleu).	99

3.17	Variations de l'énergie centrale des harmoniques H11 à H19 pour les deux trajectoires longues (symboles) et courtes (trait plein) en fonction de θ_{MO}	99
3.18	Simulations via le modèle SFA de l'évolution du spectre harmonique en fonction de θ_{MO} . Ici, les contributions des trajectoires longues et courtes sont présentes. Les pointillés marquent les différentes structures qui apparaissent à l'intérieur de chaque harmonique	100
3.19	Spectrogramme en fonction de l'orientation θ_{MO} avec 45° entre les axes neutres des deux lames. L'évolution du signal intégré total (intégré sur tout le spectre et toute la dimension spatiale) est remise en vertical avec la courbe blanche.	102
3.20	Spectrogramme normalisé harmonique par harmonique des spectres harmoniques en fonction de l'orientation θ_{MO} avec 45° entre les axes neutres des deux lames.	102
3.21	Évolution du signal intégré harmonique par harmonique en fonction de θ_{MO} , avec $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. On regarde les positions du pic en ajustant par une Gaussienne. On retranscrit l'évolution de la position des différents pics dans le tableau	103
3.22	Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques H11 à H21 en fonction de θ_{MO} . On se focalise uniquement dans un cadran, avec une gamme où le signal de l'harmonique reste au dessus de 10% du signal maximum.	104
3.23	Énergies centrales des pics harmoniques pour H11 à H21 en fonction de l'orientation θ_{MO}	105
3.24	Évolution de la valeur de α_q pour H13, H17 et H19 en fonction de l'intensité. Les deux trajectoires courte et longue sont décrites sur la figure, formant un "diapason".	107
3.25	Évolution de $\alpha_{eff}(I) = \alpha_q + I \frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$ en fonction de l'intensité pour H13, H17, H21 et H23.	107
3.26	Différence d'évolution entre $\alpha_q(I)$ et $\alpha_{eff}(I)$ pour l'harmonique 21. L'évolution de $\alpha_q(I)$ est représentée en pointillés noirs, et l'évolution de $\alpha_{eff}(I)$ est représentée en rouge, trait plein.	108
3.27	Évolution de la porte de polarisation pour trois positions de θ_{ZO} différentes ($\theta_{ZO} = 0^\circ$, $\theta_{ZO} = 22^\circ$, $\theta_{ZO} = 38^\circ$)	110
3.28	Évolution simulée de la largeur de la porte en fonction de θ_{ZO} pour H13, avec $\epsilon_{thr} = 0.13$. Pour une largeur de porte supérieure à τ_{IR} , on fixe la largeur à τ_{IR}	110
3.29	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} sur un cadran. Le signal intégré spectralement est dessiné en blanc en vertical sur le côté également. L'orientation de la lame multiordre θ_{MO} est fixe à 45° de la polarisation incidente.	111
3.30	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} sur un cadran, normalisée harmonique par harmonique. L'orientation de la lame multiordre θ_{MO} est fixée à 45° de la polarisation incidente.	112
3.31	Évolution des largeurs spectrales des harmoniques (à mi-hauteur) pour H9, H11, H13, H15 et H17 en fonction de θ_{ZO}	112

3.32	Comparaison des images spatio-spectrales entre la position porte "large" ($\theta_{ZO} = 45^\circ$) et la position porte "étroite" ($\theta_{ZO} = 0^\circ$), avec $\tau_{IR} = 20$ fs, et $\delta = 19.7$ fs. Le spectre correspondant à chaque image (intégré sur la dimension spatiale) est dessiné en jaune.	113
3.33	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation de la lame d'ordre zéro θ_{ZO} sur deux cadrans de 90° . La première lame est fixe à $\theta_{MO} = 45^\circ$ par rapport à la polarisation incidente. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 10$ fs, pour un délai $\delta = 12.3$ fs.	114
3.34	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation de la lame d'ordre zéro θ_{ZO} . La première lame est fixe à $\theta_{MO} = 45^\circ$ par rapport à la polarisation incidente. On fait un focus autour de la position où l'on attend le confinement temporel maximum ($\theta_{ZO} = 0^\circ$). La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 10$ fs, pour un délai $\delta = 12.3$ fs.	114
3.35	Évolution de la largeur à mi-hauteur pour les harmoniques en fonction de θ_{ZO} . On se focalise sur les harmoniques hautes de plus fort signal.	115
3.36	Comparaison d'images spatiospectrales pour $\theta_{ZO} = 45^\circ$ (porte large) et $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (porte étroite), respectivement. Le spectre intégré spatialement est dessiné en courbe jaune. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 10$ fs, pour un délai $\delta = 12.3$ fs.	115
3.37	Spectres harmoniques moyens calculés via l'Équation (3.19) pour $\tau = 3$ fs, $\tau = 1.33$ fs et $\tau = 1$ fs en durée d'émission, après moyennage sur toutes les CEP possibles.	116
3.38	Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur (trait plein vert, losange) et du contraste (trait plein bleu, rond) en fonction de la durée d'émission τ . Ces deux grandeurs sont estimées en regardant l'évolution du spectre harmonique moyenné sur les CEP, entre 25 eV et 28 eV (voir Figure 3.37).	117
3.39	Profil d'intensité et ellipticité en sortie des lames pour trois orientations différentes $\theta_{ZO} = 0^\circ$, $\theta_{ZO} = 24^\circ$, $\theta_{ZO} = 46^\circ$, avec un déphasage $\frac{\lambda}{2}$ induit par la première lame, avec $\tau_{IR} = 30$ fs, $\delta = 32$ fs.	119
3.40	Position du centre (vert, trait plein) et largeur de la porte (bleu, symbole rond) en fonction de l'orientation θ_{ZO} , avec un déphasage $\frac{\lambda}{2}$. Pour les simulations, on a $\tau_{IR} = 24$ fs, $\delta = 27$ fs.	119
3.41	Spectrogramme harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} , avec $\theta_{MO} = 45^\circ$ et avec une lame multiordre induisant un déphasage $\frac{\lambda}{2}$. Le signal intégré spectralement est dessiné en blanc en vertical.	120
3.42	Spectrogramme harmonique normalisé en fonction de l'orientation θ_{ZO} avec une lame multiordre de déphasage $\frac{\lambda}{2}$ avec $\theta_{MO} = 45^\circ$	121
3.43	Comparaison entre deux spectres à $\theta_{ZO} = 90^\circ$ (porte étroite centrée) et $\theta_{ZO} = 136^\circ$ (génération dans les ailes de l'impulsion uniquement).	122
3.44	Évolution de la dérivée à l'intérieur de la porte sur un cadran de 90° en fonction de l'orientation θ_{ZO} . La lame biréfringente épaisse est à $\theta_{MO} = 45^\circ$. Les simulations sont effectuées pour une impulsion Gaussienne, avec $\tau_{IR} = 24$ fs, $\delta = 27$ fs et $\phi_{MO} = \pi$	123
3.45	Profil d'intensité (vert plein) et ellipticité (bleu plein) en fonction de l'orientation θ_{MO} de la première lame, respectivement $\theta_{MO} = 25^\circ$, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{MO} = 65^\circ$, $\tau_{IR} = 30$ fs et $\delta = 32$ fs, avec un déphasage de $\frac{\lambda}{2}$ puis $\frac{\lambda}{3}$ pour la première lame.	124

3.46	Position du centre (noir, symbole rond) et largeur de la porte (noir, symbole carré) et intensité normalisée (par l'intensité maximum dans la porte) au centre de la porte (rouge, symbole croix) en fonction de l'orientation θ_{MO} , avec un déphasage $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{2} = \pi$	125
3.47	Position du centre (noir, symbole rond) et largeur de la porte (noir, symbole carré) et intensité normalisée (par l'intensité maximum dans la porte) au centre de la porte (rouge, symbole croix) en fonction de l'orientation θ_{MO} , avec un déphasage $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{3} = \frac{2\pi}{3}$	125
3.48	Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} de la première lame. Le signal intégré spectralement est dessiné en courbe blanche en vertical. On a toujours $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec des impulsions de $\tau_{IR} = 9$ fs, et $\delta = 10.2$ fs pour la lame. L'évolution normalisée harmonique par harmonique est aussi présentée.	126
3.49	Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques en fonction de l'orientation θ_{MO} , pour le premier cadran avec $\theta_{MO} \in [34 : 70]^\circ$ (zones avec au moins 10% du signal maximum)	127
3.50	Évolution de l'énergie centrale des harmoniques en fonction de l'orientation θ_{MO} pour $\theta_{MO} \in [34 : 70]^\circ$ (zones avec au moins 10% du signal maximum).	127
4.1	Comparaison des deux émissions XUV avec une CEP fixe à $\phi_{CEP} = 0$ et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ respectivement, avec $\tau_{gate} = 1.33$ fs. La courbe du dessus présente le champ infini de départ pour les deux valeurs de ϕ_{CEP} , en trait plein bleu pour 0 et rouge pour $\frac{\pi}{2}$, ainsi que la Gaussienne définissant la durée d'émission XUV, en pointillés noirs. La courbe du dessous présente le profil d'intensité temporel pour $\phi_{CEP} = 0$ en trait plein bleu et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ en trait plein rouge.	132
4.2	(a) Évolution simulée du spectre harmonique moyenné sur toutes les valeurs de CEP entre 0 et π en fonction de la durée d'émission τ_{gate} . Le contraste varie de manière continue. L'évolution du contraste spectral (bleu) $C = \text{minimum}/\text{maximum}$ et de la largeur spectrale à mi-hauteur (vert) sont également données sur la figure (b), en fonction de τ_{gate}	133
4.3	Évolution du contraste temporel pour différentes largeurs de porte τ_{gate} en fonction de ϕ_{CEP} . Le contraste est défini comme le rapport entre l'intensité du pic principal et l'intensité du premier pic secondaire.	134
4.4	Profils temporels en intensité pour différentes largeurs de porte τ_{gate} pour deux CEP, $\phi_{CEP} = 0$ en trait plein et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ en trait pointillés. Les profils temporels sont normalisés par le maximum du profil pour $\phi_{CEP} = 0$ et chaque τ_{gate}	134
4.5	Image spatiospectrale obtenue avec $P = 50$ mbar en amont de la cellule d'argon, avec la porte de polarisation en configuration porte étroite ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$), et $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs, soit $\tau_{gate} = 0.67$ fs. Le spectre intégré spatialement sur toute la dimension spatiale est tracé en jaune. Les hautes tensions des MCP sont à -1200 V.	136
4.6	Image spatiospectrale obtenue avec $P = 50$ mbar en amont de la cellule d'argon sans confinement temporel ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} = 0^\circ$), et $\tau_{IR} = 7.2$ fs. Le spectre intégré spatialement sur toute la dimension spatiale est tracé en jaune. Les hautes tensions des MCP sont à -1100 V.	136

4.7	Spectres harmoniques en fonction de la pression dans la cellule. On a $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La largeur de la porte calculée via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$	137
4.8	Spectres harmoniques en fonction de la pression d'argon dans la cellule, avec $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La largeur calculée de la porte via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$. L'intégration spatiale est faite sur une bande réduite de 75 pixels au centre, sur l'axe.	138
4.9	Image spatio-spectrale obtenue avec $P = 75$ mbar dans la cellule, porte de polarisation en configuration porte étroite, $\tau_{IR} = 7.2$ fs. Le spectre intégré spatialement est tracé en jaune, et le spectre avec une intégration spatiale réduite sur 75 pixels de l'axe en blanc. On a $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} = -10^\circ$. La largeur de la porte étroite estimée via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs et $\epsilon_{thr} = 0.1$	139
4.10	Image spatio-spectrale obtenue avec $P = 25$ mbar dans la cellule, porte de polarisation en configuration porte étroite, $\tau_{IR} = 7.2$ fs. Le spectre intégré spatialement est tracé en jaune, et le spectre avec une intégration spatiale réduite sur 75 pixels en blanc. On a $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} = -10^\circ$. La largeur de la porte étroite estimée via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs et $\epsilon_{thr} = 0.1$	139
4.11	Image spatio-spectrale pour la configuration sans confinement temporel $\theta_{MO} = \theta_{ZO}$. Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec $P = 44$ mbar. La durée des impulsions utilisées est de $\tau_{IR} = 7.3$ fs, avec une lame multiordre qui introduit un délai $\delta = 10.2$ fs.	140
4.12	Image spatio-spectrale pour la configuration porte étroite $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} -10^\circ$. Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec $P = 44$ mbar. La durée des impulsions utilisées est de $\tau_{IR} = 7.3$ fs, avec une lame multiordre qui introduit un délai $\delta = 10.2$ fs. La largeur de porte calculée via l'Équation (3.2) est de $\tau_{gate} = 0.73$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$	141
4.13	Spectrogramme en fonction de θ_{ZO} pour $\theta_{MO} = 45^\circ$, et spectrogramme normalisé spectre à spectre par le maximum. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec $P = 44$ mbar. Pour $\epsilon_{thr} = 0.1$, la largeur de porte estimée via Équation (3.2), en configuration porte étroite, est de $\tau_{gate} = 0.73$ fs pour $\theta_{ZO} = 0$ [90°]. Les positions remarquables de porte étroite sont dessinées en ligne pointillés cyan, et les positions sans confinement en jaune.	142
4.14	Trace Dscan obtenue en fonction d'une épaisseur de BK7 ajoutée pour introduire la dispersion. Sur la figure du dessous, le profil temporel de l'impulsion fondamentale est reconstruit à partir de la trace Dscan. L'impulsion a une durée de $\tau_{IR} = 6.4$ fs à mi-hauteur.	144
4.15	Spectrogramme harmonique en fonction de la valeur de la CEP fixée par le stereo-ATI. On observe bien deux cycles de CEP sur $[0 : 2\pi]$. Le spectre moyenné sur toutes les CEP est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées avec des impulsions de 6.3 fs dans un jet de gaz d'argon, avec une focalisation de $f = 5$ cm.	145

4.16 Montage expérimental utilisé au Lund Laser Center. L’OPCPA délivre des impulsions de 6.4 fs, avec un taux de répétition de 200 kHz, d’une longueur centrale de 815 nm. Le stereo-ATI permet d’avoir la CEP stabilisée en entrée de chambre. Le jet de gaz est un jet de gaz d’argon. La focalisation se fait avec un miroir en aluminium, de focale $f = 5$ cm. Un réseau est mobile, et permet d’observer le spectre XUV. Le spectromètre CIEL permet la détection de photoélectrons pour des expériences pompe-sonde pour caractériser les profils temporels des impulsions XUV. 146

4.17 Illustration du montage utilisé pour obtenir une lame biréfringente d’épaisseur variable. Les prismes en bleu clair sont les prismes biréfringents en quartz. Les prismes en gris sont les prismes en silice non biréfringents. Les lames de compensations sont aussi dessinées, avec leur épaisseur associée. Les deux répliques en sortie sont espacées d’un délai δ , dépendant de l’épaisseur de quartz e traversée, donc de la position des prismes. Le mouvement des 4 prismes est simultané. Les axes lents sont représentés par des flèches bleues, et les axes rapides par des flèches rouges. 148

4.18 Trace interférométrique obtenue en fonction de la position des prismes biréfringents. Le signal intégré est dessiné en trait plein jaune. Le délai 0 se situe au maximum du signal intégré, ici $pos = 19.8$ mm, là où le déphasage est nul pour toutes les longueurs d’onde. 148

4.19 Exemple de cannelures spectrales pour $p = 30$ mm, en symboles ronds bleus. L’ajustement via $I(\lambda)_{réel} = A + \cos(2\pi x(\lambda)e + \phi)^2$ est dessiné en vert, pour $p = 30$ mm, et $e = 1.58$ mm. 149

4.20 Spectres cannelés en fonction de la position des prismes. En courbe noire le spectre pour la position $p = 30$ mm et en courbe bleue le spectre pour la position $p = 0$ mm. 150

4.21 Évolution de l’épaisseur de quartz biréfringent traversée en fonction de la position des prismes. L’ajustement linéaire $e = a \times position + b$ est très bon, avec $a = -0.036$ et $b = 2.64$ mm. 150

4.22 Spectrogramme obtenu en fonction de la position des prismes biréfringents après quatre réflexions à 45° . Le signal intégré de la trace est dessiné en jaune. Le délai 0 se situe au maximum du signal intégré, ici $pos = 18.6$ mm 152

4.23 Spectrogramme obtenu en fonction de la position des prismes biréfringents après le jet de gaz. Le signal intégré de la trace est dessiné en jaune. Le délai 0 se situe au maximum du signal intégré, ici $pos = 17.3$ mm 152

4.24 Comparaisons des signaux intégrés obtenus pour les différentes mesures de délais 0. On trouve un décalage progressif du maximum avec l’augmentation du nombre de réflexions à 45° . Le délai 0 se trouve au maximum du signal intégré. Les positions du maximum pour chaque signal sont respectivement 19.8 mm, 18.6 mm et 17.3 mm. 153

4.25 Évolution du spectre harmonique en fonction de la position des prismes biréfringents avec des polarisations $s + p$ et $s - p$. Le signal intégré spectralement est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d’argon avec des impulsion de durée $\tau_{IR} = 6.4$ fs. 154

4.26	Évolution du spectre harmonique en fonction de la position des prismes biréfringents avec des polarisations s et p . Le signal intégré spectralement est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon avec des impulsion de durée $\tau_{IR} = 6.4$ fs. Les impulsions s et p sont séparées puis recombinaées au niveau de l'interféromètre à séparation de polarisation.	155
4.27	Signal intégré spectralement en fonction de la position des prismes en quartz pour les deux situations : polarisation s en rouge et polarisation $s + p$ en bleu. Une ligne en pointillés est repérée pour chaque signal, marquant le maximum. Les positions des maxima sont respectivement à 19.8 mm pour les polarisations $s + p$ et $s - p$ et à 17.2 mm pour les polarisations s et p	155
4.28	Évolution du spectre harmonique en fonction de la dispersion introduite sur l'impulsion IR. Les axes neutres des différentes lames sont horizontaux et verticaux, orientés selon la polarisation incidente, $\theta_{MO} = 0^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée minimale dans le milieu générateur est obtenue lorsque la fréquence de la coupure est maximale.	156
4.29	Évolution du spectre harmonique en fonction de la position des wedges biréfringents dans la configuration porte étroite, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. Le signal intégré est dessiné en vertical en jaune. On a $\tau_{IR} = 6.4$ fs, $\delta = 4.66$ fs, donc une largeur de porte estimée via Équation (3.2) de $\tau_{gate} = 0.9$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$	157
4.30	Évolution du signal intégré spectralement en fonction de la position des prismes biréfringents. La position de travail choisie se situe dans le creux autour de 16.9 mm en position des prismes. L'enveloppe supérieure est dessinée en trait plein noir. Le signal intégré correspond au signal en jaune en Figure 4.29	157
4.31	Spectres harmoniques pour deux positions des prismes biréfringents, respectivement 13.6 mm et 17.3mm. La plus grande coupure et les harmoniques les plus larges spectralement sont obtenus à 17.3 mm, proche du délai 0 extrait en Figure 4.24.	158
4.32	Évolution des indices de groupe (trait plein bleu) et phase (trait plein noir) ainsi que de l'épaisseur de BK7 nécessaire pour décaler ϕ_{CEP} de π en fonction de λ la longueur d'onde. Les indices sont calculés par l'Équation (4.4) et $n_g = n_\phi - \lambda \frac{dn_\phi(\lambda)}{d\lambda}$	159
4.33	Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de BK7 introduite, qui permet de contrôler la CEP. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, en configuration porte étroite (avec une lame multiordre 1.87λ et une lame d'ordre zéro 0.25λ , $\theta_{MO} = 45^\circ$, $\theta_{ZO} = 0^\circ$). Pour certaines CEP, les structures harmoniques disparaissent pour les harmoniques de la coupure. Le minimum de Cooper apparaît dans les spectres harmoniques autour de 50 eV. . .	159
4.34	Image spatiospectrale harmonique pour une épaisseur introduite de 32 μm en Figure 4.33, avec le spectre intégré dessiné en noir sur la figure. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2$ fs, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$, et la position de précompensation $pos = 16.9$ mm pour les prismes en quartz.	160

4.35	Image spatiospectrale harmonique pour une épaisseur introduite de 49 μm , avec le spectre intégré dessiné en noir sur la figure. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2$ fs, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$, et la position de précompensation pos = 16.9 mm pour les prismes en quartz.	160
4.36	Image spatiospectrale harmonique pour une épaisseur introduite de 66 μm , avec le spectre intégré dessiné en noir sur la figure. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2$ fs, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$, et la position de précompensation pos = 16.9 mm pour les prismes en quartz.	161
4.37	Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 introduite, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ et une lame d'ordre d'épaisseur 0.25λ , soit $\delta = 4.97$ fs. On distingue le minimum de Cooper autour de 47 eV dans les spectres harmoniques. La position de la précompensation est à 16.9 mm pour les prismes biréfringents.	162
4.38	Spectres harmoniques intégrés pour différentes épaisseurs relatives ajoutées de SiO_2 , respectivement 18.5 μm , 34.7 μm et 53.6 μm . On a décalé les spectres en ordonnée pour mieux observer les différences. On a toujours la porte en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. . .	163
4.39	Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 introduite, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ et une lame d'ordre 0 0.25λ . La position de la précompensation est à 19.8 mm pour les prismes biréfringents.	164
4.40	Spectres harmoniques intégrés pour différentes épaisseurs relatives ajoutées de SiO_2 , respectivement 18.5 μm , 34.7 μm et 53.6 μm . Les spectres sont décalés en ordonnée. La configuration de la porte est toujours porte étroite, mais il n'y a pas de précompensation de décalages dûs à la propagation.	164
4.41	Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 introduite, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ , soit $\delta = 4.97$ fs, et une lame d'ordre 0. Les prismes de précompensation sont à 16.9 mm. Le filtre est en zirconium, d'épaisseur 200 nm.	165
4.42	Spectres harmoniques intégrés pour différentes épaisseurs relatives ajoutées de SiO_2 , respectivement 19.9 μm , 34.2 μm et 50.4 μm . Les spectres sont décalés en ordonnée. Les structures observées autour de 30 eV sont des ordres 2 du réseau.	165
4.43	Spectrogramme harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} . θ_{MO} reste fixé à 45° . Les harmoniques sont générées avec des impulsions de durée $\tau_{IR} = 6.2$ fs, $\delta = 4.97$ fs, dans un jet de gaz d'argon.	166
4.44	Spectres harmoniques pour $\theta_{MO} = 45^\circ$ et quelques orientations θ_{ZO} : $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (trait plein rouge, porte étroite), $\theta_{ZO} = -16^\circ$ (trait plein vert, porte intermédiaire) et $\theta_{ZO} = -45^\circ$ (trait plein bleu, porte large). . . .	167

4.45	Spectres harmoniques pour quelques orientations θ_{ZO} , respectivement $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (trait plein rouge, porte étroite), $\theta_{ZO} = -8^\circ$ (trait plein vert, porte intermédiaire), $\theta_{ZO} = -12^\circ$ (trait plein bleu, porte intermédiaire) et $\theta_{ZO} = -12^\circ$ (trait plein noir, porte intermédiaire). On a $\theta_{MO} = 45^\circ$.	167
4.46	Comparaison de deux spectres XUV à deux épaisseurs $e_{SiO_2} = 30.87 \mu\text{m}$ (bleu) et $e_{SiO_2} = 43.7 \mu\text{m}$ (rouge), extraits de la Figure 4.37. L'énergie des pics de deux harmoniques de la coupure est repérée en pointillés de même couleur pour chaque spectre.	168
4.47	Évolution du spectre IR en fonction de la position des wedges pour deux situations : (a) avec 0 réflexion à 45° et (b) avec 4 réflexions à 45° sur des miroirs argent protégés.	170
4.48	Oscillations obtenue par intégration spectrale de la carte présentée en Figure 4.47. Les oscillations sont dessinées en trait plein rouge, la valeur absolue en trait plein bleu et l'enveloppe interpolée sur la gamme de positions des prismes en trait plein noir.	171
4.49	Évolution de la position du maximum de l'enveloppe en fonction du nombre de réflexions à 45° pour des miroirs en argent protégés Thorlabs. La situation pour une polarisation s et p est dessinée en trait plein rouge qu'une polarisation $s-p$ et $s+p$ bleu. Un ajustement linéaire est effectué pour ces deux évolutions. L'ajustement pour la polarisation s et p est donnée en trait plein noir, et celui pour la polarisation $s+p$ et $s-p$ en trait plein vert. Les coefficients associés à chaque fit sont donnés dans la légende.	171
4.50	Évolution de la position du maximum de l'enveloppe en fonction du nombre de réflexions à 45° pour des miroirs en argent protégés Eksma Optics (b) et pour des miroirs aluminium Thorlabs (c). La situation pour une polarisation s et p est dessinée en trait plein rouge qu'une polarisation $s-p$ et $s+p$ bleu. Un ajustement linéaire est effectué pour ces deux évolutions. L'ajustement pour la polarisation s et p est donnée en trait plein noir, et celui pour la polarisation $s+p$ et $s-p$ en trait plein vert. Les coefficients associés à chaque fit sont donnés dans la légende.	173
4.51	Profils temporels et décalages entre polarisation s et polarisation p pour un miroir en argent protégé par une couche de SiO_2 (a), un miroir en argent protégé par une couche de MgF_2 (b) et un miroir en aluminium protégé par un couche de SiO_2 (c). Les différentes figures sont zoomées autour du délai 0. Les inserts donnent l'évolution globale des profils temporels simulés. Le décalage temporel entre les pics est donné pour chaque situation : (a) 277 fs, (b) 264 as, (c) - 53 as.	177
4.52	Évolution de la différence de phase et du délai entre les polarisations s et p pour (a) une interface SiO_2 /argent et (b) une interface SiO_2 /aluminium en fonction de ω . Le délai associé au miroir argent est bien quasi constant en fonction de ω , alors que le délai de l'aluminium varie significativement avec ω	178
5.1	Montage expérimental de l'ILM utilisé pour les expériences pompe/sonde et les mesures RABBITT. Le spectre harmonique est observé juste après la cellule de génération, et le VMI/spectromètre d'électrons est placé en bout de chaîne. L'interféromètre est stabilisé activement par un suivi interférométrique.	184

5.2	Principe du VMI. Quatre hautes tensions sont appliquées pour mesurer le spectre de photoélectrons par effet de lentille électrique. La zone d'interaction, ici de l'argon, est dessinée en bleu. La direction de déplacement des électrons est dessinée en orange. Le repousseur et l'extracteur servent de lentille électronique. Le détecteur se compose de galettes de microcanaux, d'un écran en phosphore et d'une caméra CCD.	185
5.3	Illustration de la situation avec la création de deux paquets d'onde de même énergie, avec deux chemins quantiques différents menant à l'énergie de la sideband. La sideband, entre deux harmoniques, apparaît lorsque l'IR et le XUV se recouvrent temporellement et spatialement. L'XUV est dessiné en violet, l'IR en rouge. Le potentiel d'ionisation est dessiné en pointillés.	186
5.4	Images VMI de photoélectrons pour deux situations différentes. L'image du dessus présente le cas où l'on a un signal de sideband nul, avec des cercles concentriques correspondants uniquement aux énergies des harmoniques. L'image du dessous présente le cas où le signal de sideband apparaît, avec de nouveaux cercles qui apparaissent entre les cercles concentriques des harmoniques. On suit l'évolution du signal correspondant à ces cercles pour les sidebands en fonction du délai $\tau_{IR,XUV}$ entre l'XUV et l'IR.	187
5.5	Spectrogramme RABBITT obtenu expérimentalement. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon avec des impulsions IR de durée $\tau_{IR} = 30$ fs. Un filtre métallique en aluminium est mis sur le chemin du bras XUV. La zone d'interaction dans le VMI est un jet d'argon. Évolution du signal intégré pour une harmonique (figure du milieu) et une sideband (figure du dessous) en fonction du délai XUV/IR. Les données brutes sont dessinées en trait plein bleu. Un ajustement par une fonction en Équation (5.1) est dessiné en trait plein rouge.	188
5.6	Profil temporel reconstruit à partir des mesures RABBITT. Le profil d'intensité obtenu à partir du champ est dessiné en trait plein rouge, et l'enveloppe haute de ce profil est dessiné en trait pointillé noir. La largeur à mi-hauteur du profil d'intensité pour une impulsion est de $\tau_{XUV} = 431$ as. Ici, le train d'impulsions attosecondes est considéré infini dans la reconstruction.	189
5.7	Trace FROG CRAB obtenue expérimentalement avec génération d'harmoniques dans une cellule de krypton, avec des impulsions de $\tau_{IR} = 30$ fs. La cible d'interaction est un jet de gaz d'argon. La gamme de délais scannée va de -40 à 40 fs pour couvrir au maximum l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes.	190
5.8	Profil temporel reconstruit pour les impulsions attosecondes à partir des oscillations trouvées en Figure 5.7, en se retraçant à une gamme temporelle proche du maximum de l'enveloppe des oscillations.	191
5.9	Image spatiospectrale harmonique obtenue après optimisation de la dispersion et de la valeur de la CEP pour utiliser le spectromètre CIEL. Le spectre harmonique est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon, avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 5.9$ fs. La CEP est stabilisée via le stereo-ATI.	192

5.10	(A) Illustration du fonctionnement du spectromètre CIEL. Les faisceaux arrivent sur la zone d'interaction et les ions et photoélectrons sont étudiés avec deux détecteurs différents. Le trajectoire des photoélectrons est dessinée en rouge, et la trajectoire des ions en orange. (B) Système de coordonnées utilisés pour la détection des ions et photoélectrons. La figure est issue de [1].	192
5.11	Profil temporel reconstruit à partir des traces de streaking en Figure 5.12. Le profil reconstruit montre une impulsion principale avec deux impulsions secondaires, avec un contraste de 7% et 11% entre les deux. La durée de l'impulsion attoseconde principale est de $\tau_{XUV} = 164$ as.	193
5.12	Traces de streaking mesurée, reconstruite et différence entre les deux traces, respectivement de haut en bas. L'erreur est d'environ 3% entre la trace reconstruite et la trace mesurée. Les traces mesurées et reconstruites sont données en échelle logarithmique. L'accord entre la reconstruction et la mesure est bon.	194
5.13	Représentation du profil d'intensité de l'impulsion principale (trait plein bleu), de l'impulsion perturbatrice (trait plein rouge) et de la fonction d'efficacité G_{eff} en trait plein noir, pour trois épaisseurs de la lame biréfringente d'épaisseur variable. L'intensité de la perturbation est multipliée par 20 pour apparaître sur la figure. La durée de l'impulsion IR est de 25 fs. Les épaisseurs représentées sont respectivement $e = -0.29$ mm (a) , $e = 0$ mm (b) et $e = 0.29$ mm (c). Le matériau biréfringent considéré est le quartz.	198
5.14	Évolution du signal perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta)$ normalisé en fonction de l'épaisseur de quartz, reliée au délai entre perturbation et impulsion principale. Trois courbes sont présentées pour les harmoniques 11, 15 et 19. Le spectre de l'IR est Gaussien de largeur à mi-hauteur 40 nm. Le profil XUV est Gaussien de durée $\tau_{XUV} = 10$ fs. Les ellipticités critiques ϵ_{thr} sont respectivement 0.16 pour H11, 0.13 pour H15 et 0.1 pour H19.	199
5.15	Évolution du signal perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta)$ pour différents profils XUV. Sur la figure sont dessinés les signaux perturbés pour : un profil Gaussien centré en trait plein rouge (a), un profil Gaussien décalé de 10 fs en trait plein bleu (b), un profil composé de deux Gaussiennes décalées de 10 fs en trait plein noir (c) et un profil lorentzien en trait plein vert (d). La durée τ_{XUV} est fixée à 10 fs pour ces deux profils. La durée de l'IR est fixe, correspondant à l'impulsion Fourier Limit d'un spectre Gaussien de largeur à mi-hauteur de 40 nm centré à 800 nm, soit $\tau_{IR} = 25$ fs.	201
5.16	Les profils d'intensité XUV initiaux sont dessinés en lignes pleines et les profils reconstruits par le processus de minimisation en symboles. La figure illustre la reconstruction pour trois profils XUV : un profil Gaussien de 10 fs FWHM centré à 0 fs (bleu, étoiles), un profil Gaussien de 10 fs FWHM centré à -10 fs (vert, diamants) et deux profils Gaussiens de 5 fs FWHM, respectivement centrés à 0 et +10 fs, avec d'amplitudes 0,5 et 1 respectivement (noir, carrés). Le nombre de paramètres d'échantillonnage est de 51 points sur une plage de -30 à 30 fs. Les erreurs RMSE calculées sont respectivement : 0,01, 0,009, 0,01. La ligne rouge en pointillés représente le profil IR normalisé, utilisé pour calculer la matrice d'efficacité.	203

5.17	Évolution du signal XUV intégré spatialement et spectralement en fonction de la position des prismes biréfringents. Les deux scans sont dessinées en rouge et en bleu. Un raccordement entre les deux scans est ensuite réalisé (voir texte). Les pas sont d'un mm en position des prismes, ce qui correspond environ à 0.1 fs par pas.	204
5.18	Évolution du signal intégré harmonique en fonction du délai XUV/IR pour l'harmonique H15. La figure du dessus montre le signal brut avec l'échelle de délai et les deux parties constituant le scan complet. La figure du dessous montre ces deux mêmes parties, mais avec un lissage sur 4 points. L'enveloppe supérieure des deux parties est dessinée en trait plein noir. Le trait vertical de pointillés noir représente le délai moyen de la gamme dans laquelle les deux parties de scan se recouvrent.	205
5.19	Évolution du signal intégré pour les harmoniques H15 et H17, en fonction du délai, après le post traitement et le raccord entre les deux parties de scans. L'enveloppe basse de ce signal est dessinée en trait plein rouge.	206
5.20	Évolution du signal intégré en fonction du délai pour les harmoniques : H13 (a), H17 (b) et H21 (c). L'enveloppe basse lissée des oscillations de chaque signal est dessinée en ligne de pointillés noirs, et l'enveloppe lissée sur 3 points en trait plein noir.	207
5.21	Enveloppes basses des signaux obtenus en Figure 5.20. Le résultat pour les harmoniques H13, H17 et H21 est présenté. L'enveloppe non lissée est dessinée en trait pointillés et l'enveloppe lissée est dessinée en trait plein.	208
5.22	Évolution normalisée harmonique par harmonique du spectre XUV en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale. Les impulsions ont une durée de $\tau_{IR} = 22$ fs. Le point de raccord se situe autour du délai -2 fs.	209
5.23	Profil temporel de l'impulsion fondamentale IR retrouvé par mesure Dscan. La largeur à mi-hauteur du pic principal est de $\tau_{IR} = 5.4$ fs. La trace Dscan est mise en insert sur la figure.	210
5.24	Évolution du spectre XUV en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale de durée $\tau_{IR} = 5.4$ fs. Le signal intégré spectralement est représenté en trait plein jaune en vertical. L'amplitude de la perturbation est de 14% de l'impulsion principale.	211
5.25	Évolution du spectre XUV normalisé en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale de durée $\tau_{IR} = 5.4$ fs. Le signal intégré spectralement est représenté en trait plein jaune en vertical. L'amplitude de la perturbation est de 14.5% de l'impulsion principale. Chaque spectre est normalisé par le maximum. Les minima de signal intégré sont repérés par des lignes de pointillés blancs.	211
5.26	Évolution du signal intégré en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale pour trois harmoniques, respectivement H21, H25 et H29. Le signal non lissé est dessiné en pointillés, et le signal lissé en trait plein. Trois images sont présentées, avec une correction du délai 0 supplémentaire à chaque image. Respectivement, de haut en bas, sans correction de l'effet Goos-Hänchen, avec correction de l'effet Goos-Hänchen et avec correction mineure du délai 0. Pour chaque image, la position du maximum est repérée en pointillés noirs.	214

5.27	Enveloppes basses des signaux intégrés obtenus en Figure 5.26 pour H19 à H33.	215
5.28	Évolution de l'ellipticité critique mesurée en fonction de l'ordre harmonique pour deux mesures différentes : en trait plein rouge en introduisant de l'ellipticité avec une lame d'ordre zéro, et en trait plein bleu avec la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité. L'accord entre les deux mesures est correct.	216
5.29	Exemple d'image spatiospectrale enregistrée pour une position des prismes biréfringents. La zone d'intégration sur l'axe (chemin court prédominant) est délimitée en blanc. La zone d'intégration hors axe (chemin long prédominant) est délimitée en jaune. Chaque zone à une taille de 200 pixels environ.	217
5.30	Enveloppes basses pour le chemin long et le chemin court en fonction de l'ordre harmonique. Plus la couleur du trait est bleue, plus l'ordre harmonique est grand. Les harmoniques H13 à H27 sont représentées. Les enveloppes basses des chemins longs ont été retournées et décalées en ordonnée.	217
5.31	(a) Délais pour lequel le signal perturbé, représenté en Figure 5.30, atteint 0.5, pour les trajectoires courtes (carrés) et les trajectoires longues (ronds), pour chaque harmonique, dans le front montant (bleu, cyan) et le front descendant (rouge, magenta). La moyenne des délais est donnée pour le chemin court (noir) et le chemin long (vert) en pointillés. (b) Différence entre les délais pour le chemin long (vert) et le chemin court (noir). Cette différence est associée à une durée moyenne d'émission pour les deux trajectoires.	218
5.32	Différence entre les délais pour un signal perturbé à 0.6 dans le front montant et le front descendant pour le chemin long et le chemin court. Cette différence est associée à une durée moyenne d'émission pour les deux trajectoires. La valeur de $S_{XUV,pert}$ prise pour trouver les temps d'émission est de 0.6.	220
5.33	Évolution du temps moyen d'émission en fonction de l'ordre harmonique. La courbe noire, symboles carrés, représente le chemin court, et la courbe verte, symboles ronds, le chemin long. Ces temps d'émission moyens sont calculés à partir de la Figure 5.32.	220
5.34	Évolution du spectre XUV en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale. Le signal intégré spectralement est dessiné en trait plein jaune en vertical. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 5.4$ fs. L'amplitude de la perturbation est de 17,6% ($\theta_{calcite} = 10^\circ$). Les délimitations spectrales pour l'intégration harmonique par harmoniques sont dessinées en lignes pointillées jaunes.	221
5.35	Enveloppes basses pour le chemin long et le chemin court en fonction de l'ordre harmonique. Plus la couleur du trait est bleue, plus l'ordre harmonique est grand. Les harmoniques H19 à H33 sont représentées.	221

5.36	Enveloppes basses pour le chemin long et le chemin court en fonction de l'ordre harmonique. Plus la couleur du trait est bleue, plus l'ordre harmonique est grand. Les harmoniques H19 à H33 sont représentées. Les enveloppes basses des chemins longs ont été retournées et décalées en ordonnée. La figure (a) correspond aux enveloppes pour l'iris ouvert, donc l'énergie la plus haute. La figure (b) correspond aux enveloppes pour l'iris fermé, donc l'énergie la plus faible.	222
5.37	Évolution des temps de perturbation à mi-hauteur en fonction de l'ordre harmonique, pour les chemins court (a) et long (b), pour deux ouvertures d'iris. Lorsque l'iris est ouvert, l'énergie d'entrée est plus haute. Le chemin court est représenté symboles carrés, trait plein pour l'iris ouvert, et en symboles carrés, pointillés, pour l'iris fermé. Le chemin long est représenté en symboles ronds, trait plein pour l'iris ouvert et en symboles ronds, pointillés, pour l'iris fermé. Les couleurs bleu et cyan correspond au front montant, et les couleurs rouge et magenta au front descendant.	223
5.38	Durée d'émission moyenne (a) et temps d'émission moyen (b) en fonction de l'ordre harmonique, pour les deux trajectoires et les deux énergies. Le chemin court est représenté en vert, symboles carrés, trait plein pour l'iris ouvert, et en vert, symboles carrés, pointillés pour l'iris fermé. Le chemin long est représentée en noir, symboles rond, trait plein pour l'iris ouvert et en noir, symboles ronds, pointillés pour l'iris fermé.	224
5.39	(a) signaux perturbés expérimentaux (traits pleins) et retrouvés (traits pointillés) pour les harmoniques 15, 17 et 19. (b) profils XUV pour les harmoniques 15, 17 et 19 en trait plein. Le profil IR utilisé pour construire la matrice d'efficacité est aussi dessiné en pointillés rouges.	228
5.40	Coupes représentant l'évolution de l'erreur pour la reconstruction du profil temporel associé à l'harmonique H17 en fonction de deux paramètres lorsqu'un paramètre est fixe. L'erreur est calculée comme montrée en Équation (5.21), avec $N = 201$. Des contours sont dessinés pour représenter les lignes de niveau d'erreur. Le contour blanc correspond à la zone où l'erreur est inférieure à 1.05 fois l'erreur minimale.	229
5.41	Évolution de l'erreur minimale pour la reconstruction des profils XUV, à partir des données expérimentales, pour les harmoniques H15, H17 et H19, en fonction de la durée de l'infrarouge τ_{IR}	230
5.42	Évolution temporelle de la perturbation et de l'impulsion principale pour trois orientations θ_{MO} de la lame multiordre. La perturbation est ici dessinée en trait plein bleu, l'impulsion principale en trait plein rouge et la fonction d'efficacité G_{eff} en trait plein noir. Respectivement, les orientations θ_{MO} sont : 3° (a) , 12° (b) et 24° (c). Le déphasage de la multiordre est de $\frac{\lambda}{4}$. On a $\tau_{IR} = 30$ fs et $\delta = 12$ fs.	233

5.43	Spectrogramme en fonction de l'orientation θ_{MO} de la lame multiordre épaisse. Le signal intégré spatialement est dessiné en jaune. Le premier spectrogramme est l'intégration spatiale directe des images spatio-spectrales obtenues avec le spectromètre champ plan. Le deuxième spectrogramme est l'affichage du premier spectrogramme en échelle log pour faire ressortir les petits signaux. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 17.8$ fs. Le délai introduit, à 800 nm, par la lame multiordre d'épaisseur 0.383 mm est de 12.3 fs.	234
5.44	Évolution des signaux intégrés harmonique par harmonique en fonction de θ_{MO} . Le signal intégré a été lissé avec un lissage Gaussien sur 3 points pour s'affranchir des fluctuations rapides. L'acquisition s'est faite avec un pas de 1° entre chaque point.	235
5.45	(a) Évolution de l'énergie centrale des harmoniques et ordre 2 des harmoniques en fonction de θ_{MO} pour $60^\circ < \theta_{MO} < 120^\circ$. L'énergie centrale est calculée comme l'énergie moyenne du pic harmonique dans le spectre. (b) Zoom sur les harmoniques les plus basses et les ordres 2 des harmoniques de plus hauts ordres. Le chemin long de l'harmonique H13 est aussi indiqué sur la courbe zoomée.	237
5.46	Spectrogramme en fonction de l'orientation θ_{MO} de la lame multiordre épaisse. Le signal intégré spatialement est dessiné en jaune. Le premier spectrogramme est l'intégration spatiale directe des images spatio-spectrales obtenues avec le spectromètre champ plan. Le deuxième spectrogramme est l'affichage du premier spectrogramme en échelle log pour faire ressortir les petits signaux. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 17.8$ fs. Le délai introduit, à 800 nm, par la lame multiordre d'épaisseur 0.383 mm est de 12.3 fs. L'intensité a été réduite en fermant un iris en amont de l'entrée de la chambre de génération.	238
5.47	Évolution des signaux intégrés harmonique par harmonique en fonction de θ_{MO} . Le signal intégré a été lissé avec un lissage Gaussien sur 3 points pour s'affranchir des fluctuations rapides. L'intensité a été réduite en fermant un iris en amont de l'entrée de la chambre de génération. . . .	239
5.48	Évolution de la largeur $\Delta\Theta_q$ à mi-hauteur du signal intégré pour chaque harmonique en fonction de l'ordre. Les harmoniques prises en compte ici sont les harmoniques H11 à H25. L'évolution pour le premier pic pour $\theta_{MO} \in [-45 : 45]^\circ$ est dessinée en rouge, et celle pour le deuxième pic pour $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$ en bleu.	240
5.49	(a) Évolution de l'énergie centrale des harmoniques et ordre 2 des harmoniques en fonction de θ_{MO} . L'énergie centrale est calculée comme l'énergie moyenne du pic harmonique dans le spectre. (b) Zoom sur les harmoniques les plus basses et les ordres 2 du réseau, qui correspondent à des harmoniques de plus haut ordre.	241
5.50	Évolution du spectre XUV en fonction de $\theta_{platine}$, donc du déphasage introduit par la lame multiordre épaisse. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en jaune. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec une pression de cellule de 30 mbar. La lame multiordre a une épaisseur de 0.383 mm, pour un délai introduit de 12.3 fs à 800 nm	242

5.51 Évolution du signal intégré spatialement et spectralement pour chaque harmonique en fonction de $\theta_{platine}$, donc le déphasage introduit par la lame multiordre épaisse. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec une pression de cellule de 30 mbar. La lame multiordre a une épaisseur de 0.383 mm, pour un délai introduit de 12.3 fs à 800 nm. Deux lignes de pointillés noirs représentent les positions $\theta_{platine}$ pour lesquelles le signal est maximum, donc le déphasage est de $\frac{\lambda}{2}$. Deux lignes de pointillés verts représentent les positions pour lesquelles on a un déphasage $\frac{\lambda}{4}$ 243

5.52 Évolution du spectre XUV en fonction de $\theta_{MO} = 2\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessinée en jaune en vertical. Le spectrogramme en échelle log est donné sur la figure du dessous également. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. La platine de rotation et fixe à $\theta_{platine} = 0^\circ$, pour un déphasage $\frac{\lambda}{4}$. Le délai introduit est de 12.3 fs. 244

5.53 Évolution du signal intégré spatialement avec une intégration spectrale harmonique par harmonique. Les harmoniques représentées ici vont de H11 à H25. Le signal est normalisé par le maximum de signal sur la gamme $\theta_{MO} \in [140 : 320]^\circ$ 245

5.54 Évolution de la largeur à mi-hauteur des pics de signal intégré montrés en Figure 5.53 en fonction de l'ordre harmonique. La courbe en rouge correspond au pic entre 140° et 230° , et la courbe en bleu correspond au pic entre 230° et 320° 246

5.55 Spectrogrammes XUV en fonction de $\theta_{MO} = 2\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$ pour deux déphasages différents. Le déphasage correspondant à la figure (a) est de $\frac{\lambda}{2}$, et la figure (b) un déphasage intermédiaire. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en jaune en vertical. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. La platine de rotation et fixe à $\theta_{platine} = 23^\circ$, pour un déphasage $\frac{\lambda}{2}$. Le délai introduit est de 12.8 fs à 800 nm pour le déphasage intermédiaire, et 13.3 fs pour le déphasage $\frac{\lambda}{2}$ 247

5.56 Évolution du signal intégré spatialement avec une intégration spectrale harmonique par harmonique. Les harmoniques représentées ici vont de H11 à H25. Le signal est normalisé par le maximum de signal sur la gamme $\theta_{MO} \in [140 : 320]^\circ$. Le déphasage est ici fixé à $\frac{\lambda}{2}$ pour la lame multiordre épaisse pour la figure du dessus, et à une déphasage intermédiaire pour la figure du dessous. 248

5.57 Spectrogrammes XUV SWING pour les puissances 0.70 W, 0.82 W et 1.12 W. La durée des impulsions utilisées est de $\tau_{IR} = 24.2$ fs. Le délai introduit par la lame multiordre est de 12.3 fs à 800 nm, pour une épaisseur de 0.383 mm. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon de 6 mm, avec une pression amont 15 mbar. Le signal intégré spectralement et spatialement est dessiné en pointillés jaunes et avec un lissage Gaussien en trait plein blanc. 250

5.58	Évolution du signal intégré pour les différentes harmoniques. Les signaux intégrés pour les puissances $P = 0.70$ W, $P = 0.82$ W, $P = 1.12$ W sont donnés. Les signaux intégrés ont été lissés avec un lissage Gaussien sur 3 points. Le pas entre chaque point est de 1° . Deux zones sont visibles, chacune contenant un pic. Dans la première zone $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$, la perturbation est dans le front descendant. Pour $\theta_{MO} \in [135 : 225]^\circ$, la perturbation est dans le front montant.	251
5.59	Évolution de la largeur à mi-hauteur des signaux intégrés pour les puissances $P = 0.70$ W, $P = 0.82$ W et $P = 1.12$ W. Pour chaque série, la courbe rouge correspond au pic de signal intégré dans la gamme $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$ (perturbation dans le front descendant), et la courbe en trait plein bleu correspond au pic dans la gamme $\theta_{MO} \in [135 : 225]^\circ$ (perturbation dans le front montant).	253
5.60	Temps d'émission moyens des harmoniques retrouvés à partir des largeurs à mi-hauteur en Figure 5.59 et de l'Équation (5.27). Les trois séries sont montrées sur cette figure, respectivement $P = 0.72$ W (trait plein bleu), $P = 0.82$ W (trait plein bleu) et $P = 1.12$ W (trait plein vert). Les barres d'erreur découlent directement de celles indiquées en Figure 5.59. Le profil $I(t)$ pour effectuer ces calculs est un profil Gaussien de durée $\tau_{IR} = 24$ fs.	254
5.61	Visualisation des temps d'émission moyens harmoniques en fonction du rapport $F(\theta_{MO,1})/F(\theta_{MO,2})$. Les temps calculés dans cette figure correspondent aux rapports trouvés pour la série XUV SWING à $P = 1.12$ W	255
5.62	Temps d'émission moyens des harmoniques retrouvés à partir des largeurs à mi-hauteur en Figure 5.59 et de l'Équation (5.27). Les trois séries sont montrées sur cette figure, respectivement $P = 0.72$ W (trait plein bleu), $P = 0.82$ W (trait plein bleu) et $P = 1.12$ W (trait plein vert). Les barres d'erreur découlent directement de celles indiquées en Figure 5.59. Le profil $I(t)$ utilisé est le profil IR reconstruit par autocorrelation Dscan, qui est de durée $\tau_{IR} = 23.6$ fs pour le pic principal. La durée du profil reconstruit par TF du spectre IR donne est de $\tau_{IR} = 23.5$ fs.	255
5.63	Illustration des longueurs d'onde pour lesquelles on observe le signal intégré à l'intérieur d'une harmonique. Les contributions pour lesquelles on fait ces subdivisions sont indiquées sur la figure : H13 chemin court et chemin long, H21 chemin court et H23 chemin court.	256
5.64	Évolution du signal intégré pour les différentes longueurs d'onde intra-harmonique spécifiées en Figure 5.63, qui suivent le même code couleur. Ici, on regarde pour les longueurs d'onde l'harmonique H13, pour la contribution du chemin court (a), et pour la contribution du chemin long (b).	257
5.65	Évolution du signal intégré pour les différentes longueurs d'onde intra-harmonique spécifiées en Figure 5.63, qui suivent le même code couleur. Ici, on regarde pour les longueurs d'onde l'harmonique H21 (a) et l'harmonique H23 (b).	258

5.66	Évolution des largeurs à mi-hauteur $\Delta\Theta_q$ en fonction des énergies intraharmoniques, pour les harmoniques H13 (chemin court et chemin long), H21, H23, H25 et H27. L'énergie du pic pour chaque harmonique est dessinée en pointillés noirs. La largeur correspondant au pic pour la perturbation dans le front descendant est dessinée en rouge, et en bleu pour la perturbation dans le front montant.	260
5.67	Évolution de la longueur d'onde intraharmonique en fonction des différents temps d'émission moyens (trait plein rouge) pour les harmoniques H21 (a), H23 (b) et H25 (c). Les calculs de ω via l'Équation (5.30) sont dessinés en trait plein noir. Les valeurs de α_q utilisées sont $\alpha_q = 12 \text{ cm}^2.W^{-1}$ (a), $\alpha_q = 17 \text{ cm}^2.W^{-1}$ (b) et $\alpha_q = 30 \text{ cm}^2.W^{-1}$ (c).	263
1	Montage expérimental utilisé pour caractériser les différentes lames d'onde. Deux polariseurs travaillant entre 600 et 900 nm sont installées avec des orientations croisées, permettant d'obtenir une extinction parfaite. La lame à caractériser est ensuite insérée entre les polariseurs. La lame est dans une monture de rotation également.	275
2	Évolution du signal intégré normalisé en fonction de la graduation de la platine de rotation en carrés et étoiles rouge. L'ajustement par une fonction de type $a \sin(2 * (x - c))^2 + d$ (voir Équation (1)) est dessiné en trait plein bleu.	276
3	Cannelures spectrales obtenues pour $\theta_{\text{lame}} = 45^\circ$ avec la lame de quartz biréfringente annoncée à 1.032 mm d'épaisseur. Trois ajustements par la fonction de type Équation (2) pour trois épaisseurs différentes sont aussi donnés, respectivement $e = 1.020 \text{ mm}$ en pointillés rouge, $e = 1.029 \text{ mm}$ en trait plein noir et $e = 1.039 \text{ mm}$ en pointillés vert.	277
4	(a) Évolution des cannelures spectrales pour deux orientations de la seconde lame, qui correspondent à un ajout des délais ou à une compensation des délais. Le nombre de cannelures est bien plus grand dans la position où les délais s'ajoutent. (b) Cannelures spectrales pour les positions où les délais s'ajoutent, espacées de 180° sur la monture de rotation de la lame. Les cannelures sont semblables.	279
5	Photo d'illustration du spectromètre XUV champ plan depuis l'extérieur.	282
6	Image spatiospectrale d'un spectre XUV observé avec une basse pression de cellule (10 mbar) et une basse intensité (iris fermé). Les harmoniques sont générées dans l'argon. Les harmoniques visibles sont H9, H11, H13, H15, H17, H19 et H21. Les ordres 2 des harmoniques H17 et H19 sont également visibles autour de l'harmonique H9. Le spectre issu de l'intégration spatiale est dessiné en jaune.	283
7	Position des harmoniques en pixels repérées depuis le spectre en Figure 6 en ronds rouge. L'interpolation de l'évolution sur l'entièreté de la dimension spectrale dessinée en trait plein bleu. Cette courbe donne directement la calibration en énergie pour le spectromètre XUV champ plan. L'énergie associée aux harmoniques est donnée pour une longueur centrale de 800 nm.	283

TABLE DES FIGURES

8	Image de calibration de l'échelle spatiale pour le spectromètre XUV champ plan. Les galettes de microcanaux sont bien visibles sur l'image, apparaissant en forme d'ellipse en signal bleuté. L'intégration sur l'ordonnée donne la calibration spatiale. L'intégration de l'image sur l'ordonnée est dessinée en jaune. Le diamètre des galettes est de 42 nm. Les limites des galettes sont données pour un signal intégré nul.	284
9	Évolution de la résolution spectrale en fonction de l'énergie. Les résolutions autour des harmoniques H9 à H31 pour une longueur d'onde de 800 nm sont dessinées en pointillés de couleur.	285
10	Photographies du spectromètre XUV champ plan (intérieur). Le réseau diffractant est visible, ainsi que la fente d'entrée (repère d'alignement). Les galettes de microcanaux sont visibles sur la photo (b) au fond, avec le bloqueur pour l'ordre zéro renvoyant vers l'extérieur du spectromètre XUV.	286
11	Évolution des taux d'ionisation instantanés $W_{\text{linéaire}}$ en fonction de l'éclairement I_0 pour les gaz rares considérés.	288
12	Évolution de la probabilité d'ionisation P_i en fonction de l'éclairement I_0 pour les gaz rares, une polarisation linéaire, une impulsion de durée $\tau_{IR} = 30$ fs (traits pleins) et une impulsion de durée $\tau_{IR} = 7$ fs (traits pointillés), de spectre centré à $\lambda_0 = 800$ nm.	289

Liste des tableaux

1.1	Potentiel d'ionisation I_p et intensités de saturation I_S calculées dans l'annexe 3.	37
2.1	Comparaison des différentes durées mesurées par autocorrélation et Dscan avec la durée Fourier limitée du spectre en sortie de capillaire. MC indique le nombre de miroirs chirpés ajoutés.	53
2.2	Erreurs RMSE calculées pour les reconstructions des profils temporels simulés montrés en Figure 2.11.	56
2.3	Durées estimées via la reconstruction Dscan, la reconstruction par autocorrélation multidispersive et à partir du spectre de l'impulsion fondamentale.	57
2.4	Évolution de l'écart en énergie entre deux harmoniques consécutives pour les spectres de la Figure 2.14. L'écart moyen pour chaque spectre est transformé en longueur d'onde centrale du spectre, puis en décalage par rapport à 800 nm.	60
3.1	Ellipticités critiques ϵ_{thr} en fonction de l'ordre harmonique pour la série de mesure avec génération d'harmoniques dans un jet de gaz d'argon.	86
3.2	Ellipticités critiques ϵ_{thr} en fonction de l'ordre harmonique pour différentes séries de mesures avec génération d'harmoniques dans une cellule d'argon.	86
3.3	Largeurs spectrales à mi-hauteur (en meV) des harmoniques en fonction de θ_{MO} (chemins courts) et valeur moyenne sur la gamme étudiée. La largeur est quasi-constante pour chaque harmonique (n.d veut dire que le pic n'apparaît pas assez visiblement pour mesurer une largeur à mi-hauteur).	95
3.4	Largeurs spectrales à mi-hauteur moyennes (en meV) des pics harmoniques en fonction de θ_{MO} et largeurs de porte associées par les Équation (3.2) (Gaussienne et sech^2) et Équation (3.10)[2].	95
3.5	Valeurs de α pour les deux trajectoires utilisées pour les simulations avec le dipôle modèle	96
3.6	Valeurs de τ_{gate} obtenues via les simulations avec ϵ_{thr} venant des valeurs de Tableau 3.2.	97
3.7	Valeurs de τ_{gate} obtenues via les simulations avec ϵ_{thr} venant des valeurs de Tableau 3.2 (série avec $\tau_{IR} = 27$ fs).	98
3.8	Positions des pics de signal pour chaque harmonique à partir des Figure 3.19 et Figure 3.20.	103
3.9	Récapitulatif des largeurs spectrales à mi-hauteur moyennes (en meV) et des durées de porte calculées (en fs à partir de Figure 3.20, Équation (3.2) et calculées avec les simulations via les matrices de Jones.	105

3.10	Décalages en énergies pour les harmoniques H11 à H21 pour θ_{MO} entre 10° et 70°	106
3.11	Largeurs spectrales à mi-hauteur et durées minimales de porte estimées correspondant à Figure 3.33. On donne aussi la durée de la porte estimée via Équation (3.2).	112
3.12	Largeurs à mi-hauteur maximum et durées minimales de porte estimées correspondant à la Figure 3.33 (Gauss). On donne aussi la durée de la porte estimée (théo) via l'Équation (3.2).	115
3.13	Largeurs à mi-hauteur des harmoniques pour les deux spectres en Figure 3.43.	121
3.14	Largeurs à mi-hauteur des harmoniques pour les deux spectres en Figure 3.43.	122
3.15	Largeurs spectrales à mi-hauteur moyennes des harmoniques et largeurs de porte estimées via le principe d'incertitude, présenté en Équation (3.10), et via les simulations de l'Équation (3.2).	128
4.1	Épaisseurs biréfringentes trouvées via les ajustements sur les cannelures spectrales pour les différentes positions des prismes biréfringents.	151
4.2	Largeurs de porte estimées via Équation (3.2) en fonction de θ_{ZO} avec $\delta = 4.97$ fs, $\tau_{IR} = 6.4$ fs, $\epsilon_{thr} = 0.1$. On se limite aux premières positions après la position porte étroite, pour se focaliser sur la transition continuum vers structures harmoniques.	166
5.1	Mesures du signal XUV perturbé au délai 0 pour les différentes harmoniques à partir des enveloppes de la Figure 5.27. Les ellipticités critiques sont calculées avec la formule en Équation (5.17).	216
1	Résumé de la position des axes et épaisseur pour chaque lame d'onde.	278
2	Résolution spectrale calculée pour les harmoniques H9 à H31, avec une fente d'entrée de $150 \mu\text{m}$, et les calibrations spectrales et spatiales calculées en Figure 7 et Équation (3).	285
3	Potentiel d'ionisation I_p et intensités d'ionisation $I\%$ pour les gaz rares, avec une impulsion de durée $\tau_{IR} = 30$ fs, avec une longueur d'onde centrale de 800 nm	289

Chapitre 1

Introduction et concepts fondamentaux

Le développement des lasers depuis les années 1960 [3] a permis d'obtenir des améliorations permanentes sur les propriétés des sources lumineuses : flux de photons croissant, durées d'impulsions lumineuses de plus en plus courtes etc. Dans les années 1980, la durée des impulsions produites atteint la gamme femtoseconde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) [4]. En faisant la correspondance entre le domaine spectral et le domaine temporel, obtenir une impulsion plus courte revient à élargir, enrichir le contenu spectral de l'impulsion. Pour une impulsion Gaussienne, le principe d'incertitude/ relation de Fourier [5] donne la relation :

$$\tau \geq \tau_{\min} = \frac{4 \ln(2)}{\delta\omega} \quad (1.1)$$

avec τ la durée de l'impulsion, τ_{\min} la durée de l'impulsion Fourier limitée, et $\delta\omega$ la largeur spectrale.

Produire des impulsions ultracourtes à haute énergie par impulsion amène plusieurs problèmes, notamment au niveau de l'amplification de ces impulsions. Les intensités pics étant inversement proportionnelles à la durée des impulsions, ces intensités deviennent rapidement conséquentes, touchant les seuils de dommage des différents milieux et optiques classiques d'amplification. Durant cette même décennie des années 1980, une méthode d'amplification d'impulsion ultracourte a vu le jour, contournant les possibles problèmes d'endommagement. Cette méthode appelée Chirped Pulse Amplification (méthode CPA [6], Nobel 2018), consiste en plusieurs étapes distinctes :

- L'impulsion femtoseconde est étirée temporellement via un étireur, qui va induire une forte dispersion entre les différentes longueurs d'onde du spectre, en jouant sur la phase spectrale. Le profil temporel de l'impulsion est alors étiré temporellement, ce qui permet de séparer temporellement l'amplification de chacune des composantes spectrales.
- Après passage dans l'étireur, l'impulsion est envoyée dans le milieu amplificateur, où les différentes longueurs d'onde sont amplifiées en énergie par pompage optique.
- Après amplification, l'impulsion est envoyée vers un compresseur, qui ajoute une forte dispersion de signe inverse à celle introduite par l'étireur. L'impulsion est alors compressée temporellement, retrouvant la durée initiale, ou presque, avant passage dans l'étireur.
- Dans le cas d'un laser titane-saphir amplifié, le compresseur et l'étireur sont formés par une combinaison de réseau dont l'écartement est réglé pour ajuster la dispersion. Le milieu amplificateur est un cristal de titane :saphir.

Ces impulsions courtes de durées femtosecondes de fortes intensités pics ont été utilisées pour l'étude de plusieurs phénomènes et processus électroniques, notamment en femtochimie [7], en physique des plasmas [8] ou encore en filamentation [9].

Malgré tout, l'échelle typique du mouvement électronique au coeur des atomes est l'unité atomique de temps, qui a comme valeur 24 as, soit deux ordres de grandeur par rapport aux durées des impulsions femtosecondes les plus courtes. Afin d'étudier ces processus électroniques au coeur des atomes, il est nécessaire d'avoir des impulsions de durées attosecondes également, de l'ordre de grandeur de cette unité atomique de temps. En reprenant le principe d'incertitude énoncé dans l'Équation (1.1), une durée d'impulsion de l'ordre de 200 as nécessite une largeur spectrale minimale de 9 eV environ. En énergie de photons, le domaine visible, qui s'étend entre 400 et 800 nm, offre une largeur spectrale équivalente de 1.55 eV, soit 1.2 fs dans le domaine temporel. Pour descendre aux échelles attosecondes, il est donc nécessaire d'aller au-delà du domaine visible.

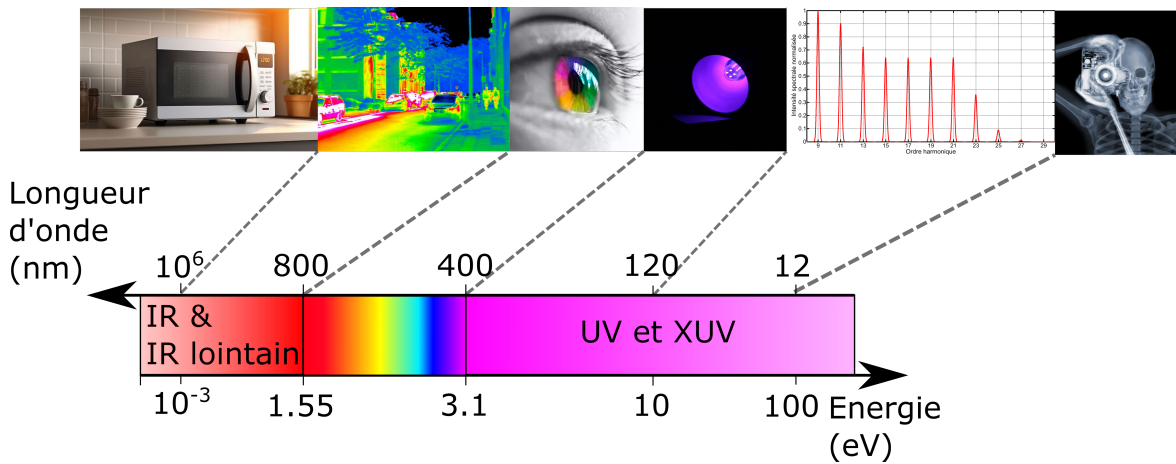


FIGURE 1.1 – Spectre électromagnétique et longueurs d'onde usuelles. Le domaine visible se limite à des longueurs d'onde de 400 à 800 nm.

La génération d'harmoniques d'ordre élevé [10, 11] s'est imposée comme un moyen de production pour générer un rayonnement cohérent et large bande dans le domaine UV-XUV. La notion d'ordres élevés fait référence à des ordres d'harmonique supérieurs à la génération de seconde [12] ou troisième harmonique [13]. La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un processus multiphotonique [14, 15] non linéaire qui permet la conversion de q photons infrarouge à la fréquence ω_0 en un photon XUV de fréquence $q\omega_0$. Ce processus non linéaire apparaît pour des éclaircissements assez élevés, de l'ordre de 10^{14} W.cm⁻². Il est possible d'obtenir de telles intensités en focalisant une impulsion amplifiée de durée femtoseconde à l'intérieur d'un milieu gazeux, comme une cellule ou un jet de gaz. Lorsque l'impulsion est bien focalisée dans le milieu, avec une polarisation linéaire, des harmoniques d'ordres élevés sont émises. Dans ce manuscrit, on se focalise uniquement sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les milieux gazeux, mais le développement de cette méthode s'étend aussi aux milieux solides [16, 17, 18, 19] comme les verres ou encore les liquides [20, 21, 22, 23].

Le spectre XUV de génération d'harmoniques présente certaines propriétés spécifiques, avec la présence d'harmoniques centrées à $q\omega_0$, avec q l'ordre de l'harmonique considérée. Les ordres harmoniques sont impairs lorsqu'une centro-symétrie du milieu existe, ce qui est le cas pour les gaz monoatomiques. L'amplitude des harmoniques décroît fortement sur les premiers ordres, mais reste quasi constante sur une gamme

d'énergie étendue, appelée plateau. Pour des énergies encore plus grandes, l'intensité des harmoniques décroît à nouveau, et les harmoniques disparaissent au-delà d'une fréquence appelée coupure [24]. La largeur spectrale des harmoniques est inversement proportionnelle à la durée de l'impulsion fondamentale. La génération d'harmoniques d'ordres élevés permet donc la production de longueur d'onde sur une large gamme spectrale [25, 26], allant de quelques dizaines [27] ou centaines d'eV [28, 29, 30] au keV [31].

À partir de ce spectre large, il est possible d'estimer un profil temporel en prenant sa transformée de Fourier. En supposant que les fréquences harmoniques sont en phase, le profil d'intensité obtenu par transformée de Fourier du spectre harmonique présente une structure attoseconde, avec des pics d'intensité de durées sub-fs [32]. Les pics sont périodiques, de période $\frac{T_0}{2}$ avec T_0 la période optique de l'impulsion fondamentale. Une impulsion attoseconde est donc émise à chaque demi-cycle optique. L'illustration d'un spectre d'harmonique typique est donnée en Figure 1.2, avec le train d'impulsions attosecondes associé, obtenu par transformée de Fourier, pour une phase spectrale constante.

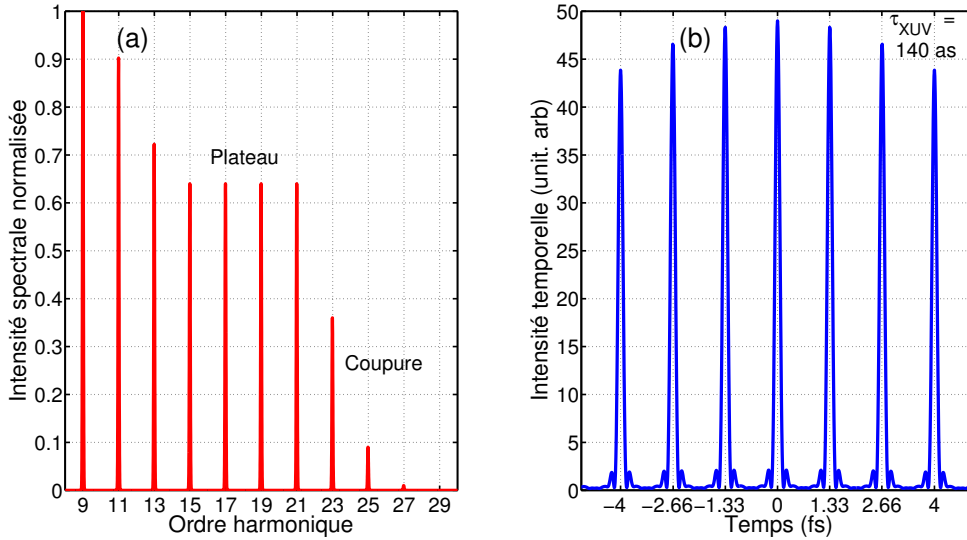


FIGURE 1.2 – Illustration d'un spectre d'harmoniques typique (a)) avec le train d'impulsions attosecondes correspondant (b) pour toutes les harmoniques en phase. Les zones typiques de coupure (entre H23 et H27) et de plateau (entre H13 et H21) sont visibles dans le spectre harmonique. Le train d'impulsion attosecondes contient une impulsion attoseconde par demi-cycle optique. Ces simulations sont effectuées pour une longueur d'onde centrale de 800 nm, donc un cycle optique de 2.66 fs.

Si la production de telles impulsions a été prédite en théorie, il a fallu établir des méthodes de mesures pour les caractériser. Les premières caractérisations arrivent au début des années 2000 [33, 34], notamment avec une méthode de caractérisation faisant interagir le rayonnement XUV avec une sonde IR dans un milieu gazeux, via la méthode RABBITT [34]. Cette méthode de caractérisation, avec la génération d'harmoniques d'ordre élevé, a fait l'objet d'un prix Nobel en 2023, récompensant Anne l'Huillier, Pierre Agostini et Ferenc Krausz. Les oscillations dans le signal de photoélectrons émis lors de l'interaction permettent de trouver les caractéristiques des impulsions attosecondes. Par la suite, d'autres méthodes ont été développées, se basant sur des hypothèses et des procédures de reconstruction différentes. On peut citer par

exemple FROG-CRAB [35], les méthodes de streaking [33, 36, 37, 38, 39], des méthodes basées sur l'ionisation [40] ou encore des autocorrélations XUV [41, 42]. Les impulsions produites ont vu leur durée décroître au fil des années, passant de quelques centaines d'attosecondes [34] à quelques dizaines d'attosecondes [38, 39].

En parallèle, des modèles ont vu le jour pour expliquer la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Un des premiers modèles développés est appelé modèle en 3 étapes (three step model en anglais) [43, 44, 45]. Ce modèle semi-classique décrit la génération d'harmoniques en 3 étapes successives. Ce modèle est illustré en Figure 1.3, pour une polarisation linéaire du champ fondamental. Les trois étapes du modèle sont les suivantes :

- Modification du potentiel par le champ laser et ionisation : Le champ laser intense modifie la barrière de potentiel vue par l'électron, et permet d'avoir une ionisation tunnel, avec libération de l'électron dans le continuum.
- Accélération et retour : Une fois libéré, l'électron est accéléré par le champ laser, puis freiné quand le champ change de signe et réaccélééré vers la barrière de potentiel. Durant son trajet, l'électron accumule de l'énergie.
- Recombinaison avec l'ion : au niveau du retour, l'électron a une probabilité non nulle de se recombiner avec l'ion. Lors de la recombinaison, l'énergie accumulée par l'électron lors de son trajet est libérée sous forme d'un photon XUV.

La cohérence du processus provient de la phase de la radiation XUV qui est émise. Elle est reliée à la phase du laser IR, car l'électron est en réalité un paquet d'onde quantique. L'état final après recombinaison est identique à l'état initial.

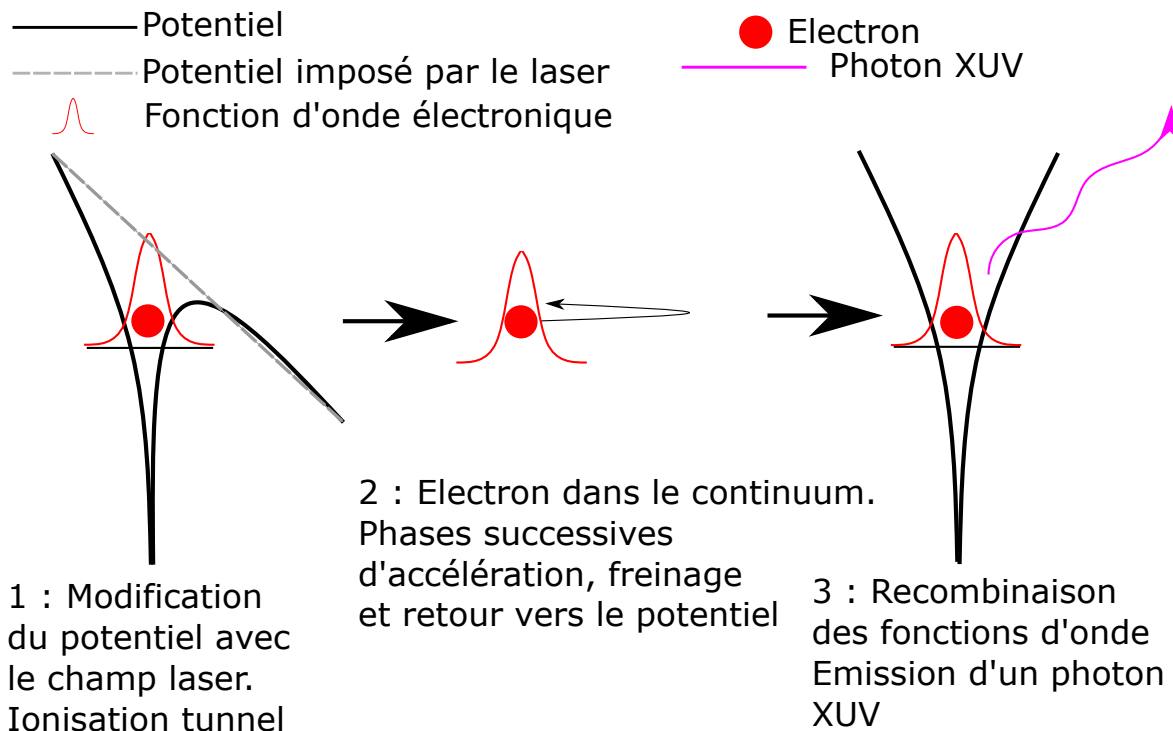


FIGURE 1.3 – Illustration du modèle en 3 étapes. Le potentiel de l'atome est dessiné en trait plein noir, et le potentiel imposé par le champ laser intense est dessiné en pointillés gris. La fonction d'onde électronique est représentée en trait plein rouge.

L'énergie du photon XUV dépend du temps passé à accumuler de l'énergie durant la seconde phase, mais aussi du potentiel d'ionisation de l'atome. L'énergie maximum du photon XUV, donc l'énergie de coupure, est donnée par la somme du potentiel

d'ionisation, et de l'énergie maximale que l'électron peut obtenir à $x=0$ (retour à sa position initiale), soit :

$$E_{\text{coupure}} = I_p + 3.17U_p \quad (1.2)$$

avec I_p le potentiel d'ionisation de l'atome, et $U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega_0^2}$ l'énergie pondéromotrice. Les valeurs des potentiels d'ionisation des gaz rares sont données dans le Tableau 1.1. Les valeurs d'intensité de saturation de la génération d'harmoniques I_S , intensités à partir desquelles l'ionisation du milieu est très forte, sont aussi données dans ce tableau.

L'énergie des photons XUV varie linéairement avec λ_0^2 et I_0 , respectivement la longueur d'onde centrale et l'éclairement. Plus la longueur d'onde centrale du fondamental est grande, et plus la coupure est haute en énergie, et plus il y a d'harmoniques dans le spectre. La conclusion est la même pour l'intensité (pour des intensités inférieures à l'intensité de saturation). Avec ce modèle semi-classique, on obtient une description compatible avec les observations expérimentales, ainsi que les modèles quantiques plus complexes développés [46].

Gaz	Xenon	Krypton	Argon	Néon	Helium
I_p (eV)	12.13	13.99	15.75	21.56	24.58
I_S ($\text{W}\cdot\text{cm}^{-2}$)	2.7×10^{14}	4.3×10^{14}	7.4×10^{14}	2.2×10^{15}	3.1×10^{15}

TABLE 1.1 – Potentiel d'ionisation I_p et intensités de saturation I_S calculées dans l'annexe 3.

Pour revenir aux impulsions attosecondes, via la génération d'harmoniques avec des impulsions de durées de dizaines de cycles optiques, elles sont générées sous forme de train [34]. Ce train d'impulsions attosecondes compte une impulsion par demi-cycle optique et a une enveloppe dont la durée est proportionnelle à la durée de l'impulsion fondamentale. Pour pouvoir aller sonder et étudier des phénomènes ultrarapides à l'échelle attoseconde avec une très bonne résolution temporelle, il est préférable d'avoir une sonde composée d'une impulsion unique, isolée. À partir du train d'impulsions attosecondes généré, il est possible d'isoler une des impulsions de ce train. Il y a plusieurs possibilités :

- Réduire l'enveloppe du train d'impulsion attosecondes, jusqu'à obtenir un train d'une seule impulsion.
- Limiter temporellement l'émission XUV à des durées sub demi-cycle optique, afin d'avoir émission d'une impulsion attoseconde uniquement.

Sur ces deux aspects, plusieurs procédures ont été élaborées pour obtenir des impulsions attosecondes isolées [47, 48] :

- Un confinement temporel de l'émission XUV par modulation de la polarisation du fondamental [49, 50, 51, 52, 53]. La génération d'harmoniques est très dépendante de la polarisation de l'impulsion fondamentale, notamment l'ellipticité. Pour une ellipticité de 10 %, le signal harmonique est typiquement divisé par 2 [54, 55]. En imposant une modulation temporelle de l'ellipticité de l'impulsion fondamentale, les instants d'émission XUV peuvent donc être limités aux instants où la polarisation est très peu elliptique. Expérimentalement, des impulsions attosecondes isolées de quelques centaines d'attosecondes ont été obtenues [56].
- Réduire la durée de l'impulsion fondamentale [33, 57, 58]. La génération d'harmoniques étant un phénomène non linéaire, plus la durée de l'impulsion fondamentale sera courte, plus la durée de l'émission XUV le sera aussi. En tendant

vers des durées d'impulsions de quelques cycles optiques et en sélectionnant une partie du spectre XUV, des impulsions attosecondes isolées de quelques centaines d'attosecondes ont été obtenues.

- Un confinement temporel par ionisation [59]. À très forte intensité, le milieu générateur pourra rapidement être entièrement ionisé. Pour un milieu totalement ionisé, la génération d'harmoniques n'est plus possible, car il n'y a plus d'atomes générateurs disponibles. L'idée est donc d'avoir une intensité assez forte, rapidement, dans le front montant de l'impulsion fondamentale, afin de limiter l'émission XUV dans ce front de l'impulsion.
- Une génération d'impulsions attosecondes isolées à partir de la séparation spatiotemporelle de l'émission XUV pour chaque demi-cycle optique, appelée "phare attoseconde" [60, 61, 62, 63]. Une variation spatiale du front d'onde de l'impulsion fondamentale est implémentée, produisant des points de génération différents pour les impulsions attosecondes le long de la propagation du faisceau. Ces impulsions attosecondes sont émises dans des directions différentes de l'espace, et donc séparées après propagation. En isolant spatialement une zone sur la détection, on obtient l'isolation d'une impulsion attoseconde dans le train d'impulsions attosecondes généré.

Pour un temps d'émission XUV réduit, les signatures spectrales correspondantes sont un élargissement spectral des harmoniques, jusqu'à former un continuum spectral compatible avec la génération d'une impulsion attoseconde isolée. Chaque méthode présente ses avantages et inconvénients, comme la compacité et simplicité de mise en place, ou encore la gamme spectrale effective pour la génération du continuum spectral.

De manière plus globale, la génération d'harmoniques d'ordres élevés et les impulsions attosecondes ont ouvert la voie à l'attophysique ou physique attoseconde. Ce domaine reste en constante évolution et à l'état de l'art, en témoigne le prix Nobel 2023 décerné à Anne L'Huillier, Pierre Agostini et Ferenc Krausz.

Dans ce manuscrit, le choix s'est porté sur une combinaison de deux procédures pour générer des spectres XUV continus, à savoir la modulation temporelle de la polarisation du fondamental par porte de polarisation, ainsi que la diminution de la durée de l'impulsion fondamentale par postcompression [64, 65].

Le premier chapitre met en avant les caractéristiques du montage expérimental utilisé pour les expériences effectuées à l'ILM, ainsi que les mises en forme de l'impulsion fondamentale (spectrale et temporelle) que l'on a pu effectuer. La méthode de postcompression utilisée y est expliquée, ainsi que les méthodes de caractérisation d'impulsions femtosecondes choisies. Des applications des mises en forme spectrales et temporelles de l'impulsion sont évoquées dans un second temps. La mise en forme temporelle de l'impulsion fondamentale fait l'objet d'une collaboration multiple avec le King's College de Londres ainsi que le CELIA de Bordeaux.

Le second chapitre se focalise sur le principe de la porte de polarisation, ainsi que sa mise en place expérimentale à l'Institut Lumière Matière de Lyon. L'idée de ce chapitre est d'explorer la génération d'harmoniques confinée par porte de polarisation, et de trouver les différentes configurations possibles de la porte de polarisation pour obtenir un confinement temporel avec des propriétés spectrales spécifiques pour les harmoniques.

Le troisième chapitre se focalise sur l'obtention d'un continuum spectral pour le spectre XUV. La combinaison d'impulsions courtes de quelques cycles optiques et de la porte de polarisation permet d'obtenir la génération de spectres quasi-continus pour le spectre harmonique, avec des effets de CEP compatibles avec l'obtention d'une impul-

sion attoseconde isolée. Deux résultats d'expériences sont exposés, un obtenu à l'Institut Lumière Matière de Lyon et un obtenu lors d'une collaboration avec la division de physique atomique du Lund Laser Center de Lund.

Le quatrième chapitre se concentre sur la caractérisation des impulsions XUV attosecondes. Dans un premier temps, nous mettons en avant des résultats obtenus par des méthodes de caractérisation standard de type RABBITT [34] et streaking [36]. Dans un second temps, nous mettons l'accent sur l'élaboration de méthodes de caractérisation d'enveloppe harmonique XUV basées sur le contrôle de la polarisation. Deux méthodes sont développées : une méthode dite de perturbation par ellipticité, où l'on vient perturber la génération d'harmoniques d'ordres élevés avec une impulsion secondaire retardée de polarisation croisée avec celle de l'impulsion fondamentale, et une autre méthode adaptée d'une méthode de caractérisation pour impulsions femtosecondes, SWING [66, 67]. Cela a mené à une collaboration avec le groupe de recherche sur les applications laser et photoniques de l'université de Salamanque.

Chapitre 2

Caractérisation des impulsions femtosecondes et contrôle spectral des spectres IR et XUV

2.1 Caractérisation des impulsions IR femtosecondes

2.1.1 Contexte et introduction

La caractérisation des impulsions femtosecondes est un aspect important de l'optique non linéaire. Connaître le profil temporel des impulsions utilisées pour tout type d'expérience est nécessaire à la compréhension des phénomènes sous-jacents à l'expérience et la comparaison avec les simulations théoriques. Dans le cas de la génération d'harmoniques, qui sera le principal phénomène étudié dans ce manuscrit, connaître le profil temporel de l'impulsion génératrice est nécessaire, notamment pour permettre de travailler ses propriétés spectrales, mais aussi sa polarisation. De nombreuses techniques de caractérisation ont été développées et d'autres techniques sont encore développées et mises en place afin d'améliorer la précision, la facilité d'utilisation ainsi que la robustesse des reconstructions.

Ces différentes méthodes se différencient par le phénomène non linéaire utilisé pour la caractérisation, le paramètre variable ainsi que l'observable utilisée. Des méthodes basées sur l'observation du spectre de seconde harmonique ont été développées. On peut citer notamment l'approche FROG (Frequency Resolved Optical Gating) [68, 69]. Dans cette approche, l'impulsion principale est séparée en deux répliques identiques, décalées temporellement puis recombinaées au niveau d'un cristal doubleur. L'observable est le spectre de seconde harmonique produit par le mélange entre les deux répliques, en fonction du délai entre ces deux répliques. Cette méthode permet de retrouver à la fois la phase et l'amplitude de l'impulsion, au travers d'algorithmes itératifs basés sur des projections [68, 69], ou via la Ptychographie [70].

La méthode SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) [71, 72] permet elle aussi de retrouver la phase et l'amplitude de l'impulsion femtoseconde. Elle se base sur l'observation d'interférences spectrales dans le spectre de seconde harmonique entre deux répliques de l'impulsion fondamentale, décalées temporellement et spectralement.

La méthode Dscan (Dispersion Scan) [73, 74, 75, 76] est elle basée sur l'observation du spectre de seconde harmonique généré en fonction d'une dispersion ajoutée à l'impulsion IR fondamentale de manière contrôlée. L'impulsion fondamentale n'est pas

séparée en deux répliques comme dans les méthodes précédentes. La robustesse de la méthode Dscan a été comparée à d'autres méthodes, comme SPIDER [77]. Cette comparaison montre un bon accord entre les deux méthodes de mesures, avec un système plus simple et compact pour la méthode Dscan, tout en conservant la robustesse de la reconstruction.

Des méthodes d'autocorrélation [78, 79] de type monocoup existent également. L'impulsion fondamentale est séparée en deux répliques, décalées temporellement et spatialement, puis recombinaées au niveau d'un cristal doubleur. Le profil temporel de l'autocorrélation est alors inscrit sur la dimension spatiale du cristal doubleur. En observant le signal doublé dû au recouvrement entre les deux impulsions, l'autocorrélation est retrouvée, et la durée de l'impulsion fondamentale estimée.

Plus récemment, des méthodes basées sur une perturbation elliptique à délai constant du champ IR fondamental ont été développées [66, 67], avec la méthode A-SWING. Des méthodes basées sur l'ionisation et utilisant un effet très non linéaire ont aussi été développées, comme les méthodes TipToe [80, 81].

Les méthodes de caractérisation IR sont donc nombreuses, avec plusieurs avantages et inconvénients propres à chacune : compacité du montage, neutralité en dispersion, optiques supplémentaires. Pour les expériences réalisées à l'ILM, le choix des méthodes de caractérisation s'est porté sur deux méthodes complémentaires : une caractérisation avec un autocorrélateur monocoup et une caractérisation via Dscan. Le choix de ces méthodes est expliqué dans la Section 2.2.3.

2.2 Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

2.2.1 Automodulation de phase et postcompression : principes primaires

Dans cette partie, le focus est fait sur la méthode utilisée pour passer d'impulsions femtosecondes en sortie de laser amplifié d'une durée de $\tau_{IR} = 30$ fs à des impulsions de durées de quelques cycles optiques IR. Le laser femtoseconde installé à l'ILM est un laser CPA amplifié Ti :Sapphire (10 W, 5 KHz). Les durées d'impulsions minimales en sortie sont limitées à environ 30 fs [82]. Passer à des impulsions plus courtes, de quelques cycles optiques, permet de raccourcir la durée de l'émission XUV effectuée via la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Pour une longueur d'onde centrale de 800 nm, un cycle optique correspond à $T_0 = 2.66$ fs. Avoir une impulsion de 2 ou 3 cycles optiques correspond donc à une durée d'impulsion τ_{IR} entre 5 et 8 fs. Il faut donc trouver un système pour passer de 30 fs aux durées typiques de quelques cycles optiques.

Par correspondance dans le domaine de Fourier, une durée τ_{IR} plus petite correspond à une largeur spectrale plus grande. Si toutes les fréquences sont en phases, un élargissement spectral permet de diminuer la durée de l'impulsion. Typiquement, un spectre Gaussien de largeur à mi-hauteur 40 nm à 800 nm correspond à une durée $\tau_{IR} = 25$ fs, contre une durée $\tau_{IR} = 10$ fs pour une largeur à mi-hauteur spectrale de 100 nm.

L'automodulation de phase [64, 83, 84] est un moyen efficace de produire un élargissement spectral pour l'impulsion fondamentale. Le faisceau est focalisé dans un milieu gazeux [85, 86, 87, 88] ou solide [89], et la forte intensité induit un changement d'indice

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

de réfraction non linéaire. Ce changement d'indice prend la forme suivante :

$$n(I(t)) = n_0 + n_2 I(t) \quad (2.1)$$

avec I l'intensité, représentée par le profil temporel de l'impulsion IR.

La phase change avec l'indice de réfraction, et la propagation dans le milieu. L'évolution de la phase est donnée par l'Équation (2.2). Par dérivée temporelle, la fréquence instantanée évolue comme montré en Équation (2.2) :

$$\Phi(t) = \omega_0 t - \frac{\omega_0 n L}{c} \text{ avec } \omega(t) = \frac{\partial \Phi(t)}{\partial t} \quad (2.2)$$

En développant l'expression pour $\omega(t)$, on obtient :

$$\omega(t) = \omega_0 - \omega_0 \frac{L}{c} \frac{\partial n}{\partial t} = \omega_0 - \omega_0 \frac{L}{c} n_2 \frac{\partial I}{\partial t} \quad (2.3)$$

avec n_2 dépendant du milieu utilisé, et I le profil d'intensité de l'impulsion fondamentale.

Le changement de fréquence est alors proportionnel à deux quantités : n_2 et la dérivée temporelle du profil d'intensité $\frac{\partial I}{\partial t}$. Dans le cas d'un profil Gaussien symétrique et d'un n_2 positif, le changement de fréquence sera donc négatif dans le front montant de l'impulsion ($\frac{\partial I}{\partial t} > 0$), et positif dans le front descendant de l'impulsion ($\frac{\partial I}{\partial t} < 0$). La propagation non linéaire de l'impulsion dans le milieu permet alors la création de nouvelles fréquences autour de la fréquence centrale ω_0 , et d'obtenir un élargissement spectral par automodulation de phase (Self Phase Modulation). Néanmoins, ce processus de création de fréquences induit des effets de phase supplémentaires, notamment une dérive de fréquence. La dérive de fréquence, aussi appelée chirp, est la variation linéaire de la fréquence instantanée $\omega(t)$ avec le temps. Son signe donne directement le sens de variation de $\omega(t)$. Pour une dérive de fréquence positive, la fréquence instantanée varie du rouge (longueur d'onde plus grande) vers le bleu (longueur d'onde plus faible). Pour une dérive de fréquence négative, l'effet est inversé. Par automodulation de phase, on obtient une dérive de fréquence positive. L'élargissement spectral est obtenu mais l'impulsion n'est plus Fourier limitée à cause de ces effets de phase. Pour les compenser, il convient d'utiliser d'autres phénomènes optiques (dispersion dans un milieu introduisant une dérive de fréquence négative) ou des éléments optiques supplémentaires, comme des miroirs chirpés.

Une illustration du phénomène de modulation de fréquence par automodulation de phase est donnée en Figure 2.1. Pour les simulations, l'impulsion fondamentale est fixée avec une durée de $\tau_{IR} = 30$ fs, avec un profil Gaussien symétrique. Le gaz considéré pour la postcompression est le néon. Pour le néon, le n_0 est approximé à 1, et n_2 est tabulé/mesuré pour une pression de 1 bar [90, 91]. Les valeurs de n_2 pour le néon changent selon la référence que l'on prend [91, 92, 93]. Les simulations sont effectuées pour deux valeurs de n_2 , respectivement $0.15 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ et $0.85 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$. La longueur du capillaire est de $L = 1.2$ m. La longueur d'onde centrale considérée est 800 nm, soit $\omega_0 = 2.35 \times 10^{15} \text{ rad} \cdot \text{s}^{-1}$.

L'intensité pic pour l'impulsion est calculée à partir de grandeurs mesurées expérimentalement. La puissance d'entrée du capillaire est mesurée à $P = 6.5$ W. Le taux de répétition τ_{rate} du laser est de 5 kHz. Le rayon du faisceau w_0 au niveau de la génération de fréquences doit correspondre en ordre de grandeur au diamètre interne du capillaire multiplié par un facteur $\frac{0.645}{2}$ [94], soit $\frac{\phi}{2} = \frac{0.625 \times 250}{2} \approx 80 \text{ } \mu\text{m}$, 250 μm étant

le diamètre interne du capillaire. L'intensité pic est calculée dans l'Équation (2.4) :

$$I_{\text{pic}} = \frac{2P}{\tau_{\text{rate}}\pi w_0^2\tau_{\text{IR}}} = 4.3 \times 10^{18} \text{W.m}^{-2} = 4.3 \times 10^{14} \text{W.cm}^{-2} \quad (2.4)$$

Avec les calculs effectués dans l'annexe 3, cette intensité correspond à avoir environ 1.5% d'ionisation dans le milieu, pour le néon. Ce pourcentage reste faible, ce que l'on veut pour le processus de postcompression et éviter au maximum l'ionisation dans le milieu gazeux du capillaire.

Avec l'intensité pic calculée, le changement de fréquence peut être calculé numériquement. Ce changement de fréquence est dessiné pour les deux valeurs de n_2 du néon à 1 bar en Figure 2.1. Le profil IR de départ est dessiné en trait plein rouge, et le décalage en fréquence par rapport à ω_0 est dessiné en trait plein bleu. Ce changement de fréquence est normalisé par ω_0 . Le changement en longueur d'onde est dessiné en Figure 2.2 pour $n_2 = 0.15 \times 10^{-19} \text{ cm}^2.\text{W}^{-1}$.

Dans les Figure 2.1 et Figure 2.2, le processus d'automodulation de phase montre un élargissement conséquent au niveau du spectre de l'impulsion IR. Les effets de phase inhérents à ce processus restent néanmoins à compenser en aval, ce qui fait l'objet de la Section 2.2.2. Dans nos expériences, la postcompression d'impulsions femtosecondes est combinée avec la porte de polarisation (voir Chapitre 3), avec pour but d'observer un spectre XUV continu, compatible avec la génération d'une impulsion attoseconde isolée.

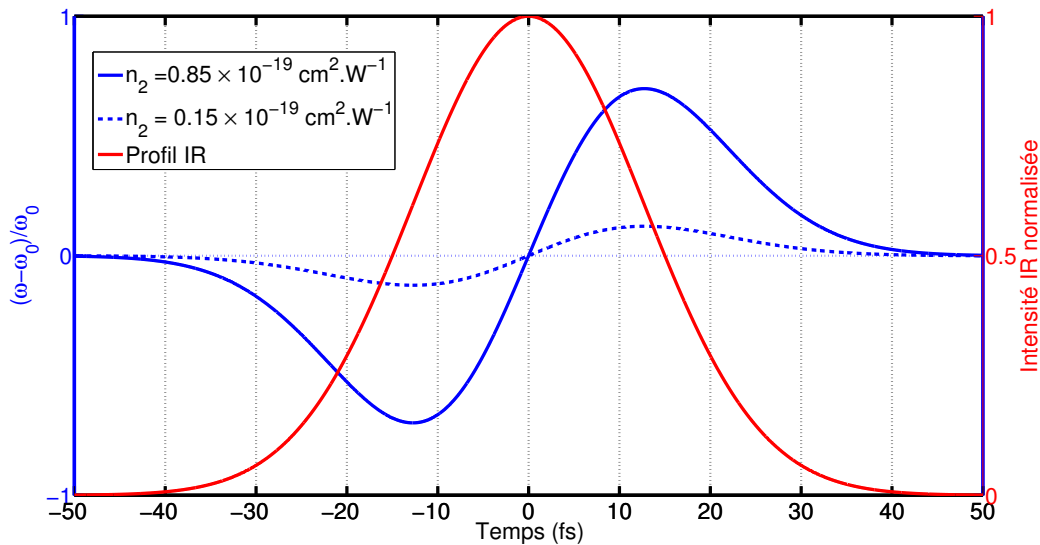


FIGURE 2.1 – Évolution du changement de fréquence $\frac{\omega - \omega_0}{\omega_0}$ pour les deux valeurs de n_2 du néon en fonction du temps : $0.15 \times 10^{-19} \text{ cm}^2.\text{W}^{-1}$ (pointillés bleus) et $0.85 \times 10^{-19} \text{ cm}^2.\text{W}^{-1}$ (trait plein bleu) . Le profil d'intensité IR est dessiné en trait plein rouge. Les paramètres pour la simulation sont : $\tau_{\text{IR}} = 30 \text{ fs}$, une longueur de capillaire de $L = 1.2 \text{ m}$, $P = 6.5 \text{ W}$ en entrée de capillaire, un $w_0 = 80 \mu\text{m}$, $I_0 = 4.3 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$.

2.2.2 Mise en place expérimentale : obtention d'impulsions de quelques cycles optiques, $\tau_{\text{IR}} = 7 \text{ fs}$

Dans notre cas, le choix du montage de postcompression s'est porté sur le guidage de l'impulsion dans une fibre creuse remplie de néon. La taille du capillaire est d'environ

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

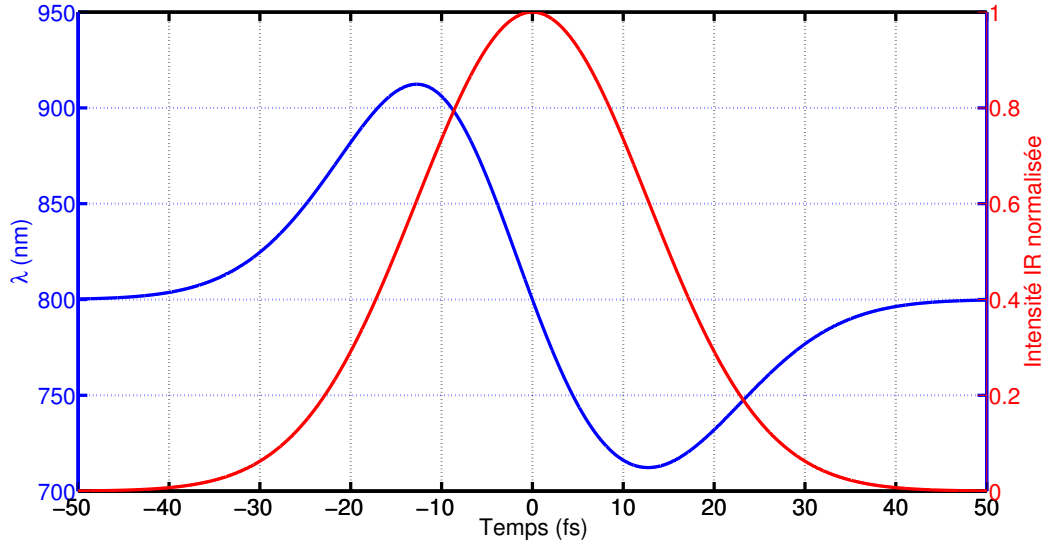


FIGURE 2.2 – Évolution de la longueur d’onde instantanée calculée à partir de l’évolution en Figure 2.1 pour $n_2 = 0.15 \times 10^{-19} \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$. L’élargissement est symétrique avec un profil symétrique Gaussien IR. L’évolution est dessinée en trait plein bleu et le profil IR utilisé pour les simulations en trait plein rouge.

1.20 m, pour un diamètre interne de $\phi_{\text{capillaire}} = 250 \mu\text{m}$ ($w_0 = 80 \mu\text{m}$). Le faisceau est focalisé au niveau de l’entrée du capillaire via une lentille de focale $f = 1.20 \text{ m}$, de manière à avoir couplage monomode dans ce dernier. La pression de néon à l’intérieur du capillaire peut être ajustée entre 0 bar et 2 bar, permettant de contrôler n_2 pour couvrir une large gamme d’élargissement spectral, donc de durée d’impulsions.

En sortie du capillaire, le faisceau est collimaté par un miroir de renvoi sphérique, de focale $f = 1.2 \text{ m}$. Une douzaine de miroirs chirpés est également installée pour compenser les effets de phase induits par le phénomène d’automodulation de phase. Cette compensation n’étant pas finement ajustable, un système avec deux prismes de silice fondue est ajouté (équivalent à une lame d’épaisseur variable). Un des deux prismes en silice est installé sur une platine de translation. En bougeant ce prisme, l’épaisseur de silice traversée est ajustée finement, permettant un réglage fin de la dérive de fréquence résiduelle. Ces mêmes prismes sont utilisés lorsque l’on caractérise la durée des impulsions femtosecondes via les méthodes suivantes : Autocorrelation avec dispersion, Dispersion Scan.

L’énergie des impulsions est ajustée avant d’entrer dans le capillaire en tournant l’orientation des axes d’une lame $\frac{\lambda}{2}$ d’ordre zéro par rapport aux axes d’un polariseur. La postcompression étant un phénomène non linéaire, avec une création de fréquence proportionnelle à la dérivée temporelle de l’intensité, on utilise souvent une majeure partie de l’énergie de sortie du laser. L’ordre de grandeur de la puissance d’entrée de 6.5 W, pour une durée d’impulsion de $\tau_{IR} \approx 30 \text{ fs}$. Le taux de répétition du laser est de 5 kHz. En sortie du capillaire, la puissance typique est de 2.8 W lorsque le capillaire est pompé à vide (transmission de 43 %), et 2.3 W lorsque le capillaire est rempli de gaz (transmission de 35 %). Le couplage est assez bas, ce qui peut être dû à un endommagement de la face d’entrée du capillaire ou encore à une différence de couplage des différentes longueurs d’onde spectrales. Le système a été testé avec plusieurs capillaires différents sans pouvoir améliorer drastiquement le couplage.

Il est nécessaire d’avoir une stabilisation du pointé du faisceau au niveau de l’entrée

du capillaire. Avec cette stabilisation, il y a plusieurs avantages :

- Le couplage à l'intérieur du capillaire reste similaire sur la journée, avec un élargissement spectral qui reste lui aussi similaire.
- Les instabilités dues aux fluctuations thermiques des optiques, des montants ou encore à la sortie du laser sont compensées.
- Avec la stabilisation du pointé de faisceau, la face d'entrée du capillaire est mieux protégée. Avoir une instabilité dans le pointé de faisceau au niveau de l'entrée du capillaire peut entraîner un endommagement de cette dernière. Cet endommagement modifierait la qualité du couplage dans le capillaire, affectant l'élargissement spectral ainsi que la puissance en sortie du capillaire.

La référence d'alignement pour la stabilisation du pointé de faisceau est mesurée chaque jour.

Deux images du faisceau en sortie du capillaire sont données dans la Figure 2.3, prises à une semaine d'intervalle. Le faisceau en sortie du capillaire est assez symétrique et le profil spatial est de bonne qualité et régulier. Le passage dans le capillaire fait aussi office de filtrage spatial pour le faisceau d'entrée du capillaire. Le stabilité du profil spatial obtenue est assez bonne, comme le montre la comparaison entre les deux images en Figure 2.3.

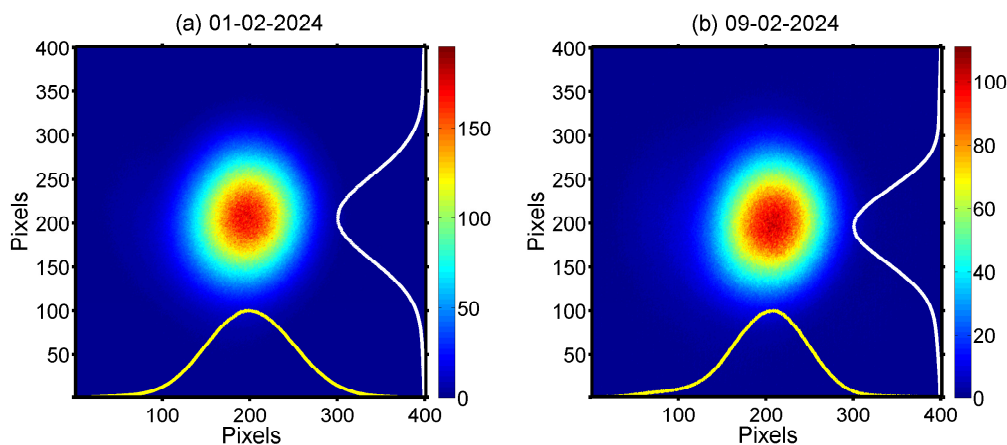


FIGURE 2.3 – Profil spatial du faisceau en sortie de capillaire. Les intégrations spatiales sont dessinées respectivement en jaune et en blanc. Le profil est assez symétrique et régulier, d'où l'effet de filtrage spatial que l'on évoque dans cette partie. Il est donné pour deux jours différents à une semaine d'intervalle.

Pour stabiliser le faisceau en entrée du capillaire, une fuite est prélevée au niveau du miroir de renvoi vers le capillaire. La puissance de cette fuite est de 0.1% par rapport à la puissance en entrée de capillaire. Une caméra est ensuite placée de manière à reproduire l'entrée du capillaire. La distance entre la caméra et la lentille est la même que la distance entre la lentille et l'entrée du capillaire. Le faisceau est donc imagé dans le plan d'entrée du capillaire. Sur cette image, le barycentre du faisceau est calculé, avec une moyenne sur 5 images consécutives. La position du couplage optimal est repérée par une position x, y en pixels. La stabilisation consiste à faire correspondre ce barycentre avec la position du couplage optimal. Le barycentre du faisceau est ajusté finement à l'aide de picomoteurs installés sur un des miroirs. Lorsque le barycentre mesuré

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

s'éloigne de la position du couplage optimal, le programme actionne les picomoteurs pour ramener le barycentre du faisceau vers cette position. Avec ce système, la stabilité typique du pointé de faisceau est de 3-4 pixels au cours de la journée, pour une taille de faisceau d'une cinquantaine de pixels.

Via le système décrit dans les paragraphes précédents, le spectre de l'impulsion fondamentale est élargi de manière significative. Une évolution typique des spectres élargis obtenus expérimentalement est donnée en Figure 2.4. La largeur spectrale passe de 40 nm à environ 100 nm en adaptant la pression dans le capillaire entre 0 et 1400 mbar. Le spectre élargi présente un élargissement de chaque côté, mais avec un décalage vers les fréquences les plus hautes, du côté des fréquences "bleues". Une asymétrie est visible entre la création de fréquences pour $\lambda < 800$ nm et $\lambda > 800$ nm.

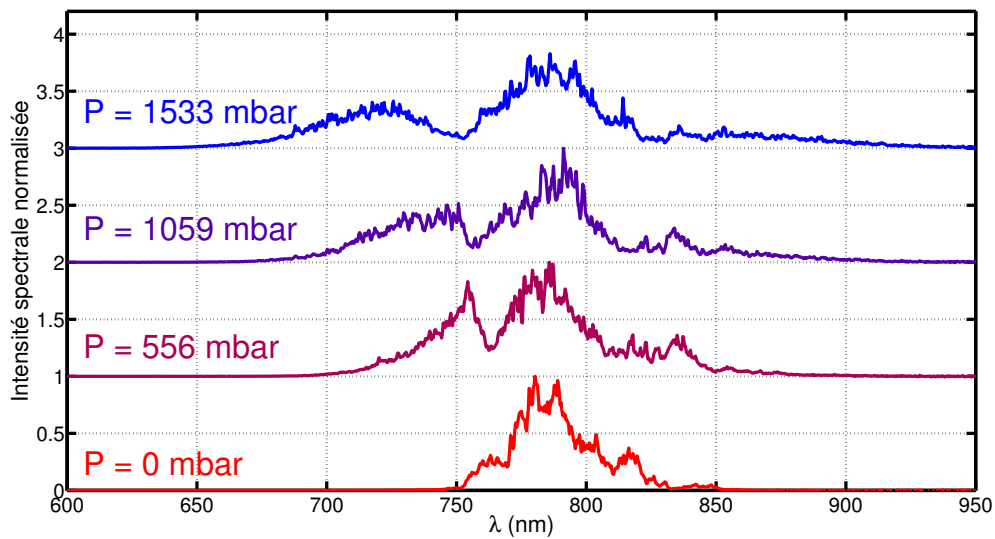


FIGURE 2.4 – Évolution du spectre IR normalisé par le maximum en sortie de capillaire en fonction de la pression de néon dans le capillaire. L'énergie de l'impulsion reste inchangée en entrée. La stabilisation du pointé de faisceau est active.

En comparant avec les simulations en Figure 2.2, l'asymétrie vers les fréquences les plus hautes n'est pas retrouvée dans les spectres simulés. Ce décalage vers le bleu a néanmoins été observé à plusieurs reprises. Dans les simulations en Figure 2.2, le profil de l'IR est considéré inchangé avec la propagation dans le capillaire. Dans le cas d'un fort élargissement spectral, pour affiner les simulations, il faut prendre en compte la dépendance de l'indice non linéaire n_2 avec l'intensité. Ici on a considéré n_2 constant. En prenant en compte la propagation, le profil de l'impulsion change au fur et à mesure qu'elle se propage dans le capillaire. Ce processus est appelé auto-raïdissement. Par construction, le pic de l'impulsion se propagera moins vite, car plus intense, que les ailes. Cela revient à avoir un front montant de l'impulsion moins pentu, et à contrario un front descendant plus pentu. En prenant en compte l'autoraïdissement, l'asymétrie dans la création de fréquences bleues/rouges par rapport à ω_0 peut s'expliquer. L'efficacité de détection est aussi à prendre en compte. Si le spectromètre est moins sensible au niveau de la détection des fréquences autour de 900/1000 nm, il est normal de voir une amplitude plus faible pour ces fréquences dans le spectre. La réponse du spectromètre a été mesurée et prise en compte dans les mesures expérimentales montrées en Figure 2.4, donc ce problème ne doit pas avoir un impact significatif.

En conclusion sur cette partie, le système mis en place montre bien que le spectre de l'impulsion fondamentale peut être ajusté et transformé via le processus d'automodulation de phase. Particulièrement, l'élargissement obtenu pour des pressions autour de 1400 mbar de néon à l'intérieur du capillaire sont compatibles avec des durées d'impulsions Fourier limitées d'environ 7 fs. Les durées des impulsions produites restent à mesurer, ce qui est montré dans Section 2.2.3.

2.2.3 Caractérisation temporelle des impulsions femtosecondes

La Section 2.2.2 a montré que le spectre était élargi en augmentant la pression dans le capillaire, et les largeurs spectrales obtenues sont compatibles avec la génération d'impulsions de quelques cycles optiques. Afin de vérifier que l'on obtient bien une durée compatible avec l'élargissement spectral, il faut caractériser la durée de ces impulsions. La caractérisation doit être effective pour des impulsions de $\tau_{IR} = 30$ fs jusqu'à des durées d'impulsion $\tau_{IR} = 7$ fs. Nous avons fait le choix de deux méthodes de caractérisation complémentaires, une mesure de Dispersion Scan (valable pour des impulsions de durée inférieure à 10 fs) et une mesure d'autocorrélation améliorée avec scan en dispersion.

La mesure de Dispersion Scan est une mesure qui se fait dans le domaine spectral, alors que la mesure d'autocorrélation se fait dans le domaine temporel. Le montage utilisé pour le dispersion scan est montré en Figure 2.5. L'impulsion fondamentale est envoyée dans un cristal doubleur (cristal de BBO), et le spectre doublé est observé via un spectromètre. La mesure consiste à observer le comportement du spectre en fonction de la dispersion introduite pour l'impulsion fondamentale. Cette dispersion est contrôlée de manière fine avec la paire de prismes en silice fondue (équivalent à une lame à faces parallèles d'épaisseur variable). En faisant varier l'épaisseur traversée, la dispersion est modifiée. L'analyse est ensuite faite à partir de la trace obtenue via un algorithme développé par un membre de l'équipe [75], qui est un algorithme itératif.

L'autocorrélateur utilisé est un autocorrélateur monocoup non dispersif. Le montage correspondant est montré en Figure 2.5. L'impulsion fondamentale est séparée en deux répliques par des bi-miroirs en argent. Le petit angle entre les bi-miroirs fait croiser les deux faisceaux au niveau du cristal doubleur (cristal de BBO, $20\mu\text{m}$ d'épaisseur), avec un délai qui change avec la position sur la dimension transverse du cristal. Le doublage se fait alors de trois manières : un doublage pour chaque impulsion seule, qui suit le chemin de la réplique, et un doublage dû à la superposition spatiale et temporelle des deux impulsions. Le doublage qui est intéressant est uniquement celui dû à la superposition des deux impulsions.

L'intérêt de l'autocorrélateur monocoup est que le profil d'autocorrélation est directement inscrit dans l'évolution spatiale du signal doublé sur le BBO. Pour chaque point x dans la dimension spatiale est associé une valeur de signal doublé $S(x)$, dont l'intensité dépend du délai entre les deux répliques. Lorsque l'on se situe au centre du recouvrement, les deux répliques arrivent en même temps sur le BBO, et le délai entre les deux répliques est nul. En s'éloignant du centre du recouvrement, le délai entre les deux répliques devient non nul. Par construction géométrique, lorsque l'on s'éloigne du centre de recouvrement, le retard entre les deux répliques augmente. On a donc une évolution spatiale graduelle du délai entre les deux répliques en regardant l'évolution spatiale du signal doublé sur le BBO. Un schéma d'évolution du signal d'autocorrélation est présenté en Figure 2.6. Cette évolution spatiale est observée via une caméra CCD. L'infrarouge rémanent est coupé par un filtre bleu en amont de la caméra.

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

La mesure avec l'autocorrélateur est faite de manière à obtenir la même durée d'impulsion que dans la chambre de génération d'harmoniques. Cela permet de connaître rapidement quand la durée est minimum pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

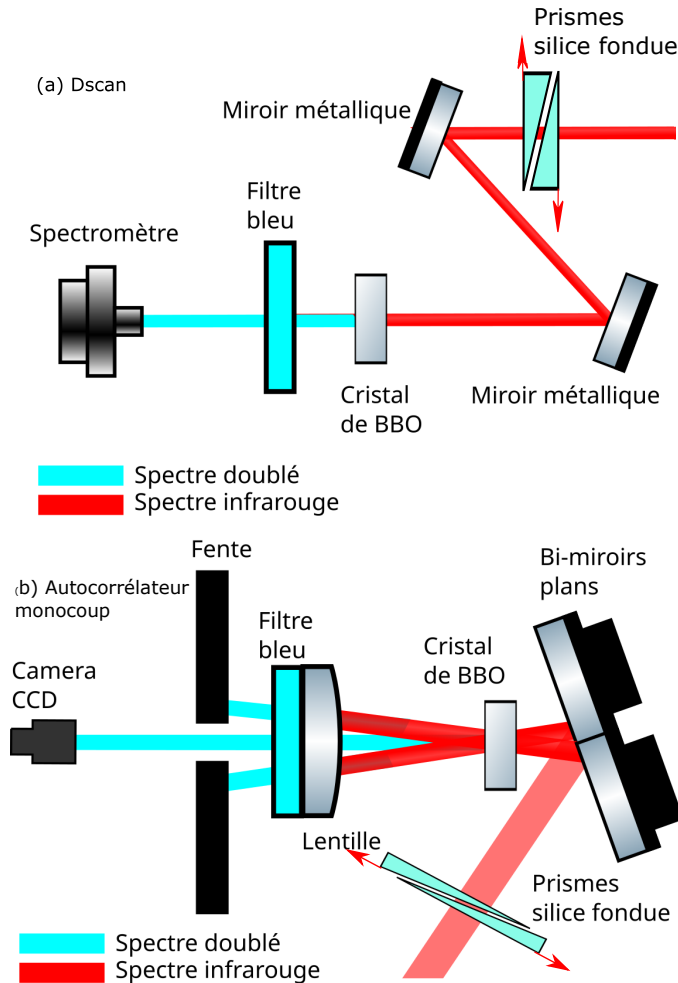


FIGURE 2.5 – (a) Schéma illustratif du montage de Dispersion Scan. (b) Schéma illustratif de l'autocorrélateur monocoup. Le doublage s'effectue via le cristal de BBO. Le filtre bleu permet de retirer l'infrarouge et d'observer uniquement le spectre doublé. La dispersion est introduite via les prismes en silice. Les flèches en rouge indiquent que les prismes en silice sont mobiles, permettant d'introduire une épaisseur contrôlée de silice fondue.

Une fois le profil d'autocorrélation de l'impulsion obtenu, la durée de l'impulsion est estimée, en divisant par un facteur constant. L'hypothèse sous-jacente à l'utilisation de la méthode d'autocorrélation est de supposer que l'on a un type de profil en particulier. La valeur de ce facteur change avec le type de profil que l'on suppose. Pour un profil Gaussien, le facteur sera de $\sqrt{2}$. Pour trouver la position où la durée de l'impulsion est minimale, le paramètre variable est toujours la dispersion introduite par les prismes en silice, donc l'épaisseur de silice traversée. La durée minimale de l'impulsion se trouve là où l'autocorrélation est de durée minimum aussi.

Une image typique d'autocorrélation est donnée en Figure 2.7. Le profil d'autocorrélation est obtenu en intégrant spatialement l'image vue par la caméra. La dimension spatiale correspond à la dimension des ordonnées, et l'abscisse correspond à l'échelle de

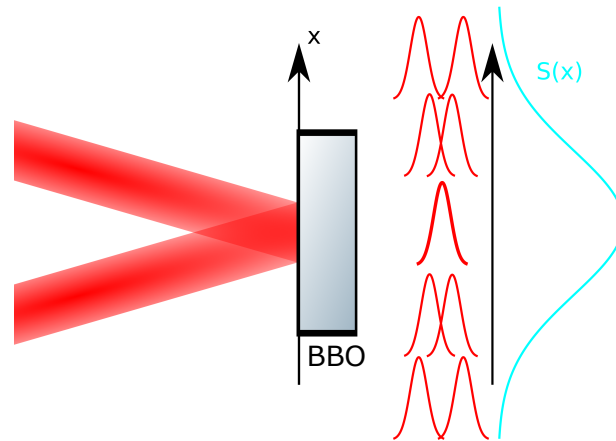


FIGURE 2.6 – Évolution du signal d'autocorrélation au niveau du cristal doubleur. Le délai entre les deux répliques créées par les bi-miroirs plans est inscrit sur la dimension transverse du cristal de BBO. Plus on s'écarte du centre du recouvrement, plus le délai est grand.

temps. La calibration de cette échelle de temps est faite en observant les interférences IR/IR sur la caméra, en faisant correspondre un nombre de franges à un nombre de pixels.

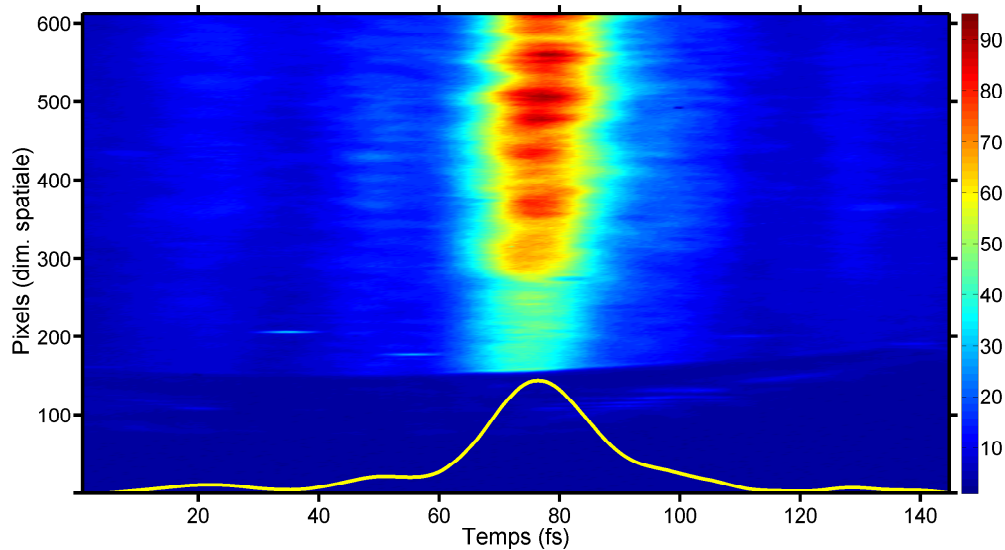


FIGURE 2.7 – Exemple d'image d'autocorrélation sur le cristal de BBO. L'image est à deux dimensions, et le profil d'autocorrélation est obtenu par intégration sur la dimension spatiale. Le profil d'autocorrélation est dessiné en jaune. La dimension temporelle est calibrée à 0.68 fs par pixels. Sur le bas de l'image, l'absence de signal correspond au bord du cristal doubleur.

Ici, la calibration correspond à 0.68 fs par pixel pour la dimension temporelle sur l'image en Figure 2.7. L'angle entre les bi-miroirs est le paramètre de réglage pour la résolution temporelle de l'autocorrélateur. Dans notre cas, il y a un compromis à trouver. La plage de durées τ_{IR} se situe entre 7 et 30 fs en ordre de grandeur. Il faut donc un angle assez grand pour avoir une bonne résolution temporelle pour caractériser les impulsions les plus courtes ($\tau_{IR} = 7$ fs), mais aussi un angle assez petit pour avoir

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

l'entièreté de l'autocorrélation sur le BBO lorsque les impulsions sont plus longues ($\tau_{IR} = 30$ fs).

La largeur à mi-hauteur du profil d'autocorrélation (dessiné en jaune sur la Figure 2.7) donne une estimation de la durée de l'impulsion fondamentale, ici $\tau_{IR} \approx 20.7$ fs.

Dans la Section 2.2.2, le rôle des miroirs chirpés a été évoqué. Pour pouvoir combiner la porte de polarisation et la postcompression, il est nécessaire d'avoir deux séries de miroirs chirpés. Une série pour compenser les effets de phase de la postcompression, et une série de miroirs pour précompenser l'ajout d'éléments optiques servant à la porte de polarisation. Le nombre de miroirs chirpés à ajouter pour la précompensation reste à déterminer. Plus ce nombre est élevé, plus la précompensation est grande, mais plus le profil temporel de l'impulsion est affecté en retour, en dépit de la qualité des miroirs. Vérifier que l'on peut toujours avoir des impulsions de quelques cycles optiques avec un nombre de miroirs chirpés croissant est donc important.

Dans cette série de mesures, l'idée est de vérifier que les méthodes Dscan et autocorrélation donnent des durées τ_{IR} similaires, et que ces durées restent proches de 3 cycles optiques. Les miroirs chirpés installés fonctionnent par paire. Les mesures comparées sont donc effectuées avec respectivement 1 paire, 2 paires puis 3 paires de miroirs chirpés de précompensation. Cette précompensation est utilisée dans le cadre de futurs ajouts d'optiques, notamment pour les Chapitre 3 et Chapitre 4. Pour chaque situation, le spectre IR en sortie de capillaire est aussi mesuré, permettant de comparer à la durée Fourier limitée. Les impulsions en entrée de capillaire ont une durée de $\tau_{IR} = 30$ fs. La pression de néon dans le capillaire est de $P_{Ne} = 1400$ mbar. Les miroirs chirpés sont ajoutés deux à deux, avec un angle d'incidence de 13° pour chaque miroir. Les traces Dscan obtenues pour les trois situations sont données en Figure 2.8, ainsi que les profils reconstruits à partir de ces traces. En comparaison, l'évolution de la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation est donnée en Figure 2.9.

Les durées à comparer sont la durée minimum obtenue pour l'autocorrélation, divisée par un facteur $\sqrt{2}$, et la largeur à mi-hauteur du profil temporel reconstruit pour le Dscan. L'incertitude calculée pour l'autocorrélation prend en compte une erreur de 2 pixels sur l'estimation de la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation, erreur transformée en fs par la calibration, ainsi qu'une erreur de 5 % sur la calibration temporelle. Sur la Figure 2.8, la trace Dscan évolue nettement avec le nombre de miroirs chirpés. La tâche centrale est de plus en plus penchée en fonction de la dispersion, avec une compression optimale légèrement différente pour les longueurs d'onde du spectre doublé. La trace doit être verticale lorsque la compression optimale est la même pour toutes les longueurs d'onde. La forme de la trace laisse penser que l'ajout d'une paire de miroirs chirpés ajoute de la dispersion d'ordre 3[75], qu'il est difficile de bien compenser en même temps que la dispersion d'ordre 2. Avec l'épaisseur de silice variable, la compensation de la dispersion se fait majoritairement sur l'ordre 2.

L'évolution de la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation est aussi différente avec le nombre de paires de miroirs chirpés. D'une part, la durée minimum augmente avec le nombre de paires de miroirs chirpés, ce qui est cohérent avec l'ordre 3 cumulé non compensé. De plus, il y a aussi une asymétrie sur une des branches des courbes en Figure 2.9. L'évolution est la même pour les épaisseurs < 9.7 mm, et différente pour les épaisseurs > 9.7 mm. Cette asymétrie est probablement due à l'accumulation de l'ordre 3 avec l'ajout de silice et à la modification du profil temporel avec le nombre de paires de miroirs chirpés ajoutées.

Les durées τ_{IR} retrouvées par les différentes méthodes sont résumées dans le Ta-

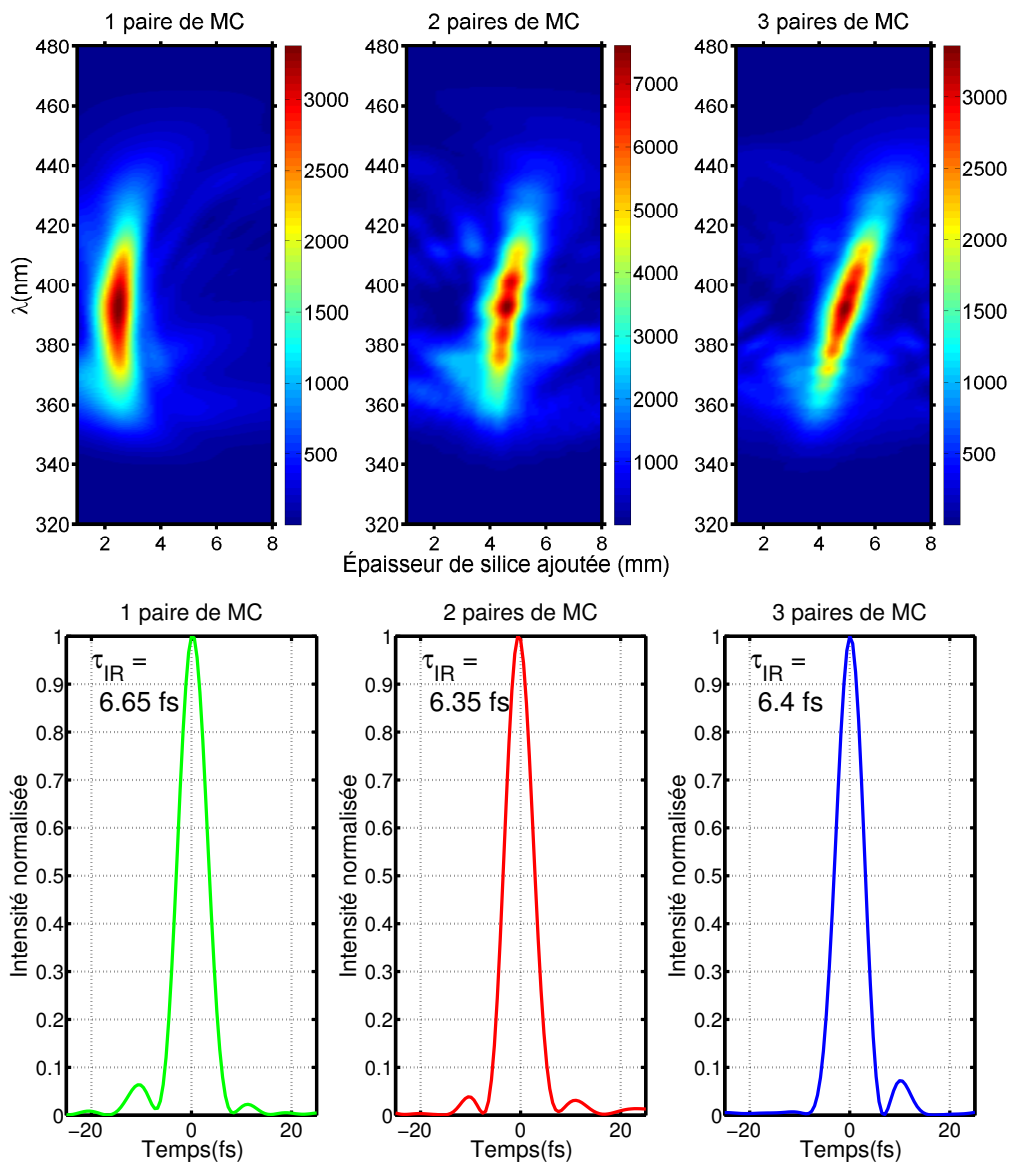


FIGURE 2.8 – Traces Dscan obtenues respectivement pour 1 paire (vert), 2 paires (rouge) et 3 paires (bleu) de miroirs chirpés supplémentaires. Les profils reconstruits à partir de ces traces sont aussi indiqués. Les durées respectives sont de $\tau_{IR} = 6.6 \pm 0.8$ fs, $\tau_{IR} = 6.4 \pm 0.8$ fs $\tau_{IR} = 6.3 \pm 0.8$ fs.

bleau 2.1. Les durées retrouvées correspondent bien à des durées de quelques cycles optiques (≈ 7 fs). Les durées estimées par l'autocorrélation restent compatibles avec la durée Fourier limitée du spectre, aux incertitudes près. Les durées des Dscans sont cohérentes avec celles trouvées par la transformée de Fourier du spectre ainsi qu'avec l'autocorrélation, mais restent quand même en dessous de la durée Fourier limitée. L'estimation de la durée par le Dscan, hors incertitudes, sous-estime donc légèrement la durée des impulsions mesurées. L'ajout de miroirs chirpés supplémentaires ne modifie pas drastiquement les durées τ_{IR} minimales retrouvées, mais le profil temporel est affecté par l'ordre 3 accumulé par l'ajout des paires. La précompensation d'ajouts d'optiques (lames d'onde pour la polarisation) sera donc possible, et on pourra toujours retrouver des impulsions courtes de quelques cycles optiques.

La durée des impulsions est vérifiée chaque jour. La méthode Dscan permet de

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

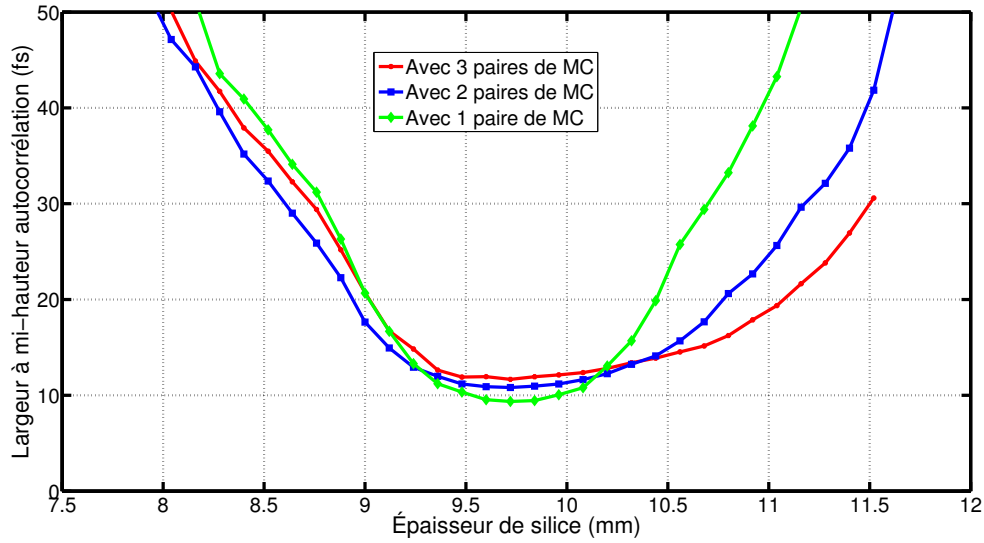


FIGURE 2.9 – Évolution de la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation respectivement pour une situation avec 1 paire (vert), 2 paires (bleu) et 3 paires (rouge) de miroirs chirpés supplémentaires. Les courbes ont été décalées pour avoir le minimum de durée pour la même épaisseur.

	2 MC	4 MC	6 MC
Durée Fourier Limitée (fs)	7.2	7.2	7.5
Durée estimée Autocorrélation (fs)	6.6 ± 1	7.6 ± 0.96	8.3 ± 1
Durée retrouvée Dscan (fs)	6.7 ± 0.8	6.4 ± 0.8	6.4 ± 0.8

TABLE 2.1 – Comparaison des différentes durées mesurées par autocorrélation et Dscan avec la durée Fourier limitée du spectre en sortie de capillaire. MC indique le nombre de miroirs chirpés ajoutés.

retrouver la phase et l'amplitude, donc le profil temporel de l'impulsion fondamentale, mais elle nécessite un réajustement d'installation qui n'est pas fait tous les jours. Pour l'autocorrélateur simple, la mesure ne permet que d'estimer la durée de cette impulsion, en divisant par un facteur arbitraire. Afin de pouvoir retrouver le profil temporel via autocorrélation, le comportement de l'autocorrélation en fonction de la dispersion peut être observé. L'aspect dispersion devient alors un paramètre supplémentaire pour avoir des informations redondantes sur le profil temporel de l'impulsion fondamentale, et non plus seulement un outil pour vérifier que la durée obtenue est la plus courte possible. Cela permet d'obtenir $I(t)$.

Dans cette reconstruction, on repart de l'évolution de l'autocorrélation en fonction de la dispersion. Les autocorrélations sont concaténées sous forme de carte. Ces cartes sont la base de reconstruction, à la manière d'une carte Dscan, mais ici, au lieu du spectre doublé, on a l'autocorrélation.

Le point de départ de la reconstruction se situe sur la dérivée seconde de la phase spectrale de l'impulsion. L'algorithme cherche la dérivée seconde de la phase spectrale, puis par double intégration, la phase spectrale, qui donnera la carte d'autocorrélation la plus proche de la carte mesurée. La reconstruction suppose que le spectre de l'impulsion fondamentale est connu et mesuré, et qu'il suffit de connaître la phase spectrale et

l'amplitude spectrale pour l'impulsion pour avoir une reconstruction complète.

Soit le spectre de l'impulsion fondamental $S(\omega)$ et sa phase à retrouver $\phi_{target}(\omega)$. Pour chaque épaisseur de silice ajoutée, la phase devient :

$$\phi_{disp}(e_{SiO_2}, \omega) = \phi_{target} - \frac{\omega}{c} n_{SiO_2} e_{SiO_2} \quad (2.5)$$

avec n_{SiO_2} l'indice de la silice et e_{SiO_2} l'épaisseur de silice ajoutée.

À partir de cette nouvelle phase, et du spectre $S(\omega)$, le champ total, et donc le profil d'intensité est calculé, avec :

$$E_{tot}(t) = \sum_{\omega} \sqrt{S(\omega)} \exp(i(\omega t + \phi_{disp}(\omega))) d\omega \quad (2.6)$$

avec $I(t) = E_{tot} E_{tot}^*$ le profil temporel de l'impulsion après ajout de dispersion.

À partir du profil d'impulsion, on peut calculer l'autocorrélation, et ce pour chaque épaisseur de silice ajoutée. Pour symboliser des dispersions positives et négatives, on simule des épaisseurs positives et négatives. Les autocorrélations calculées sont concaténées sous forme de cartes, qui correspondent à la mesure que l'on effectue, c'est à dire l'autocorrélation de l'impulsion en fonction d'une épaisseur de silice ajoutée.

La reconstruction se base ensuite sur un algorithme d'optimisation, de type Levenberg-Marquardt [95], où les paramètres sont des points d'échantillonnage de la dérivée seconde de $\frac{\partial^2 \phi_{search}}{\partial \omega^2}$. Les étapes de minimisation sont les suivantes, qui s'effectuent sous forme de boucle afin de minimiser l'erreur :

- 1) Mise en place des paramètres, points d'échantillonnage de la dérivée seconde de phase $\frac{\partial^2 \phi_{search}}{\partial \omega^2}$
- 2) Double intégration de la dérivée seconde de phase pour obtenir la phase ϕ_{search} .
- 3) Ajout de la phase correspondant à la dispersion à ϕ_{search} pour obtenir la phase totale.
- 4) Calcul du profil temporel de l'impulsion à partir de la phase et du spectre mesuré.
- 5) Calcul de l'autocorrélation à partir du profil temporel
- 6) Les étapes 2, 3, 4 et 5 sont répétées pour toutes les épaisseurs pour calculer la carte d'autocorrélation, dont un exemple est montré en Figure 2.10, où l'on voit une comparaison de la carte d'autocorrélation obtenue avec ces paramètres, ainsi qu'un calcul de l'erreur.
- 7) Retour à 1) en modifiant les paramètres de départ, donc la forme de $\frac{\partial^2 \phi_{search}}{\partial \omega^2}$
- Étape finale : Sortie de la boucle lorsque l'erreur trouvée convient aux critères de convergence. Calcul du profil temporel optimal à partir des paramètres optimaux. Le calcul se fait de la même manière qu'aux étapes 2), 3) et 4).

Un exemple de reconstruction sur un profil simulé à deux impulsions avec des amplitudes différentes est donné en Figure 2.10. La carte du dessus correspond à la carte d'autocorrélation simulée à retrouver. La carte du milieu correspond à la carte retrouvée par l'algorithme et celle du dessous à l'erreur point à point entre la carte simulée et la carte retrouvée. L'accord entre les deux cartes est très bon, visuellement et quantitativement. L'erreur maximale point à point est de 6×10^{-3} .

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

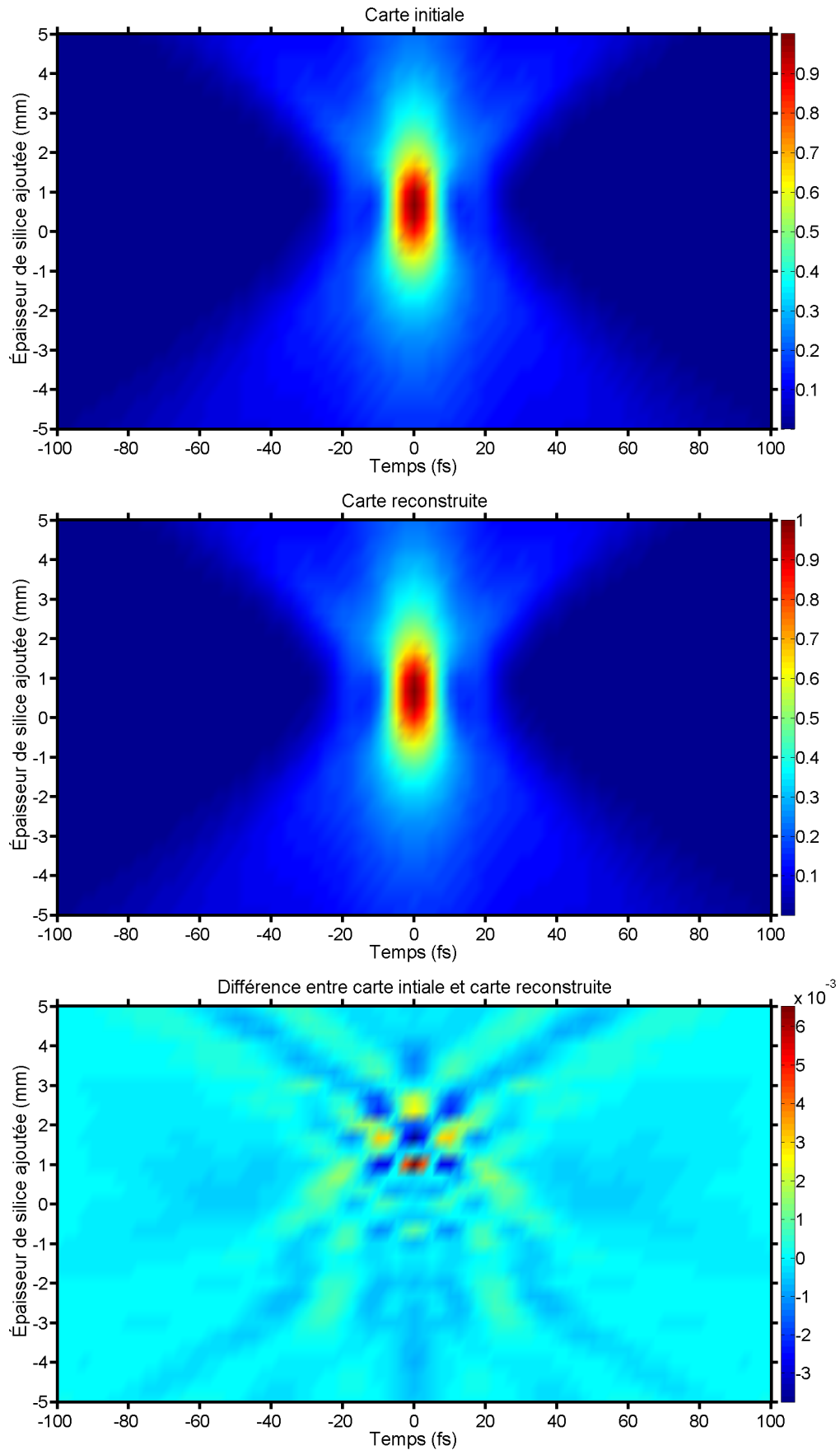


FIGURE 2.10 – Cartes d'autocorrélation pour un profil à deux impulsions comme présenté en Figure 2.11. Les cartes correspondent respectivement à la carte simulée de départ, la carte reconstruite et la différence entre les deux cartes d'autocorrélation. L'erreur entre les deux est de moins d'1 % au maximum. L'accord pour la reconstruction est très bon.

Cette méthode de reconstruction est testée pour différents types de profils temporels : Gaussien, double impulsion avec des amplitudes différentes, ainsi que pour un profil de type "flat top". Les résultats des reconstructions sont présentés sous forme de comparaison entre profils temporels sur la Figure 2.11. L'accord est encore une fois très bon entre le profil retrouvé et le profil simulé. Les profils simulés sont dessinés en trait plein, et les profils retrouvés sont dessinés avec des symboles losanges. Les erreurs RMSE pour chaque reconstruction sont consignées dans le Tableau 2.2. L'erreur est comprise entre 1.5% et 3%, ce qui est très bon.

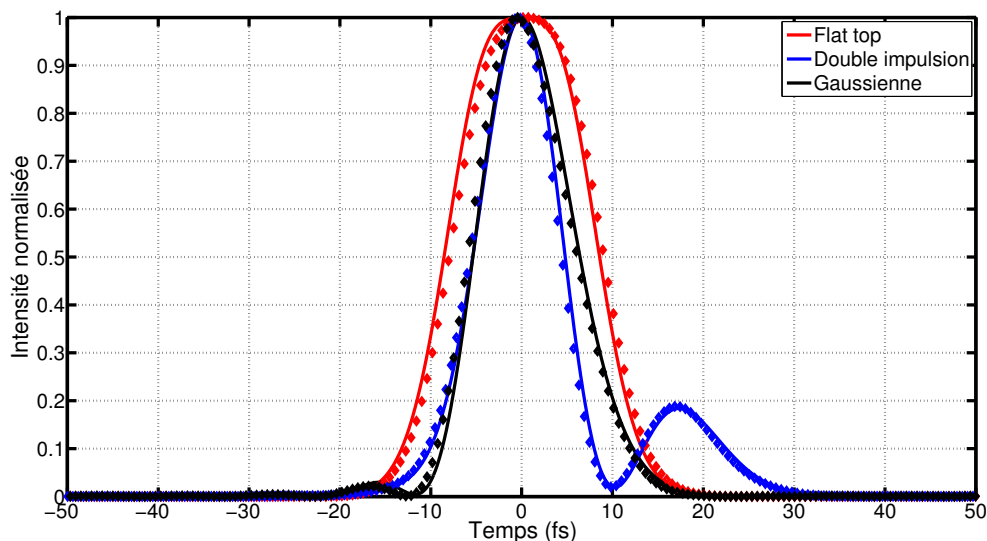


FIGURE 2.11 – Profils simulés initiaux (traits pleins) et profils reconstruits à partir de l'autocorrélation multidispersives (losanges). Les profils considérés sont : Gaussien (noir), flat top (rouge), double impulsion avec amplitudes différentes (bleu). L'accord est bon, avec une erreur de 1 à 3 % pour chaque reconstruction.

Profil	Gaussien	Flat top	Double impulsion asymétrique
Erreur (RMSE)	2.2 %	2.6%	1.7 %

TABLE 2.2 – Erreurs RMSE calculées pour les reconstructions des profils temporels simulés montrés en Figure 2.11.

En utilisant les informations de l'évolution de l'autocorrélation avec la dispersion finement contrôlée, le profil temporel de l'impulsion fondamentale est retrouvé, avec un accord très bon sur les profils simulés montrés en Figure 2.11. La reconstruction permet d'obtenir l'amplitude et la phase de l'impulsion. Afin d'avoir une comparaison avec d'autres méthodes établies, l'algorithme est appliqué sur les données expérimentales avec le nombre de miroirs chirpés croissant, exposées dans cette Section 2.2.3.

Les reconstructions des profils temporels d'impulsions sont données en Figure 2.12. Le profil obtenu par transformée de Fourier à partir du spectre est également dessiné en comparaison. Les durées obtenues à mi-hauteur pour les profils reconstruits sont consignées dans le Tableau 2.3.

En comparant les profils retrouvés via Dscan et les profils retrouvés via l'autocorrélation multidispersives, on retrouve un accord assez bon, que ce soit dans la forme ou dans la durée pour le pic principal. Les différences se trouvent surtout dans les

2.2. Élargissement spectral et durée minimale compatible : Postcompression dans une fibre creuse

post et pré-impulsions dans le profil d'intensité, qui diffèrent d'une reconstruction à l'autre. L'évolution avec une durée minimale qui augmente légèrement avec l'accumulation de l'ordre 3 non compensé avec l'ajout de miroirs chirpés est aussi retrouvée. Cette technique de reconstruction permet donc de retrouver un profil d'intensité temporel à partir de l'évolution de l'autocorrélation sous forme de carte. Elle reste néanmoins à perfectionner, notamment pour retrouver les structures plus fines hors du pic principal comme les post et pré impulsions. L'erreur moyenne de reconstruction sur les données expérimentales entre les deux cartes d'autocorrélation est de 5 à 10 %.

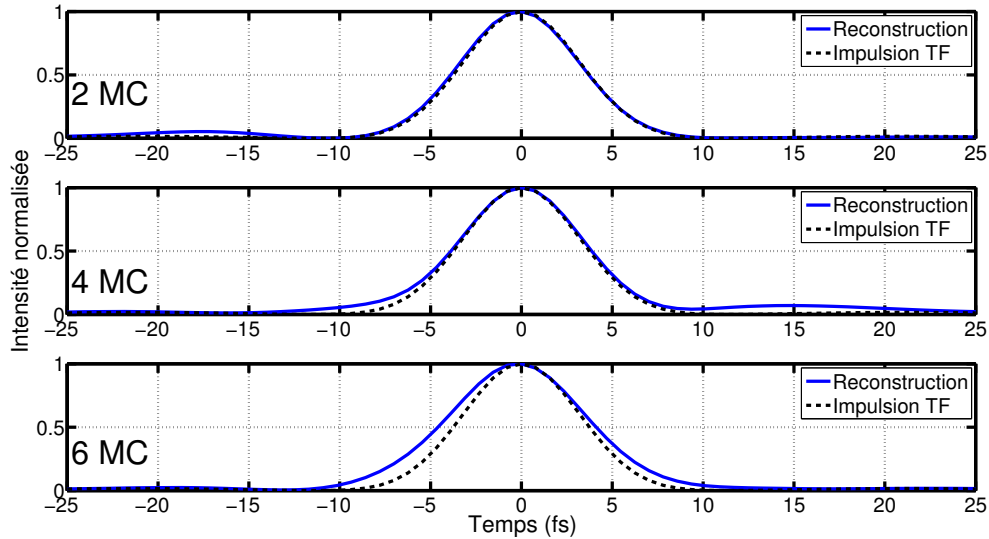


FIGURE 2.12 – Reconstructions des profils temporels à partir des cartes d'autocorrélations expérimentales. La figure présente le profil reconstruit comparé au profil Fourier Limité obtenu à partir du spectre fondamental pour les configurations : avec 2 miroirs chirpés, 4 miroirs chirpés et 6 miroirs chirpés. Les durées associées sont données dans le Tableau 2.3. Les durées retrouvées sont en bon accord avec les mesures précédentes.

	2 MC	4 MC	6 MC
Durée Fourier Limitée (fs)	7.13	7.19	7.50
Durée estimée Autocorrélation (FWHM)(fs)	6.61 ± 0.96	7.64 ± 0.96	8.25 ± 0.96
Durée retrouvée Dscan (fs)	6.65 ± 0.8	6.4 ± 0.8	6.35 ± 0.8
Durée retrouvée Autoco Dscan (fs)	7.6 ± 1.1	7.8 ± 1.1	8.6 ± 1.1

TABLE 2.3 – Durées estimées via la reconstruction Dscan, la reconstruction par autocorrélation multidispersive et à partir du spectre de l'impulsion fondamentale.

En conclusion plus globale sur cette Section 2.2.3, les méthodes de caractérisation implémentées expérimentalement et les différentes reconstructions de profils temporels convergent vers des solutions et des durées similaires. Le fait d'obtenir une impulsion courte après postcompression et avec précompensation d'ajout d'optiques en transmission avec les miroirs chirpés est démontré dans cette partie. Les durées obtenues par postcompression s'étendent de la trentaine de femtosecondes (sans gaz dans le capillaire, pas d'effet non linéaire) à des impulsions de quelques cycles optiques (7-8 fs avec injection de néon dans le capillaire).

2.3 Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

2.3.1 Dispersion scan pour harmonique d'ordres élevés : accordabilité des fréquences XUV

2.3.1.1 Premier exemple de Dscan harmonique

Dans la Section 2.2.3, la méthode de dispersion scan est montrée comme outil de caractérisation des impulsions femtosecondes. L'observable de la méthode est la génération de seconde harmonique via un cristal doubleur. Ici, des harmoniques d'ordres élevés sont générées avec ces impulsions et le focus est fait sur l'évolution du spectre XUV en fonction de la dispersion de l'impulsion fondamentale.

Le fait que la génération d'harmoniques d'ordres élevés est un processus non linéaire laisse penser que l'optimum de signal, de flux XUV, sera atteint pour la durée la plus courte de l'impulsion fondamentale. Néanmoins, les propriétés spectrales peuvent être très différentes en faisant évoluer la dispersion. En effet, avoir une phase linéaire ou une phase quadratique pour l'impulsion fondamentale modifie la fréquence instantanée pendant le profil d'intensité de l'impulsion. En modifiant la fréquence instantanée, la fréquence des harmoniques doit aussi être modifiée. Ce phénomène d'évolution du spectre harmonique avec la dispersion a été observé expérimentalement [96, 97, 98], avec des évolutions très différentes pour la largeur spectrale des harmoniques ainsi que l'énergie centrale du peigne harmonique. Dans ces références, la dispersion de l'impulsion fondamentale est modulée via l'espacement entre les réseaux de l'amplificateur CPA du laser, avec des impulsions de durées de quelques dizaines de femtosecondes. Dans cette partie, on se focalise sur la reproduction de cette expérience, mais avec des impulsions de quelques cycles optiques, en modulant la dispersion à l'aide des prismes en silice présentés en Section 2.2.3.

Pour l'expérience, le montage expérimental utilisé est présenté en Figure 3.7. Il n'y a pas de lame d'onde placées avant la chambre de génération. La pression dans le capillaire est de 1200 mbar de néon pour avoir un élargissement spectral suffisant pour obtenir des impulsions de quelques cycles optiques. Le spectre XUV est observé via le spectromètre champ plan. La puissance mesurée en entrée de chambre harmonique est de 1 W. La durée des impulsions, mesurées à une position équivalente à la cellule de gaz, est de $\tau_{IR} = 8.2$ fs au minimum (pour $e_{SiO_2} = 6.9$ mm). Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec une pression de cellule de 28 mbar. La focale du miroir est de $f = 60$ cm. L'évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée est donnée en Figure 2.13. L'évolution du spectre est aussi illustrée en Figure 2.14, avec la superposition de différents spectres harmoniques pour cinq épaisseurs différentes. Sur ces deux figures, on retrouve une forte évolution de l'énergie centrale des différentes harmoniques. Le peigne harmonique s'accorde de manière significative en changeant la dispersion de l'impulsion fondamentale. Pour les harmoniques les plus hautes, comme H23, H25 et H27, l'accordabilité se fait d'une harmonique à l'autre, soit environ 3 eV, comme le montre l'évolution en Figure 2.14.

La Figure 2.14 montre que les propriétés spectrales des harmoniques, hors fréquence centrale, sont aussi affectées par la dispersion de l'impulsion fondamentale. La largeur spectrale des harmoniques est plus grande pour le spectre à $e_{SiO_2} = 6.12$ mm qu'à $e_{SiO_2} = 7.8$ mm. Pour le spectre à $e_{SiO_2} = 6.12$ mm, les structures harmoniques du peigne disparaissent quasiment pour les harmoniques les plus élevées.

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

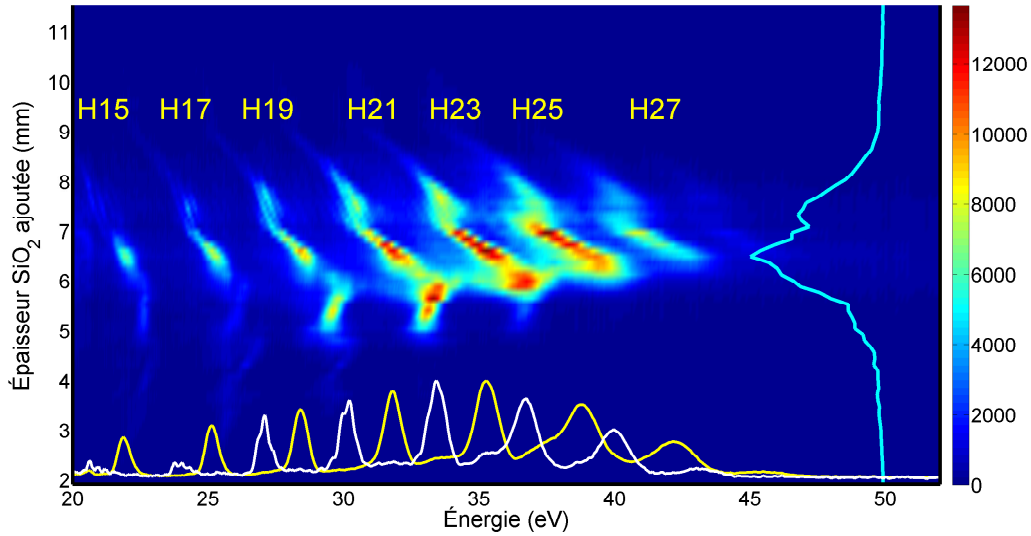


FIGURE 2.13 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur ajoutée de silice (en mm). L'épaisseur de silice correspond au contrôle la dispersion de l'impulsion fondamentale. Le spectre montré se limite aux harmoniques H15 à H27. Deux spectres harmoniques obtenus pour $e_{SiO_2} = 6.6$ mm et $e_{SiO_2} = 7.8$ mm sont tracés respectivement en jaune et en blanc. Le signal intégré spectralement est dessiné en cyan à la verticale. La durée minimale est obtenue pour $e_{SiO_2} = 6.9$ mm.

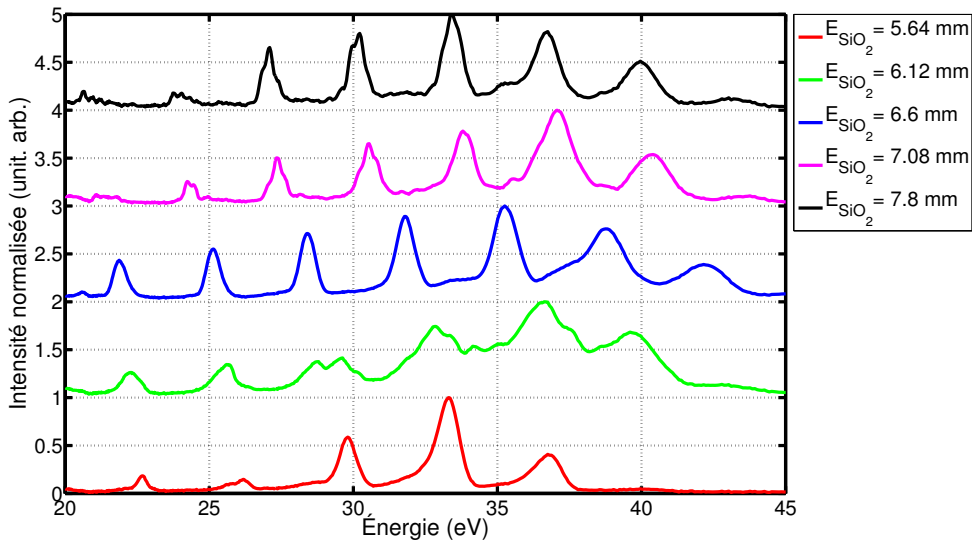


FIGURE 2.14 – Superposition de spectres harmoniques pour 5 épaisseurs de SiO_2 différentes : 5.6 mm (rouge), 6.1 mm (vert), 6.6 mm (bleu), 7.1 mm (magenta) et 7.8 mm (noir).

Également, l'espacement entre deux harmoniques consécutives change aussi avec la dispersion. En comparant les spectres à respectivement $e_{SiO_2} = 5.64$ mm, $e_{SiO_2} = 6.6$ mm et $e_{SiO_2} = 7.8$ mm, l'espacement entre chaque harmonique varie avec l'augmentation de l'épaisseur de SiO_2 . Ces deux évolutions semblent être asymétriques par rapport au signe de la dispersion par rapport à la dispersion optimale, pour laquelle on obtient la durée la plus courte au niveau de la caractérisation. L'épaisseur pour laquelle la durée

la plus courte est obtenue est de $e_{SiO_2} = 6.9$ mm, avec $\tau_{IR,min} = 8.2$ fs. L'écart entre deux harmoniques consécutives pour les spectres de la Figure 2.14 est consigné dans le Tableau 2.4.

e_{SiO_2} (mm)	5.6	6.1	6.6	7.1	7.8
Écart moyen (eV)	3.53	3.51	3.42	3.28	3.22
Longueur d'onde centrale (nm)	703	707	726	756	770
Décalage par rapport à 800 nm (nm)	-97	-93	-74	-44	-30

TABLE 2.4 – Évolution de l'écart en énergie entre deux harmoniques consécutives pour les spectres de la Figure 2.14. L'écart moyen pour chaque spectre est transformé en longueur d'onde centrale du spectre, puis en décalage par rapport à 800 nm.

Le Tableau 2.4 montre une évolution nette de l'écart d'énergie entre deux harmoniques consécutives en fonction de l'épaisseur de SiO_2 . Ce décalage diminue lorsque l'épaisseur augmente. Le décalage en longueur d'onde correspondant à cette évolution montre que l'on a toujours une longueur d'onde centrale apparente décalée vers le bleu par rapport à 800 nm, ce qui est un effet connu lors d'élargissement spectral par postcompression [85, 86]. Pour le spectre élargi en sortie de capillaire, présenté en Figure 2.15, la longueur d'onde moyenne trouvée est de $\lambda_{moy} = 752$ nm. Cette longueur d'onde moyenne est calculée avec pondération par l'intensité spectrale. Cela correspond à une longueur d'onde proche du spectre à $e_{SiO_2} = 7.1$ mm. L'épaisseur optimale pour avoir la durée minimum était $e_{SiO_2} = 6.9$ mm. L'accord entre les deux épaisseurs est donc correct.

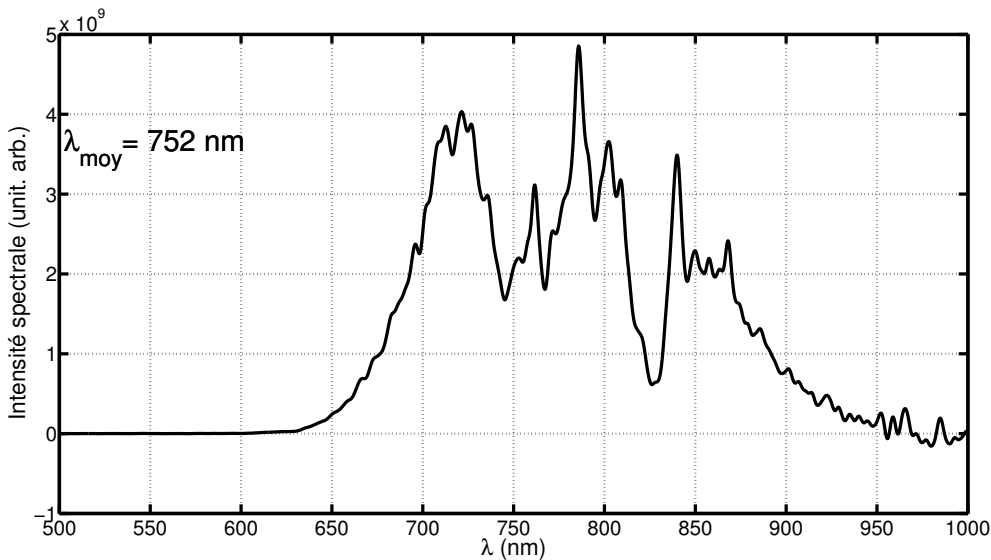


FIGURE 2.15 – Spectre infrarouge de l'impulsion fondamentale en sortie de capillaire. La longueur d'onde moyenne est indiquée sur la figure, avec $\lambda_{moy} = 752$ nm. Le spectre a été lissé avec un lissage Gaussien sur 4 points.

Pour l'évolution de la largeur à mi-hauteur des harmoniques ainsi que la fréquence centrale, les valeurs sont retranscrites dans la Figure 2.16. Une accordabilité d'environ 3 eV est montrée pour les harmoniques H21, H23 et H25, avec un sens d'évolution vers des plus basses fréquences, donc des plus basses énergies pour une dispersion croissante.

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

La largeur spectrale des harmoniques baisse en globalité d'un facteur 1.2 à 1.5 selon l'harmonique considérée, passant de 1100 meV à 750 meV pour l'harmonique 25 par exemple.

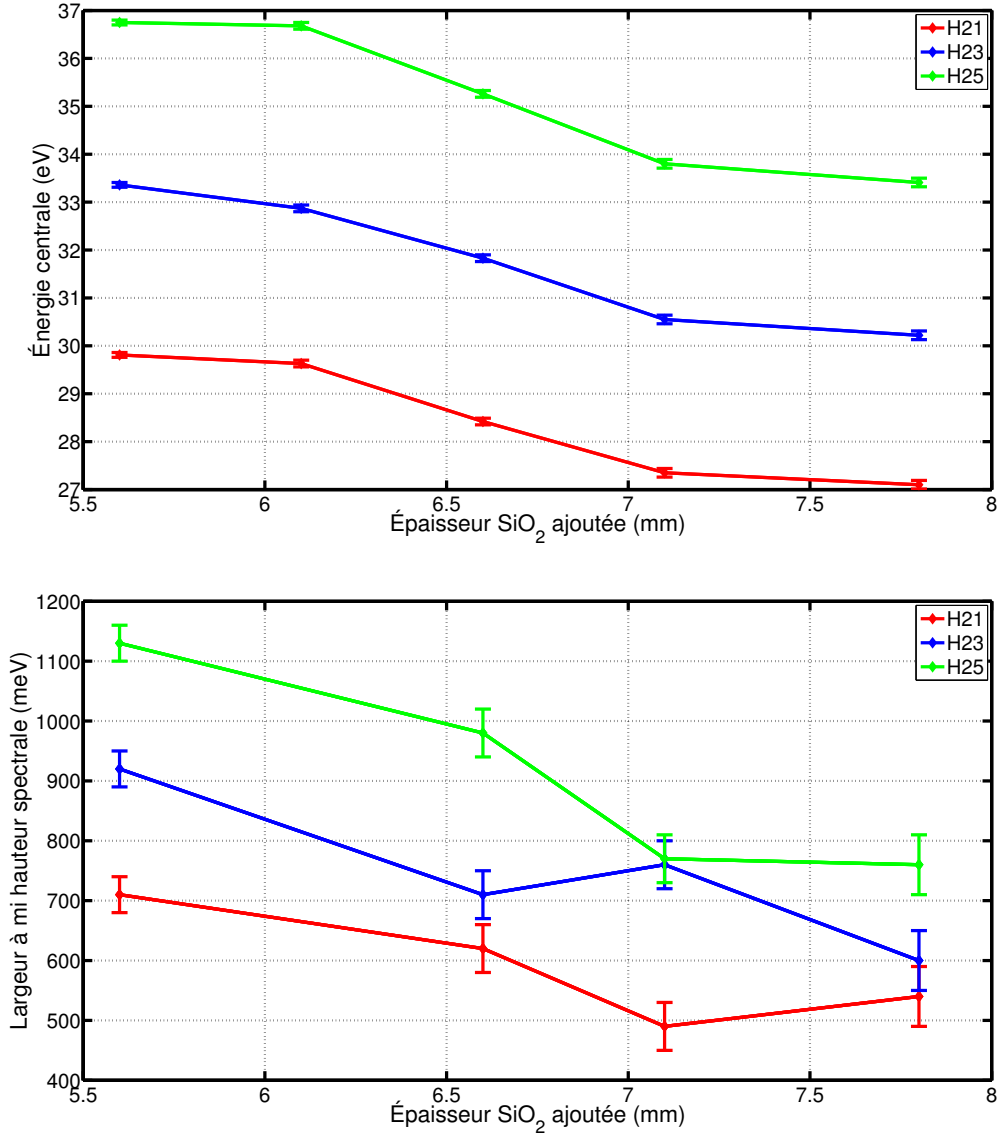


FIGURE 2.16 – Évolution de la largeur à mi-hauteur spectrale et de l'énergie centrale des harmoniques H21,H23 et H25 en fonction de l'épaisseur de SiO₂ ajoutée.

Pour faire une synthèse du comportement observé, le spectre harmonique évolue de la manière suivante :

- Pour une épaisseur de SiO₂ ajoutée plus petite que l'épaisseur e_{optimale} pour laquelle on obtient la durée minimum $\tau_{IR,\text{min}}$, les harmoniques sont décalées vers les fréquences les plus hautes, avec des harmoniques plus larges. Le signal intégré semble aussi être plus élevé. Avec $e_{\text{SiO}_2} < e_{\text{optimale}}$, le chirp de l'impulsion fondamental est négatif. L'énergie de coupure est aussi plus faible que pour le cas inverse suivant.
- Pour une épaisseur de SiO₂ ajoutée plus grande que l'épaisseur e_{optimale} , les structures harmoniques sont plus marquées, avec des harmoniques plus étroites spectralement, un signal intégré plus faible, et un écart d'énergie entre harmo-

nique plus faible. Dans ce cas, le chirp de l'impulsion fondamentale est positif.

Le pic de signal intégré est obtenu pour $e_{SiO_2} = 6.5$ mm. En comparant l'évolution du signal intégré de part et d'autre de cette épaisseur, et l'évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur aussi, on retombe sur les conclusions suivantes :

- Pour un chirp négatif (fréquences bleues puis rouges dans l'impulsion fondamentale), le signal chute drastiquement en augmentant le chirp, et les harmoniques deviennent larges spectralement, mais avec un signal plus faible plus rapidement.
- Pour un chirp positif, le signal chute également, mais reste plus élevé avec l'augmentation du chirp. Les harmoniques deviennent elles plus étroites spectralement.

Ces conclusions sont similaires à celles observées dans les références [96, 97, 98, 99, 100], mais avec des impulsions de quelques cycles optiques et une modulation plus faible de la dispersion de l'impulsion fondamentale. Dans ces conclusions, le chirp positif compense le chirp négatif des harmoniques [25, 101, 102], ce qui donne des harmoniques plus étroites spectralement, avec un signal intégré plus élevé. Au contraire, avec un chirp négatif, le chirp de l'impulsion fondamentale et le chirp des harmoniques s'additionne, donnant un fort décalage spectral pour l'énergie centrale des harmoniques, ainsi qu'une augmentation de la largeur spectrale des harmoniques.

2.3.1.2 Dépendance en puissance de l'harmonique Dscan : comparaison entre deux puissances

Le comportement spectral observé dans la section précédente reste néanmoins à décorréler d'effet d'automodulation de phase dans le milieu générateur, qui induirait un changement de fréquence centrale avec la propagation du faisceau fondamental dans le milieu générateur. Pour pouvoir observer si l'automodulation de phase est importante ou non, on peut observer le comportement du spectre IR en sortie de cellule en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. De plus, il y a automodulation de phase du fondamental, le comportement doit être différent en fonction de l'énergie de l'impulsion fondamentale. Pour cette série, nous avons observé le spectre fondamental IR en parallèle du spectre harmonique.

Pour faire cela, une expérience avec mesure du spectre IR est effectuée, pour deux puissances d'entrée différentes. La puissance de l'impulsion fondamentale est modulée via une fine pellicule de $10 \mu\text{m}$ d'épaisseur. En la tournant, on augmente la réflexion et baisse la transmission, ce qui baisse la puissance de l'impulsion fondamentale. Les deux puissances sont respectivement $P = 1.08$ W et $P = 0.72$ W, soit environ 30 % d'écart en intensité entre les deux expériences. La méthode reste la même, on observe le spectre harmonique en fonction de la dispersion introduite, ici en fonction d'une épaisseur de silice ajoutée.

La pression dans le capillaire est montée à 700 mbar de néon. Les impulsions ont une durée de $\tau_{IR} = 10$ fs au minimum de l'autocorrélateur. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon avec une pression de 20 mbar, avec une focale de 60 cm. Le spectre IR est mesuré au niveau de la fente d'entrée du spectromètre XUV, en remplaçant la caméra d'alignement du spectromètre XUV par une fibre reliée à un spectromètre (voir Annexe 2).

L'évolution du spectre harmonique pour ces deux puissances est donnée en Figure 2.17. Une superposition de quelques spectres harmoniques pour plusieurs épaisseurs de silice est donnée pour les deux puissances en Figure 2.18, afin d'être plus

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

quantitatif sur les observables intéressantes dans la mesure : largeur spectrale des harmoniques, évolution de l'énergie centrale des pics.

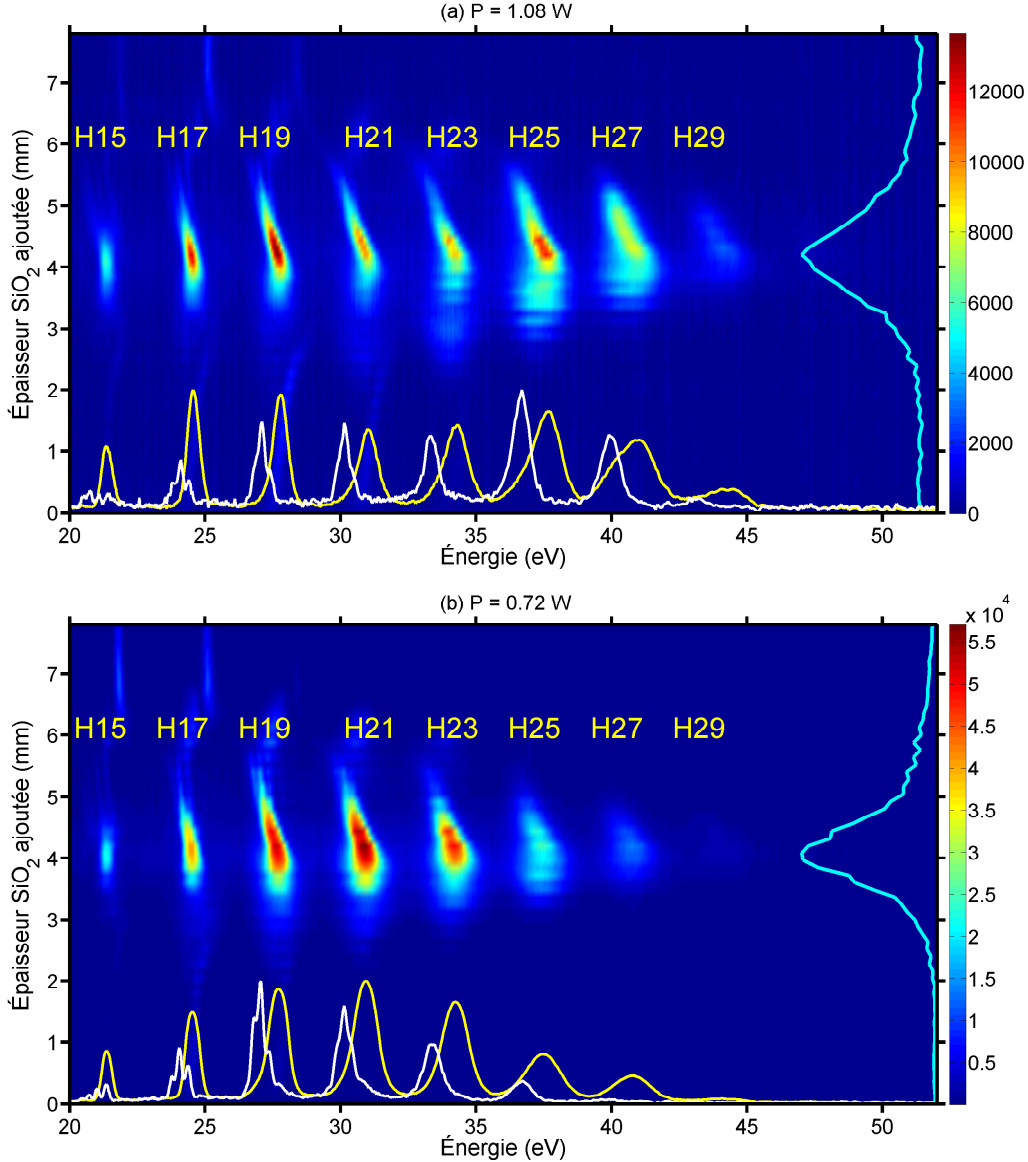


FIGURE 2.17 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée pour les deux puissances mesurées : $P = 1.08 \text{ W}$ (a) et $P = 0.72 \text{ W}$ (b) (au foyer, les intensités estimées sont respectivement $I_0 = 5.4 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$ et $I_0 = 3,6 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$). Deux spectres harmoniques sont dessinés à l'horizontale en jaune $e_{\text{SiO}_2} = 3.96 \text{ mm}$ et en blanc pour $e_{\text{SiO}_2} = 5.28 \text{ mm}$. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en cyan à la verticale. Les harmoniques sont générées dans l'argon avec des impulsions de durées $\tau_{\text{IR}} = 10 \text{ fs}$ au minimum (pour $e_{\text{SiO}_2} = 4.8 \text{ mm}$). La pression dans la cellule est de 20 mbar.

Sur la Figure 2.17, l'évolution du spectre harmonique montre une évolution de la fréquence centrale des pics harmoniques, pour les deux puissances. En diminuant la puissance, on retrouve bien une énergie de coupure plus faible pour le spectre harmonique à puissance plus faible. Les harmoniques les plus intenses pour $P = 0.72 \text{ W}$ sont les harmoniques 19 et 21. Pour $P = 1.08 \text{ W}$, les harmoniques 25, 27 et 29 sont plus visibles que pour $P = 0.72 \text{ W}$. La coupure a donc bien été déplacée. L'épaisseur pour

laquelle on a le maximum de signal intégré est $e_{SiO_2} = 4.08$ mm pour $P = 0.72$ W et $e_{SiO_2} = 4.2$ mm pour $P = 1.08$ W.

De manière quantitative, l'accordabilité obtenue dans les deux cas est tirée des spectres en Figure 2.18.

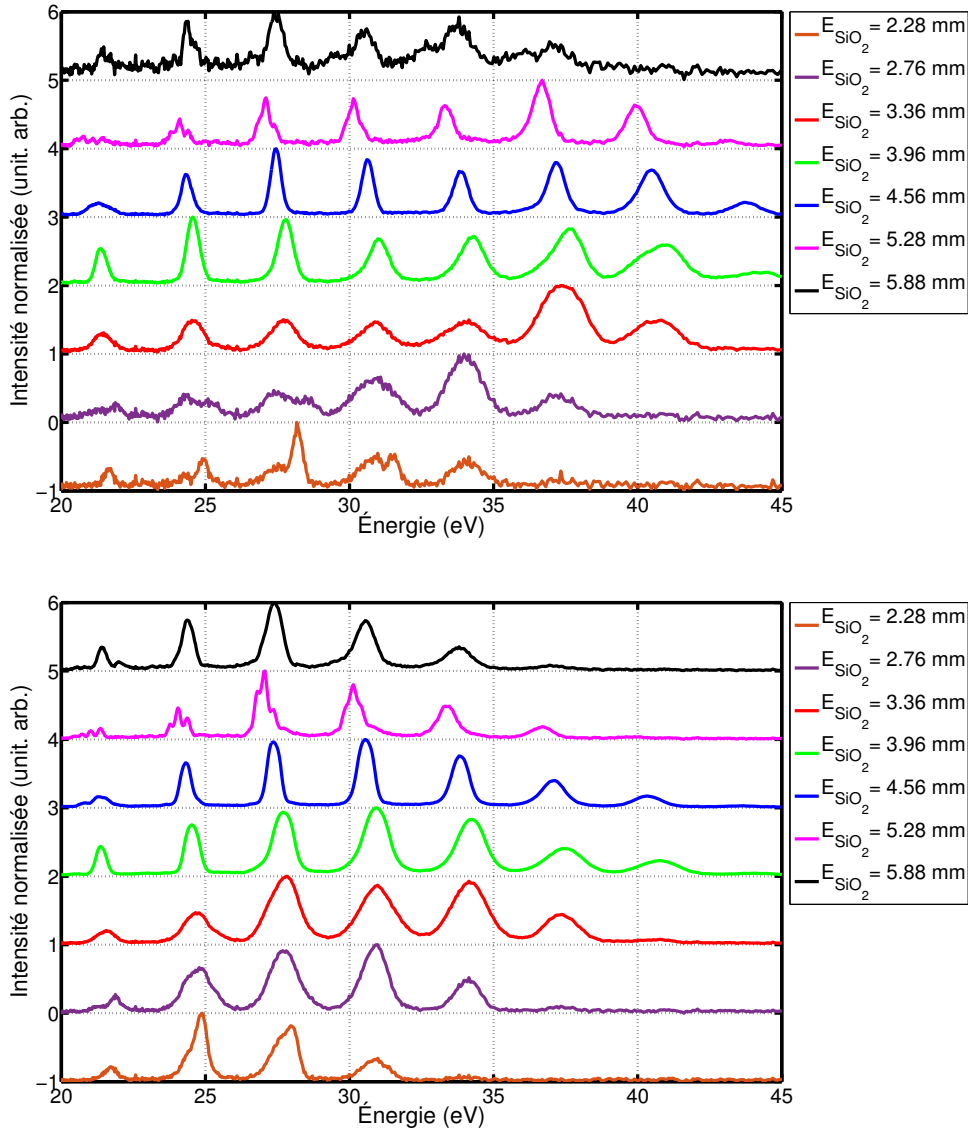


FIGURE 2.18 – Évolution du spectre harmonique pour plusieurs épaisseurs de SiO_2 ajoutées. L'accordabilité est présente au niveau des harmoniques du plateau et de la coupure. La comparaison avec le spectre IR de l'impulsion fondamentale est faite avec la Figure 2.21. La durée minimum est obtenue pour $e_{SiO_2} = 4.7$ mm.

Dans les deux cas, les pics harmoniques voient leur fréquence centrale changer avec la dispersion de l'impulsion fondamentale. En comparant l'harmonique 21 ou 23 du spectre harmonique pour les deux puissances, l'accordabilité des harmoniques semble plus faible à basse puissance qu'à haute puissance, comme le montre la Figure 2.19. À nouveau, l'accordabilité évolue aussi avec l'ordre harmonique, avec une accordabilité plus grande pour les harmoniques les plus élevés, et ce indépendamment de la puissance de l'impulsion fondamentale.

En ce qui concerne la largeur à mi-hauteur, on retrouve la transition observée pré-

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

cédemment. Les harmoniques sont plus larges spectralement lorsque l'épaisseur ajoutée est inférieure à l'épaisseur optimale (durée minimum trouvée pour $e_{SiO_2} = 4.7$ mm), mais le signal chute plus vite avec l'augmentation du chirp. Au contraire, lorsque l'épaisseur optimale est dépassée, et que le chirp de l'impulsion fondamentale devient positif, les harmoniques deviennent plus étroites spectralement, avec un signal qui décroît moins rapidement. Ce comportement est donc similaire à ce que l'on a observé dans la première mesure en Figure 2.13.

Pour aller plus loin, l'énergie des pics harmoniques pour H21, H23 et H25 est repérée pour les spectres montrés en Figure 2.18, ainsi que la largeur spectrale à mi-hauteur. Les situations avec les deux puissances sont comparées, pour voir si l'accordabilité obtenue pour ces harmoniques ou la largeur spectrale à mi-hauteur est modifiée. La synthèse de ces valeurs est faite sous la forme de deux courbes, en Figure 2.19 et Figure 2.20.

La Figure 2.19 montre que les décalages en fréquence centrale sont sensiblement équivalents pour les harmoniques 21 et 23. Pour l'harmonique 25, le facteur entre les deux pentes d'accordabilité est d'environ 1.4, avec une plus grande accordabilité lorsque la puissance est plus haute. L'accordabilité obtenue pour H21 et H23 est de 800 meV pour les deux puissances. Pour H25, l'accordabilité obtenue à basse puissance est de 830 meV, contre 1120 meV à puissance plus haute. L'évolution diffère donc pour les harmoniques du plateau et de la coupure en modulant la puissance.

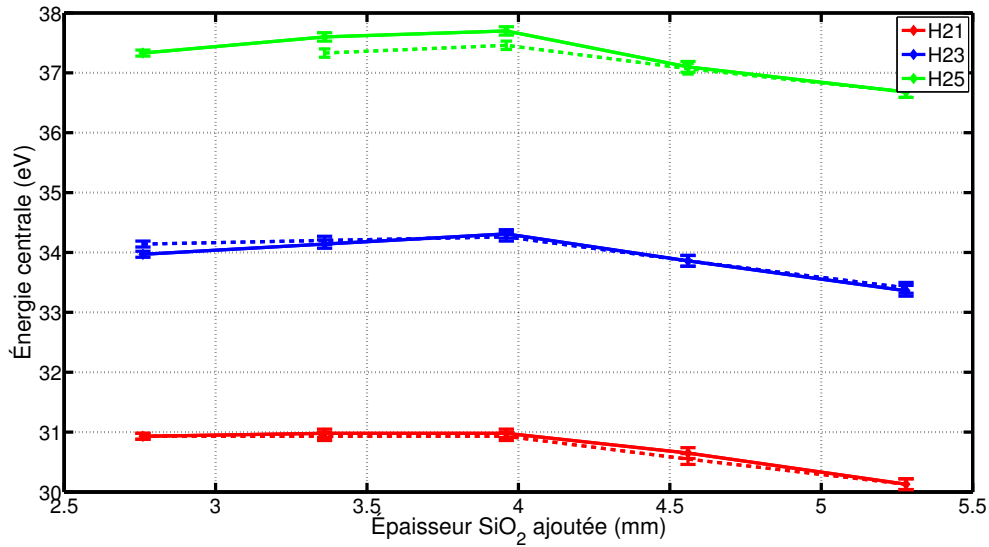


FIGURE 2.19 – Évolution de l'énergie centrale pour les harmoniques 21 (rouge), 23 (vert) et 25 (bleu) en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. La série correspondant à la puissance d'entrée $P = 1.08$ W est dessinée en trait plein, et la série correspondant à $P = 0.72$ W est dessinée en trait pointillé.

La Figure 2.20 montre que la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques évolue différemment en comparant la situation avec les deux puissances. Pour la puissance la plus basse ($P = 0.72$ W), les largeurs à mi-hauteur spectrales sont plus faibles qu'à puissance plus haute pour $e_{SiO_2} < 4.2$ mm, mais la conclusion est inverse pour $e_{SiO_2} > 4.2$ mm. Pour H25, on a au maximum une largeur spectrale à mi-hauteur de 1700 meV environ à puissance plus haute, contre 1400 meV à puissance plus basse. De plus, on observe la présence d'un maximum dans l'évolution de largeur spectrale pour H21, H23 et H25 à puissance plus basse, alors qu'il est uniquement présent pour H25 à plus haute puissance. L'épaisseur pour laquelle H25 atteint son maximum de largeur spectrale est

aussi différente entre puissance basse et puissance haute, avec 0.7 mm d'écart en SiO₂. Ne pas voir le maximum de largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques H21 et H23 dans la série à haute puissance peut signifier qu'ils apparaissent pour des épaisseurs ajoutées plus fines, donc un chirp négatif plus grand.

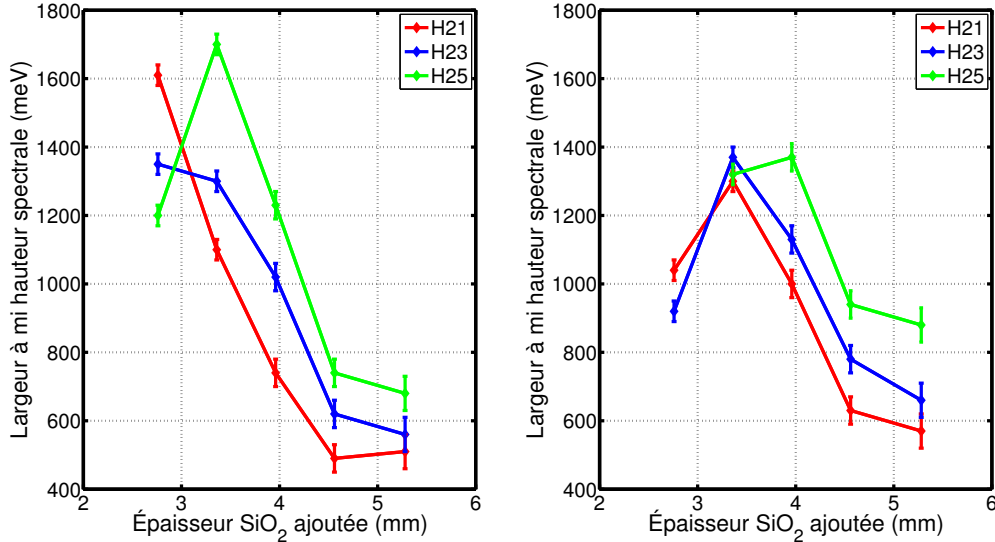


FIGURE 2.20 – Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques 21 (rouge), 23 (vert) et 25 (bleu) en fonction de l'épaisseur de SiO₂ ajoutée. La série correspondant à la puissance d'entrée $P = 1.08$ W est dessinée à gauche, et la série correspondant à $P = 0.72$ W est dessinée à droite.

Dans les paragraphes précédents, la possibilité d'avoir automodulation de phase avec la propagation de l'impulsion fondamentale dans le milieu générateur a été évoquée. Un phénomène d'automodulation de phase provoque un changement dans le spectre de l'impulsion fondamentale après propagation dans le milieu. Pour croiser avec cette hypothèse, le spectre IR a été mesuré en fonction de la dispersion après le milieu générateur. L'évolution du spectre IR est donnée en Figure 2.21.

La Figure 2.21 montre une évolution quasi nulle du spectre infrarouge. Le spectre reste le même quelle que soit l'épaisseur de SiO₂ ajoutée. Par cette mesure, le phénomène d'automodulation de phase dans le milieu générateur pour l'impulsion fondamentale peut être négligé, car l'effet n'est pas flagrant sur le spectre IR observé, alors que le changement est significatif sur le spectre XUV.

En conclusion sur ces parties, plusieurs choses ont été montrées :

- Le procédé de modification du chirp de l'impulsion fondamentale pour obtenir une accordabilité du spectre harmonique [96, 97, 98] est applicable aux impulsions de quelques cycles optiques, en modifiant finement le chirp de l'impulsion fondamentale.
- Une accordabilité de ≈ 3 eV (accordabilité d'une harmonique à une autre) a été observée dans un premier temps. Le spectre IR n'étant pas mesuré en même temps lors de l'expérience, il est difficile de déterminer si la propagation de l'impulsion fondamentale dans le milieu a eu un impact. Cette accordabilité, en dépit de la variation de largeur spectrale des harmoniques ainsi que du signal intégré, reste très intéressante. L'évolution de la largeur à mi-hauteur ainsi que de l'énergie centrale des pics harmoniques est similaire avec des résultats déjà

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

observés [96, 97, 98, 100, 103].

- En reproduisant l'expérience avec des impulsions légèrement plus longues ($\tau_{IR} = 10$ fs) avec deux puissances différentes, le comportement observé dans le premier exemple est retrouvé, avec une accordabilité plus faible. Cette accordabilité se situe entre 800 meV pour les harmoniques les plus faibles, à 1200 meV pour les harmoniques les plus hautes. Cette accordabilité reste intéressante, et l'observation du spectre IR permet de justifier que l'on peut négliger les effets de propagation de l'impulsion dans le milieu générateur.

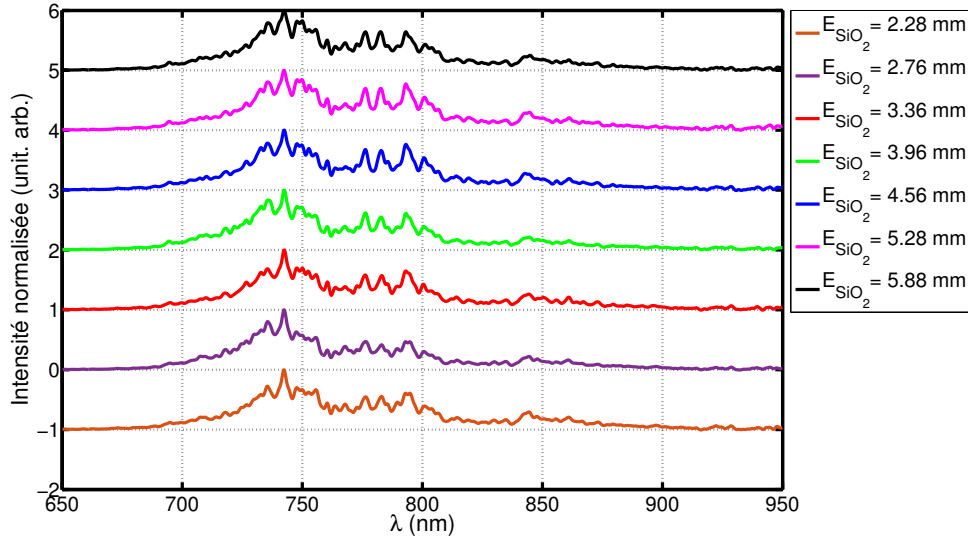


FIGURE 2.21 – Évolution du spectre infrarouge diffusé sur la fente d'entrée du spectromètre XUV champ plan en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. Les épaisseurs choisies correspondent à celles choisies pour la superposition des spectres sur la Figure 2.18. Ici, on regarde l'évolution du spectre pour $P = 1.08$ W, là où les effets non linéaires doivent être maximum, avec une pression de cellule de 20 mbar.

2.3.1.3 Simulations du Dscan harmonique via dipole modèle

Afin de comprendre mieux les résultats obtenus dans les Section 2.3.1.2 et Section 2.3.1.1, des simulations ont été effectuées via un modèle simplifié, un dipôle modèle, pour simuler le comportement du spectre harmonique en fonction du chirp de l'impulsion initiale. Les simulations s'articulent autour de deux étapes :

- La propagation linéaire de l'impulsion fondamentale dans une épaisseur variable de silice. Pour simuler ceci, on part d'un spectre donné pour l'impulsion fondamentale, et on calcule la phase après passage d'une épaisseur de silice e d'indice n . Une fois la phase calculée pour chaque composante du spectre, le profil d'intensité temporel de l'impulsion est calculé. En fonction de l'épaisseur de silice, le profil d'intensité temporel va changer. Par hypothèse, le profil est Fourier Limité à l'épaisseur nulle.
- La génération du spectre harmonique à partir du dipôle modèle et du profil temporel calculé à l'étape précédente. La phase des harmoniques émises est de la forme générale [25, 101, 102] :

$$\phi_q = q\phi_0 + \alpha_q I(t) \quad (2.7)$$

avec α_q coefficient de phase, $I(t)$ le profil d'intensité de l'impulsion, ϕ_0 la phase de l'impulsion fondamentale et q l'ordre harmonique. C'est ce terme $\alpha_q I(t)$ qui est responsable d'un chirp négatif de la génération d'harmoniques d'ordre élevé, avec $\alpha_q > 0$. Ce changement de fréquence centrale apparaît directement en prenant la dérivée temporelle de ϕ_q , avec $\omega_q(t) = \frac{\partial \phi_q}{\partial t}$, d'où l'équation :

$$\omega_q(t) = q\omega_0(t) + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t} \quad (2.8)$$

avec ω_0 la fréquence du fondamental, q l'ordre harmonique, I l'intensité et α_q un coefficient de phase [25, 101, 102]. On aura donc un terme qui correspond à la fréquence harmonique du fondamental ($q\omega_0 t$), mais aussi un terme, qui dépend directement de l'intensité à l'instant d'émission de l'harmonique $\alpha_q I$. Ce second terme induit ce changement de fréquence centrale pour les harmoniques, suivant l'instant de génération, donc un chirp.

Soit un spectre de départ $S(\omega)$ pour l'impulsion fondamentale et une phase initiale $\phi_{init}(\omega)$. L'épaisseur de silice e_{SiO_2} est le paramètre variable de l'expérience. Après propagation dans cette épaisseur de silice, la phase spectrale s'écrit :

$$\phi_{propag}(\omega) = \phi_{init}(\omega) - \frac{\omega}{c}(n_{SiO_2}(\omega) - n_{air})e_{SiO_2} \quad (2.9)$$

Afin de supprimer le décalage temporel dû à la propagation par rapport au 0 (premier ordre du développement de Taylor de la phase $\phi_{propag}(\omega)$), un terme $\frac{\partial \phi_{propag}}{\partial \omega}(\omega - \omega_0)$ de délai de groupe est soustrait à $\phi_{propag}(\omega)$. Une fois ϕ_{propag} calculée, le champ complexe de l'impulsion fondamentale $E_{tot}(t)$ et le profil d'intensité $I(t)$ se calculent par :

$$E_{tot}(t) = \sum_{\omega} \sqrt{S(\omega)} d\omega \exp(i(\omega_q t + \phi_{propag}(\omega))) \Rightarrow I(t) = E_{tot}(t)E_{tot}(t)^* \quad (2.10)$$

Le spectre harmonique se calcule directement à partir de ce profil d'intensité. Le champ harmonique total s'écrit :

$$E_{harm}(t) = \sum_{CC,CL} \sum_q E_0 \exp(i(q\phi_0 + \alpha_q I(t))) I(t)^{q_{eff}} \quad (2.11)$$

avec q l'ordre harmonique, $I(t)$ le profil d'intensité après propagation, α_q le coefficient de phase dont la valeur dépend des trajectoires classiques considérées [104, 105, 101, 102, 106] , $q_{eff} = 2.5$ [107], et $E_0 = \sqrt{2} \times 377 \times I_0$ avec I_0 l'intensité pic dans le milieu générateur.

De la même manière, le spectre harmonique S_{XUV} est calculé en prenant la transformée de Fourier de la quantité :

$$S_{XUV}(\omega) = |\text{TF}(E_{harm}(t))|^2 \quad (2.12)$$

Dans un premier temps, on ne considère que les trajectoires courtes pour les simulations. Le résultat obtenu est présenté sous forme d'un spectrogramme comme les résultats expérimentaux dans les Section 2.3.1.1 et Section 2.3.1.2. L'évolution est donnée en Figure 2.22.

Les harmoniques considérées vont de H9 à H27. Les valeurs de α_q sont fixées, avec $\alpha_q = 13 \times 10^{-14} \text{ W}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ pour les harmoniques de la coupure, et $\alpha_q = 3 \times 10^{-14} \text{ W}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ et $\alpha_q = 26 \times 10^{-14} \text{ W}^{-1} \cdot \text{cm}^2$ pour la trajectoire courte et la trajectoire longue des harmoniques du plateau profond. La durée des impulsions étant de $\tau_{IR} = 10$ fs expérimentalement, on considère une largeur spectrale de 100 nm et un spectre Gaussien

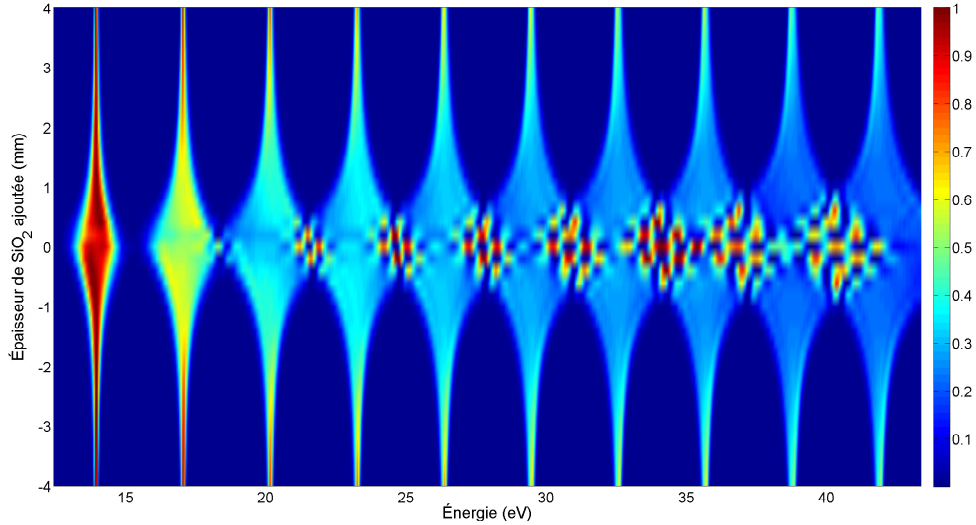


FIGURE 2.22 – Évolution du spectre harmonique simulé avec uniquement le chemin court considéré pour les harmoniques. Les impulsions IR ont un spectre Gaussien de 100 nm, correspondant à une durée d’environ $\tau_{IR} = 10$ fs à dispersion nulle. L’intensité pic est fixée à $I_0 = 5.4 \times 10^{14} \text{W.cm}^{-2}$, qui correspond à une puissance d’entrée de $P = 1.1$ W.

comme point de départ des simulations. L’épaisseur varie entre -4 et 4 mm par pas de 0.2 mm.

La Figure 2.22 montre des harmoniques très larges autour de la dispersion nulle, avec des interférences spectrales entre deux harmoniques consécutives visibles. L’accordabilité telle que l’on voit en Section 2.3.1.2 n’est pas reproduite. L’évolution simulée est assez symétrique par rapport à la dispersion nulle. Plusieurs choses sont possibles :

- Le modèle que l’on utilise pour les simulations est trop simple. La simplicité du modèle fait que des effets supplémentaires ne sont pas pris en compte et que la manière de décrire la phase des harmoniques à l’émission n’est peut être pas exacte.
- Les hypothèses de départ ne sont pas valides ou incomplètes. Des effets comme l’ionisation, le confinement de l’émission dans un front, des effets macroscopiques, des effets d’accord de phase [108, 109, 110, 111] ou encore les contributions non négligeables de plusieurs trajectoires, et non pas uniquement la trajectoire courte.

Une hypothèse supplémentaire que l’on peut introduire dans le modèle est le fait que l’on peut avoir uniquement l’émission XUV dans un des fronts de l’impulsion, notamment avoir confinement de l’émission XUV dans le front montant lorsque l’intensité est élevée. Pour simuler cet effet, le dipôle XUV est, avant calcul du spectre, mis à zéro pour $t_0 > 0$ si on garde uniquement le front montant jusqu’au maximum d’intensité par exemple. Le confinement temporel dans un front ou dans l’autre est réglé par la position t_0 à partir de laquelle on impose une intensité nulle.

Dans un premier temps, on conserve les mêmes paramètres expérimentaux en termes d’intensité, de durée d’impulsion/largeur spectrale du spectre fondamental, ainsi que la forme simple du dipôle modèle. Le profil d’intensité est cette fois limité au front montant, donc $I(t \geq 0) = 0$. Le résultat des simulations dans ces conditions est donné en Figure 2.23. On rappelle qu’une épaisseur positive correspond à un chirp

positif du fondamental, et une épaisseur négative correspond à un chirp négatif.

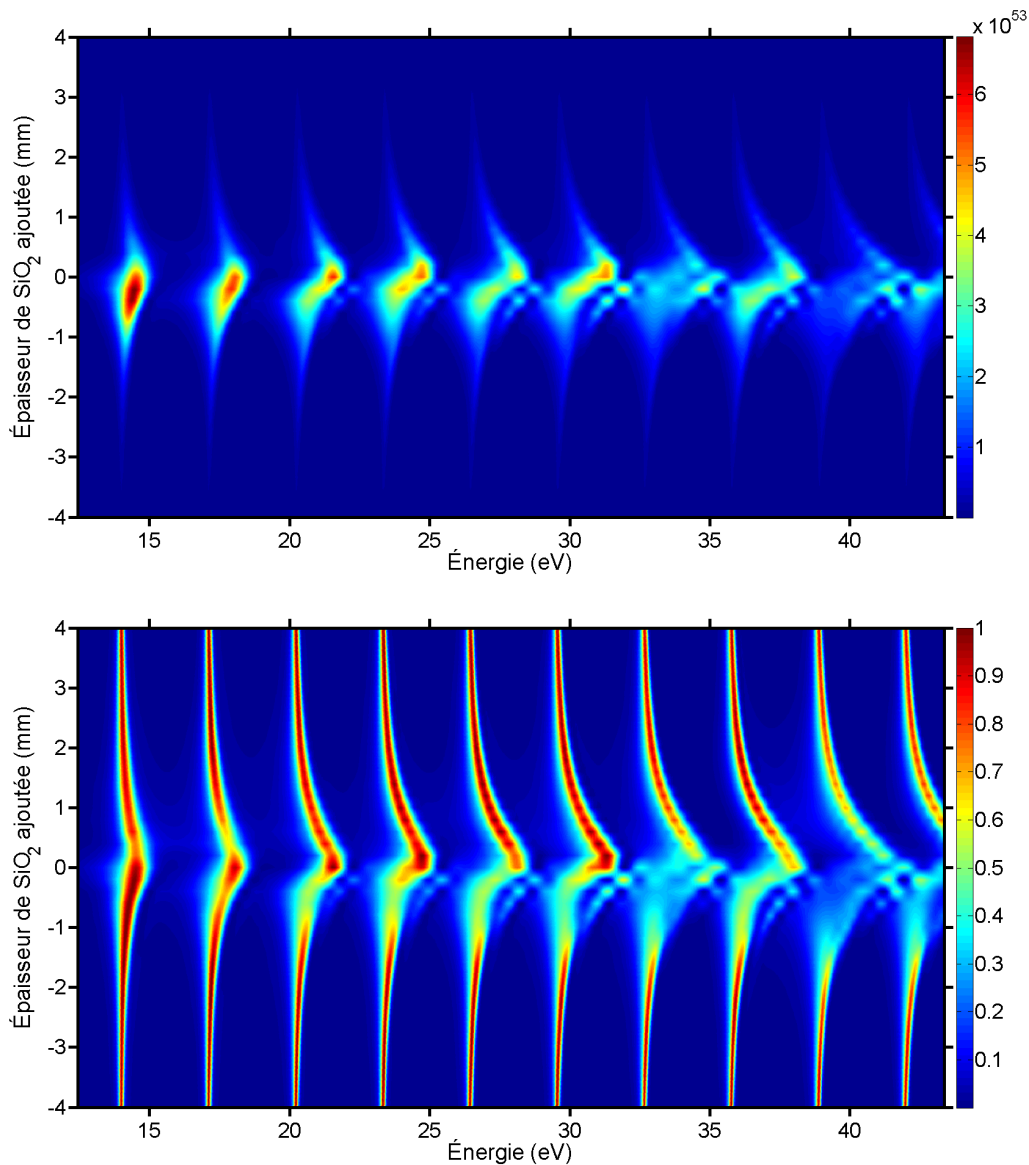


FIGURE 2.23 – Évolution du spectre harmonique simulé avec uniquement le chemin court considéré pour les harmoniques. Les impulsions IR ont un spectre Gaussien de 100 nm, correspondant à une durée d'environ $\tau_{IR} = 10$ fs à dispersion nulle. L'émission XUV est limitée au front montant uniquement. L'intensité pic est fixée à $I_0 = 5.4 \times 10^{14} \text{W.cm}^{-2}$ à dispersion nulle, qui correspond à une puissance d'entrée de $P = 1.1$ W.

Cette sélection du front montant uniquement revient à artificiellement prendre en compte de possibles effets collectifs. Des effets d'ionisation ou des effets d'accord de phase[108, 109, 110, 111] non pris en compte dans ces simulations simples peuvent confiner l'émission dans le front montant. L'ionisation avec déplétion dans le milieu générateur peut confiner l'émission XUV dans le front montant de l'impulsion, avec une ionisation forte du milieu générateur et donc une génération impossible car il n'y a plus d'atomes générateurs disponibles. L'accord de phase peut favoriser l'émission dans le front montant de l'impulsion.

Avec la restriction de l'émission dans le front montant, le comportement observé en

Section 2.3.1.2 commence à être retrouvé. L'accordabilité augmente bien avec l'ordre harmonique. De par la largeur spectrale des harmoniques les plus hautes, notamment les harmoniques de la coupure, on observe à nouveau des interférences spectrales entre deux harmoniques consécutives. Le confinement de l'émission dans le front montant est aussi retrouvé dans l'évolution de la fréquence centrale des harmoniques en Figure 2.23. Dans cette configuration, le décalage en fréquence correspond au terme $\alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$ dans la phase des harmoniques. Pour le front montant, $\frac{\partial I}{\partial t} > 0$, et $\alpha_q > 0$, donc la fréquence centrale des harmoniques augmente. Ce changement est d'autant plus grand qu'on se rapproche de la dispersion nulle, car l'impulsion a la durée la plus courte pour une même intensité pic, donc $\frac{\partial I}{\partial t}$ augmente quand on se rapproche de cette dispersion nulle.

La largeur spectrale se retrouve aussi très affectée par la dispersion. Pour des épaisseurs négatives, la largeur spectrale augmente lorsque e_{SiO_2} tend vers 0, avec des harmoniques assez larges autour de l'épaisseur nulle. Pour des épaisseurs positive, la largeur spectrale montre une évolution différente, avec une largeur spectrale plus faible pour les harmoniques pour $e_{SiO_2} > 0$.

En termes de largeurs spectrales, l'asymétrie entre chirp positif et chirp négatif est retrouvée, avec des harmoniques plus larges spectralement lorsque le chirp est négatif, et des harmoniques plus étroites spectralement lorsqu'il est positif. Pour une épaisseur de $e_{SiO_2} = -1.2$ mm, la largeur spectrale des harmoniques H21 et H23 sont respectivement 900 et 950 meV, contre 460 meV et 570 meV pour $e_{SiO_2} = 1.2$ mm. Expérimentalement, les largeurs spectrales trouvées à ± 1 mm de silice par rapport à la position optimale $e_{opti} = 4.2$ mm étaient de 1100 meV et 1300 meV ($e_{SiO_2} = 3.3$ mm) et 520 meV et 610 meV (à $e_{SiO_2} = 5.28$ mm) pour H21 et H23 respectivement (voir Figure 2.19(a)). Les largeurs spectrales sont donc légèrement plus élevées expérimentalement. Le rapport des largeurs spectrales à mi-hauteur entre les deux épaisseurs est aussi similaire entre les simulations et les résultats expérimentaux.

En ordre de grandeur, le décalage en fréquence complet (différence de fréquence entre $e_{SiO_2} = \pm 4$ mm et une épaisseur nulle) est de 2 eV pour H23 et 1.4 eV pour H21, ce qui est plus grand que l'accordabilité trouvée en Section 2.3.1.2. Expérimentalement, le décalage en fréquence était de respectivement 1.2 eV et 1 eV pour H23 et H21. Il y a donc un désaccord au niveau de la valeur du décalage en fréquence.

Pour illustrer ces conclusions quantitatives, une superposition de spectres simulés à plusieurs épaisseurs est donnée en Figure 2.24.

En conclusion sur cette Section 2.3.1, le résumé suivant peut être fait :

- Effectuer un scan en dispersion sur le spectre harmonique a permis de voir que l'on pouvait obtenir des situations très différentes.
- Les signatures spectrales qui changent expérimentalement se retrouvent être la largeur spectrale des harmoniques ainsi que l'énergie centrale de chaque harmonique. Au travers des expériences, une accordabilité allant d'un à deux ordres harmoniques a pu être observée. Cette accordabilité se fait en contrepartie d'un signal plus faible qu'à la dispersion nulle, ainsi qu'une largeur spectrale qui dépend directement du signe du chirp de l'impulsion fondamentale.
- Les simulations via le dipole modèle avec des hypothèses simplificatrices ont permis de retrouver le comportement global observé expérimentalement pour le Dscan XUV pour harmoniques d'ordres élevés. Les largeurs spectrales des harmoniques ainsi que les évolutions spectrales ont été retrouvées au même ordre de grandeur à 15 % près. Néanmoins, l'accord quantitatif pour l'accordabilité du peigne harmonique entre simulations et expériences reste à améliorer. Supprimer l'émission XUV dans le front descendant est une hypothèse qui reste à affiner.

Des simulations plus complexes, via des modèles comme SFA (Strong Field Approximation) ou TDSE (Time Dependent Schrödinger Equation) donnent également de bons résultats en prenant en compte ces effets collectifs.

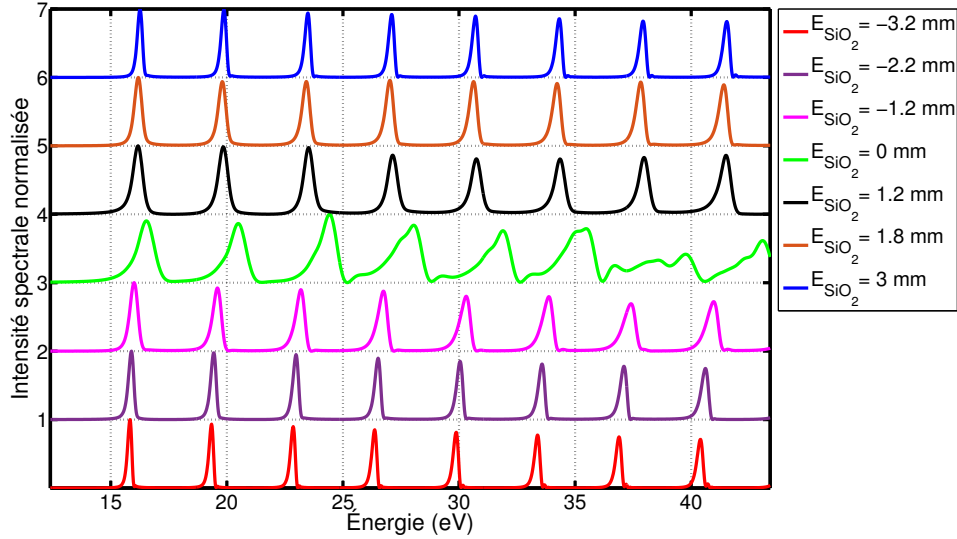


FIGURE 2.24 – Superposition de spectres harmoniques simulés, extraits de la Figure 2.23. Les impulsions ont au départ un spectre Gaussien de 100 nm, correspondant à une durée d'environ $\tau_{IR} = 10$ fs à dispersion nulle. L'émission est limitée au front montant uniquement. Le spectrogramme du dessous est le spectrogramme du dessus normalisé spectre par spectre. L'intensité pic est fixée à $I_0 = 5.4 \times 10^{14} \text{W.cm}^{-2}$ à dispersion nulle, qui correspond à une puissance d'entrée de $P = 1.1$ W.

2.3.2 Interférences spectrales à deux impulsions : accordabilité du spectre XUV

2.3.2.1 Principe théorique : Séparation en deux répliques décalées temporellement, profil flat top temporel

Dans les Section 2.3.1 et Section 2.2.2, des méthodes de mise en forme spectrale de l'impulsion infrarouge ainsi que du spectre XUV ont été expliquées. Le but de mettre en forme spectralement le spectre XUV était l'accordabilité de peigne d'harmoniques qui en résultait. Cette accordabilité en énergie est très utile pour des applications de spectroscopie XUV [112, 113, 114], mais trouve aussi des applications industrielles, notamment en lithographie XUV [115, 116]. Dans la Section 2.3.1, l'accordabilité obtenue n'était pas basée sur une modification du contenu spectral de l'impulsion fondamentale, mais de la phase spectrale.

Dans cette Section 2.3.2, l'accordabilité sera obtenue par modification du contenu spectral de l'impulsion fondamentale, en faisant des interférences à deux impulsions jumelles. Cette technique a été démontrée dans plusieurs références [117, 118, 119]. Par interférences entre deux répliques décalées temporellement, le spectre de l'impulsion en sortie est affecté, avec des cannelures qui apparaissent. Ces cannelures modifient la fréquence moyenne/fréquence centrale du spectre fondamental et la fréquence centrale des harmoniques est elle aussi changée. Elle sera d'autant plus changée que l'ordre de

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

l'harmonique est grand. Pour une longueur d'onde fondamentale λ_0 , la longueur de l'harmonique est $\lambda_q = \frac{\lambda_0}{q}$.

À titre d'exemple, l'énergie centrale de l'harmonique 13 est de 20.15 eV pour une longueur d'onde fondamentale de 800 nm. Pour une longueur d'onde de 770 nm, l'énergie centrale est de 19.4 eV. L'écart d'énergie centrale pour l'harmonique est donc de 700 meV, soit la moitié d'un ordre harmonique à 800 nm, pour une variation relative de 4% en longueur d'onde du fondamental. L'accordabilité est donc efficace par rapport au changement relatif en fréquence fondamental nécessaire. En allant à des ordres harmoniques plus hauts, l'accordabilité peut donc être bien plus grande.

Soit une impulsion fondamentale avec un profil d'intensité $I(t)$, un champ $E(t) = E_0 \exp(-2 \ln(2)(t - \delta)^2 / (\tau_{IR})^2)$ et une durée τ_{IR} . Le spectre fondamental de référence S_{ref} avant séparation est la transformée de Fourier de $E(t)$, pour une impulsion Fourier limitée. Après séparation, le champ électrique des deux répliques s'écrit :

$$E_1(t) = \cos(\omega_0(t - \delta)) \exp\left(-2 \ln(2)(t - \delta)^2 / (\tau_{IR})^2\right) \quad (2.13)$$

$$E_2(t) = \cos(\omega_0(t + \delta)) \exp\left(-2 \ln(2)(t + \delta)^2 / (\tau_{IR})^2\right) \quad (2.14)$$

avec δ le retard entre les deux impulsions, ω_0 la fréquence centrale du spectre avant séparation en deux répliques et τ_{IR} la durée de l'impulsion.

Après séparation, le profil d'intensité I_{tot} est modifié, ainsi que le spectre S_{tot} . Ces deux quantités se calculent de la manière suivante :

$$I_{tot}(t) = (E_1(t) + E_2(t))\overline{(E_1(t) + E_2(t))} \quad (2.15)$$

$$S_{tot}(\omega) = \text{TF}(E_1(t) + E_2(t))\overline{\text{TF}(E_1(t) + E_2(t))} \quad (2.16)$$

la ligne horizontale représentant le conjugué de la quantité.

À partir de calcul simple, le profil d'intensité et le spectre peuvent être calculés en fonction du délai δ entre les deux répliques. On effectue une illustration en simulant cette situation avec les paramètres : $\tau_{IR} = 20$ fs, $\delta \in [15 : 25]$ fs, $\lambda_0 = 800$ nm, donc $\omega_0 = 2.35 \times 10^{15}$ rad.s⁻¹. Le pas de variation du délai est de 0.05 fs. L'évolution du spectre infrarouge en fonction de δ après séparation est donnée en Figure 2.25.

La Figure 2.25 montre une forte évolution du spectre IR en fonction du délai δ entre les deux répliques. La longueur d'onde centrale est aussi changée, comme montré avec la courbe de pointillés blancs sur la figure. Le changement de longueur d'onde centrale est d'environ ± 20 nm pour l'ensemble de la gamme $\delta \in [15 : 25]$ fs, mais l'amplitude du changement diminue avec l'augmentation du délai. Un décalage de 20 nm par rapport à 800 nm représente une variation relative de 2.5% en longueur d'onde.

L'évolution du profil d'intensité IR en fonction de δ est dessinée en Figure 2.26. La séparation en deux impulsions est visible avec l'augmentation de δ . Pour certains délais, le profil d'intensité est maximum sur une certaine gamme, avec un quasi plateau. Ces profils sont appelés des profils "flat top", ou super Gaussien. Autour de $t = 0$, ces profils présentent un plateau d'intensité, avec $\frac{\partial I}{\partial t} = 0$.

Une autre observable intéressante est le signal intégré à partir du profil d'intensité, dessiné en blanc à la verticale sur la figure. On observe des oscillations en fonction de δ directement dues aux interférences constructives (pour un maximum) et destructives (pour un minimum) entre les deux répliques.

Le signal présente aussi une décroissance globale, avec les maxima successifs qui décroissent progressivement avec δ . Plus δ est grand, plus les impulsions sont séparées, et plus les interférences entre les deux répliques seront faibles, car trop éloignées. Cela

donne directement une indication sur le fait que l'efficacité de la génération d'harmoniques d'ordres élevés sera aussi affectée par δ et qu'un compromis entre accordabilité et flux de photons XUV doit être trouvé.

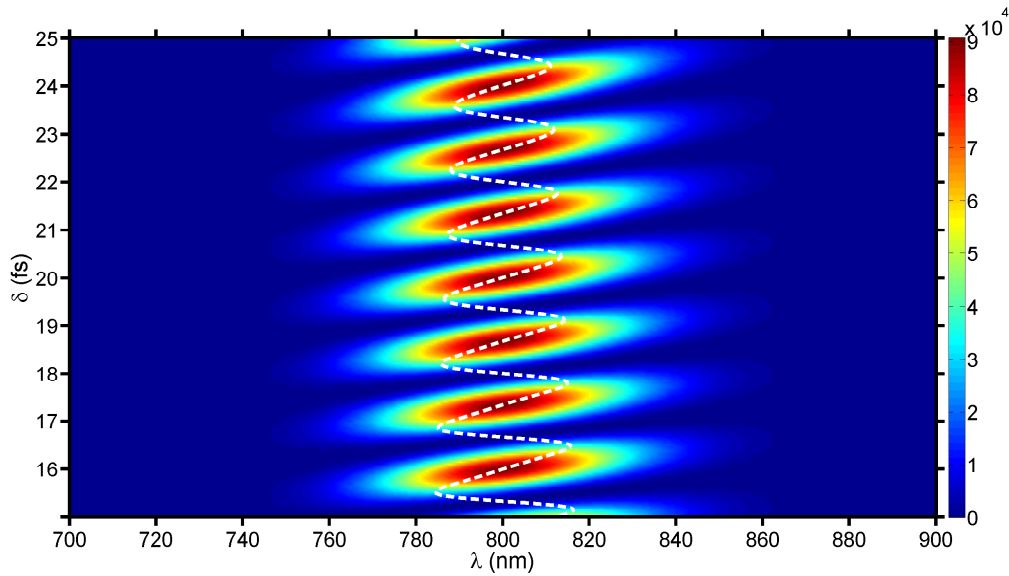


FIGURE 2.25 – Évolution du spectre IR modulé par les interférences temporelles entre les deux répliques de l'impulsion fondamentale, en fonction du délai δ . L'évolution de la longueur d'onde moyenne est dessinée en pointillés blancs. Les paramètres de la simulation sont les suivants : $\tau_{IR} = 20$ fs, $\delta \in [15 : 25]$ fs, $\lambda_0 = 800$ nm, donc $\omega_0 = 2.35 \times 10^{15}$ rad.s⁻¹.

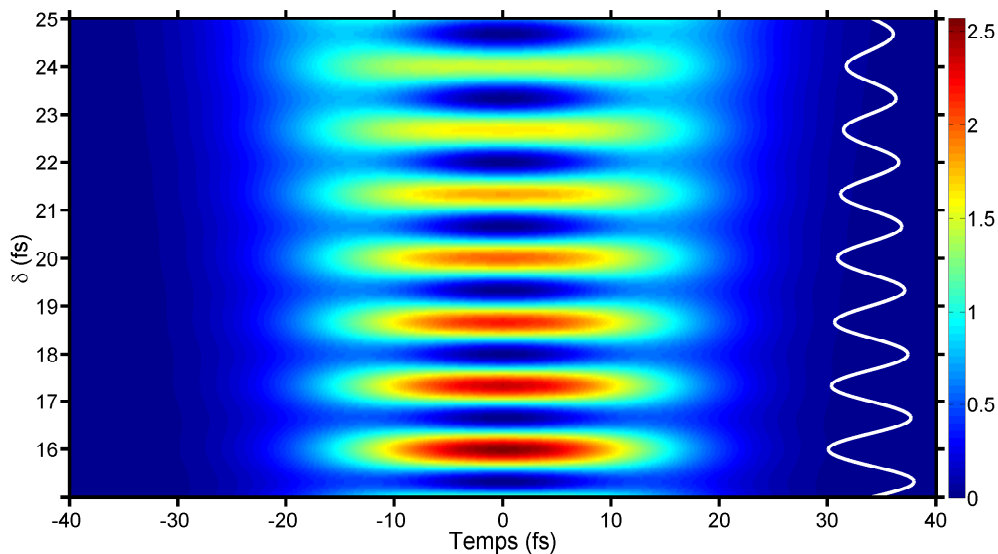


FIGURE 2.26 – Évolution du profil d'intensité temporel après séparation en deux répliques en fonction de δ . Le signal intégré temporellement est dessiné en blanc à la verticale. Les paramètres de la simulation sont les suivants : $\tau_{IR} = 20$ fs, $\delta \in [15 : 25]$ fs, $\lambda_0 = 800$ nm, donc $\omega_0 = 2.35 \times 10^{15}$ rad.s⁻¹.

2.3.2.2 Mise en place expérimentale : accordabilité du spectre harmonique par interférences à deux impulsions

Pour cette expérience, nous avons collaboré avec le King's College de Londres et l'équipe d'Amelle Zaïr, ainsi qu'avec le CELIA à Bordeaux, et l'équipe d'Éric Mével. Les expériences se déroulent sur un système laser du CELIA Bordeaux, qui délivre des impulsions de durée $\tau_{IR} = 40$ fs, à un taux de répétition de 10 Hz. Le spectre est centré à 800 nm.

Le système de séparation en deux impulsions répliques avec un délai variable est basé sur la biréfringence de deux prismes de quartz tête bêche. Une photo illustre le montage en Figure 2.27.

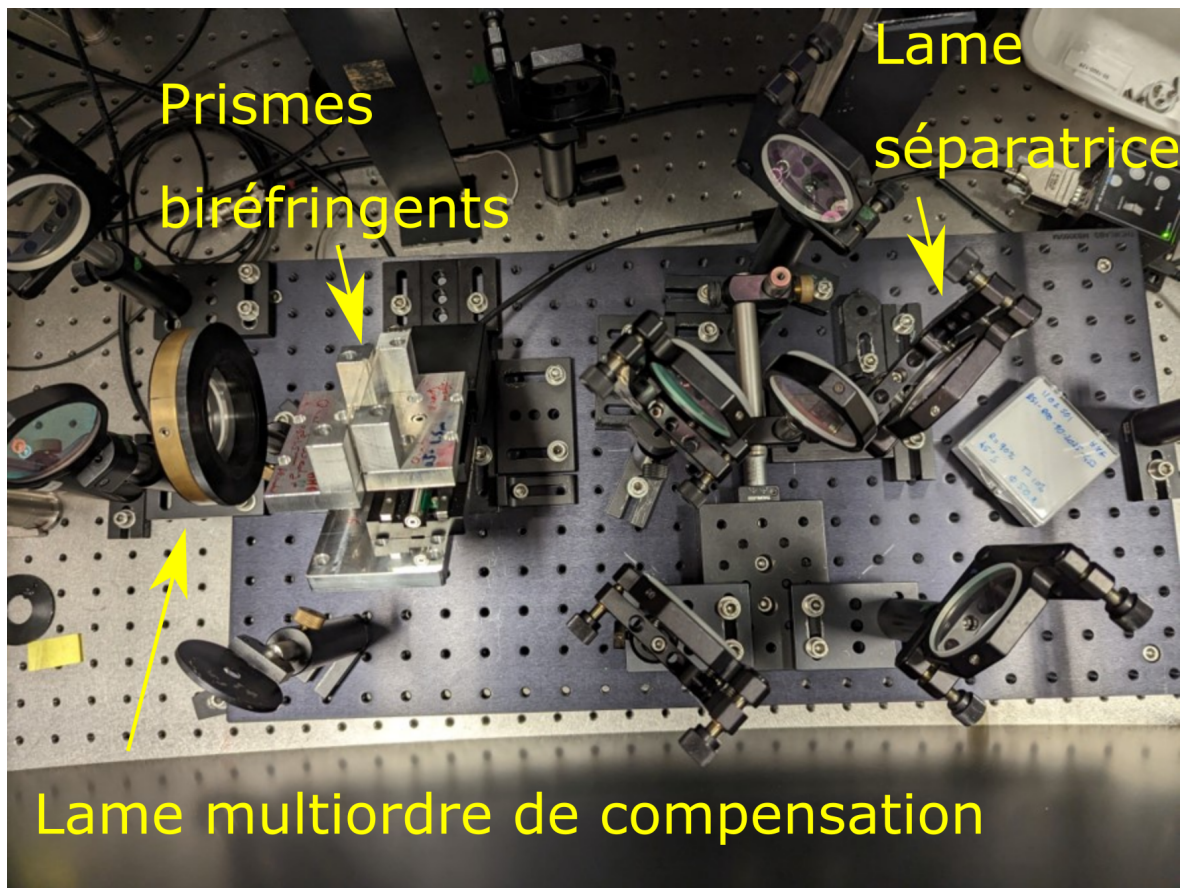


FIGURE 2.27 – Photo du montage expérimental servant à créer les deux répliques décalées temporellement et à caractériser le profil temporel résultant. Les prismes biréfringents sont placés sur un montant à 45° . Les axes neutres des prismes sont respectivement selon la grande et la petite dimension des prismes. La polarisation est linéaire horizontale avant passage dans les prismes.

L'orientation des axes neutres de ces prismes est de 45° par rapport à la polarisation linéaire incidente, ce qui donne la même amplitude pour les deux répliques. En bougeant un prisme par rapport à l'autre, l'épaisseur de quartz traversée par l'impulsion est changée. Le délai δ étant proportionnel à l'épaisseur de quartz traversée, le délai est aussi changé. Pour pouvoir interférer, les deux impulsions doivent avoir la même polarisation. Un polariseur est donc placé à 45° de la polarisation des deux répliques, afin de les reprojeter sur un même axe, qui correspond à celui de la polarisation incidente. Avec ceci, on obtient bien deux répliques, polarisées linéairement sur le même axe et

décalées temporellement, avec un délai δ variable, et contrôlable de manière précise. Pour des raisons pratiques, le montage de séparation est monté sur un breadboard.

La génération d'harmoniques se fait dans un jet de gaz d'argon. La détection des harmoniques se fait par un système de galettes de microcanaux avec écran phosphore sous vide, similaire au système de détection présenté en Annexe 2. Le spectre harmonique est observé en fonction du délai entre les deux répliques. L'évolution du spectre harmonique est donnée en Figure 2.28.

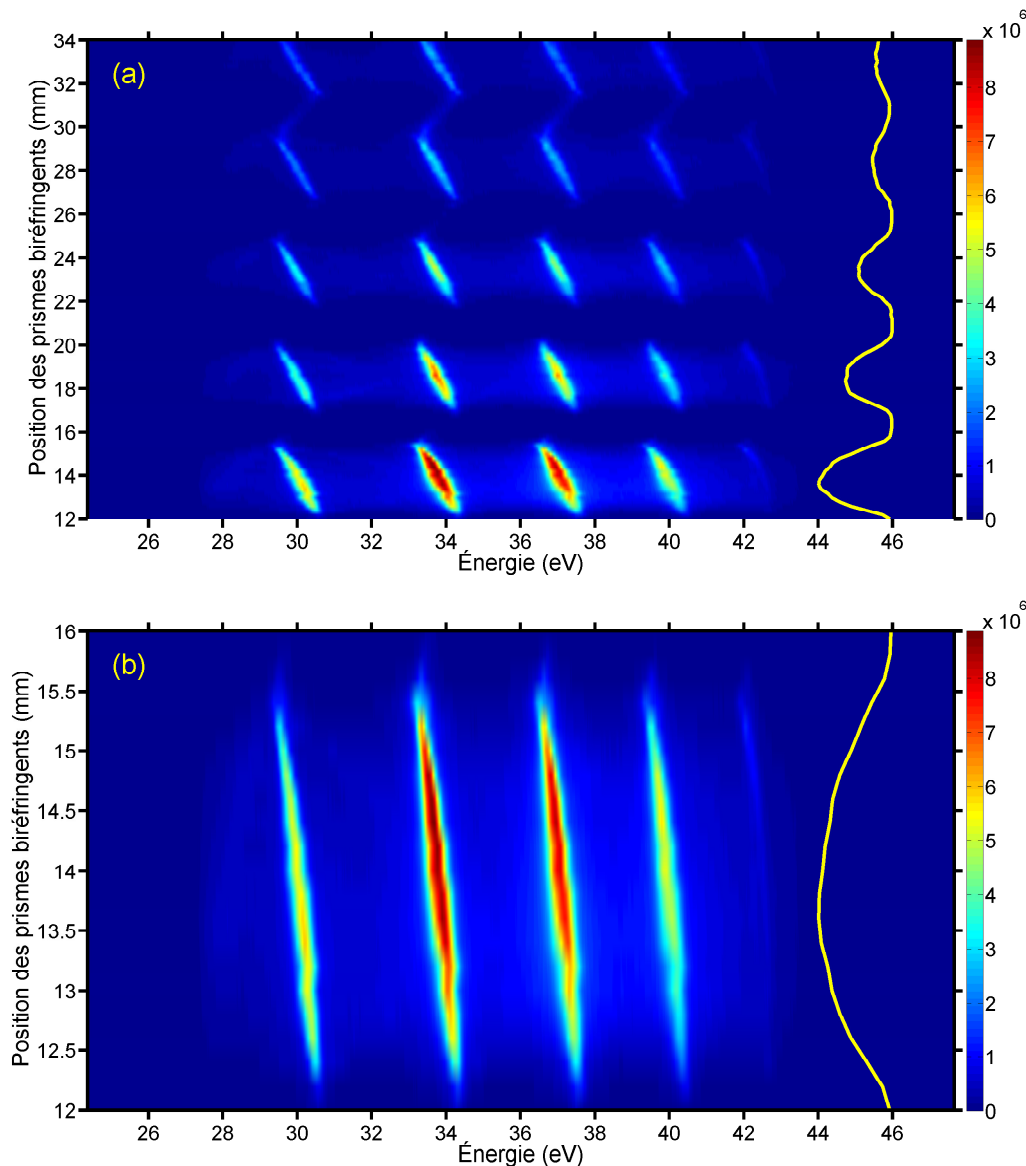


FIGURE 2.28 – (a) Évolution du spectre harmonique en fonction du délai entre les deux répliques IR. Un focus est fait sur les harmoniques H19 à H25. Sur la figure (b), un zoom est effectué sur une des accordabilités. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon. La durée des impulsions avant séparation est de $\tau_{IR} = 40$ fs. Le signal intégré spectralement et spatialement est dessiné en jaune à la verticale.

La Figure 2.28 montre bien une évolution significative de l'énergie centrale des harmoniques avec le délai δ . Comme montré avec les simulations en Section 2.3.2.1, l'accordabilité se repète bien de manière cyclique. 5 cycles d'accordabilité sont observés, pour un délai qui varie entre 56 fs (position 12 des prismes biréfringents) et 69 fs

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

(position 34 des prismes biréfringents). Dans les simulations, un cycle correspond à un cycle optique à la longueur d'onde centrale. L'accord est donc bon entre les deux comportements, avec un changement de fréquence centrale qui se répète tous les cycles optiques.

En termes d'évolution du signal intégré, harmonique par harmonique, on retrouve aussi les cycles qui se répètent. L'évolution du signal intégré harmonique par harmonique est donnée en Figure 2.29. Le comportement du signal intégré est similaire pour toutes les harmoniques du spectre, entre H19 et H25. Entre les deux premiers cycles, la perte de signal est d'un facteur 1.5, puis un autre facteur 1.3 entre le deuxième et le troisième cycle. L'évolution de ce rapport entre les pics successifs de signal intégré montre une division par un facteur d'environ 1.5 à chaque cycle supplémentaire.

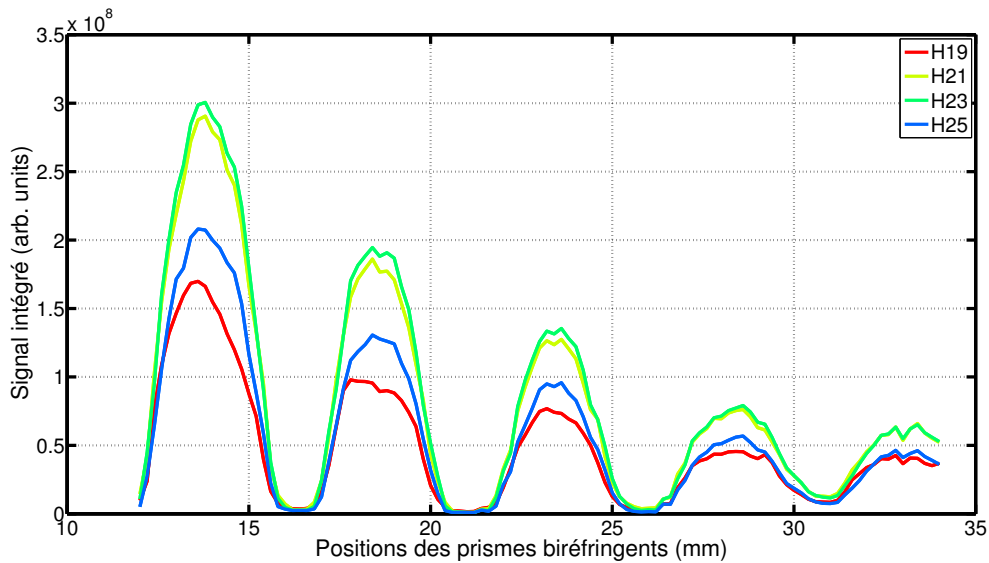


FIGURE 2.29 – Évolution du signal intégré spectralement et spatialement pour quelques harmoniques du spectre XUV en fonction de la position des prismes biréfringents. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon. La durée des impulsions avant séparation est de $\tau_{IR} = 40$ fs.

L'accordabilité obtenue expérimentalement en Figure 2.29 est de 810 meV pour l'harmonique 19 à 720 meV pour l'harmonique 25 (écart d'énergie lorsque le signal intégré total est supérieur à 50 % du maximum). L'évolution de l'énergie centrale pour les harmoniques 19 à 25 est donnée en Figure 2.30. En comparant avec les simulations effectuées, le comportement avec une évolution en forme de S pour la longueur d'onde centrale des harmoniques est bien retrouvé. L'accordabilité est grande par rapport à la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques. En ordre de grandeur, cette dernière est de 350-400 meV. L'accord de l'énergie centrale des harmoniques s'effectue donc sur deux fois la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques, et ce pour H19 à H25.

La largeur spectrale est aussi quasi-constante malgré le changement de fréquence centrale, contrairement à l'accordabilité montrée en Section 2.3.1.2 par exemple. L'évolution de la largeur spectrale des harmoniques est donnée en Figure 2.31, avec un focus sur le premier cycle d'accordabilité, là où le signal est le plus élevé. La figure montre bien une faible variation de la largeur spectrale (voir pointillés noirs).

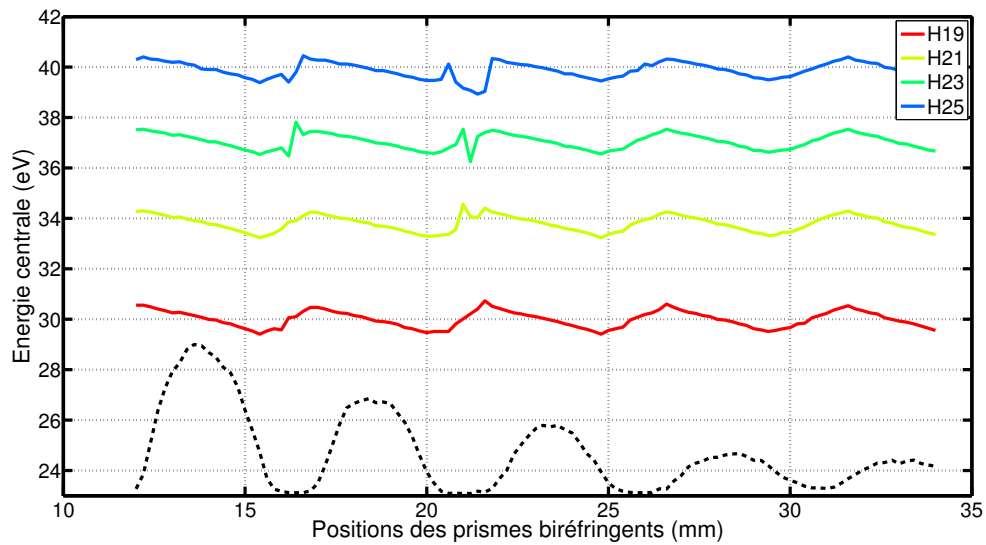


FIGURE 2.30 – Évolution de l'énergie centrale des harmoniques pour H19 à H25 en fonction de la position des prismes biréfringents. Les courbes en trait plein correspondent aux énergies centrales de chaque harmonique. Le signal intégré spectralement et spatialement est dessiné en pointillés noirs sur la figure pour donner la tendance d'évolution du signal.

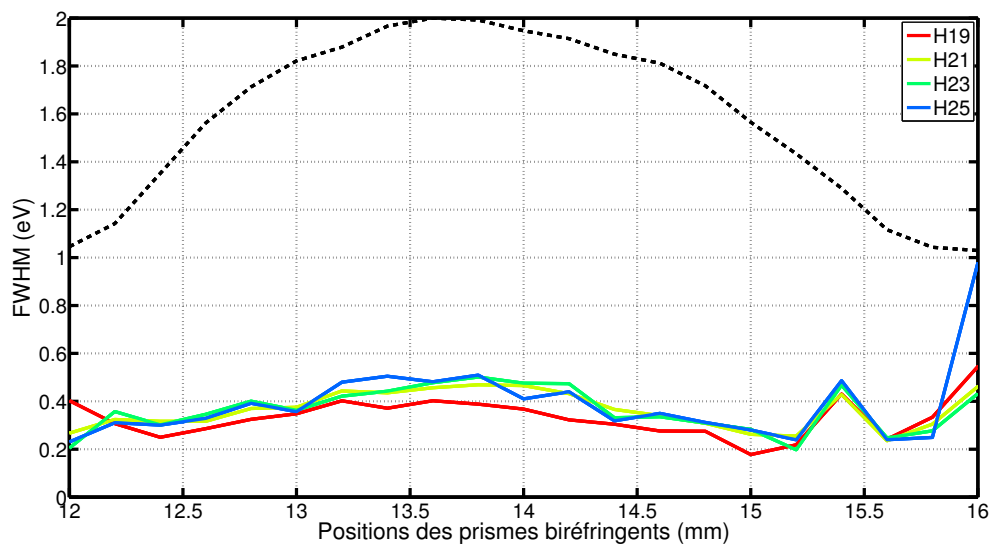


FIGURE 2.31 – Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques 19 à 25, extraite des résultats présentés en Figure 2.28. Les traits pleins correspondent aux largeurs spectrales, et les pointillés noirs correspondent au signal intégré spatialement et spectralement.

2.3. Applications de la mise en forme spectrale et temporelle des impulsions IR et XUV

En conclusion sur cette Section 2.3.2, plusieurs choses ont été montrées :

- Une mise en forme précise du profil temporel de l'impulsion femtoseconde est possible en utilisant un système de prismes biréfringents. L'installation permet la séparation en deux impulsions répliques de même amplitude et de moduler le délai entre ces dernières sur une gamme de délais large.
- La mise en forme du profil temporel s'est traduite dans le domaine spectral par une mise en forme du peigne harmonique, avec une accordabilité de la fréquence centrale des harmoniques.
- L'accordabilité obtenue est de l'ordre de 800 meV, pour une largeur spectrale à mi-hauteur de 400 meV. L'accord du peigne harmonique se fait donc sur deux fois la largeur spectrale à mi-hauteur pour chaque harmonique.

Plus globalement, dans ce Chapitre 2, nous avons vu plusieurs aspects :

- La nécessité d'aller chercher des impulsions avec des largeurs spectrales conséquentes pour obtenir des impulsions de quelques cycles optiques. Le système de postcompression expliqué en théorie et mis en place pour les expériences montre que l'on peut passer d'impulsions IR de durée $\tau_{IR} = 30$ fs avec un spectre centré à 800 nm d'environ 30 nm de largeur à des impulsions de quelques cycles optiques de durée $\tau_{IR} = 7-8$ fs.
- La connaissance du profil temporel de ces impulsions est nécessaire. On a vu plusieurs méthodes de caractérisation : autocorrélation multidispersive et dispersion scan. Ces méthodes permettent de connaître la durée de l'impulsion IR et de reconstruire le profil temporel. Les résultats donnés par les deux méthodes sont cohérents entre eux et avec la transformée de Fourier du spectre observé en sortie de capillaire de postcompression.
- Le travail sur les mises en forme temporelle et spectrale de l'impulsion fondamentale a amené plusieurs applications pour l'accordabilité du spectre harmonique : Dscan XUV et accordabilité par interférences de deux impulsions décalées temporellement. Ces deux méthodes permettent d'obtenir des accordabilités de quelques centaines de meV, voir d'un ordre harmonique selon la région du spectre XUV que l'on considère. Des simulations simples viennent appuyer les phénomènes sous jacents à cette accordabilité du spectre XUV. Les simulations pour le Dscan XUV restent à parfaire. La mise en forme temporelle des impulsions IR a amené une collaboration avec le CELIA Bordeaux et le King's College de Londres, collaboration toujours en cours.
- En ayant obtenu ces impulsions de quelques cycles optiques, on passe maintenant à un deuxième aspect relié au confinement de l'émission XUV, qui va cette fois ci se baser sur la mise en forme de l'état de polarisation de l'impulsion fondamentale (voir Chapitre 3 et Chapitre 4).

Chapitre 3

Confinement temporel de l'émission XUV : Porte de polarisation pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés

3.1 Principe général de la porte de polarisation

La génération d'harmoniques d'ordres élevés dans les gaz est très sensible à l'ellipticité du champ fondamental et l'efficacité de la génération d'harmoniques chute rapidement dès que le champ fondamental devient elliptique. Lorsque l'on introduit de l'ellipticité, on introduit une courbure dans les trajectoires suivies par l'électron dans le continuum, affectant la recombinaison de l'électron avec le noyau [54]. En ordre de grandeur, une ellipticité de 13 % pour le champ fondamental à 800 nm divise le signal de génération d'harmoniques par 2.

Soit un champ $E(t)$ fondamental, on définit l'ellipticité ϵ comme :

$$E(t) = \cos(\omega t) + \epsilon \sin(\omega t) \quad (3.1)$$

avec $-1 \leq \epsilon \leq 1$. En utilisant cette dépendance en polarisation, il est possible de contrôler les différents instants où l'on génère des harmoniques, en induisant une variation temporelle de la polarisation du champ fondamental, une porte de polarisation. Ainsi, limiter les instants où la polarisation du champ fondamental est linéaire revient directement à confiner temporellement l'émission des harmoniques d'ordres élevés. Cette sélection temporelle permet d'obtenir des trains d'impulsions attosecondes de plus en plus courts, voire des impulsions attosecondes isolées [52, 56, 120]. Les signatures de ce confinement temporel peuvent se retrouver dans le spectre d'harmoniques d'ordres élevés. D'abord mis en principe [49, 50, 121], les observations expérimentales de ce confinement temporel se sont succédées [53, 122, 123, 124, 125, 126, 127, 128] portant vers la production d'impulsions attosecondes isolées [52, 56, 129, 130, 131].

3.1.1 Mise en place expérimentale de la porte de polarisation

Ici, nous nous focalisons sur le principe de construction de porte de polarisation basé sur une combinaison de deux lames d'onde. En partant d'une impulsion fondamentale femtoseconde que l'on fait passer dans une lame biréfringente, elle est séparée en deux répliques décalées temporellement. Le ratio entre les amplitudes des deux répliques

Chapitre 3. Confinement temporel de l'émission XUV : Porte de polarisation pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés

dépend directement de l'orientation de la polarisation de l'impulsion fondamentale par rapport aux axes neutres du milieu biréfringent. Dans le cas d'une polarisation incidente linéaire d'amplitude E_0 , les amplitudes respectives des deux répliques seront $E_0 \cos(\alpha)$ et $E_0 \sin(\alpha)$, avec α l'angle entre la polarisation incidente et les axes neutres de la lame. Le délai introduit entre les deux répliques est dépendant du matériau biréfringent ($\Delta n = n_o - n_e$), et de son épaisseur e . Après le passage dans la lame biréfringente, on obtient une polarisation qui évolue temporellement : d'abord linéaire polarisée selon l'axe rapide (de plus petit indice de réfraction), elliptique ou circulaire lorsque l'amplitude des deux répliques est la même là où elles se recouvrent, pour finir linéairement polarisée suivant l'axe lent de la lame. La polarisation au niveau du recouvrement sera circulaire dans le cas où le déphasage introduit par la lame biréfringente sera de $\phi = \frac{\pi}{2}$.

Pour confiner l'émission des harmoniques temporellement, il faut avoir uniquement une polarisation linéaire, où très peu elliptique, autour de certains instants. Il faut donc une évolution inverse par rapport à l'évolution après la lame biréfringente. Pour inverser cette évolution, on utilise une deuxième lame, une lame quart d'onde d'ordre zéro. Elle n'introduit aucun délai supplémentaire (ou faible, $\delta_{ZO} < \frac{T_0}{4}$), mais peut transformer la polarisation linéaire en circulaire, et la circulaire en linéaire (de même pour les polarisations elliptiques). Ainsi, on obtient un état de polarisation qui sera circulaire, puis linéaire, puis circulaire. Les instants où la polarisation restera linéaire ou très peu elliptique se situent donc dans la zone de recouvrement entre les deux répliques décalées temporellement.

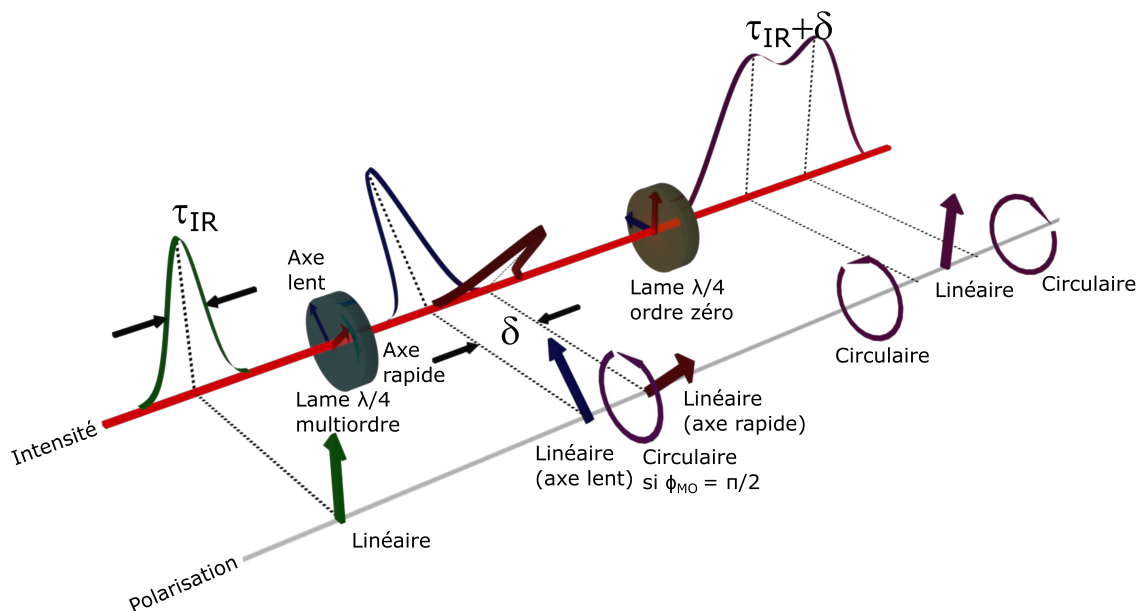


FIGURE 3.1 – Illustration d'une création de porte de polarisation avec combinaison d'une lame biréfringente multiordre et d'une lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro. La configuration représentée ici est la configuration dite "porte étroite", là où le confinement temporel de l'émission XUV est maximum. L'axe d'intensité représente l'évolution du profil d'intensité à chaque étape. L'axe de polarisation représente l'évolution temporelle de la polarisation.

3.1. Principe général de la porte de polarisation

La porte de polarisation est caractérisée par sa largeur et sa position. Dans notre cas, ses caractéristiques dépendent directement des propriétés et orientations des lames utilisées. On donne la liste des paramètres importants pour la porte de polarisation, retranscrits sur la Figure 3.1 :

- La durée de l'impulsion IR τ_{IR} avant le passage dans la lame multiordre. Plus l'impulsion sera courte par rapport au délai δ introduit par la lame multiordre, plus la porte sera courte.
- Le déphasage introduit par la lame multiordre, ϕ_{MO} .
- L'orientation des axes neutres de la lame biréfringente multiordre par rapport à la polarisation incidente θ_{MO} .
- L'épaisseur e de la lame multiordre, et donc le délai δ introduit entre les deux répliques. Plus le délai sera grand par rapport à τ_{IR} , plus la porte sera courte.
- L'orientation des axes neutres de la lame d'ordre zéro par rapport aux axes neutres de la lame multiordre, θ_{ZO} .

On définit la largeur de la porte par l'ensemble des instants pour lesquels l'efficacité de génération XUV est réduite de moins de 50% par rapport à son maximum. En termes d'ellipticité, elle est définie comme les instants où l'ellipticité ϵ est inférieure à une ellipticité seuil ϵ_{thr} , avec ϵ_{thr} l'ellipticité pour laquelle l'efficacité de génération XUV est réduite de 50% par rapport à son maximum, obtenue pour $\epsilon = 0$. Dans le cas d'une porte de polarisation centrée ($\theta_{MO} = 45^\circ$), la largeur de la porte se calcule directement par [2] :

$$\tau_{gate} = \frac{\epsilon_{thr} \tau_{IR}^2}{\delta |\cos(2\theta_{ZO})| \ln(2)} \quad (3.2)$$

avec τ_{IR} , δ , θ_{ZO} et ϵ_{thr} les grandeurs définies précédemment. Par application numérique d'exemple, avec $\tau_{IR} = 30$ fs, $\theta_{ZO} = 0^\circ$ et un délai $\delta = 30$ fs, la largeur de la porte est de $\tau_{gate} = 5.65$ fs. En le rapportant à un cycle optique à 800 nm ($T_0 = 2.66$ fs), on aura donc une émission harmonique sur uniquement quelques cycles optiques, ici deux.

3.1.2 Mesure de la dépendance en ellipticité et de ϵ_{thr}

Expérimentalement, on a pu vérifier et mesurer la dépendance en ellipticité de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. On a introduit une lame quart d'onde d'ordre zéro sur le chemin de l'impulsion fondamentale. En tournant l'orientation θ_{ZO} , on introduit plus ou moins d'ellipticité. L'ellipticité introduite est directement reliée à θ_{ZO} , avec $\epsilon = \tan(\theta_{ZO})$, et le spectre HHG évolue en fonction de θ_{ZO} . Cette évolution est donnée en Figure 3.2.

Les harmoniques sont générées dans une cellule de gaz, remplie d'argon (P=15 mbar), avec des impulsions infrarouge d'une durée de $\tau_{IR} = 30$ fs. En intégrant le signal pour chaque harmonique, on obtient le comportement de la génération d'harmoniques en fonction de l'ellipticité pour chaque ordre harmonique, montré en Figure 3.3. Sur la Figure 3.3, le signal harmonique est bien maximum pour $\epsilon = 0$ et est bien approché par une fonction Gaussienne.

La largeur à mi-hauteur de ces Gaussiennes donne la sensibilité à l'ellipticité pour chacune des harmoniques, que l'on quantifie par ϵ_{thr} , ellipticité pour laquelle le signal harmonique est divisé par 2. L'évolution de l'ellipticité critique ϵ_{thr} en fonction de l'ordre harmonique est représentée en Figure 3.2. On retrouve l'ordre de grandeur donné dans [54], et on a une dépendance plus forte en ellipticité pour les harmoniques d'ordres plus élevés.

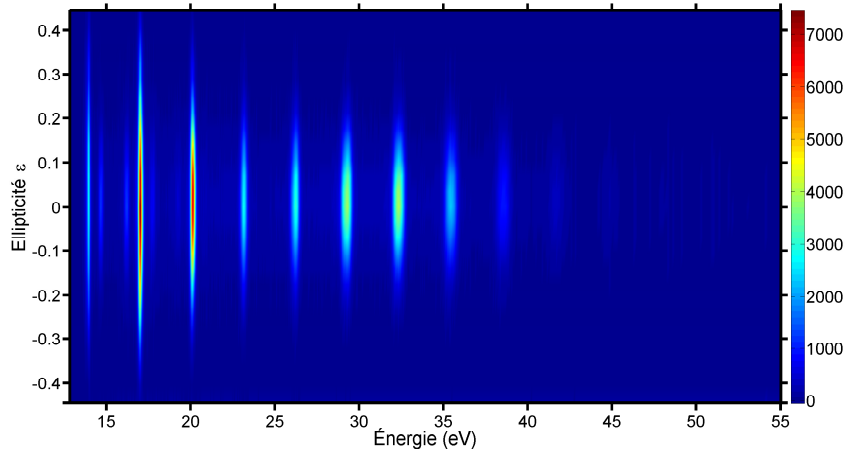


FIGURE 3.2 – Évolution des spectres harmoniques en fonction de l'ellipticité ϵ du champ IR. Une ligne correspond à un spectre harmonique.

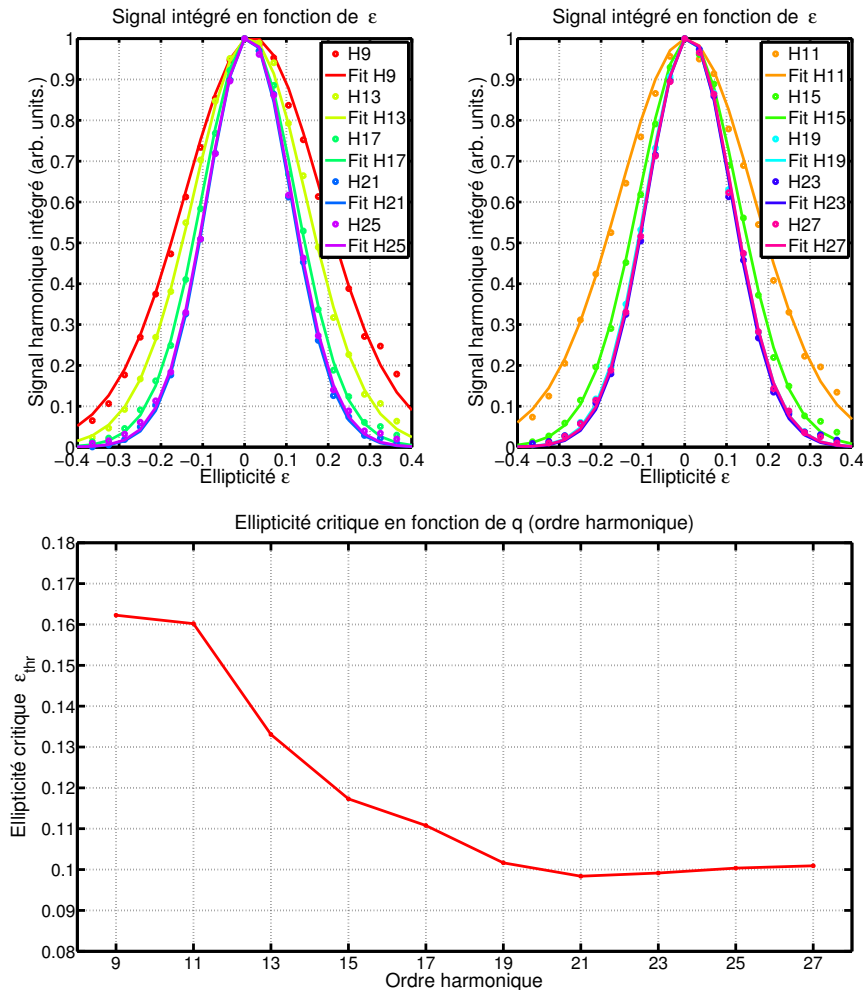


FIGURE 3.3 – Signaux intégrés normalisés pour chaque harmonique, et interpolations Gaussiennes de ces signaux. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon de 6 mm ($P = 15$ mbar), avec des impulsions d'une durée de $\tau_{IR} = 30$ fs. Évolution de l'ellipticité critique mesurée en fonction de l'ordre harmonique.

Pour tester la robustesse de ces observations, on a mesuré cette dépendance en

3.1. Principe général de la porte de polarisation

ellipticité avec des conditions expérimentales différentes, avec des durées τ_{IR} différentes, des énergies différentes, ainsi que des montages expérimentaux différents.

Dans une deuxième série, on génère toujours les harmoniques dans une cellule d'argon, avec des impulsions post-comprimées, d'une durée de $\tau_{IR} = 9$ fs. La focalisation de l'impulsion s'effectue avec un miroir focalisant, de focale $f = 60$ cm. La puissance en entrée de chambre est de $P = 1.17$ W ($I_0 = 5.9 \times 10^{14}$ W.cm $^{-2}$ estimée au foyer) pour la deuxième série, contre $P = 0.9$ W ($I_0 = 4.6 \times 10^{14}$ W.cm $^{-2}$ estimée au foyer) pour la troisième série. Pour réduire l'énergie sans changer la dispersion, on introduit une pellicule fine (10 μ m) avec un angle d'incidence sur le chemin. En réglant l'angle d'incidence, on modifie la réflexion, et donc la puissance transmise. La fine épaisseur permet de travailler avec des impulsions sensibles à la dispersion, notamment dans le régime de quelques cycles optiques.

On donne également une série effectuée dans les mêmes conditions expérimentales, mais avec des impulsions plus longues, $\tau_{IR} = 27$ fs. Les conditions de génération sont toujours avec une cellule d'argon, et le même montage expérimental.

Enfin, nous avons effectué une cinquième mesure de dépendance en ellipticité en utilisant un montage expérimental différent. Dans cette mesure, les impulsions sont courtes, $\tau_{IR} = 5.3$ fs, et la génération d'harmoniques se fait avec une très courte focale, 5 cm, dans un jet de gaz d'argon. Ces cinq séries de mesures donnent cinq évolutions de l'ellipticité critique. Ces évolutions sont données dans la Figure 3.4. Pour toutes ces mesures, on utilise la même lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro large bande.

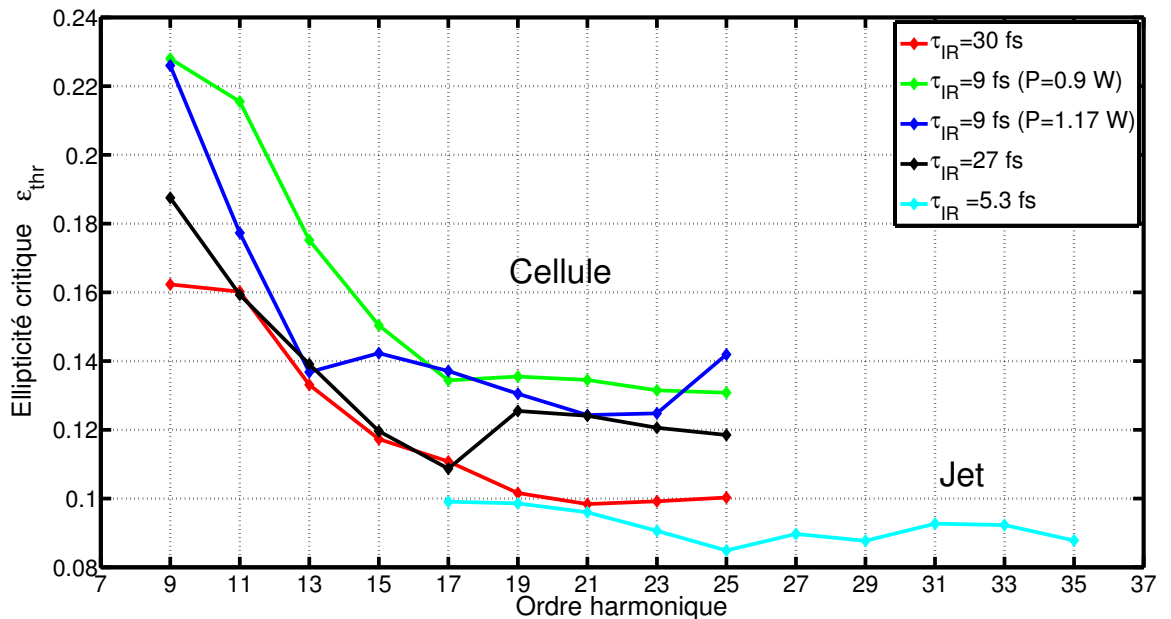


FIGURE 3.4 – Évolution de l'ellipticité critique ϵ_{thr} pour différentes conditions de génération (puissances différentes, durées différentes). On utilise ici 3 durées τ_{IR} différentes et deux puissances/intensités différentes pour une même durée.

On voit sur la figure Figure 3.4 que l'ellipticité critique varie peu avec les conditions expérimentales, mais qu'elle doit être remesurée pour chaque campagne d'expérience/utilisation d'un montage différent. Les valeurs d'ellipticité critique sont résumées dans le Tableau 3.2 et le Tableau 3.1.

	H17	H19	H21	H23	H25	H27	H29	H31	H33	H35
$\tau_{IR} = 5.3$ fs	0.10	0.10	0.10	0.09	0.08	0.09	0.09	0.09	0.09	0.09

TABLE 3.1 – Ellipticités critiques ϵ_{thr} en fonction de l'ordre harmonique pour la série de mesure avec génération d'harmoniques dans un jet de gaz d'argon.

	H9	H11	H13	H15	H17	H19	H21	H23	H25
$\tau_{IR} = 30$ fs	0.16	0.16	0.130	0.12	0.110	0.100	0.10	0.10	0.10
$\tau_{IR} = 27$ fs	0.18	0.16	0.14	0.12	0.11	0.12	0.12	0.12	0.12
$\tau_{IR} = 9$ fs P=1.17 W	0.23	0.21	0.17	0.15	0.14	0.137	0.13	0.13	0.14
$\tau_{IR} = 9$ fs P=0.9 W	0.23	0.18	0.14	0.15	0.13	0.13	0.13	0.13	0.13

TABLE 3.2 – Ellipticités critiques ϵ_{thr} en fonction de l'ordre harmonique pour différentes séries de mesures avec génération d'harmoniques dans une cellule d'argon.

3.2 Porte de polarisation "asymétrique"

Dans le but d'optimiser la génération d'harmoniques d'ordres élevés confinée temporellement, nous avons cherché à voir si il était possible de déplacer la porte de polarisation dans le front montant/descendant de l'impulsion. Pour cela, on repart de l'explication en Figure 3.1. Lorsque que l'on part de la porte symétrique centrée, on a $\theta_{MO}=45^\circ$. En tournant l'orientation θ_{MO} de la lame multiordre, on change le ratio d'amplitude entre les deux répliques après la lame multiordre, et donc l'instant où les deux impulsions ont la même amplitude. Chacune de ces impulsions seront polarisées circulairement après la seconde lame si $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. Dans ce cas, le champ total après la seconde lame sera donc polarisé linéairement là où les deux impulsions ont la même amplitude. En gardant toujours un angle de 45° entre les axes neutres de la première et la seconde lame, et en changeant l'orientation θ_{MO} , on peut déplacer l'instant où la polarisation est linéaire dans le front montant ou dans le front descendant de l'impulsion. Le profil d'intensité en sortie en sera affecté, de par le changement d'amplitude entre les deux répliques. Ajuster l'angle θ_{MO} dans la porte a été évoqué pour la production d'impulsions attosecondes [125, 126, 132].

3.2.1 Simulations de la porte de polarisation par le formalisme de Jones

Pour simuler l'évolution temporelle de la polarisation, on utilise les matrices de Jones [133, 134, 135]. À chaque lame d'onde est associée une matrice carrée 2×2 , qui permet de calculer l'état de polarisation E_{out} après la lame à partir d'un état de polarisation E_{in} . Ce vecteur E_{in} est un vecteur qui a pour composantes l'amplitude du champ sur l'axe horizontal et l'axe vertical, respectivement E_x et E_y . À partir de cela, on peut calculer le profil d'intensité ainsi que le profil d'ellipticité après chaque lame, et donc modéliser le comportement de notre porte.

Les matrices de Jones M_{MO} et M_{ZO} associées respectivement à la lame multiordre et à la lame d'ordre zéro, pour une impulsion fondamentale Gaussienne, sont :

$$M_{ZO} = e^{(i\frac{\pi}{4})} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{pmatrix} ; M_{MO} = \begin{pmatrix} e^{-i\frac{\phi_{MO}}{2}} \exp\left(-2 \ln 2 \frac{(t-\frac{\delta}{2})^2}{\tau_{IR}^2}\right) & 0 \\ 0 & e^{+i\frac{\phi_{MO}}{2}} \exp\left(-2 \ln 2 \frac{(t+\frac{\delta}{2})^2}{\tau_{IR}^2}\right) \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

Pour inclure l'impact de l'orientation des lames dans ce formalisme, on utilise ensuite des matrices de projections 2D, définies par :

$$M_{p,ZO} = \begin{pmatrix} \cos(\theta_{ZO}) & \sin(\theta_{ZO}) \\ -\sin(\theta_{ZO}) & \cos(\theta_{ZO}) \end{pmatrix} ; M_{p,MO} = \begin{pmatrix} \cos(\theta_{MO}) & \sin(\theta_{MO}) \\ -\sin(\theta_{MO}) & \cos(\theta_{MO}) \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

L'état de polarisation en sortie des deux lames sera donc donné par :

$$E_{out} = M_{p,ZO} M_{ZO} M_{p,ZO}^{-1} M_{p,MO} M_{MO} M_{p,MO}^{-1} E_{in} \quad (3.5)$$

À partir de ça, on obtient l'amplitude du champ complexe en sortie sur l'axe horizontal et vertical, donc les composantes $E_{out,1}(t)$ et $E_{out,2}(t)$ du vecteur E_{out} . On recalcule ensuite directement le champ total représentant l'ellipse à tout instant t comme :

$$E_{tot}(t) = \sqrt{(|E_{out,1}| \cos[\omega t + \arg(E_{out,1})])^2 + (|E_{out,2}| \cos[\omega t + \arg(E_{out,2})])^2} \quad (3.6)$$

avec $E_{out,1}$ et $E_{out,2}$ les deux composantes du vecteur E_{out} .

On peut ensuite prendre les deux demi-axes de l'ellipse, et obtenir l'ellipticité pour chaque instant, ainsi que l'intensité en sortie. Soit A_1 et A_2 les deux demi-axes de l'ellipse, on a :

$$\epsilon(t) = \frac{A_1(t)}{A_2(t)} ; I_{out}(t) = \sqrt{A_1(t)^2 + A_2(t)^2} \quad (3.7)$$

Avec ces formules, on calcule le profil d'intensité en sortie des lames ainsi que l'ellipticité, pour tout instant t ainsi que pour toutes les orientations θ_{ZO} et θ_{MO} .

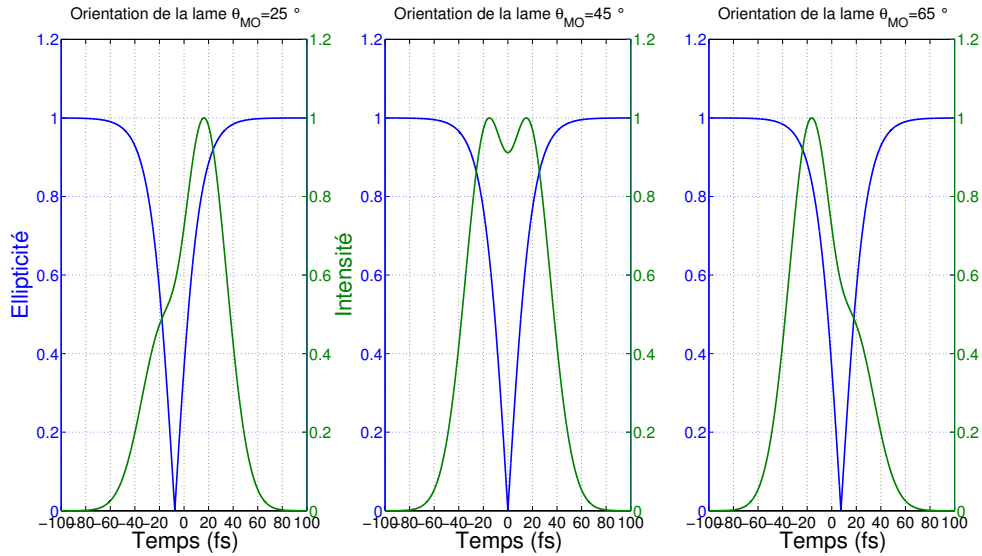


FIGURE 3.5 – Profil d'intensité (vert plein) et ellipticité (bleu plein) en fonction de l'orientation θ_{MO} de la première lame, respectivement $\theta_{MO} = 25^\circ$, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{MO} = 65^\circ$, avec $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$.

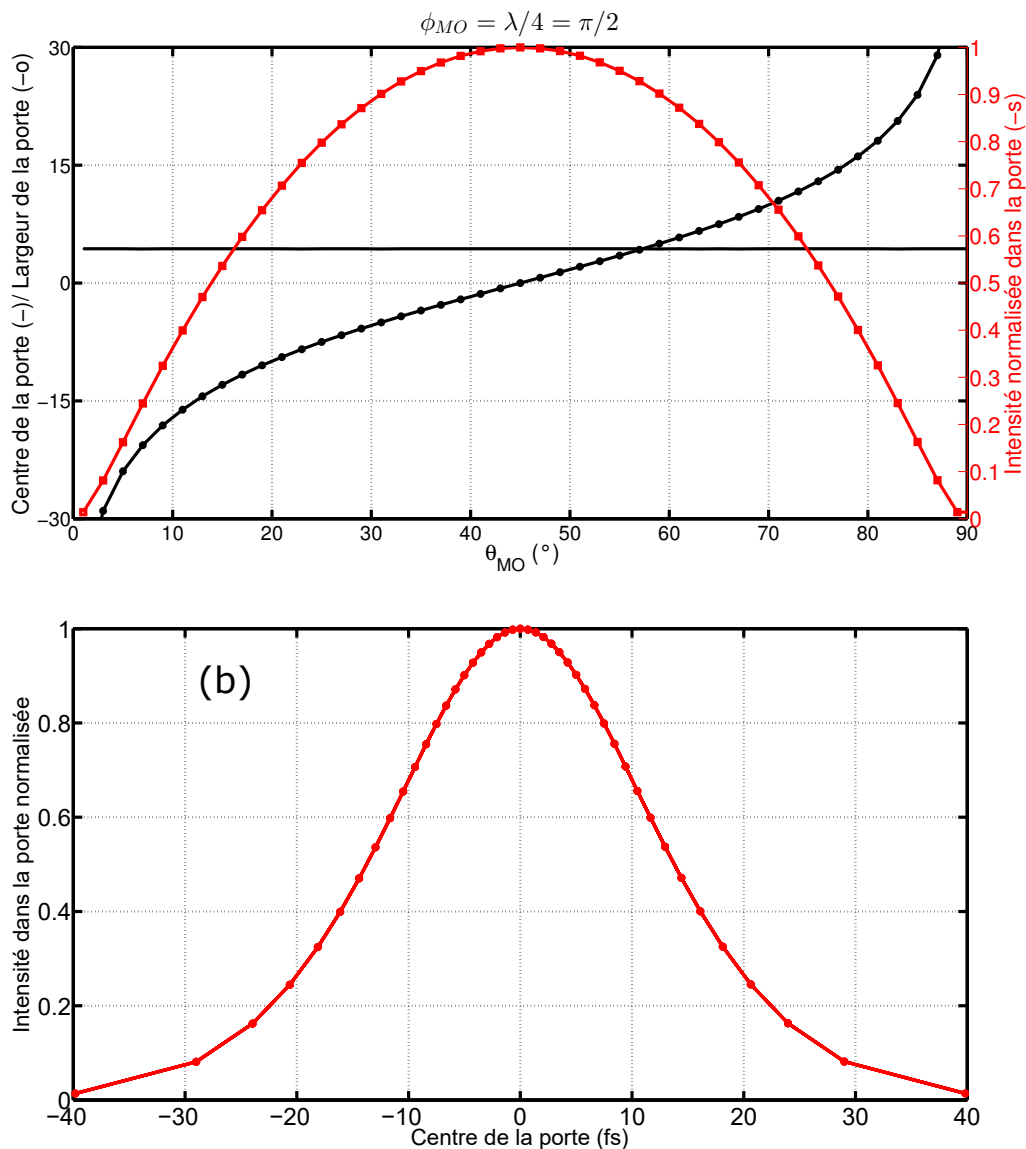


FIGURE 3.6 – (a) Position du centre (noir, symbole rond) et largeur de la porte (noir, symbole carré et ligne continue) et intensité normalisée (par l’intensité maximum dans la porte) au centre de la porte (rouge, symbole croix) en fonction de l’orientation θ_{MO} . La largeur de la porte est constante tandis que la position du centre évolue de manière symétrique par rapport à la position de la porte centrée symétrique ($\theta_{MO} = 45^\circ$). (b) Intensité normalisée dans la porte en fonction de la position de la porte.

En Figure 3.5, on présente l’ellipticité et le profil d’intensité en sortie des deux lames pour 3 orientations θ_{MO} différentes. Les paramètres de la simulation sont donc les différentes matrices de Jones évoquées précédemment, avec une impulsion fondamentale Gaussienne de durée $\tau_{IR} = 30$ fs, un retard introduit de $\delta = 32$ fs, et un déphasage $\frac{\lambda}{4}$ pour les deux lames. Sur ces simulations, on voit que la porte est bien déplacée dans le front montant ou descendant selon l’orientation θ_{MO} , et on retrouve la porte symétrique centrée lorsque que l’on a bien une orientation de $\theta_{MO} = 45^\circ$ avec la première lame. On note que le profil d’intensité en sortie devient asymétrique, ce qui est dû au changement d’amplitude entre les deux répliques de départ. Néanmoins, on peut aussi observer que la porte ne semble pas se déformer pour les 3 orientations. On peut le vérifier en regardant si la porte garde sa largeur en fonction de θ_{MO} et si le

centre de la porte évolue avec θ_{MO} . Ces évolutions sont données en Figure 3.6.

Dans le cas où l'on introduit la dépendance en ordre harmonique de ϵ_{thr} , on aurait alors une largeur de porte légèrement plus basse pour les harmoniques d'ordres les plus élevés. En utilisant par exemple la dépendance en ellipticité mesurée en Figure 3.2, on aurait une porte de $\tau_{gate} = 6.5$ fs pour les harmoniques les plus basses, et $\tau_{gate} = 4.1$ fs pour les harmoniques les plus hautes. Quelle que soit l'orientation θ_{MO} , la durée de la porte ne change pas par calcul. Dans cette situation, on arrive donc à déplacer la porte de polarisation sans la déformer, en la localisant dans le front montant ou le front descendant. Ainsi, il est possible de voir s'il existe d'autres configurations optimales pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés confinée par porte de polarisation. Un exemple direct serait le cas où le milieu serait fortement ionisé dans le front montant de l'impulsion. Déplacer la porte dans le front montant permettrait d'optimiser le signal de génération, tout en conservant les propriétés de confinement temporel (largeur et forme de la porte, figures Figure 3.5 et Figure 3.6).

3.2.2 Mesures expérimentales avec des impulsions "longues"

$\tau_{IR} = 28$ fs

Pour vérifier ceci expérimentalement, on regarde l'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} , tout en gardant 45 degrés entre les axes neutres de la première lame multiordre et de la deuxième lame d'ordre zéro. On part d'une source commerciale laser Ti:Saphir délivrant des impulsions de 30 fs à 5 KHz, à 800 nm. Le faisceau est ensuite guidé dans un capillaire de postcompression, que l'on peut remplir de gaz pour élargir spectralement les impulsions par effet Kerr. Dans un premier temps, le capillaire est pompé jusqu'au vide (10^{-1} mbar) pour éviter de modifier spectralement l'impulsion et rester à une durée proche de celle avant passage dans le capillaire. On profite aussi d'un filtrage spatial du faisceau par le passage de ce capillaire. La durée de l'impulsion est finement ajustée en sortie par combinaison de miroirs chirpés et d'une paire de prismes motorisés en silice fondue. Le montage expérimental est détaillé en Figure 3.7.

Les lames utilisées sont une lame $\frac{\lambda}{4}$ multiordre d'épaisseur $e = 0.850 \mu\text{m}$ qui introduit un délai de 27.3 fs, et une lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro achromatique. On a aussi une lame de calcite épaisse, qui permet de nettoyer la polarisation avant la porte de polarisation. Cette lame de calcite fonctionne comme un polariseur temporel, assurant une polarisation linéaire après transmission. Elle introduit un délai de plus de 500 fs entre ses deux axes. Ainsi, avec une orientation verticale et horizontale pour ses axes, on peut imposer d'avoir une polarisation linéaire en sortie. La génération d'harmoniques d'ordre élevé s'effectue dans une cellule de gaz d'argon, de longueur 6 mm. Le foyer est situé à l'avant de la cellule (≈ 1.5 mm par rapport au centre de la cellule).

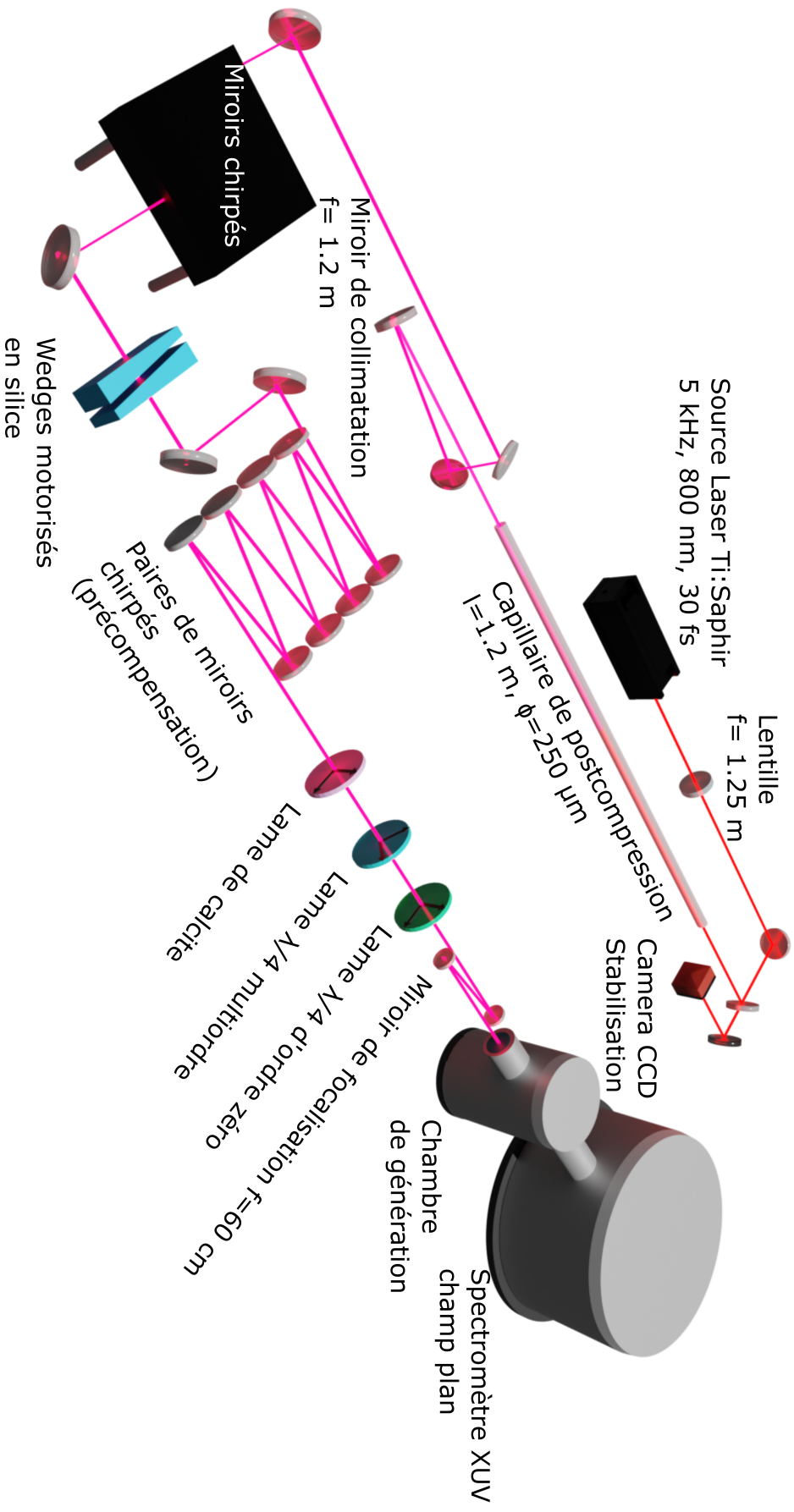


FIGURE 3.7 – Montage expérimental utilisé à l’ILLM. Les lames sont placées juste avant la chambre de génération, avec un miroir de renvoi à incidence quasi normale avant la focalisation par le miroir sphérique. L’angle entre le miroir de renvoi et le miroir de focalisation est gardé aussi petit que possible pour éviter les aberrations.

3.2. Porte de polarisation "asymétrique"

L'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} est représentée sous la forme d'un spectrogramme en Figure 3.8, avec une ligne qui correspond à un spectre harmonique. À partir de la Figure 3.8, on peut déjà voir que l'on obtient la périodicité de 180° pour le signal intégré total et l'évolution du spectre harmonique. On a indiqué les positions où l'on attend la porte centrée symétrique ($\theta_{MO} = 45^\circ_{[90^\circ]}$) en blanc, et les positions où la porte est à l'infini en cyan ($\theta_{MO} = 0^\circ_{[90^\circ]}$). Entre ces deux positions, on retrouve la porte soit dans le front montant, soit dans le front descendant de l'impulsion. Au-delà de l'évolution significative du signal, on voit déjà que le maximum de signal n'est pas à la position où la porte est centrée, mais légèrement décalé. Le pic de signal en Figure 3.8 est décalé de 4° par rapport à la position centrée. Cette position optimale de la porte se trouve décalée dans le front descendant de l'impulsion. Ce décalage vient à l'opposé des conclusions du chapitre précédent, où l'émission était décalée dans le front montant.

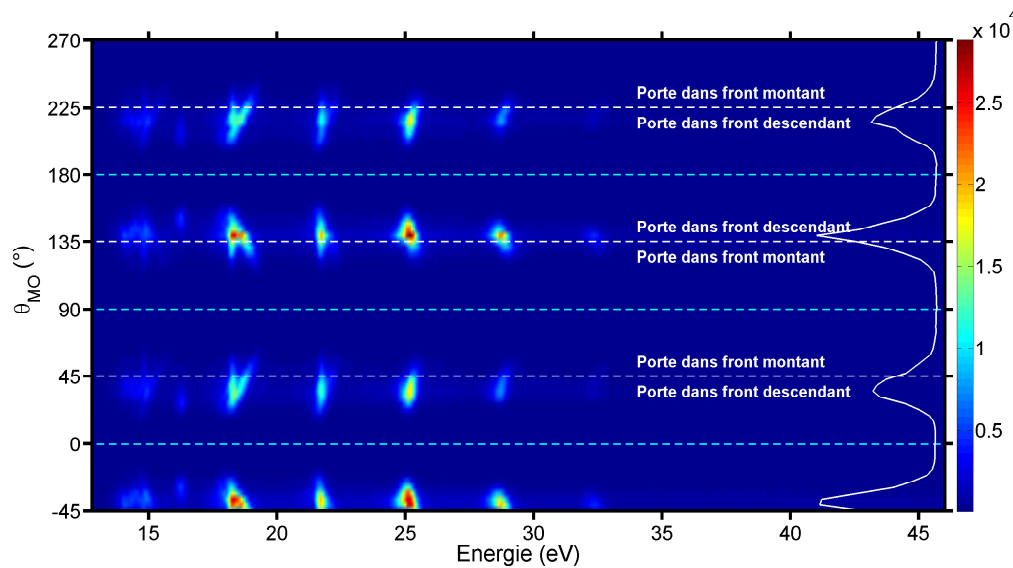


FIGURE 3.8 – Spectrogramme représentant le spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} . La courbe blanche verticale représente le signal intégré total en fonction de θ_{MO} .

Pour mieux visualiser l'évolution des signaux plus faibles, on normalise le spectrogramme de la Figure 3.8 pour chaque harmonique, en divisant par le maximum de signal autour de cet harmonique, et obtenir une normalisation harmonique par harmonique. De cette manière, les plus petits signaux ressortent et on montre le comportement global du spectre harmonique. C'est ce que l'on fait pour obtenir la figure Figure 3.9.

À partir des Figure 3.8 et Figure 3.9, on voit que l'on a des structures harmoniques visibles. Pour certaines (harmoniques les plus basses), on obtient une double structure/un double pic. On remarque aussi que plus l'ordre harmonique est élevé, plus l'énergie centrale de l'harmonique semble être affectée par la position de la porte. Pour le double pic, on obtient une structure qui semble être composée d'un pic très peu affecté par la position de la porte, et le second qui lui est très affecté par la position de la porte. On peut relier cette double structure aux deux trajectoires de la génération d'harmoniques d'ordres élevés : trajectoires longues et trajectoires courtes [136]. Ces trajectoires peuvent être séparées spatialement, notamment pour les harmoniques de plus bas ordre [107]. Pour les harmoniques de la coupure, la notion de trajectoires courtes et longues disparaît et l'on obtient alors une harmonique spatialement homo-

gène sans séparation possible [107].

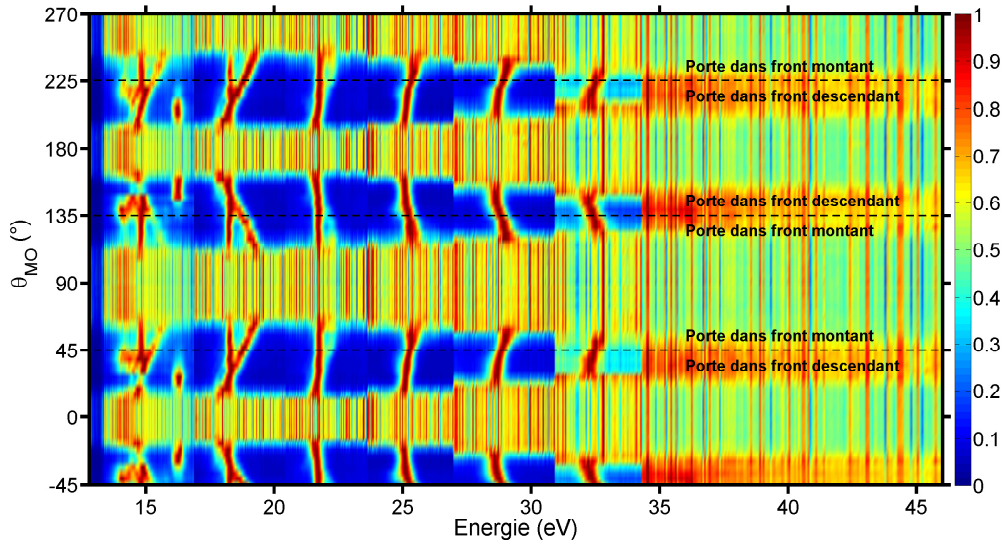


FIGURE 3.9 – Spectrogramme représentant le spectre harmonique en fonction de l’orientation θ_{MO} , normalisée autour de chaque harmonique cette fois.

Pour expliquer ce changement de fréquence centrale qui évolue en fonction de l’ordre harmonique, on se réfère directement à une explication par la phase des harmoniques que l’on produit, qui s’écrit [25, 101, 102] :

$$\phi_q(t) = q\omega_0 t + \alpha_q I \quad (3.8)$$

avec ω_0 la fréquence du fondamental, q l’ordre harmonique, I l’intensité et α_q un coefficient de phase [101]. Par la relation $\omega_q(t) = \frac{\partial \phi_q}{\partial t}$, on obtient :

$$\omega_q(t) = q\omega_0(t) + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t} \quad (3.9)$$

pour α_q indépendant de t . Le terme $\alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$ apparaît directement comme un changement de fréquence des harmoniques avec la dérivée temporelle de $I(t)$.

Ce second terme induit ce changement de fréquence centrale pour les harmoniques, suivant l’instant de génération. Avec le confinement temporel par porte de polarisation, la génération s’effectue à l’intérieur de celle-ci, donc uniquement pour certains instants d’émission, et donc certaines valeurs de $\frac{\partial I}{\partial t}$. Ensuite, en déplaçant de manière continue la porte, soit dans le front montant, soit dans le front descendant de l’impulsion, on aura des valeurs différentes de $\frac{\partial I}{\partial t}$, mais aussi un signe de variation opposé lorsque l’on va voir la porte dans un front ou l’autre. L’évolution en fonction de l’ordre harmonique viendra aussi du fait que le facteur α_q dépend de l’ordre harmonique [104, 105]. Le comportement de ce facteur α_q peut être décrit par un diapason [101, 102, 106], avec une valeur de $\alpha_q \approx 13$ pour le chemin long et le chemin court pour les harmoniques de la coupure, et une valeur de $\alpha_q \approx 21$ pour le chemin long et $\alpha_q \approx 5$ pour le chemin court [137]. Ainsi, en ayant la porte dans le front montant, on devrait avoir $\frac{\partial I}{\partial t} > 0$, donc $\omega_q(t) > q\omega_0(t)$, et donc un décalage vers le bleu de la fréquence centrale. Dans le sens inverse, on aura un décalage vers le rouge pour la porte localisée dans le front descendant de l’impulsion. Ce décalage vers le bleu dans le front montant est directement visible dans les figures Figure 3.8 et Figure 3.9, où le pic harmonique se

décale vers de plus hautes énergies lorsque la porte se situe dans le front montant de l'impulsion.

On peut directement regarder les images spatiospectrales pour expliquer ces double structures qui apparaissent pour les harmoniques de plus bas ordre. Les Figure 3.10 et Figure 3.11 représentent deux images spatiospectrales, pour deux orientations θ_{MO} différentes.

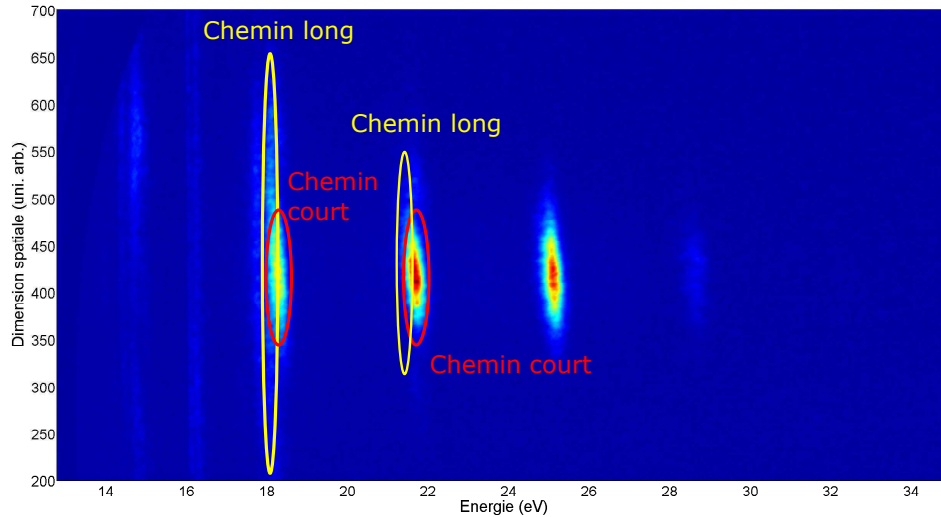


FIGURE 3.10 – Image spatiospectrale pour $\theta_{MO}= 53^\circ$. Les chemins longs et courts sont identifiés en jaune et rouge respectivement, bien visibles pour les harmoniques H11 et H13.

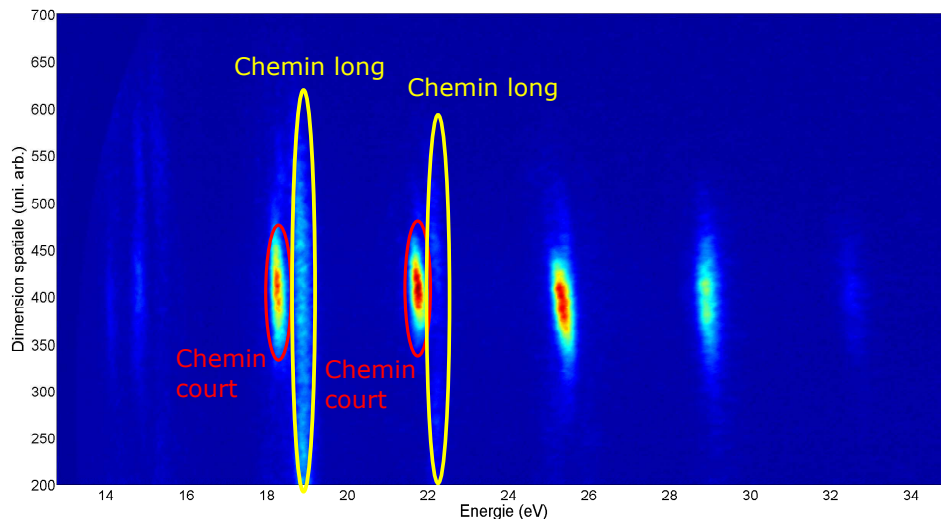


FIGURE 3.11 – Image spatiospectrale pour $\theta_{MO}= 37^\circ$. Les chemins longs et courts sont identifiés en jaune et rouge respectivement, bien visibles pour les harmoniques H11 et H13.

On voit que l'on retrouve cette double structure pour les harmoniques de plus bas ordre, notamment H11 et H13, avec une structure harmonique plus grande spatialement

qui est plus sensible à la position de la porte, qui correspond à la trajectoire longue. L'autre structure qui ne bouge pas avec la position de la porte, et qui est moins étendue spatialement correspond à la trajectoire courte. Cette description des deux trajectoires correspond aux comportements annoncés au niveau spatial et spectral [101, 104, 105, 107].

On s'intéresse maintenant à la valeur de ce décalage spectral, donc à la position des pics harmoniques en fonction de l'orientation θ_{MO} . La position des pics harmoniques en fonction de θ_{MO} est décrite sur la Figure 3.12. D'après la figure Figure 3.12, on obtient un décalage spectral allant de 250 meV pour le chemin court de l'harmonique H11, jusqu'à 600 meV pour l'harmonique H19, avec $\theta_{MO} \in [-59^\circ, -39^\circ]$. Pour le chemin long de H11, on a directement 1.1 eV pour $\theta_{MO} \in [-75^\circ, -27^\circ]$. En prenant le ratio entre les deux pentes pour le chemin court et le chemin long de l'harmonique 11, on obtient un facteur $f = \frac{\alpha_{long,H11}}{\alpha_{court,H11}} 1.1/0.25 = 4.4$. Or, si on regarde les valeurs de α_{11} pour le chemin court et le chemin long pour l'harmonique 11 hors coupure, on obtient en ordre de grandeur ce facteur 4 entre les deux [104, 105]. On a aussi $\alpha_{court,H11} + \alpha_{long,H11} = 26$ (à 800 nm). À partir de ces deux relations, on obtient $\alpha_{court,H11} = 4.8$ et $\alpha_{long,H11} = 21.2$.

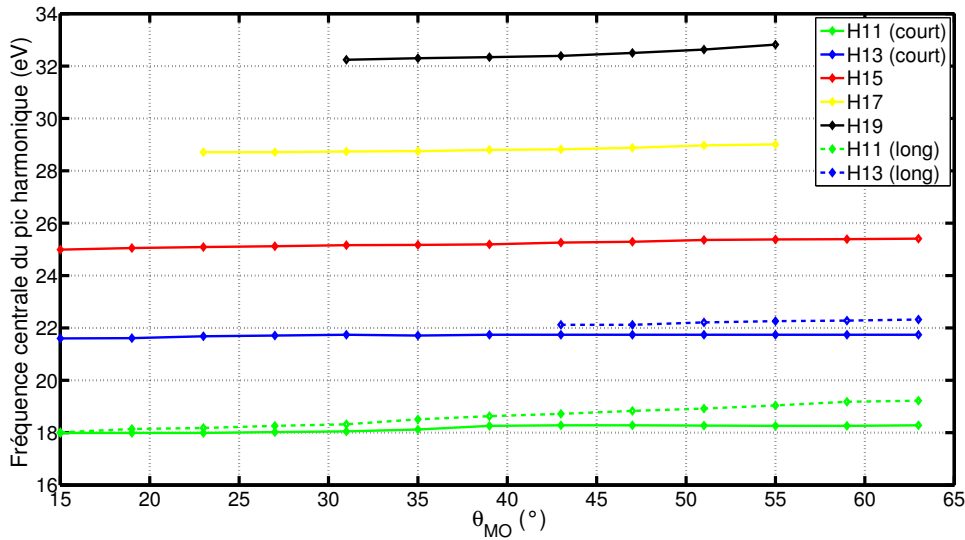


FIGURE 3.12 – Fréquence centrale des harmoniques en fonction de θ_{MO} . On remet l'évolution des chemins longs et courts lorsque c'est possible de les séparer facilement, donc H11 et H13 dans notre cas.

La largeur à mi-hauteur des harmoniques, pour les chemins courts uniquement lorsqu'ils sont séparables des chemins longs, en fonction de l'orientation θ_{MO} , est résumée dans la Tableau 3.3. À partir de ce Tableau 3.3, on peut remarquer que la largeur spectrale à mi-hauteur est quasi-constante avec l'orientation θ_{MO} , et ce quelles que soient les harmoniques. De plus, on remarque une largeur à mi-hauteur qui augmente légèrement en moyenne avec l'ordre harmonique. Ces deux observations sont en accord avec le fait d'une part, de ne pas modifier le confinement temporel donc la forme de la porte (largeur à mi-hauteur quasi constante), et avec l'évolution de la sensibilité des harmoniques à l'ellipticité en fonction de l'ordre des harmoniques trouvée en Figure 3.2 et Figure 3.4 (plus l'ordre harmonique est élevé, plus la sensibilité à l'ellipticité est grande). En supposant que l'élargissement des harmoniques est uniquement dû au confinement temporel par porte de polarisation, on peut extraire une largeur minimale

3.2. Porte de polarisation "asymétrique"

de porte à partir des valeurs moyennes de largeurs à mi-hauteur des harmoniques pour chacune d'elles. Pour une impulsion Gaussienne parfaite, on a la relation suivante (dans le cas d'une impulsion $sech^2$, on a un coefficient 1.978 à la place de $4 \ln(2)$) :

$$\Delta E \Delta t = 4\hbar \ln 2 \Rightarrow \tau_{min} = \frac{4\hbar \ln 2}{\Delta E} \quad (3.10)$$

θ_{MO}	H11	H13	H15	H17	H19
-67 °	400 (± 20)	410 (± 20)	380 (± 30)	n.d	n.d
-63 °	410 (± 20)	380 (± 20)	380 (± 30)	480 (± 40)	n.d
-59 °	420 (± 20)	410 (± 20)	390 (± 30)	470 (± 40)	560 (± 40)
-55 °	450 (± 20)	400 (± 20)	400 (± 30)	560 (± 20)	550 (± 30)
-51 °	380 (± 20)	420 (± 20)	420 (± 30)	490 (± 20)	520 (± 30)
-49 °	350 (± 20)	430 (± 20)	400 (± 30)	480 (± 20)	520 (± 30)
-45 °	420 (± 20)	420 (± 20)	430 (± 30)	490 (± 20)	540 (± 30)
-41 °	400 (± 20)	400 (± 20)	450 (± 30)	540 (± 20)	580 (± 30)
-39 °	370 (± 20)	380 (± 20)	540 (± 30)	570 (± 20)	n.d
-35 °	380 (± 20)	420 (± 20)	580 (± 30)	n.d	n.d
$\langle FWHM \rangle$	398 (± 20)	407 (± 20)	437 (± 30)	510 (± 40)	545 (± 40)

TABLE 3.3 – Largeurs spectrales à mi-hauteur (en meV) des harmoniques en fonction de θ_{MO} (chemins courts) et valeur moyenne sur la gamme étudiée. La largeur est quasi-constante pour chaque harmonique (n.d veut dire que le pic n'apparaît pas assez visiblement pour mesurer une largeur à mi-hauteur).

En faisant l'application numérique de l'équation Équation (3.10), on peut alors estimer la largeur minimale de la porte pour chacune des harmoniques, avec ΔE la largeur à mi-hauteur moyenne des harmoniques. On compare aussi cette largeur à la largeur théorique que l'on peut trouver pour la porte avec l'Équation (3.2). On a comme durée d'impulsion $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs. On prend les ellipticités critiques du tableau Tableau 3.2.

θ_{MO}	H11	H13	H15	H17	H19
$\langle FWHM \rangle$	398 (± 20)	407 (± 20)	437 (± 30)	510 (± 40)	545 (± 40)
τ_{gate} (gauss, fs)	4.3 (± 0.3)	4.3 (± 0.3)	3.9 (± 0.3)	3.4 (± 0.3)	3.18 (± 0.2)
τ_{gate} ($sech^2$, fs)	3.1 (± 0.2)	3.0 (± 0.2)	2.8 (± 0.2 fs)	2.4 (± 0.2)	2.3 (± 0.2)
τ_{gate} (théo, fs)	6.2 (± 0.2)	5.4 (± 0.2)	4.7 (± 0.2)	4.6 (± 0.2)	4.2 (± 0.2)

TABLE 3.4 – Largeurs spectrales à mi-hauteur moyennes (en meV) des pics harmoniques en fonction de θ_{MO} et largeurs de porte associées par les Équation (3.2) (Gaussienne et $sech^2$) et Équation (3.10)[2].

On trouve le même ordre de grandeur de durée de porte pour les impulsions Gaussiennes et la mesure extraite de la largeur à mi-hauteur des harmoniques, avec une porte légèrement plus courte en utilisant la largeur spectrale à mi-hauteur. Cela peut être dû aux incertitudes sur les différentes grandeurs que l'on introduit pour les calculs (incertitudes sur la durée τ_{IR} , sur le délai exact δ ou encore sur ϵ_{thr}). On peut aussi mentionner le fait que les impulsions XUV ne sont pas forcément Gaussiennes parfaites, ce qui donne un coefficient pour $\Delta E \Delta t$ légèrement différent, et donc une largeur de

porte légèrement différente. Enfin, il est possible que la largeur à mi-hauteur ne soit pas uniquement due au confinement temporel. Par exemple, on peut avoir des effets d'élargissement spectral par effet d'ionisation ou de propagation de l'infrarouge dans le milieu, ou encore avec le chirp harmonique. La largeur de la porte que l'on estime de manière spectrale est uniquement une largeur minimale compatible.

3.2.3 Comparaison avec des simulations : dipole modèle et simulations SFA

Pour pouvoir avoir un élément de comparaison, nous avons cherché à reproduire les résultats au travers de différentes simulations, plus ou moins simples. La première méthode consistait à combiner les simulations d'ellipticité et intensité que l'on avait avec les matrices de Jones et d'y ajouter une simulation de dipôle modèle avec fonction d'efficacité pour l'émission harmonique. Avec le profil d'intensité en sortie des deux lames, on calcule le dipôle harmonique via :

$$E(t) = \sum_q \{ \text{Re}(G(\epsilon, q) \exp(iq(-\omega_0 t) - \alpha_{cc} I(t)) I(t)^{q_{eff}}) + \text{Re}(G(\epsilon, q) \exp(iq(-\omega_0 t) - \alpha_{cl} I(t)) I(t)^{q_{eff}}) \}$$

avec $G(\epsilon, q)$ la fonction d'efficacité correspondant à la porte, $I(t)$ le profil d'intensité IR en sortie des deux lames, α_{cc} et α_{cl} respectivement les valeurs de α_q pour le chemin court et le chemin long, et q_{eff} la fonction d'efficacité globale (ici $q_{eff} = 2.5$ [107]).

La fonction d'efficacité $G(\epsilon, q)$ prend la forme :

$$G(\epsilon, q) = \exp\left(-\ln 2 \frac{\epsilon^2}{\epsilon_{thr}^2}\right) \quad (3.11)$$

Une fois le champ $E(t)$ calculé, on peut directement extraire le spectre harmonique en prenant la transformée de Fourier de ce champ, et en calculant l'intensité. On aura donc :

$$Sp(\omega) = \tilde{I}(\omega) = \tilde{E}(\omega) \tilde{E}(\omega)^* \quad (3.12)$$

En mettant l'amplitude de la contribution du chemin court ou du chemin long à zéro, on peut isoler les contributions d'une trajectoire ou l'autre, et donc simuler le comportement du spectre pour chacune des deux trajectoires de manière distincte. Ces deux contributions sont représentées en Figure 3.13 et Figure 3.14. Les valeurs d'ellipticité critique sont celles utilisées avec les impulsions les plus longues dans le Tableau 3.2. Les valeurs de α_q choisies sont données dans le Tableau 3.5.

	H9	H11	H13	H15	H17	H19	H21	H23	H25	H27
α_{CC}	3	5	7	8	9	10	11	11	13	13
α_{CL}	23	21	19	18	17	16	15	15	13	13

TABLE 3.5 – Valeurs de α pour les deux trajectoires utilisées pour les simulations avec le dipôle modèle

Les valeurs de largeur de porte obtenues par les simulations avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs sont données dans le Tableau 3.6 .

- Dans ces simulations, on retrouve les caractéristiques des spectres expérimentaux :
- Un déplacement de la fréquence centrale avec le déplacement de la porte, dû au terme $\alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$.

3.2. Porte de polarisation "asymétrique"

	H9	H11	H13	H15	H17	H19	H21	H23	H25	H27
τ_{gate}	6.1	6.1	5.4	4.7	4.6	4.2	3.8	3.8	3.9	3.9

TABLE 3.6 – Valeurs de τ_{gate} obtenues via les simulations avec ϵ_{thr} venant des valeurs de Tableau 3.2.

- Une largeur à mi-hauteur quasi-constante pour les harmoniques, quelle que soit l'orientation θ_{MO} qui correspond à une largeur de porte qui ne varie pas.
- Un signal intégré pour chaque harmonique, qui varie périodiquement (périodicité de 180°)

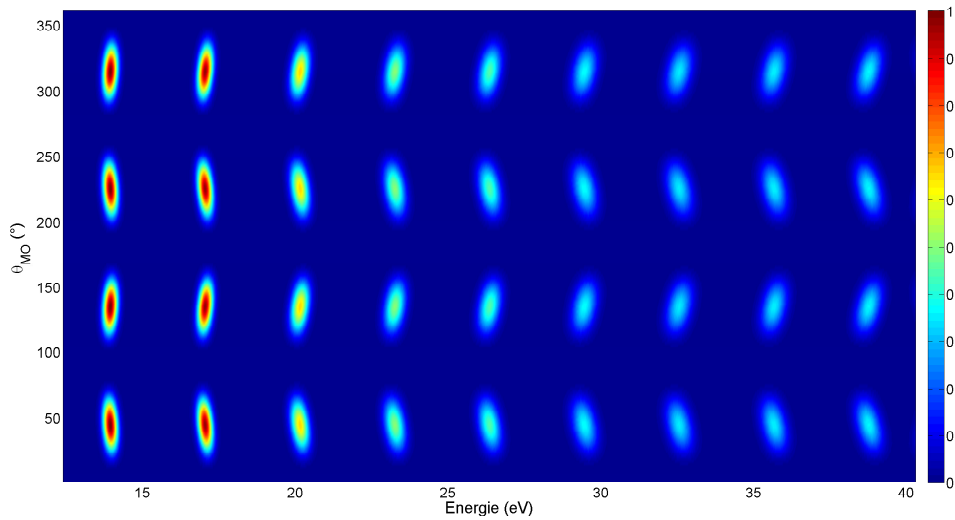


FIGURE 3.13 – Simulations de la contribution du chemin court dans le spectre harmonique via le dipôle modèle avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs.

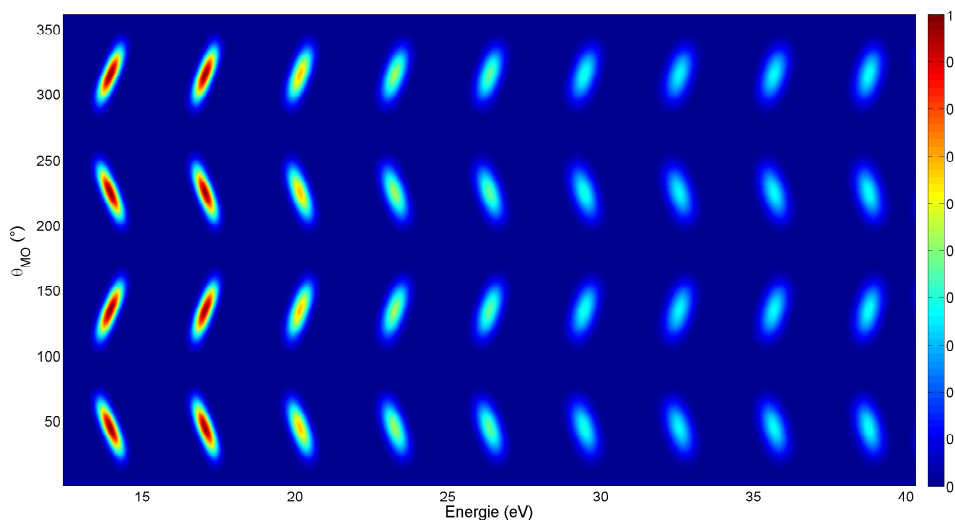


FIGURE 3.14 – Simulations de la contribution du chemin long dans le spectre harmonique via le dipôle modèle avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs.

Si l'on vient comparer les largeurs à mi-hauteur des simulations avec les largeurs à

mi-hauteur moyennes que l'on a trouvé expérimentalement, on obtient les comparaisons entre les largeurs spectrales à mi-hauteur retranscrites dans le Tableau 3.7.

	H11	H13	H15	H17	H19
$\langle FWHM \rangle (exp)$	398 (± 20)	407 (± 20)	437 (± 30)	510 (± 40)	545 (± 40)
$\langle FWHM \rangle (simu)$	388	475	544	578	633

TABLE 3.7 – Valeurs de τ_{gate} obtenues via les simulations avec ϵ_{thr} venant des valeurs de Tableau 3.2 (série avec $\tau_{IR} = 27$ fs).

On retrouve le même ordre de grandeur, mais dans les simulations, une largeur à mi-hauteur légèrement plus haute que celles retrouvées dans les expériences. Cela peut venir des incertitudes sur les grandeurs expérimentales, comme sur τ_{IR} , δ ou encore ϵ_{thr} . Les simulations en Figure 3.16 montrent aussi que la largeur spectrale des contributions des trajectoires longues sont légèrement plus élevées que celles des trajectoires courtes. Le chirp harmonique a donc un impact là aussi. On peut aussi regarder les variations en énergie centrale avec l'orientation θ_{MO} , qui sont décrites en Figure 3.17.

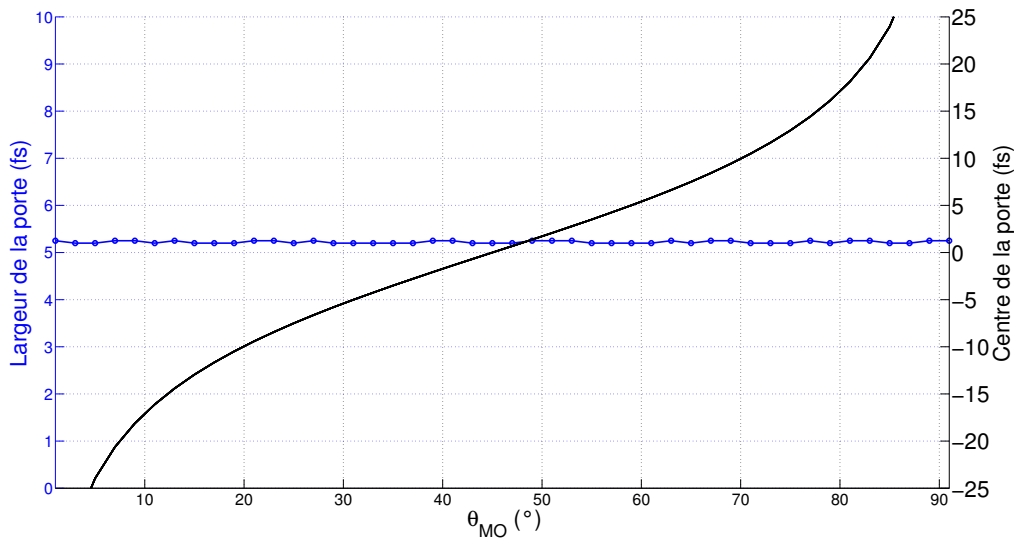


FIGURE 3.15 – Simulations du centre de la porte et de sa largeur (pour H13), avec $\tau_{IR} = 28$ fs et $\delta = 27$ fs.

On reproduit bien le comportement global des deux trajectoires qui se rejoignent dans la coupure, avec un décalage en énergie centrale qui devient de plus en plus similaire entre les deux trajectoires avec l'ordre harmonique, ce que l'on voit expérimentalement dans les figures Figure 3.8 et Figure 3.9. On retrouve une variation d'énergie centrale de l'ordre de 250 meV pour l'harmonique 11 (chemin court) sur 45° , mais 650 meV pour le chemin long. En comparaison, on avait 250 meV pour le chemin court de H11 expérimentalement, mais 1.1 eV pour le chemin long. Pour les harmoniques 13, 15, 17 et 19, on trouve respectivement les décalages en énergie suivants pour une variation de θ_{MO} de 48° (expérimentalement) : 200 meV, 420 meV, 300 meV et 550 meV. Par les simulations, on trouve respectivement : 200 meV, 250 meV (chemin court) & 520 meV (chemin long), 280 meV (chemin court) et 500 meV (chemin court).

On reproduit ces décalages spectraux de manière assez fidèle via le dipole modèle avec nos valeurs de α_q choisies précédemment. Néanmoins, dans les simulations, le signal

intégré total maximum se trouve toujours autour de la position centrée symétrique pour la porte ($\theta_{MO} = 45^\circ \pm 90^\circ$) et non pas décalé comme on peut le voir expérimentalement. Ce décalage peut être dû à d'autres effets, comme l'ionisation [138] ou les effets de propagation.

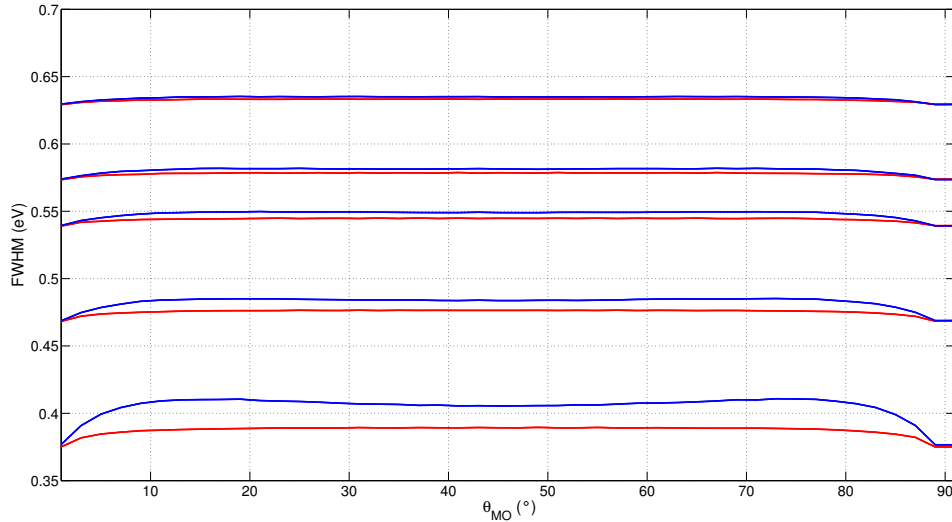


FIGURE 3.16 – Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques H11 à H19 sur un cadran $\theta_{MO} \in [0 : 90]^\circ$, pour le chemin court (trait plein rouge) et pour le chemin long (trait plein bleu).

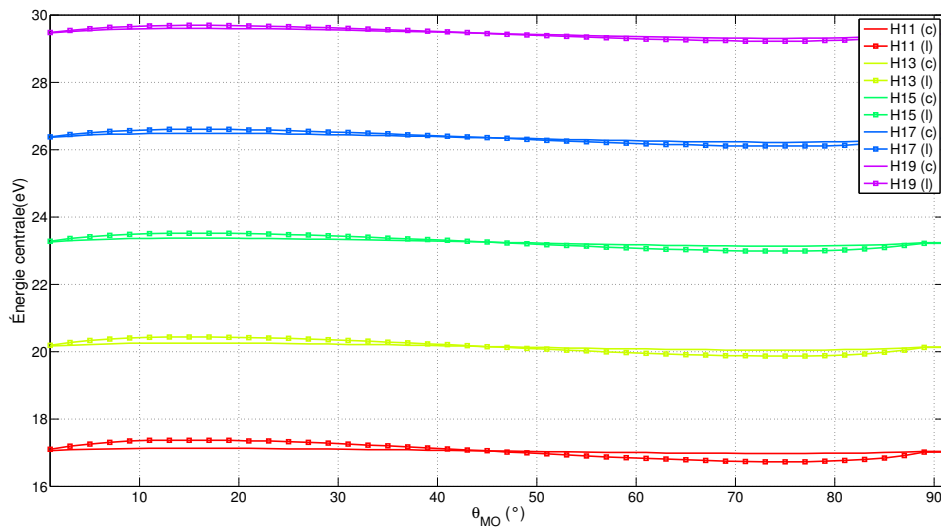


FIGURE 3.17 – Variations de l'énergie centrale des harmoniques H11 à H19 pour les deux trajectoires longues (symboles) et courtes (trait plein) en fonction de θ_{MO} .

Pour utiliser des modèles plus complets et plus performants, nous avons collaboré avec le CELIA de Bordeaux pour effectuer des simulations à l'aide du modèle SFA (Strong Field Approximation) [46, 139, 140], qui permet d'étudier la réponse de l'atome unique pour la génération d'harmoniques en y introduisant nos conditions de génération avec la porte de polarisation. Les simulations reposent sur l'évaluation numérique de

l'intégrale de Lewenstein [46] via les points selles. On donne l'intégrale de Lewenstein :

$$D(t) = -2 \operatorname{Im} \left(\int_0^t dt' d(k_0 + A(t')) E(t') \left(\frac{-2\pi i}{t-t'} \right)^{\frac{3}{2}} e^{-iS(k_0, t, t')} d^*(k_0 + A(t)) \right) \quad (3.13)$$

Avec le dipôle $d(p)$ s'écrivant :

$$d(p) = \frac{-i2^{\frac{1}{4}} I_p^{-\frac{1}{4}} p}{\pi(p^2 + 2I_p)^2} \quad (3.14)$$

Cette équation donne directement l'évolution du dipôle électrique en fonction du temps, via l'excitation d'un électron dans le continuum. Le terme $d^*(k_0 + A(t))$ représente la recombinaison vers l'état fondamental, le terme $E(t') \left(\frac{-2\pi i}{t-t'} \right)^{\frac{3}{2}} e^{-iS(k_0, t, t')}$ la propagation dans le continuum et $d(k_0 + A(t'))$ la transition de l'état fondamental vers le continuum. On cherche donc à évaluer cette intégrale numériquement. On se limite aux points qui minimisent l'action $S(k_0)$. Ainsi, on doit aussi satisfaire la condition suivante :

$$\Delta S(k_0) = 0 \Rightarrow k_0 = \frac{-1}{t-t'} \int_{t'}^t A(t'') dt'' \quad (3.15)$$

Les simulations via ce modèle avec les conditions $\tau_{IR} = 31$ fs, $\delta = 33$ fs et $I = 1.6 \times 10^{14}$ W.cm⁻² sont représentés en Figure 3.18.

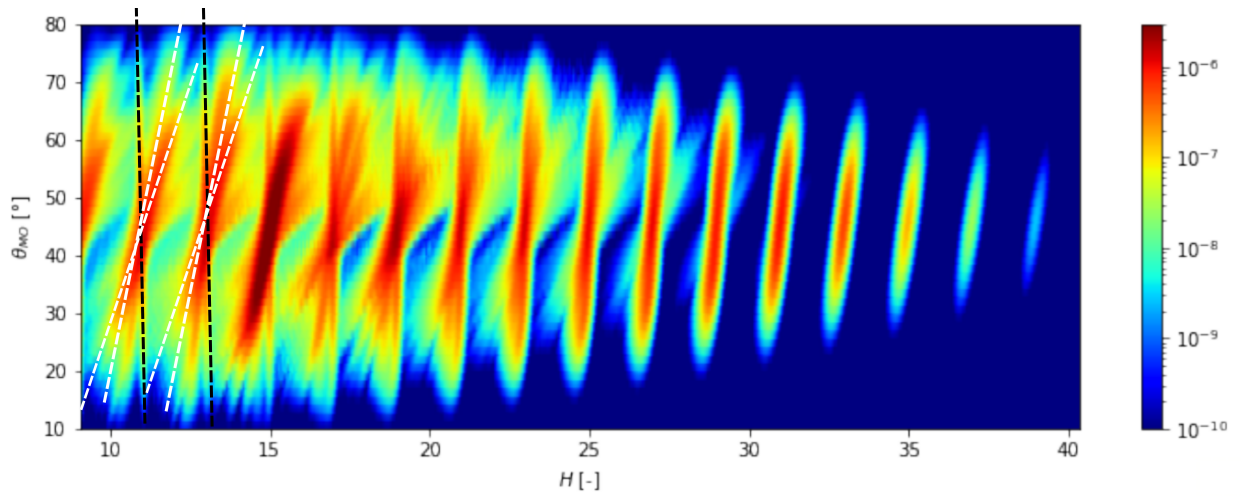


FIGURE 3.18 – Simulations via le modèle SFA de l'évolution du spectre harmonique en fonction de θ_{MO} . Ici, les contributions des trajectoires longues et courtes sont présentes. Les pointillés marquent les différentes structures qui apparaissent à l'intérieur de chaque harmonique

On peut voir sur la Figure 3.18 que l'on retrouve les évolutions temporelles que l'on observe sur les données expérimentales en Figure 3.9. En regardant notamment les harmoniques les plus basses, on retrouve une structure tiltée pour chaque harmonique. Cette structure est multiple pour chaque harmonique du plateau. On a une partie de l'harmonique qui est très peu/pas affectée par l'orientation θ_{MO} . Elle se recouvre avec de multiples traits de plus en plus penchés, très affectés par l'orientation de la première lame. Ces doubles structures correspondent directement aux trajectoires longues (très tiltées) et courtes (peu tiltées) pour la génération d'harmoniques. On remarque aussi une spécificité supplémentaire sur les simulations de la Figure 3.18, au niveau du

nombre de structures pour les trajectoires longues. En effet, pour une harmonique, on distingue plusieurs structures, dont la pente en énergie évolue avec la structure. On peut expliquer ces structures comme étant toujours dûes aux trajectoires longues, mais uniquement visibles en détectant les contributions des quelques cycles. La valeur de $\alpha_q I$ pour le chemin long va changer d'un cycle à l'autre, entraînant une pente en énergie différente à chaque cycle supplémentaire contribuant à la structure harmonique. Plus globalement, on voit que lorsque que l'on va vers les harmoniques les plus hautes, on retrouve le fait de ne plus pouvoir distinguer l'évolution du chemin long et du chemin court, ce qui se traduit aussi par la diminution du nombre de structures présentes pour le chemin long également. La raison pour laquelle nous n'observons pas ces effets de cycles sur les données expérimentales en Figure 3.9 peut donc être expliqué par le fait que l'on a fait ces mesures sans avoir une stabilisation de la CEP. On observe alors une contribution moyenne sur les quelques cycles, plutôt que les différentes contributions pour chaque cycle.

3.2.4 Utilisation d'impulsions plus courtes, de durée $\tau_{IR} = 16.5$ fs

On effectue la même expérience, mais avec des impulsions de plus courtes durées, en allant vers des durées de quelques cycles optiques (avec un cycle optique de 2.66 fs à 800 nm). En reprenant cette équation, le passage à des impulsions courtes devrait permettre d'avoir une dérivée de l'intensité plus forte, car l'intensité varie plus fortement avec t . De ce fait, le terme $\alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$ doit avoir un impact plus prononcé avec des impulsions plus courtes qu'avec des impulsions longues (comme montré précédemment). Le principe reste le même qu'avec l'expérience précédente, sauf que l'on vient remplir le capillaire de postcompression avec du néon, permettant d'élargir spectralement les impulsions fondamentales par effet Kerr optique.

Ici, avec le même montage expérimental, en mettant 450 mbar de Néon dans le capillaire de postcompression, on obtient des impulsions d'une durée $\tau_{IR} = 16.5$ fs. On construit la porte avec une lame multiordre de délai 16.5 fs ($e = 513 \mu\text{m}$), et la même lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro achromatique. On effectue là aussi un tour complet, avec toujours 45° entre les axes neutres des deux lames. L'orientation θ_{MO} reste la variable pour définir la position des deux lames. On génère les harmoniques dans une cellule d'Argon, avec $P = 25$ mbar. On obtient le spectrogramme en Figure 3.19.

En normalisant de la même manière que dans la partie Section 3.2.2 (harmonique par harmonique), on obtient la carte normalisée en Figure 3.20. On peut voir sur les Figure 3.19 et Figure 3.20 que l'on retrouve la périodicité de 180° des structures harmoniques comme dans les expériences avec les impulsions de $\tau_{IR} = 30$ fs. Là aussi, pour observer les décalages en énergie, on normalise harmonique par harmonique pour mieux observer les signaux les plus faibles. Pour l'évolution du signal intégré total, le maximum de signal est centré respectivement aux graduations : 40° , 130° , 220° et 312° . Comme dit précédemment, on attend, dans le cas purement symétrique sans ionisation, un signal maximum pour la position porte étroite centrée, pour $\theta_{MO} = 45^\circ$. Ici, on a donc à nouveau un décalage, qui est de 4° .

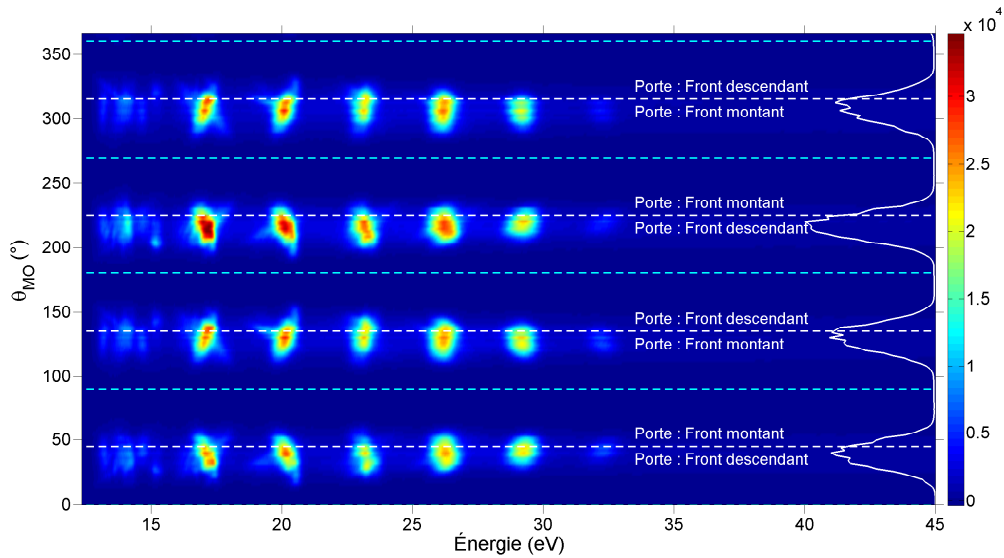


FIGURE 3.19 – Spectrogramme en fonction de l’orientation θ_{MO} avec 45° entre les axes neutres des deux lames. L’évolution du signal intégré total (intégré sur tout le spectre et toute la dimension spatiale) est remise en vertical avec la courbe blanche.

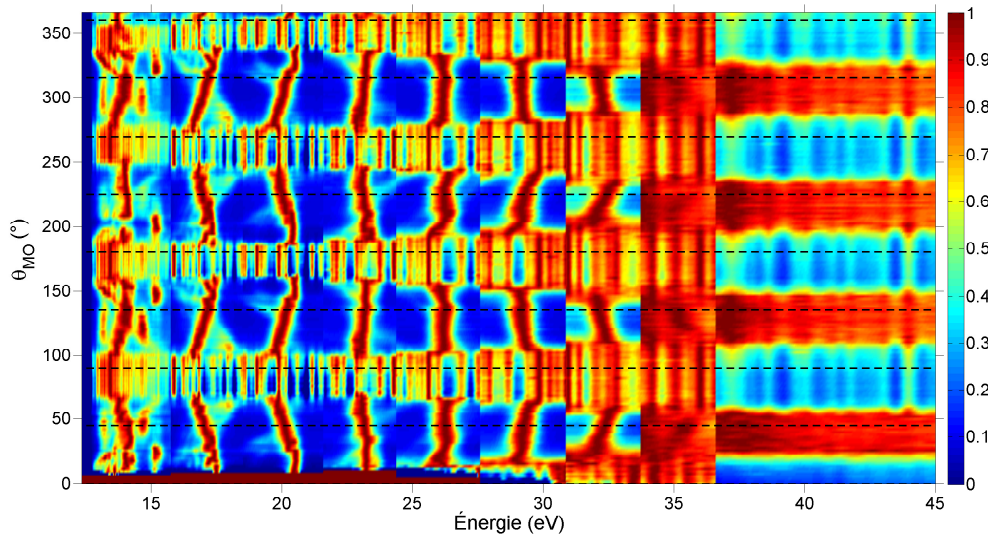


FIGURE 3.20 – Spectrogramme normalisé harmonique par harmonique des spectres harmoniques en fonction de l’orientation θ_{MO} avec 45° entre les axes neutres des deux lames.

On observe aussi l’évolution du signal intégré pour chaque harmonique. Elle est obtenue en intégrant le signal sur toute la dimension spatiale pour chaque spectre harmonique, en définissant une zone en énergie pour chacune des harmoniques pour laquelle on intègre. Ces évolutions sont présentées en Figure 3.21.

On observe un décalage dans le pic des signaux intégrés, car ils sont maximum à des θ_{MO} séparés. Une façon de le voir est d’observer à quel moment le signal est à mi-hauteur pour chaque harmonique. Dans la partie $\theta_{MO} \in [0^\circ : 45^\circ]$, on peut voir que l’on a cette séparation pour les différentes harmoniques.

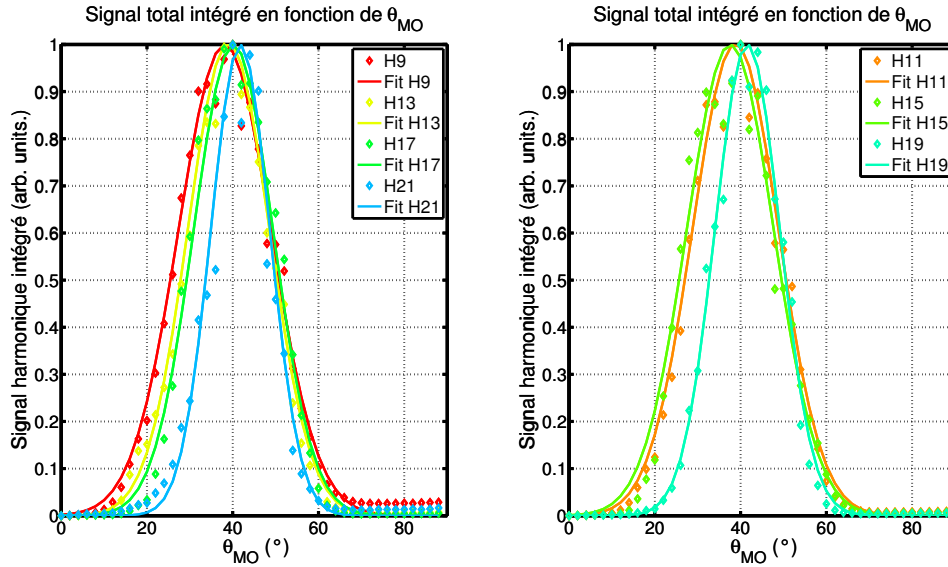


FIGURE 3.21 – Évolution du signal intégré harmonique par harmonique en fonction de θ_{MO} , avec $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. On regarde les positions du pic en ajustant par une Gaussienne. On retranscrit l'évolution de la position des différents pics dans le tableau

On remet la position des différents pics de signal intégré que l'on obtient avec l'ajustement Gaussien :

	H9	H11	H13	H15	H17	H19	H21
$\theta_{MO}^q(^{\circ})$	38.1	38.8	39.1	37.5	40.1	41.6	41.8

TABLE 3.8 – Positions des pics de signal pour chaque harmonique à partir des Figure 3.19 et Figure 3.20.

L'évolution de la position des pics de signaux intégrés en fonction de l'ordre harmonique est donnée en Tableau 3.8. On remarque que de l'harmonique H9 à l'harmonique H21, le pic de signal est de plus en plus décalé vers la position $\theta_{MO} = 45^\circ$. En tournant θ_{MO} pour ramener la porte de polarisation vers $\theta_{MO} = 45^\circ$, on fait remonter la porte vers le centre de l'impulsion et l'on change l'intensité dans la porte. En changeant l'intensité dans la porte, on limite l'émission de certaines harmoniques. Ici, lorsque la porte remonte vers le centre de l'impulsion, l'intensité à l'intérieur de la porte augmente graduellement, donc les harmoniques d'ordres de plus en plus élevés peuvent être générées. Lorsque l'intensité dans la porte n'est pas suffisante pour générer l'harmonique, le signal intégré associé est nul. En suivant cette logique, le décalage que l'on voit dans les pics de signal intégré est une signature supplémentaire du fait que l'on déplace la porte, en voyant apparaître les harmoniques à différentes orientations θ_{MO} , donc pour différentes intensités dans la porte. Il y a une asymétrie présente entre la partie gauche de la courbe ($\theta_{MO} < \theta_{MO}^q$, porte dans le front montant) et la partie droite ($\theta_{MO} > \theta_{MO}^q$, porte dans le front descendant), et ceci pour toutes les harmoniques.

On s'attend à une symétrie dans l'évolution du signal intégré, et ceci pour chacune des harmoniques, lorsque l'on regarde les simulations pour le signal intégré. Lorsque la porte est dans le front montant de l'impulsion, on balaye les différentes intensités avec la porte. On observe le pic de signal pour chaque harmonique lorsque l'on a une

intensité dans la porte qui atteint l'intensité seuil de génération de l'harmonique. Ces observations correspondent à la description avec la réponse de l'atome unique.

Lorsque la porte se situe dans le front descendant, au contraire, on peut avoir des effets d'ionisation du milieu par le front montant, ou des effets de déplétion des atomes, si on a une intensité suffisante. Ainsi, lorsque l'on déplace la porte dans le front descendant, on a une génération qui peut être limitée par le fait que le nombre d'atomes générateurs est réduit par l'ionisation [138], par des effets de propagation ou de désaccord de phase [109]. On voit alors que le signal disparaît plus rapidement avec θ_{MO} , d'où l'asymétrie que l'on observe dans les signaux en Figure 3.21. On observe la situation inverse pour la partie $[45 : 90]^\circ$, avec le signal intégré de chaque harmonique disparaît quasiment au même moment.

À nouveau l'évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques en fonction de θ_{MO} permet d'estimer la largeur minimale de la porte de polarisation et de quantifier son évolution.

La Figure 3.22 montre une largeur à mi-hauteur des harmoniques qui varie très peu avec l'orientation θ_{MO} .

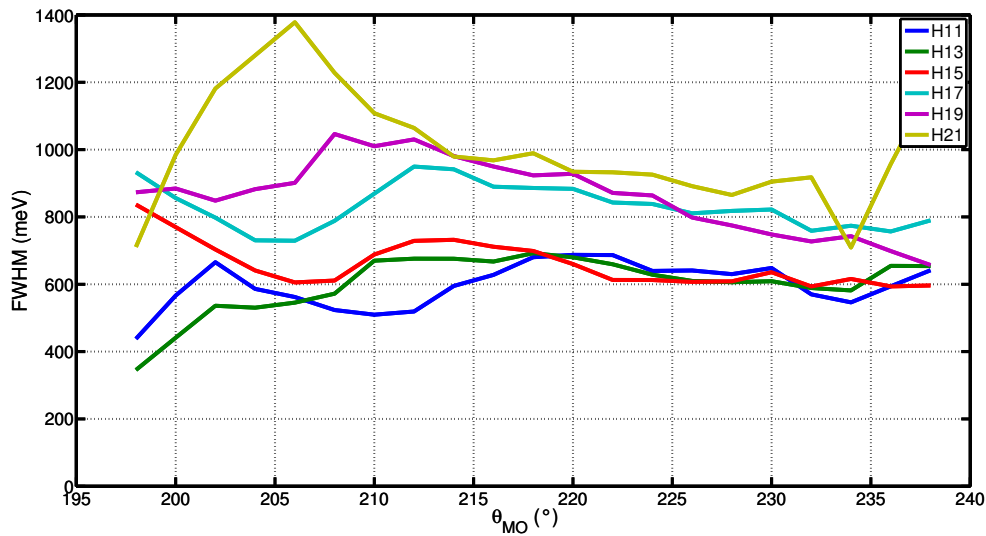


FIGURE 3.22 – Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur pour les harmoniques H11 à H21 en fonction de θ_{MO} . On se focalise uniquement dans un cadran, avec une gamme où le signal de l'harmonique reste au dessus de 10% du signal maximum.

L'évolution observée en Figure 3.22 est cohérente avec le fait que le confinement temporel reste le même malgré le déplacement de la porte, et on retrouve le même comportement que pour l'expérience avec les impulsions de $\tau_{IR} = 28$ fs. On voit aussi que la largeur spectrale à mi-hauteur augmente graduellement avec l'ordre harmonique. De la même manière, on estime une largeur de porte minimale à partir de la valeur moyenne des largeurs spectrales à mi-hauteur, et on peut comparer à la durée de la porte simulée et à celle calculée avec Équation (3.2). Ces différentes valeurs sont récapitulées dans le Tableau 3.9.

On se retrouve dans la même situation qu'avec les impulsions de $\tau_{IR} = 28$ fs, avec le même ordre de grandeur pour la durée de la porte entre celle que l'on extrait à partir des données expérimentales et celles que l'on calcule à partir de Équation (3.2) ou via les simulations avec les matrices de Jones. On a toujours une durée théorique qui est légèrement supérieure à celle que l'on estime par la largeur spectrale à mi-hauteur

3.2. Porte de polarisation "asymétrique"

des harmoniques. Néanmoins, les calculs théoriques/simulés sont en accord avec les observations expérimentales.

	H11	H13	H15
$\langle FWHM \rangle$ (meV)	600 (± 20)	600 (± 20)	660 (± 30)
τ_{gate} (gauss)	3.1 (± 0.2 fs)	3.1 (± 0.2 fs)	2.80 (± 0.3 fs)
τ_{gate} (sech ²)	1.9 (± 0.2 fs)	1.9 (± 0.2 fs)	1.8 (± 0.2 fs)
τ_{gate} (théo)	3.9 (± 0.4 fs)	3.2 (± 0.4 fs)	2.9 (± 0.3 fs)
τ_{gate} (simu)	4	3.9	3.2
	H17	H19	H21
$\langle FWHM \rangle$ (meV)	830 (± 40)	860 (± 40)	1000 (± 50)
τ_{gate} (gauss)	2.20 (± 0.2 fs)	2.10 (± 0.2 fs)	1.82 (± 0.2 fs)
τ_{gate} (sech ²)	1.4 (± 0.2 fs)	1.4 (± 0.20 fs)	1.2 (± 0.1 fs)
τ_{gate} (théo)	2.7 (± 0.3 fs)	2.40 (± 0.3 fs)	2.4 (± 0.3 fs)
τ_{gate} (simu)	2.9	2.7	2.5

TABLE 3.9 – Récapitulatif des largeurs spectrales à mi-hauteur moyennes (en meV) et des durées de porte calculées (en fs à partir de Figure 3.20, Équation (3.2) et calculées avec les simulations via les matrices de Jones.

Sur les Figure 3.19 et Figure 3.20, l'énergie centrale des pics harmoniques change avec l'orientation θ_{MO} , avec des évolutions différentes pour chacune des harmoniques. En comparant avec la situation précédente (Figure 3.8 et Figure 3.9), on remarque directement que même pour les harmoniques les plus basses, on voit déjà un décalage, sans double structure très apparente. Comme expliqué dans la partie précédente, le fait d'avoir ce décalage en énergie en fonction de l'orientation θ_{MO} , avec une périodicité de 180 °, est une signature du déplacement dans la porte dans le profil d'intensité. De la même manière, on estime ces décalages en énergie pour cette série de mesure en Figure 3.23.

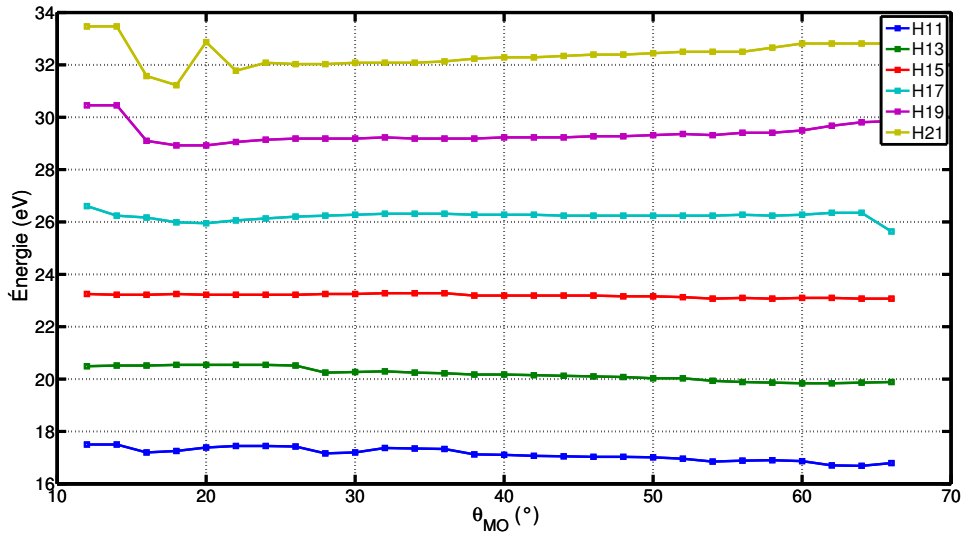


FIGURE 3.23 – Énergies centrales des pics harmoniques pour H11 à H21 en fonction de l'orientation θ_{MO} .

En termes de décalages en énergie, on obtient pour une gamme de 60° d'orientation θ_{MO} les décalages en énergie en Tableau 3.10.

	H11	H13	H15	H17	H19	H21
$\Delta E(meV)$	-710	-600	-180	130	740	1300

TABLE 3.10 – Décalages en énergies pour les harmoniques H11 à H21 pour θ_{MO} entre 10° et 70° .

En comparaison avec l'expérience utilisant des impulsions de $\tau_{IR} = 28$ fs, on note une claire augmentation des décalages en énergies, avec un facteur 2 voir 3 sur le décalage en énergie si l'on compare les harmoniques basses et les harmoniques hautes. Néanmoins, on peut noter un changement supplémentaire sur cette série expérimentale. En effet, le sens de variation de l'énergie centrale des harmoniques à l'intérieur même d'un cadran de 90° change de signe lorsque l'on passe des harmoniques basses aux harmoniques de plus grand ordre. On peut le voir directement sur la Figure 3.23 et dans le Tableau 3.10, où l'on voit que pour les harmoniques H11 et H13, l'énergie centrale diminue avec θ_{MO} croissant, alors que pour H19 et H21, l'énergie augmente avec θ_{MO} . Pour expliquer ce changement de signe apparent pour le sens du décalage en ordre harmonique, qui ne colle pas en première approximation avec le modèle expliqué en Équation (3.9), on a cherché des explications plus complètes. Une des explications possibles se situe dans la rigueur de l'approximation faite dans le modèle Équation (3.9). Dans cette approximation, on néglige les variations de α_q avec t , donc les variations de α_q avec I . En reprenant l'Équation (3.9), on a fait l'approximation :

$$\phi(t) = q\omega t + \alpha_q I(t) \Rightarrow \omega(t) = q\omega_0 + \alpha_q \frac{\partial I(t)}{\partial t} \quad (3.16)$$

(en supposant donc un α_q constant au cours du temps)

En développant complètement l'expression, on obtient :

$$\omega(t) = q\omega_0 + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t} + I \frac{\partial \alpha_q}{\partial t} = q\omega_0 + \underbrace{(\alpha_q + I \frac{\partial \alpha_q}{\partial I})}_{\alpha_{eff}} \frac{\partial I}{\partial t} \quad (3.17)$$

Ce terme supplémentaire $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$ est pertinent pour les harmoniques qui ne sont ni dans la coupure, ni dans le plateau profond, où $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I} = 0$. En représentant le comportement de α_q avec l'intensité, on discerne une zone d'intensité dans laquelle $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I} \neq 0$ (voir Figure 3.24) et α_{eff} change de manière significative avec $I \frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$.

La fonction utilisée pour modéliser le comportement de α_q en fonction de l'intensité est de la forme polynomiale suivante :

$$\alpha(q, \beta) = \alpha_{coupure} \left(1 + \beta \left(\frac{q - q_c}{q_0 - q_c} \right)^{\frac{1}{n}} \right) \quad (3.18)$$

avec $q_0 = \frac{I_p}{\hbar\omega_0}$, I_p potentiel d'ionisation du gaz utilisé, $\hbar\omega_0$ l'énergie de l'harmonique, $\beta = \pm 1$ (-1 pour le chemin court, +1 pour le chemin long), $\alpha_{coupure} = 13$ et q_c l'ordre harmonique correspondant à la coupure $E_c = \hbar\omega_c$, avec $q_c = 3.17 \times 6 I + I_p$, I l'intensité en 10^{14} W.cm⁻². Cette approximation est en accord avec des courbes simulées pour des impulsions longues [101].

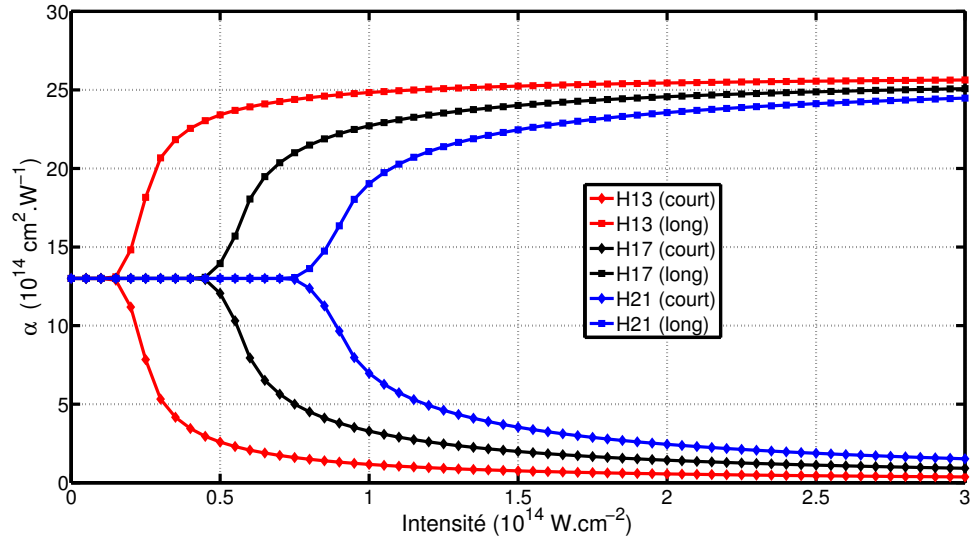


FIGURE 3.24 – Évolution de la valeur de α_q pour H13, H17 et H19 en fonction de l'intensité. Les deux trajectoires courte et longue sont décrites sur la figure, formant un "diapason".

En croisant la Figure 3.24 et l'Équation (3.17), on voit donc des situations où l'on pourra avoir $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I} > 0$ pour le chemin long, et $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I} < 0$ pour le chemin court. Ce terme $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$ peut alors s'ajouter à l'évolution de α_q en fonction de l'ordre harmonique, ou alors compenser cette évolution.

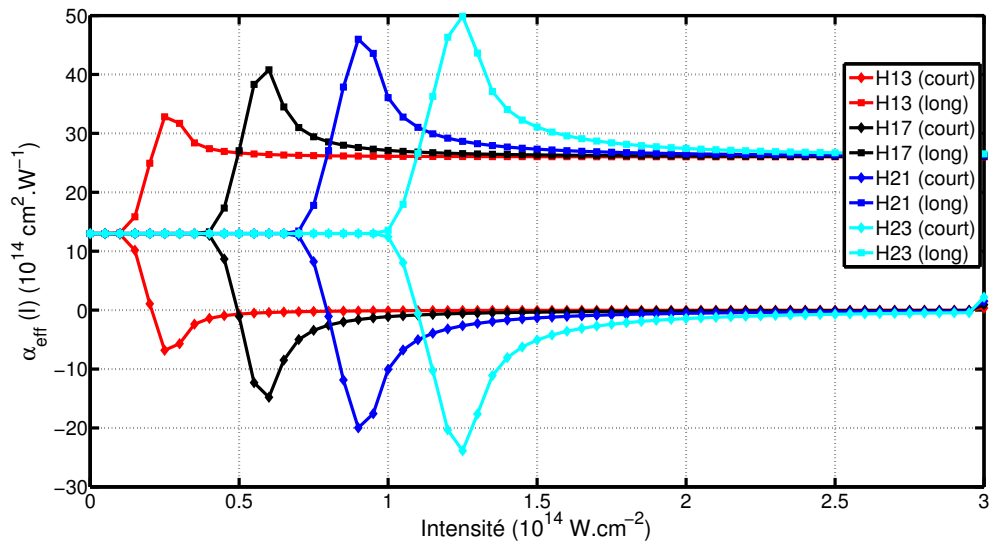


FIGURE 3.25 – Évolution de $\alpha_{eff}(I) = \alpha_q + I \frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$ en fonction de l'intensité pour H13, H17, H21 et H23.

En prenant l'évolution des harmoniques H13 et H15 sur la Figure 3.20, on voit que l'on observe un pic principal dont l'énergie centrale évolue dans un sens, sur une autre structure, moins intense en signal, qui évolue dans le sens inverse. On identifie ces deux structures aux chemins long et courts pour ces harmoniques, avec le chemin long qui est représenté par la structure la plus faible en signal, et le chemin court la structure la plus

intense. Dans le cas du chemin long, on aura $\frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$ positif, alors qu'il sera négatif pour le chemin court. En redéfinissant $\alpha_{eff}(I) = \alpha_q + I \frac{\partial \alpha_q}{\partial I}$ comme le facteur responsable du décalage en énergie, on peut l'étudier en fonction de l'intensité pour obtenir l'évolution calculée de $\alpha_{eff}(I)$ à partir de α_q dans la Figure 3.25.

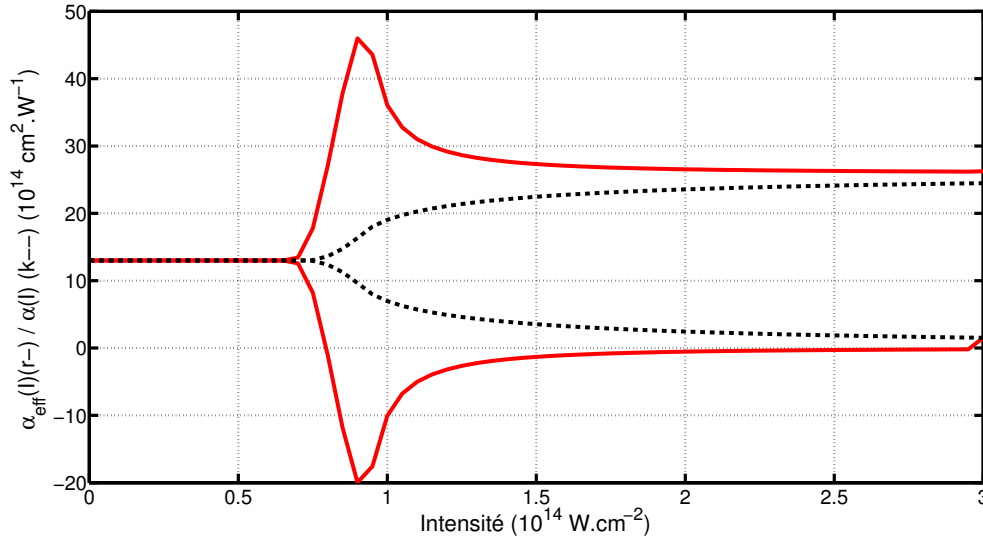


FIGURE 3.26 – Différence d'évolution entre $\alpha_q(I)$ et $\alpha_{eff}(I)$ pour l'harmonique 21. L'évolution de $\alpha_q(I)$ est représentée en pointillés noirs, et l'évolution de $\alpha_{eff}(I)$ est représentée en rouge, trait plein.

En regardant les Figure 3.25 et Figure 3.26, l'évolution de α_{eff} avec I est différente des évolutions standards pour α_q [104, 101]. On voit que $\alpha_{eff}(I)$ peut être négatif pour le chemin court dans une certaine gamme d'intensité pour toutes les harmoniques, et retourner à 0 par la suite à des intensités plus hautes.

Lorsque l'on est dans la coupure, on a bien $\alpha_{eff}(I) \approx 13$. La première approximation de α_q constant reste bonne lorsque l'on est dans la coupure, et quand l'intensité I est bien supérieure à I_c l'intensité de coupure. La différence entre α_q et α_{eff} se trouve dans la transition plateau coupure. Pour chaque harmonique, il existe donc une gamme d'intensité dans laquelle $\alpha_{eff}(I)$ est de signe opposé selon le cas où l'on considère le chemin long ou le chemin court.

Sur la Figure 3.20, on remarque une évolution doublement structurée pour les harmoniques les plus basses. Une première structure intense est présente, dont l'énergie centrale évolue dans un sens avec θ_{MO} , puis une deuxième structure, moins intense, qui semble avoir un sens d'évolution contraire à la première structure. Les images spatiospectrales pour différentes orientations θ_{MO} , montrent à nouveau une différence de divergence spatiale entre la structure intense (peu divergente) et la structure moins intense (plus divergente), de la même manière que pour les images des Figure 3.10 et Figure 3.11. Ainsi, on identifie la structure moins intense au chemin long et la structure plus intense au chemin court pour ces harmoniques.

Le fait que les évolutions soient contraires est explicable par le fait que ces harmoniques ne sont pas uniquement générées à la coupure, et que l'on balaye les intensités pour lesquelles on a α_{eff} de signe opposé pour les trajectoires longues et courtes (voir Figure 3.25) lorsque l'on déplace la porte dans le profil d'intensité. Pour les harmoniques de la coupure, on a $\alpha_{eff} \approx 13$, et on voit uniquement une structure harmonique. En prenant en compte le fait que la structure la plus intense est le chemin court, on

a donc une situation où l'on a $\alpha_{eff}(I)$ négatif pour les harmoniques les plus basses, et $\alpha_{eff}(I)$ positif pour les harmoniques les plus hautes, ce qui va dans le sens d'un changement de signe de décalage en énergie, comme on le voit en Figure 3.20.

Pour conclure sur cette partie, au travers des deux situations, on retrouve des signatures concluantes sur le fait d'avoir pu déplacer efficacement la porte de polarisation, tout en conservant le confinement temporel :

- Une largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques quasi-constante en fonction de l'orientation θ_{MO} , donnant une estimation de la durée de la porte construite proche des calculs théoriques (via Équation (3.2) et les simulations avec les matrices de Jones).
- Un signal intégré qui évolue de manière périodique (schéma qui se reproduit par tranche de 180°) et qui correspond à l'évolution attendue en fonction de l'orientation des lames d'onde.
- Une évolution de l'énergie centrale des harmoniques que l'on retrouve dans les deux situations, et que l'on a pu reproduire via un modèle simple (dipôle model, α_q et α_{eff}) et via des simulations plus complexes (Strong Field approximation)
- Un optimum de signal qui se trouve légèrement décalé par rapport à la position centrée symétrique de la porte de polarisation. Cela revient à valider la motivation de départ pour cette partie, en optimisant l'efficacité de la génération d'harmoniques avec confinement temporel via porte de polarisation

3.2.5 Confinement temporel par la porte de polarisation symétrique : Porte "large" et porte "étroite"

Dans cette partie, on revient dans une configuration de la porte de polarisation plus classique, qui permet de travailler à plus forte intensité. Comme évoqué dans la partie Section 3.1, la porte de polarisation a d'abord pour but de confiner temporellement l'émission XUV [49], et ainsi aller vers la production d'impulsions attosecondes isolées[52, 53, 56, 141] . On a déjà évoqué la situation où le confinement temporel était maximum avec $\theta_{MO} = 45^\circ$ (deux répliques de même amplitude après la première lame) et que l'on a 45° entre les axes neutres de la lame multiordre et de la lame d'ordre zéro, $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La largeur de la porte théorique est donnée en Équation (3.2). Pour la porte de polarisation symétrique, on varie la largeur de la porte en conservant θ_{MO} fixe à $\theta_{MO} = 45^\circ$, et en tournant l'orientation de la deuxième lame d'ordre zéro θ_{ZO} . De ce fait, on passe d'une situation où le confinement temporel est maximum (porte "étroite") à une situation où le confinement n'est plus effectif, avec une porte de largeur infinie (porte "large"). Dans cette configuration, le profil d'intensité ne change pas avec θ_{ZO} .

Le confinement temporel induit par la porte peut se traduire par une évolution de la largeur spectrale des harmoniques, ainsi qu'une évolution de signal lorsque l'on confine en "fermant" la porte, on doit avoir de moins en moins de signal, avec un minimum de signal lorsque la porte est dans la configuration porte "étroite".

L'évolution simulée de la porte de polarisation en fonction de l'orientation de la seconde lame θ_{ZO} est illustrée en Figure 3.27, pour $\tau_{IR} = 30$ fs, $\delta = 32$ fs, $\phi_{MO} = \frac{\pi}{2}$ et une impulsion Gaussienne. L'évolution de la largeur de la porte est donnée en Figure 3.28.

La largeur de la porte est fixée arbitrairement à τ_{IR} lorsqu'elle devient plus grande que cette dernière, ce qui explique le plateau dans l'évolution de la largeur de la porte.

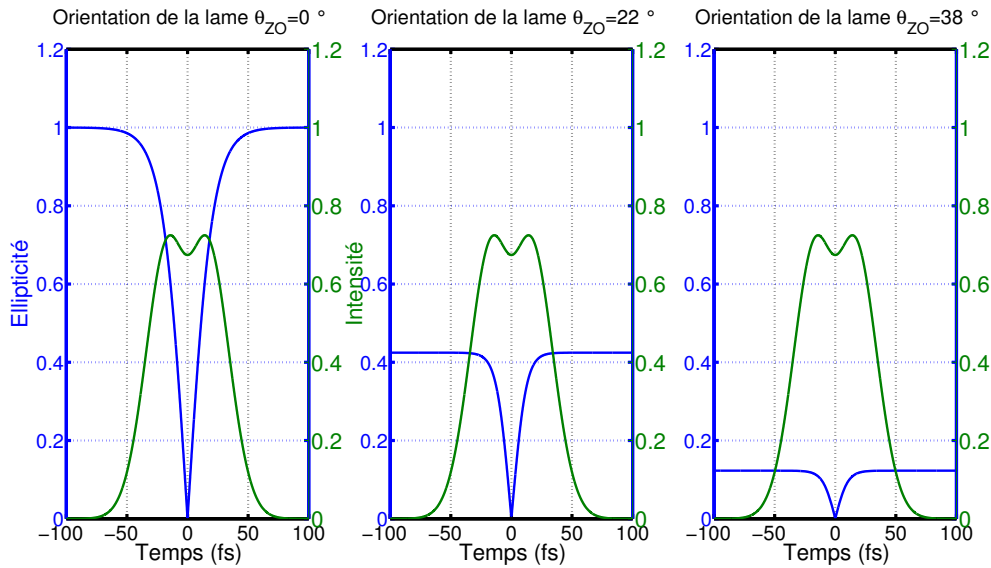


FIGURE 3.27 – Évolution de la porte de polarisation pour trois positions de θ_{ZO} différentes ($\theta_{ZO} = 0^\circ$, $\theta_{ZO} = 22^\circ$, $\theta_{ZO} = 38^\circ$)

Sans cela, on aurait une largeur de porte infinie (porte large) pour $\theta_{ZO} = 45^\circ$. Le centre de la porte reste toujours à $t = 0$ fs, donc centré sur le profil d'intensité en sortie des deux lames. Cette fois-ci, le profil d'intensité ne change pas de forme, c'est la porte de polarisation qui change de largeur.

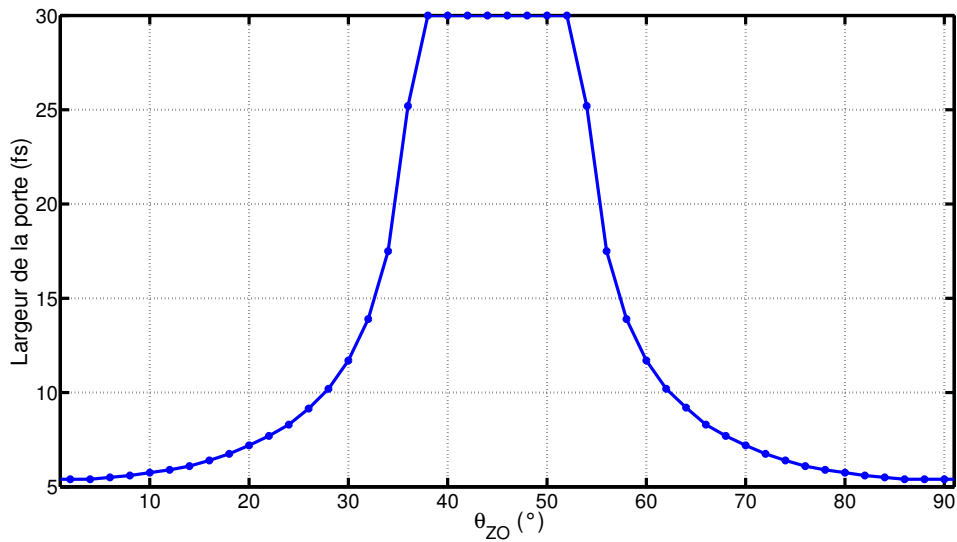


FIGURE 3.28 – Évolution simulée de la largeur de la porte en fonction de θ_{ZO} pour H13, avec $\epsilon_{thr} = 0.13$. Pour une largeur de porte supérieure à τ_{IR} , on fixe la largeur à τ_{IR} .

Dans un premier temps, on cherche à observer ce contrôle de la largeur de la porte avec des impulsions de durée $\tau_{IR}=20$ fs. Le montage expérimental reste celui utilisé en Figure 3.7. Le capillaire reste pompé à vide pour ne pas élargir spectralement les impulsions. On génère dans une cellule d'argon, avec une pression de 25 mbar. La lame multiordre utilisée est une combinaison de lame permettant d'introduire un délai de $32-12.3=19.7$ fs. Pour faire ceci, on combine une lame d'épaisseur 0.383 mm et une lame

d'épaisseur 1.032 mm avec les axes lents et rapides tête bêche pour avoir compensation des délais. La seconde lame est la même lame achromatique $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro. On regarde ensuite l'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} avec $\theta_{MO} = 45^\circ$. L'évolution est présentée de manière brute en Figure 3.29 et de manière normalisée harmonique par harmonique en Figure 3.30, pour faire ressortir les plus petits signaux.

On dégage un comportement clair, avec une augmentation de largeur spectrale à mi-hauteur autour de la position $\theta_{ZO}=0^\circ$, ce qui correspond bien à la situation où l'on attend le confinement temporel maximum. En comparant les différentes largeurs spectrales à mi-hauteur, on voit que l'on a environ un facteur 2 entre la situation de la porte "large", $\theta_{ZO} = \pm 45^\circ$ et la situation de la porte "étroite", $\theta_{ZO} = 0^\circ$. On calcule les largeurs de porte associées à ces largeurs à mi-hauteur, et l'on peut comparer aux valeurs théoriques données par l'Équation (3.2). On retrouve des valeurs similaires pour certaines harmoniques entre la durée de la porte compatible avec la largeur à mi-hauteur estimée et la durée théorique calculée via l'Équation (3.2). Globalement, avec les Figure 3.32, Figure 3.31 et Tableau 3.12, on voit que l'on arrive à modifier la largeur spectrale des harmoniques de manière contrôlée, en accord avec les simulations présentées en Figure 3.27.

La Figure 3.29 montre une évolution du signal intégré cohérente avec les simulations, avec un minimum de signal à la position où il y a la porte étroite. On voit aussi sur la Figure 3.30 que la largeur spectrale des harmoniques évolue avec une augmentation de largeur autour de la position $\theta_{ZO} = 0^\circ$, compatible avec une largeur minimale de porte plus faible. L'évolution des largeurs à mi-hauteur pour les harmoniques est donnée en Figure 3.31.

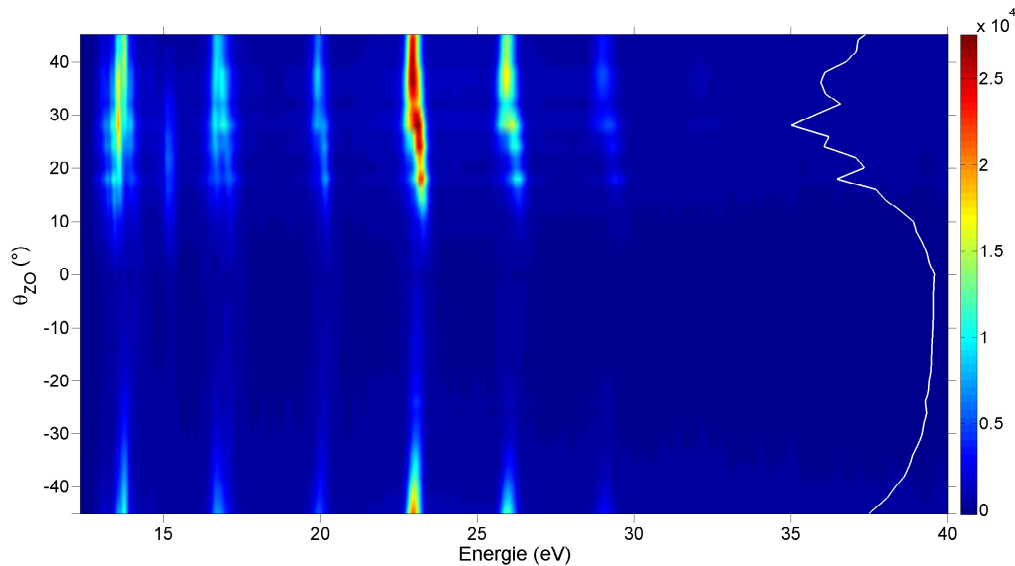


FIGURE 3.29 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} sur un cadran. Le signal intégré spectralement est dessiné en blanc en vertical sur le côté également. L'orientation de la lame multiordre θ_{MO} est fixe à 45° de la polarisation incidente.

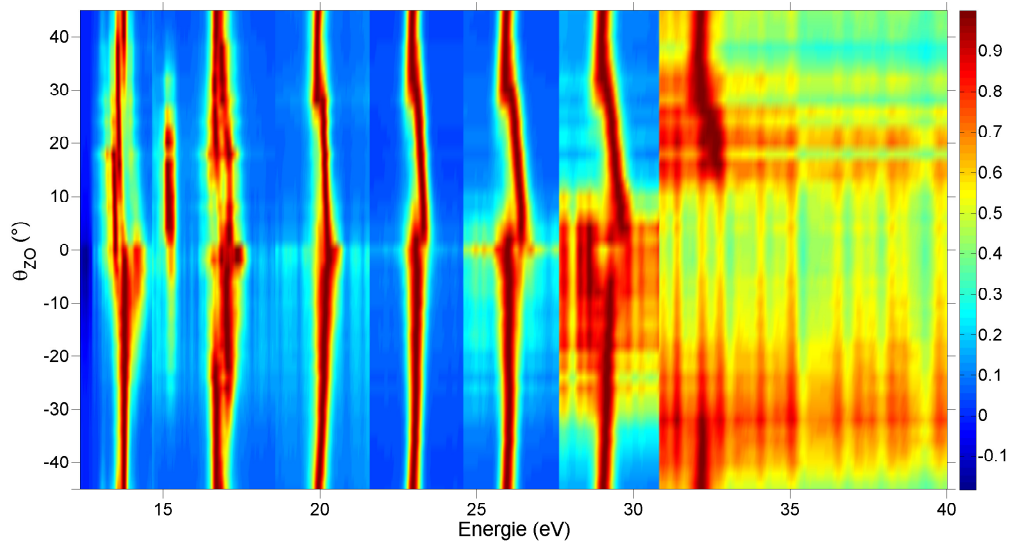


FIGURE 3.30 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} sur un cadran, normalisée harmonique par harmonique. L'orientation de la lame multiordre θ_{MO} est fixée à 45° de la polarisation incidente.

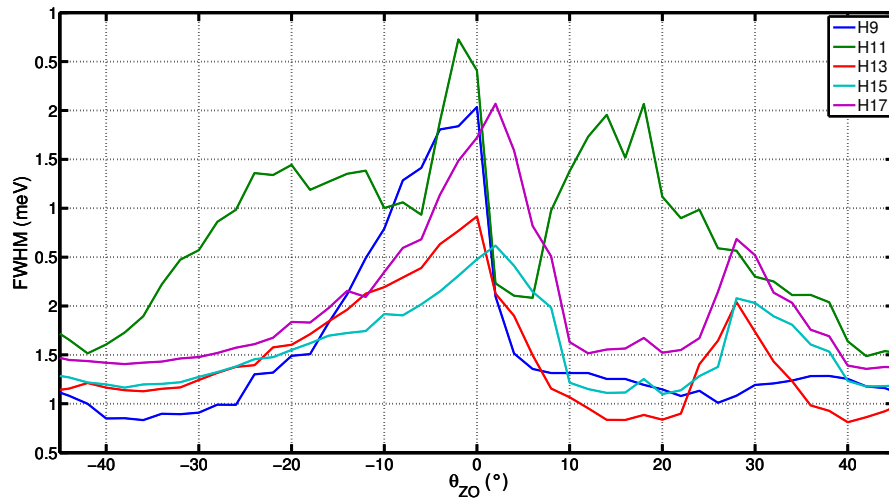


FIGURE 3.31 – Évolution des largeurs spectrales des harmoniques (à mi-hauteur) pour H9, H11, H13, H15 et H17 en fonction de θ_{ZO} .

	H9	H11	H13	H15	H17
ΔE_{max} (meV)	900	1040	680	620	910
$\tau_{gate} \theta_{ZO} = 0^\circ$ (Gaussienne) (fs)	1.9	1.7	2.5	2.8	1.9
$\tau_{gate} \theta_{ZO} = 0^\circ$ (théorique) (fs)	4.6	3.8	3.5	3.2	3.2

TABLE 3.11 – Largeurs spectrales à mi-hauteur et durées minimales de porte estimées correspondant à Figure 3.33. On donne aussi la durée de la porte estimée via Équation (3.2).

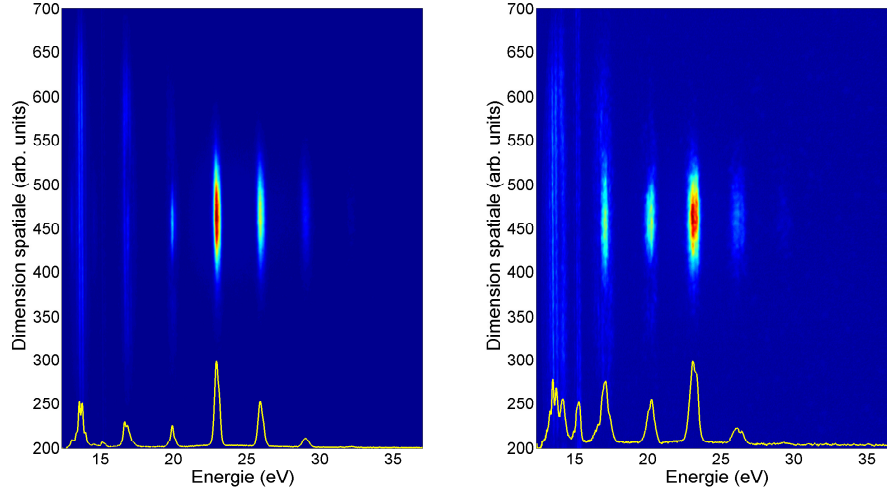


FIGURE 3.32 – Comparaison des images spatio-spectrales entre la position porte "large" ($\theta_{ZO} = 45^\circ$) et la position porte "étroite" ($\theta_{ZO} = 0^\circ$), avec $\tau_{IR} = 20$ fs, et $\delta = 19.7$ fs. Le spectre correspondant à chaque image (intégré sur la dimension spatiale) est dessiné en jaune.

Pour observer des effets spectraux plus conséquents et vérifier la fiabilité de la technique dans d'autres situations, on utilise ensuite des impulsions plus courtes, d'une durée $\tau_{IR} = 10$ fs. Le montage expérimental est le même que précédemment (voir Figure 3.7). On a injecté du gaz dans le capillaire pour obtenir des impulsions IR d'une durée de $\tau_{IR} = 10$ fs. La première lame multiordre est une lame d'épaisseur $381 \mu\text{m}$, introduisant un délai de 12.3 fs, et la deuxième une lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro ultrafine (true zero order). On génère les harmoniques dans une cellule d'Argon, avec une pression de $P = 45$ mbar, avec une puissance en entrée de chambre de 0.75 W. L'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation de la seconde lame θ_{ZO} se trouve en Figure 3.33 et Figure 3.34.

On observe que la largeur des structures harmoniques augmente autour des positions où l'on attend le confinement temporel maximum, $\theta_{ZO} = 0^\circ_{[90^\circ]}$. L'évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de θ_{ZO} est donnée en Figure 3.35.

La largeur spectrale à mi-hauteur augmente légèrement avec l'ordre harmonique, ce qui est une signature compatible avec un confinement temporel accru. La raison est l'augmentation de l'ellipticité critique avec l'ordre harmonique. Les largeurs spectrales à mi-hauteur des harmoniques sont données en Tableau 3.12. La formule de l'Équation (3.2), donne l'évolution théorique de la durée de la porte en fonction de θ_{ZO} . L'ordre de grandeur entre la durée de la porte estimée et la théorie est en accord, avec toujours une largeur de porte estimée légèrement en dessous de la porte calculée théoriquement. Une autre chose à préciser est que la durée de la porte, calculée théoriquement ou à partir de la largeur à spectrale mi-hauteur, est en dessous ou de l'ordre de $\frac{T_0}{2} = 1.33$ fs. Avec la CEP stabilisée, on devrait donc avoir émission d'une ou deux impulsions attosecondes [52]. Dans l'expérience, la CEP n'est pas stabilisée, et on observe une moyenne de tous les spectres sur toutes les valeurs de la CEP possible. De ce fait, on peut avoir des largeurs spectrales à mi-hauteur, compatibles avec des portes très courtes, sans que l'on ait réellement une impulsion attoseconde isolée. Néanmoins, on observe que l'on arrive très bien à confiner temporellement l'émission d'impulsion XUV via la fermeture de la porte, et cela se traduit directement par une augmentation significative de la largeur spectrale des harmoniques.

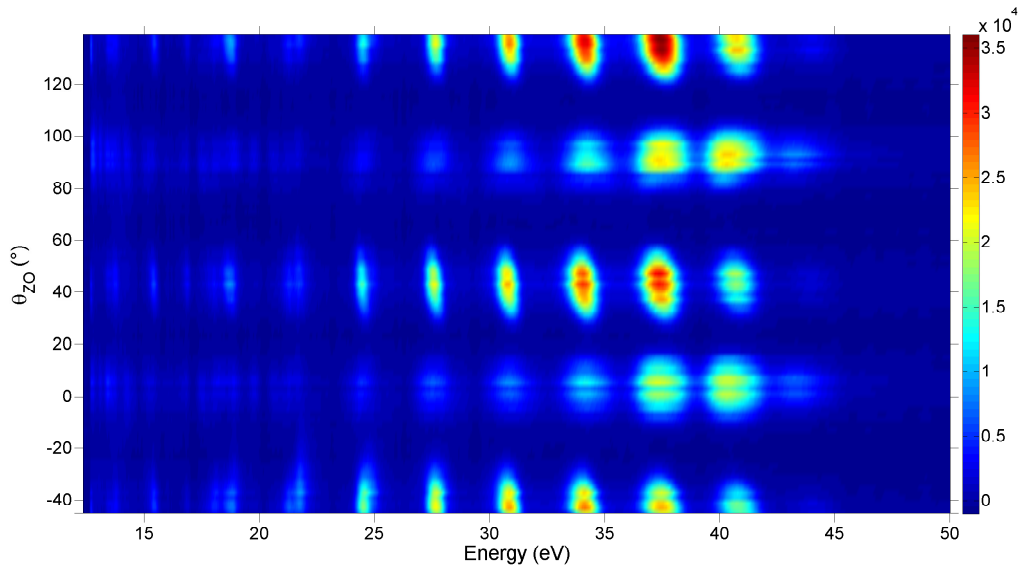


FIGURE 3.33 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation de la lame d'ordre zéro θ_{ZO} sur deux cadrans de 90° . La première lame est fixe à $\theta_{MO} = 45^\circ$ par rapport à la polarisation incidente. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 10$ fs, pour un délai $\delta = 12.3$ fs.

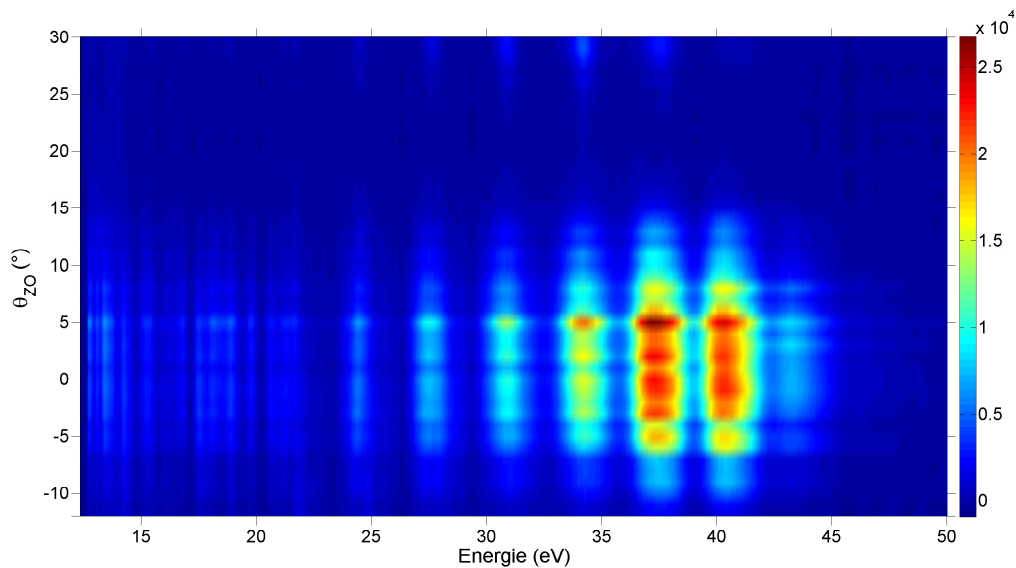


FIGURE 3.34 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation de la lame d'ordre zéro θ_{ZO} . La première lame est fixe à $\theta_{MO} = 45^\circ$ par rapport à la polarisation incidente. On fait un focus autour de la position où l'on attend le confinement temporel maximum ($\theta_{ZO} = 0^\circ$). La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 10$ fs, pour un délai $\delta = 12.3$ fs.

Les changements sont visibles sur les images spatiospectrales et les spectres intégrés spatialement. Sur la Figure 3.36, on montre deux images spatiospectrales pour respectivement la configuration porte "large" ($\theta_{ZO} = 45^\circ$) et configuration porte "étroite" ($\theta_{ZO} = 0^\circ$). L'impact le plus visuel se situe sur les harmoniques hautes qui s'élargissent avec le confinement. Les structures des harmoniques commencent à s'estomper sur un fond continu.

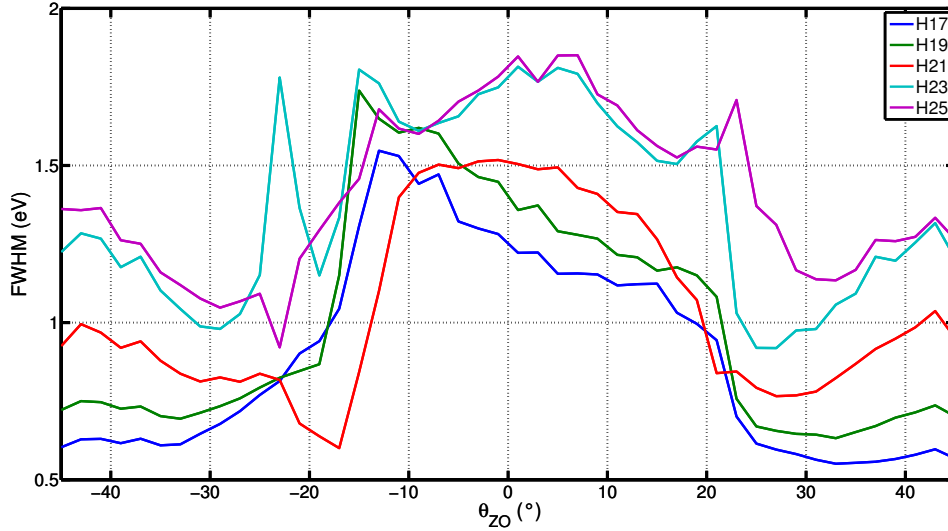


FIGURE 3.35 – Évolution de la largeur à mi-hauteur pour les harmoniques en fonction de θ_{ZO} . On se focalise sur les harmoniques hautes de plus fort signal.

	H17	H19	H21	H23	H25
ΔE_{max} (meV)	1550	1740	1520	1820	1850
τ_{gate} (Gauss) (fs)	1.2 (± 0.2)	1.0 (± 0.2)	1.1 (± 0.2)	0.95 (± 0.15)	0.94 (± 0.15)
τ_{gate} (théo) (fs)	1.20 (± 0.2)	1.20 (± 0.2)	1.20 (± 0.2)	1.1 (± 0.2)	1.1 (± 0.2)

TABLE 3.12 – Largeurs à mi-hauteur maximum et durées minimales de porte estimées correspondant à la Figure 3.33 (Gauss). On donne aussi la durée de la porte estimée (théo) via l'Équation (3.2).

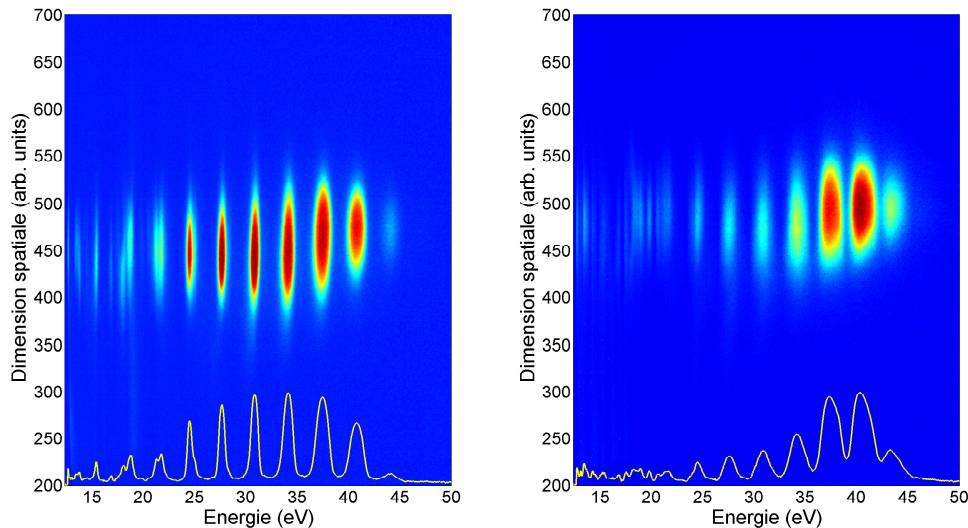


FIGURE 3.36 – Comparaison d'images spatio-spectrales pour $\theta_{ZO} = 45^\circ$ (porte large) et $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (porte étroite), respectivement. Le spectre intégré spatialement est dessiné en courbe jaune. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 10$ fs, pour un délai $\delta = 12.3$ fs.

Pour comprendre comment les structures harmoniques peuvent persister dans les cas où la largeur de porte est inférieure au demi-cycle optique $\frac{T_0}{2} = 1.66$ fs, on simule via un dipôle modèle le moment où l'on peut observer la disparition des structures harmoniques, avec ou sans CEP stabilisée. Pour faire ceci, on part d'un champ initial $E(t) = \exp\{i(\omega_0 t + \phi_{CEP})\}$ avec $\lambda_0 = 800$ nm et ϕ_{CEP} la valeur de la CEP. Dans ce cas, on a un champ infiniment long, et donc une émission XUV infiniment longue. Pour limiter cette émission XUV, on multiplie ce champ par une Gaussienne $G(t) = \exp\{-2\ln(2)(\frac{t}{\tau})^2\}$, avec τ la durée pendant laquelle on veut avoir émission des harmoniques. De cette manière, on confine temporellement l'émission. Ensuite, on calcule le dipôle harmonique correspondant via :

$$E_{tot}(t) = \sum_{q_i=q_1}^{q_N} G(t)[\exp(i(\omega t + \phi_{CEP}))]^{q_i} \quad (3.19)$$

avec q_1, \dots, q_N les ordres harmoniques. On calcule ensuite le spectre harmonique en prenant la transformée de Fourier de $E_{tot}(t)$ et en multipliant par le conjugué.

Ce que l'on observe dans les expériences est une moyenne de spectres harmoniques sur toutes les valeurs possibles de ϕ_{CEP} . Dans les simulations, on calcule alors $E_{tot}(t)$ et le spectre harmonique pour différentes valeurs de ϕ_{CEP} . On peut ensuite prendre la moyenne des spectres obtenus comme le spectre moyen sur toutes les CEP possibles. En regardant ce spectre moyen en fonction de la durée τ de la Gaussienne, on peut quantifier le moment où l'on a disparition des structures harmoniques pour une impulsion Gaussienne chirpée).

On représente les spectres harmoniques moyens pour trois durées d'émission différentes (respectivement $\tau = 3$ fs, $\tau = 1.33$ fs et $\tau = 1$ fs) en Figure 3.37.

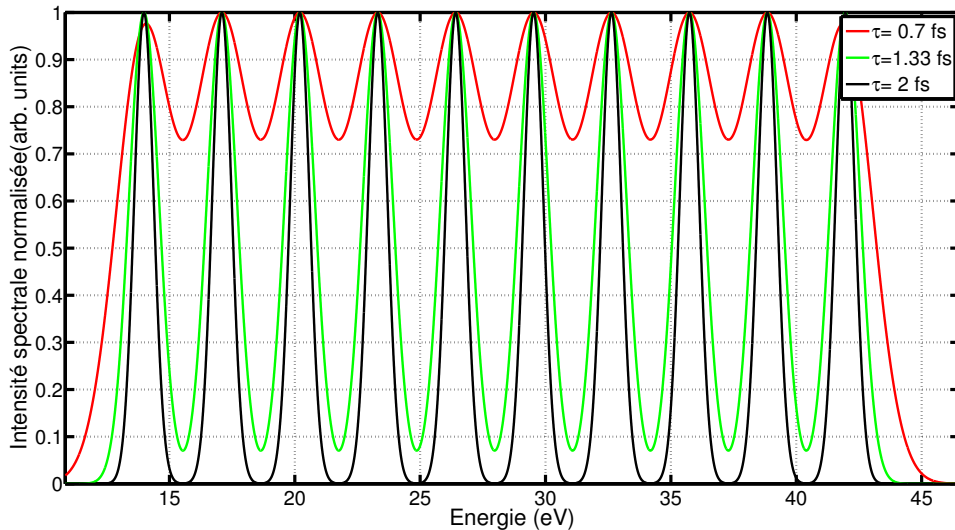


FIGURE 3.37 – Spectres harmoniques moyens calculés via l'Équation (3.19) pour $\tau = 3$ fs, $\tau = 1.33$ fs et $\tau = 1$ fs en durée d'émission, après moyennage sur toutes les CEP possibles.

À partir de $\tau = 1.33$ fs, on voit que les structures harmoniques commencent à disparaître progressivement, le signal entre chaque harmonique ne redescendant pas totalement à zéro, contrairement au cas où l'on a $\tau = 3$ fs. On a donc les structures harmoniques sur un fond continu, et ce fond continu évolue en diminuant la durée de

l'émission XUV. Les structures harmoniques restent présentes dans le spectre même pour des durées d'émission inférieures au demi-cycle optique (1.33 fs à 800 nm), lorsque que l'on moyenne sur toutes les CEP possibles, alors que la situation est compatible avec la production d'une impulsion attoseconde isolée pour une CEP bien définie.

De manière quantitative, on observe le contraste de ces structures harmoniques et l'évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur en fonction de τ . On sélectionne une gamme d'énergie autour d'une harmonique, et on repère le minimum pour le spectre autour de cet harmonique, ainsi que la largeur spectrale à mi-hauteur. Le rapport entre le minimum trouvé et le maximum de signal donne ce que l'on définit comme le contraste spectral. La largeur spectrale et le contraste sont donnés en Figure 3.38.

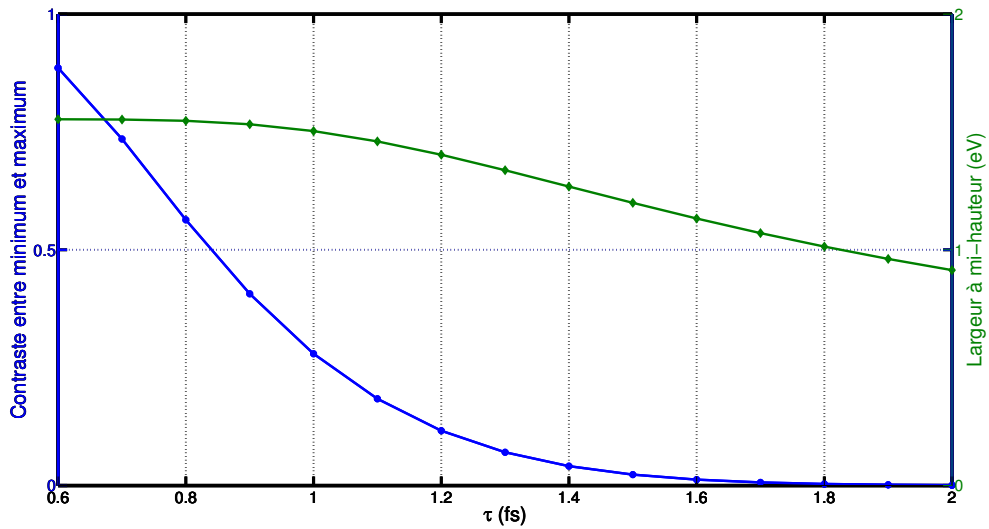


FIGURE 3.38 – Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur (trait plein vert, losange) et du contraste (trait plein bleu, rond) en fonction de la durée d'émission τ . Ces deux grandeurs sont estimées en regardant l'évolution du spectre harmonique moyenné sur les CEP, entre 25 eV et 28 eV (voir Figure 3.37).

Avoir un contraste de 10% revient donc à avoir une émission de durée $\tau = 1.2$ fs. À noter ici que toutes les simulations sont faites dans le cas où la variation de la CEP n'induit pas de changement de fréquence centrale. Ce changement de fréquence centrale avec la CEP a déjà été observé expérimentalement, avec des impulsions très courtes utilisées pour confiner l'émission XUV [142]. Dans notre cas, en moyennant sur la CEP expérimentalement, on peut avoir une largeur spectrale apparente surestimée, donc une largeur minimale de porte sous-estimée si on a des décalages en énergie sur les pics harmoniques (comme par exemple en Figure 4.15, discuté dans le chapitre suivant).

Le contraste obtenu pour les harmoniques les plus hautes en Figure 3.36 est de 0.25 dans la position $\theta_{ZO} = 0^\circ$ autour des 4 dernières harmoniques. En comparant avec l'évolution du contraste en Figure 3.38, on obtient alors une durée d'émission d'environ $\tau = 1$ fs (la courbe donne un contraste de 0.27 pour $\tau = 1$ fs). On retrouve les durées minimales estimées du Tableau 3.12, avec des durées minimales de porte compatibles de 1 fs pour les dernières harmoniques.

Ceci peut donc expliquer ce que l'on observe en Figure 3.36, avec dans la situation en porte étroite, des structures harmoniques sur un fond continu, dont les largeurs spectrales sont compatibles avec des largeurs de porte inférieures au demi-cycle optique. Nos observations sont en accord et il est possible d'observer des structures harmoniques

même dans les cas où la durée d'émission est inférieure au demi-cycle optique.

3.3 Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

Dans les parties précédentes, Section 3.2.5 et Section 3.2, on considérait uniquement un déphasage de $\frac{\lambda}{4}$ induit par la première lame multiordre.

Dans cette partie, on s'intéresse aux configurations possibles de la porte de polarisation avec un déphasage qui est différent de $\frac{\lambda}{4}$. Dans la partie Section 3.2, le profil d'intensité en sortie des lames changeait avec l'orientation θ_{MO} (tout en gardant 45° entre les axes neutres des deux lames quelque soit l'orientation θ_{MO}), mais la forme de la porte ne changeait pas. Dans la partie Section 3.2.5, c'est le contraire, la position ne change pas, mais la largeur de la porte change. Nous avons cherché si il y avait une configuration possible dans laquelle on pouvait déplacer la porte de polarisation, sans changer le profil d'intensité en sortie des deux lames. En s'intéressant à l'impact du déphasage de la première lame sur la porte, nous avons pu déterminer certaines configurations qui rendaient ceci possible.

On s'intéresse maintenant au cas où le déphasage de la première est $\frac{\lambda}{2}$ et non plus $\frac{\lambda}{4}$. Après la lame multiordre, avec une orientation $\theta_{MO} = 45^\circ$, on obtient une polarisation qui reste linéaire, et qui est polarisée au départ selon l'axe rapide, puis à la fin selon l'axe lent. Entre les deux, on balaye toutes les orientations de polarisation linéaire dans un cadran de 90° compris entre l'axe lent et l'axe rapide. En ajoutant la seconde lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro, on va transformer les polarisations linéaires en circulaires/elliptiques sauf lorsque l'orientation de la polarisation linéaire en sortie de la première lame multiordre est selon un axe neutre de la lame d'ordre zéro. Dans ce cas, on aura toujours une polarisation linéaire en sortie pour un instant d'émission donné. On obtient en sortie des deux lames une polarisation qui évolue toujours de circulaire (ou elliptique) vers linéaire à circulaire (ou elliptique). L'instant où la polarisation est linéaire est défini par l'orientation de la seconde lame θ_{ZO} (en considérant que la première lame est fixe, avec $\theta_{MO} = 45^\circ$). Changer θ_{ZO} revient donc à changer les instants où la polarisation est linéaire, donc à déplacer le centre de la porte.

Le fait que la première lame soit fixe (θ_{MO} fixe) fait que le profil d'intensité ne change pas, quelle que soit l'orientation de la seconde lame. Ceci est vrai tant que le retard de $\pm \frac{\lambda}{4}$ induit par la lame est négligeable devant la durée de l'impulsion. Les matrices de Jones sont un bon outil pour simuler le comportement de la porte en fonction de l'orientation θ_{ZO} en ayant un déphasage $\phi_{MO} = \pi$ induit par la lame biréfringente.

Sur les Figure 3.39 et Figure 3.40, les simulations montrent que le profil d'intensité ne change pas avec θ_{ZO} (courbe verte) et que la porte change à la fois de forme et de position (courbe bleue). On passe d'une situation où l'on a le confinement temporel maximum (voir Figure 3.40), avec génération autour du maximum d'intensité ($\theta_{ZO} = 0^\circ$) à une situation où l'on génère uniquement dans les ailes de l'impulsion ($\theta_{ZO} = 45^\circ$). L'ellipticité asymptotique n'est plus égale à 1 lorsque l'on modifie l'orientation θ_{ZO} . Pour $\theta_{ZO} = 0^\circ$, on obtient une forme inverse à la porte de polarisation à $\theta_{ZO} = 45^\circ$, la porte étant à l'infini. Dans la configuration dite "porte étroite" ($\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$), la largeur de la porte ne change pas avec le déphasage. Par contre, l'orientation de la polarisation linéaire à l'intérieur de la porte change avec ϕ_{MO} . Dans le cas d'un déphasage $\frac{\lambda}{2}$, l'orientation de la polarisation linéaire à l'intérieur de la porte sera toujours à 0° des axes neutres de la seconde lame, donc à 0° de l'orientation θ_{ZO} .

3.3. Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

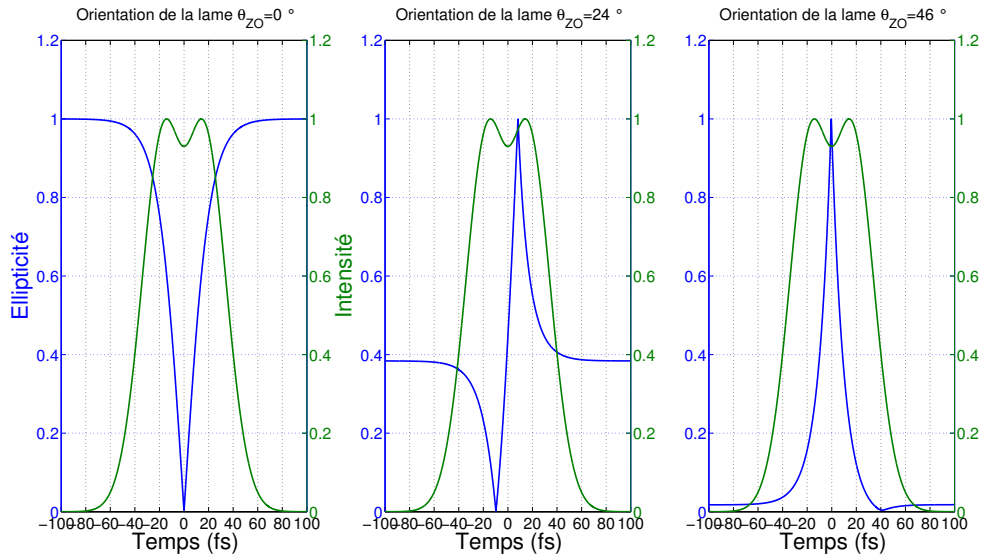


FIGURE 3.39 – Profil d'intensité et ellipticité en sortie des lames pour trois orientations différentes $\theta_{ZO}=0^\circ$, $\theta_{ZO}=24^\circ$, $\theta_{ZO}=46^\circ$, avec un déphasage $\frac{\lambda}{2}$ induit par la première lame, avec $\tau_{IR} = 30$ fs, $\delta = 32$ fs.

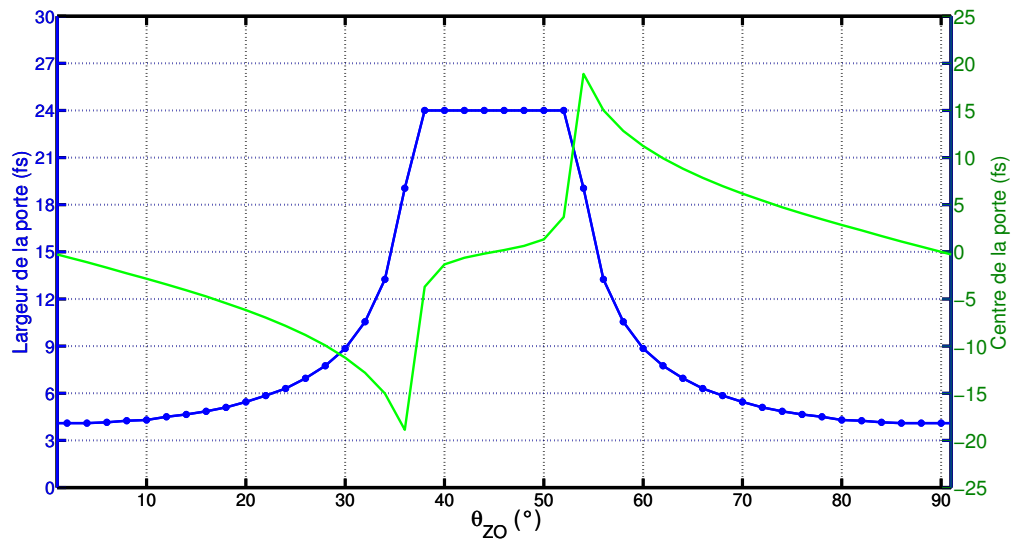


FIGURE 3.40 – Position du centre (vert, trait plein) et largeur de la porte (bleu, symbole rond) en fonction de l'orientation θ_{ZO} , avec un déphasage $\frac{\lambda}{2}$. Pour les simulations, on a $\tau_{IR} = 24$ fs, $\delta = 27$ fs.

On s'attend donc à voir plusieurs choses expérimentalement :

- Un signal intégré qui évolue de manière à être maximum autour de la position porte "étroite" ($\theta_{ZO} = 0^\circ$), et minimum lorsque l'on a uniquement génération dans les ailes ($\theta_{ZO} = 45^\circ$).
- une variation de largeur spectrale pour les harmoniques, car le confinement temporel varie lui aussi avec l'orientation θ_{ZO} , avec un confinement maximum pour $\theta_{ZO} = 0^\circ$.
- Un décalage en énergie pour l'énergie centrale des différentes harmoniques, dû au déplacement de la porte, comme pour la Section 3.2.

Expérimentalement, on utilise le même montage en Figure 3.7, sans gaz dans le

capillaire de post-compression. Pour obtenir un déphasage $\frac{\lambda}{2}$, on a installé une lame multiordre $\frac{\lambda}{4}$ sur une platine de rotation motorisée. On a ensuite tourné l'orientation de la lame à 45° pour ses axes ($\theta_{MO} = 45^\circ$), et on a observé l'évolution du signal harmonique en fonction de la position sur la platine de rotation motorisée (i.e. l'angle d'incidence), en fonction de l'angle d'incidence de lame. On a considéré que l'on avait un déphasage $\frac{\lambda}{2}$ lorsque le signal harmonique était maximum. Une fois ceci fait, on a ajouté la lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro. On génère toujours les harmoniques dans une cellule d'argon de 6 mm de long, avec une focale de 60 cm. La pression dans la cellule est de 31 mbar. Les impulsions ont une durée de $\tau_{IR} = 24$ fs. La lame multiordre est une lame d'épaisseur $e=841 \mu\text{m}$, introduisant un délai de 27 fs en incidence normale. On observe le spectre harmonique dans cette configuration, en fonction de l'orientation de la seconde lame θ_{ZO} . Cette évolution est présentée en Figure 3.41.

La Figure 3.41 montre une évolution du signal similaire aux simulations : maximum autour de la position porte étroite ($\theta_{ZO} = 0 \pmod{90^\circ}$) et minimum autour des position où l'on génère dans les ailes ($\theta_{ZO} = 45 \pmod{90^\circ}$). On observe aussi une plus grande largeur spectrale pour les harmoniques autour de $\theta_{ZO} = 0^\circ_{[90^\circ]}$ que pour les positions $\theta_{ZO} = 45^\circ_{[90^\circ]}$.

L'énergie centrale des harmoniques change avec l'orientation de θ_{ZO} , notamment lorsque que l'on regarde la zone entre deux positions "porte étroite" successives. Pour s'affranchir de l'évolution du signal, on normalise le spectrogramme harmonique par harmonique pour voir ces évolutions. La carte normalisée est présentée en Figure 3.42.

Sur la Figure 3.42, on observe plus clairement des décalages en énergie en fonction de θ_{ZO} . Contrairement à la situation Section 3.2, on trouve une périodicité de 90° avec θ_{ZO} . Ici, lorsque la porte se déplace avec θ_{ZO} , on va toujours d'un front à l'autre, et toujours dans le même sens. Le fait d'aller du front montant vers le front descendant ou inversement est déterminé par le sens de variation de θ_{ZO} uniquement. L'évolution de la largeur spectrale des harmoniques est visible en comparant à $\theta_{ZO} = 45^\circ$ (sans porte) et un spectre $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (avec porte).

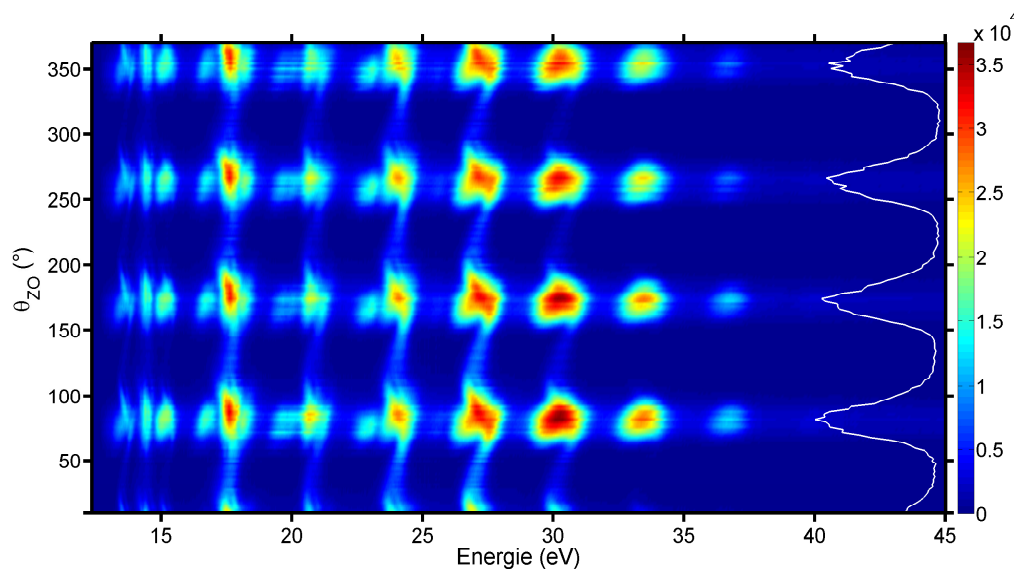


FIGURE 3.41 – Spectrogramme harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} , avec $\theta_{MO} = 45^\circ$ et avec une lame multiordre induisant un déphasage $\frac{\lambda}{2}$. Le signal intégré spectralement est dessiné en blanc en vertical.

3.3. Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

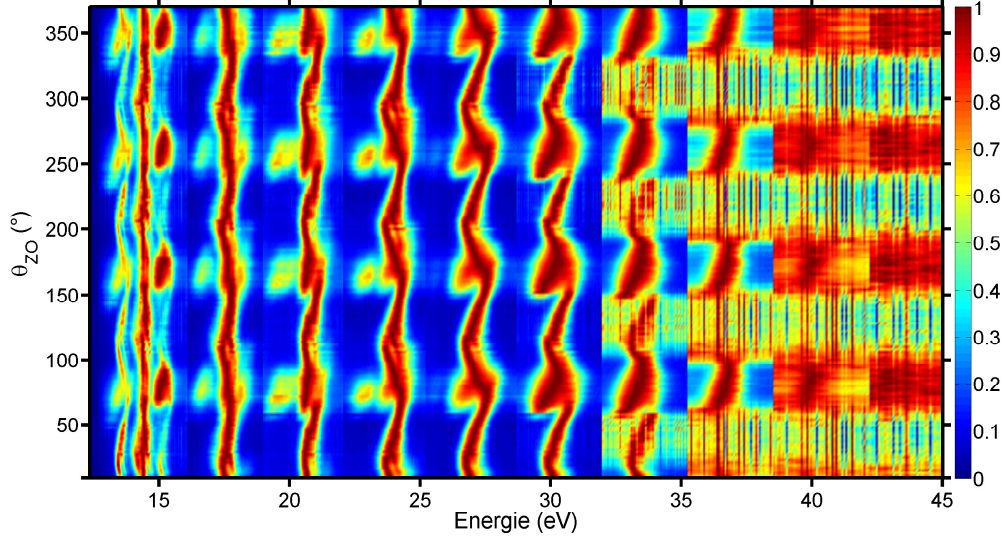


FIGURE 3.42 – Spectrogramme harmonique normalisé en fonction de l'orientation θ_{ZO} avec une lame multiordre de déphasage $\frac{\lambda}{2}$ avec $\theta_{MO} = 45^\circ$.

Sur la Figure 3.43, on a remarqué bien la différence de signal entre les deux spectres, ainsi que la différence de largeur spectrale pour chacune des harmoniques. Il y a aussi une différence d'énergie pour laquelle on obtient la coupure. Pour la position porte étroite centrée $\theta_{ZO} = 90^\circ$, on a une coupure à environ 37 eV, contre 30 eV pour la position où l'on génère les harmoniques dans les ailes uniquement, à $\theta_{ZO} = 136^\circ$. Ce changement est une signature du déplacement de la porte avec θ_{ZO} . Avec le confinement temporel maximum à $\theta_{ZO} = 90^\circ_{[90^\circ]}$, on retrouve une largeur à mi-hauteur d'harmonique de plus d'un eV, avec un facteur 2 entre la situation $\theta_{ZO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$ pour les largeurs à mi-hauteur. Ce changement de largeur spectrale à mi-hauteur est compatible avec un confinement temporel qui évolue avec l'orientation θ_{ZO} de la seconde lame. Le décalage en énergie est lui aussi la signature du déplacement de la porte dans le profil d'intensité. On observe pour $\theta_{ZO} < 90^\circ$ un décalage vers le bleu, et un décalage vers le rouge pour $\theta_{ZO} > 90^\circ$.

	H9	H11	H13	H15
$FWHM (\theta_{ZO} = 136^\circ)$ (meV)	440 (± 20)	660 (± 20)	630 (± 30)	630 (± 30)
$FWHM (\theta_{ZO} = 90^\circ)$ (meV)	450 (± 20)	690 (± 20)	1050 (± 30)	1110 (± 30)
τ_{gate} (experimental) (fs)	4.2 (± 0.3)	2.2 (± 0.3)	1.8 (± 0.2)	1.7 (± 0.2)

TABLE 3.13 – Largeurs à mi-hauteur des harmoniques pour les deux spectres en Figure 3.43.

En observant l'évolution de l'énergie centrale pour les simulations, on voit que l'on retrouve expérimentalement une évolution en "S inversé" globale sur $[0 : 90]^\circ$, mais que l'on ne retrouve pas la deuxième évolution, autour de la position $\theta_{ZO} = 45^\circ$. Si l'on considère un profil d'intensité fixe, avec un trou d'intensité dans ce dernier comme montré en Figure 3.39, on devrait observer, si la porte est assez fine temporellement, une deuxième zone de changement dans l'énergie centrale de l'harmonique, autour de $\theta_{ZO} = 45^\circ$, de signe opposé au "S" global. Si ce trou d'intensité est conséquent, on aura autour de la position porte étroite des pentes opposées à celles dans les fronts

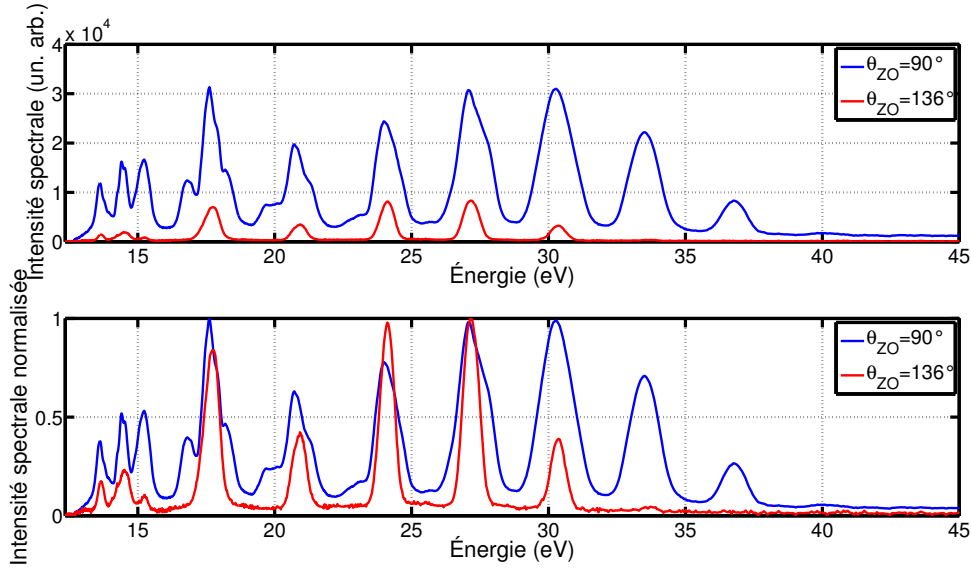


FIGURE 3.43 – Comparaison entre deux spectres à $\theta_{ZO} = 90^\circ$ (porte étroite centrée) et $\theta_{ZO} = 136^\circ$ (génération dans les ailes de l’impulsion uniquement).

	H17	H19	H21	H23
$FWHM$ ($\theta_{ZO} = 136^\circ$) (meV)	710	720	n.d.	n.d.
$FWHM$ ($\theta_{ZO} = 90^\circ$) (meV)	1280	1320	1300	1170
τ_{gate} (experimental) (fs)	$1.4 (\pm 0.2)$	$1.4 (\pm 0.2)$	$1.4 (\pm 0.2)$	$1.3 (\pm 0.2)$

TABLE 3.14 – Largeurs à mi-hauteur des harmoniques pour les deux spectres en Figure 3.43.

adjacents (exemple, sur la figure Figure 3.39, sur la partie $t < 0$, on a d’abord le front montant de l’impulsion avec une pente positive, puis un maximum, puis une pente négative jusqu’à atteindre le fond du trou dans le profil). De ce fait, au lieu de voir un seul changement pente positive/pente négative, on devrait voir un deuxième, moins intense et plus localisé autour de $\theta_{ZO} = 0^\circ_{[90^\circ]}$. Ici, ce n’est pas visible.

Une possibilité est que le trou n’est pas assez conséquent pour que le changement soit visible dans l’évolution des spectres, ce qui peut arriver avec une sous estimation de la durée des impulsions ou une surestimation du délai introduit par la lame multioordre. En calculant le profil d’intensité en sortie des lames avec $\tau_{IR} = 24$ fs et $\delta = 27$ fs, on obtient une valeur minimale dans le trou à 87% du maximum, donc proche de l’intensité maximum. On peut aussi regarder la valeur de la dérivée de l’intensité à l’intérieur de la porte pour deux positions où l’on a la porte dans le front montant et une autre pour laquelle on se situe plutôt dans le trou. On présente l’évolution de cette dérivée extraite des simulations en Figure 3.44.

Les positions où l’on évalue la dérivée sont respectivement 18° et 34° . On obtient alors une dérivée au centre de la porte 4 fois plus grande pour la position $\theta_{ZO} = 18^\circ$ (porte dans le front montant) que pour la position $\theta_{ZO} = 34^\circ$ (porte à l’intérieur du trou d’intensité, décalée). On peut alors avoir une situation où le décalage en énergie est trop petit pour être vu par rapport à la résolution du spectromètre, et être diffus dans le fait que l’on a une plus grande largeur spectrale pour les harmoniques autour de la position où l’on attend cette deuxième structure.

3.3. Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

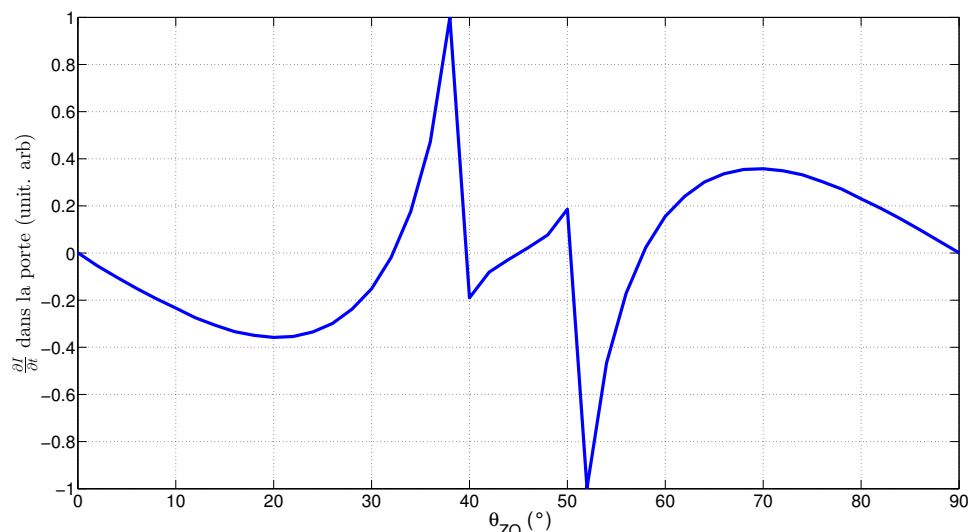


FIGURE 3.44 – Évolution de la dérivée à l'intérieur de la porte sur un cadran de 90° en fonction de l'orientation θ_{ZO} . La lame biréfringente épaisse est à $\theta_{MO}=45^\circ$. Les simulations sont effectuées pour une impulsion Gaussienne, avec $\tau_{IR} = 24$ fs, $\delta=27$ fs et $\phi_{MO} = \pi$.

En conclusion, on a trouvé une configuration supplémentaire, avec un déphasage $\frac{\lambda}{2}$, dans laquelle on peut déplacer la porte de polarisation dans l'impulsion. Les signatures de ce déplacement se retrouvent directement dans l'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} : largeur spectrale, décalage en énergie, signal intégré total. En comparaison avec la situation de la porte asymétrique, on modifie néanmoins la forme de la porte, donc la composition et la largeur spectrale des harmoniques. De ce fait, chaque configuration peut convenir à une application ou une optimisation propre.

Si l'on revient à une des premières observations, où dans la configuration porte étroite, la durée de porte et le confinement temporel sont indépendants du déphasage de la première lame (à l'orientation de la polarisation linéaire dans la porte près), on peut se poser la question de ce que l'évolution de la "porte asymétrique" devient pour un déphasage qui n'est pas $\frac{\lambda}{4}$. Dans le cas où l'on veut optimiser l'efficacité de génération avec le confinement temporel maximum (porte étroite), on détermine l'impact du déphasage sur cette dernière. On simule à nouveau l'évolution de la porte étroite asymétrique, comme dans la partie Section 3.2, mais avec un déphasage de $\frac{\lambda}{2}$ et une situation avec un déphasage intermédiaire également $\frac{\lambda}{3}$. Les évolutions présentées en Figure 3.46 et Figure 3.47 sont bien identiques entre elles, ainsi qu'à celle présentée en Figure 3.6.

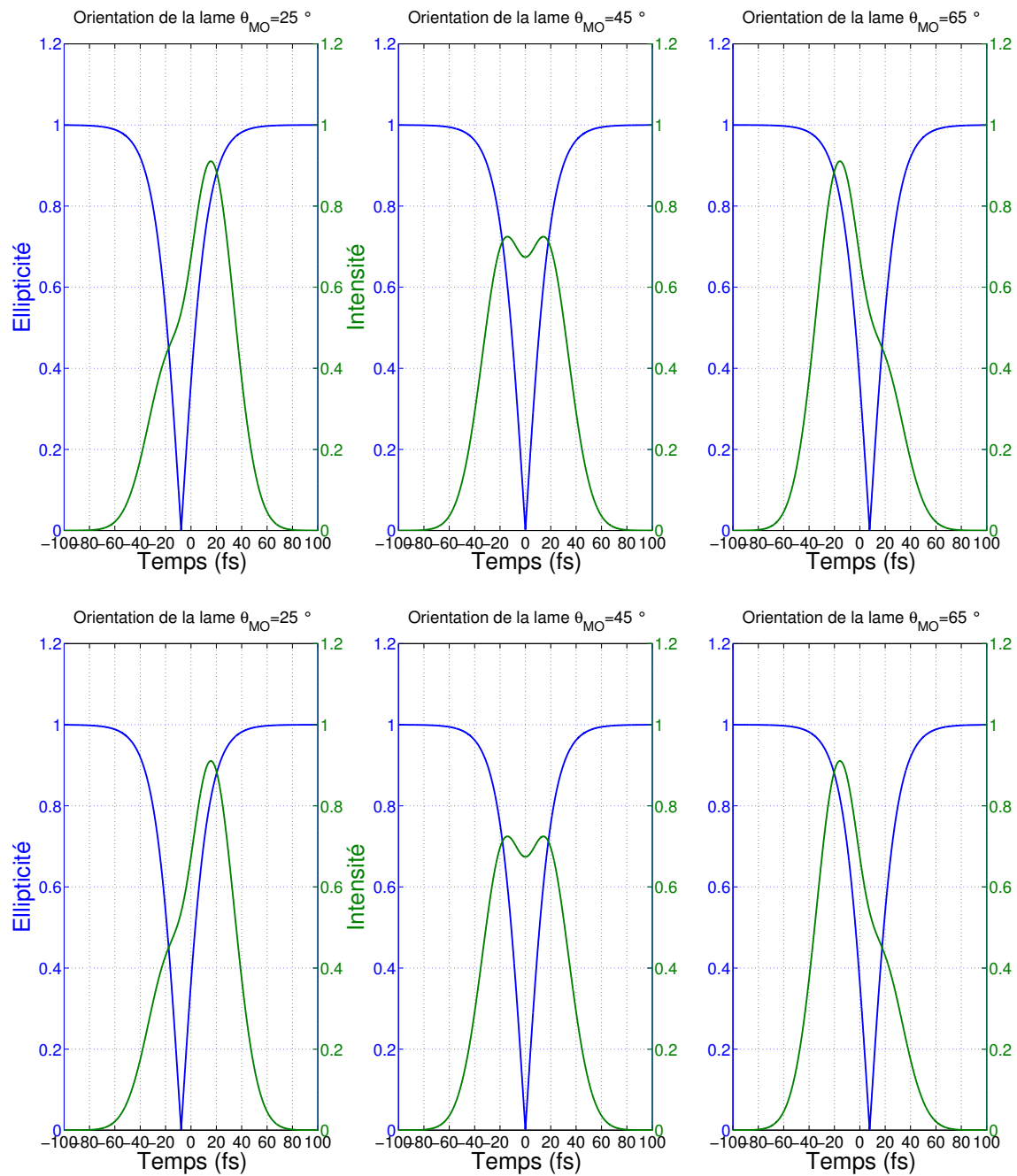


FIGURE 3.45 – Profil d'intensité (vert plein) et ellipticité (bleu plein) en fonction de l'orientation θ_{MO} de la première lame, respectivement $\theta_{MO} = 25^\circ$, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{MO} = 65^\circ$, $\tau_{IR} = 30$ fs et $\delta = 32$ fs, avec un déphasage de $\frac{\lambda}{2}$ puis $\frac{\lambda}{3}$ pour la première lame.

3.3. Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

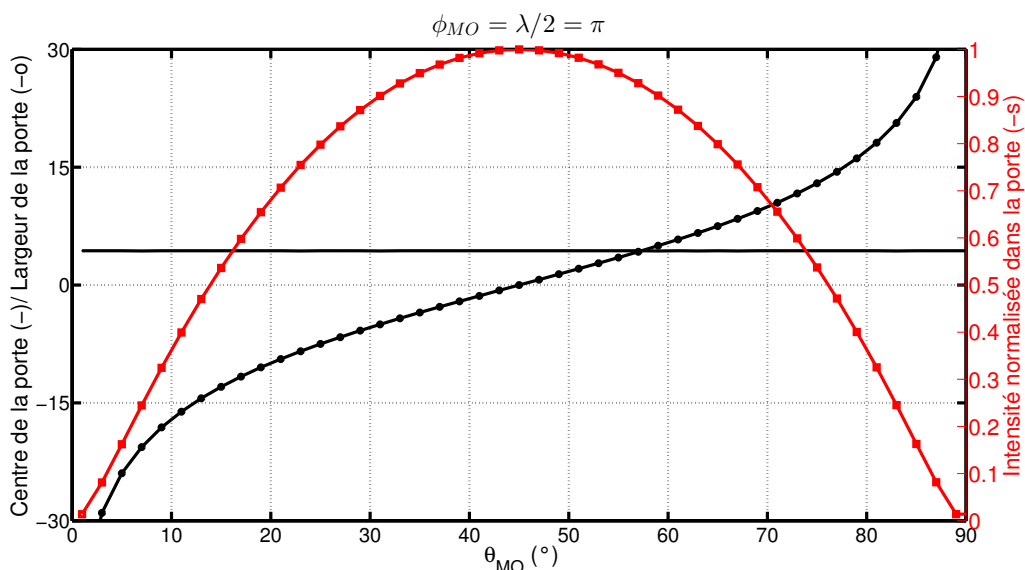


FIGURE 3.46 – Position du centre (noir, symbole rond) et largeur de la porte (noir, symbole carré) et intensité normalisée (par l'intensité maximum dans la porte) au centre de la porte (rouge, symbole croix) en fonction de l'orientation θ_{MO} , avec un déphasage $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{2} = \pi$.

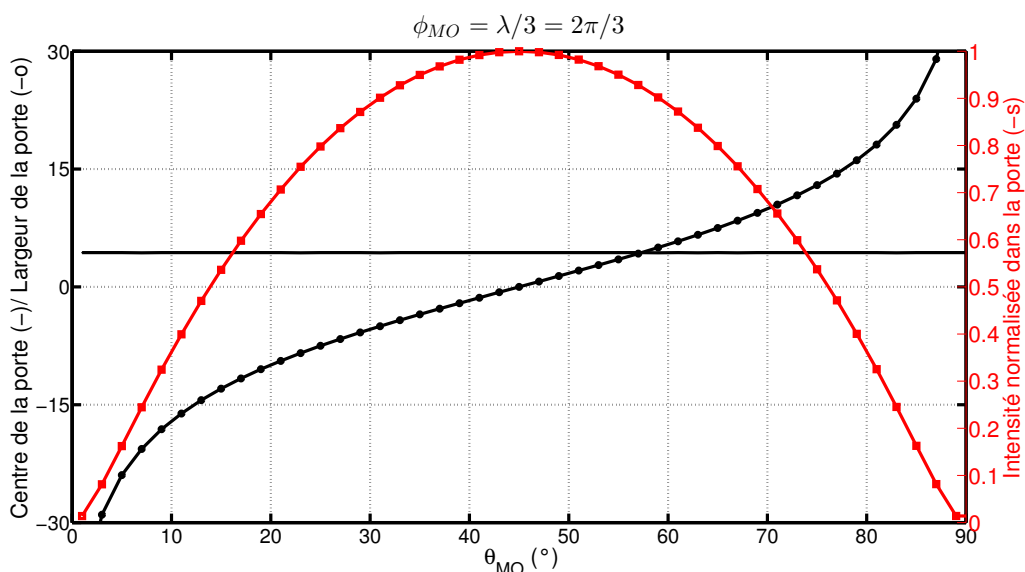


FIGURE 3.47 – Position du centre (noir, symbole rond) et largeur de la porte (noir, symbole carré) et intensité normalisée (par l'intensité maximum dans la porte) au centre de la porte (rouge, symbole croix) en fonction de l'orientation θ_{MO} , avec un déphasage $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{3} = \frac{2\pi}{3}$.

Ainsi, quel que soit le déphasage introduit par la première lame, on peut avoir la même évolution pour la "porte asymétrique", en gardant $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. En effet, on additionne toujours une impulsion avec une polarisation circulaire droite/gauche et une impulsion circulaire gauche/droite, car on a toujours $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. On a toujours une polarisation linéaire là où les deux impulsions se recouvrent. On vérifie que l'on peut obtenir ce comportement expérimentalement.

Le montage expérimental est toujours celui présenté en Figure 3.7. Le milieu de génération est toujours une cellule d'argon de 6 mm de long. La pression dans la cellule est de 30 mbar. On adapte la pression de gaz dans le capillaire pour avoir une durée d'impulsion proche du délai introduit par la lame multiordre $\frac{\lambda}{2}$ que l'on va utiliser. Les impulsions utilisées ont une durée de $\tau_{IR} = 9$ fs. La lame utilisée est une lame d'épaisseur $e = 0.328 \mu\text{m}$, introduisant un délai de $\delta = 10.2$ fs. La puissance en entrée de chambre est de $P = 1.03$ W.

On observe à nouveau l'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} de la lame multiordre, en gardant toujours la lame d'ordre zéro à 45° des axes neutres de la lame multiordre ($\theta_{MO} - \theta_{ZO} = 45^\circ$). La seconde lame utilisée est une lame épaisse achromatique $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro. On présente aussi l'évolution du spectre normalisé harmonique par harmonique. Les deux évolutions sont données en Figure 3.48.

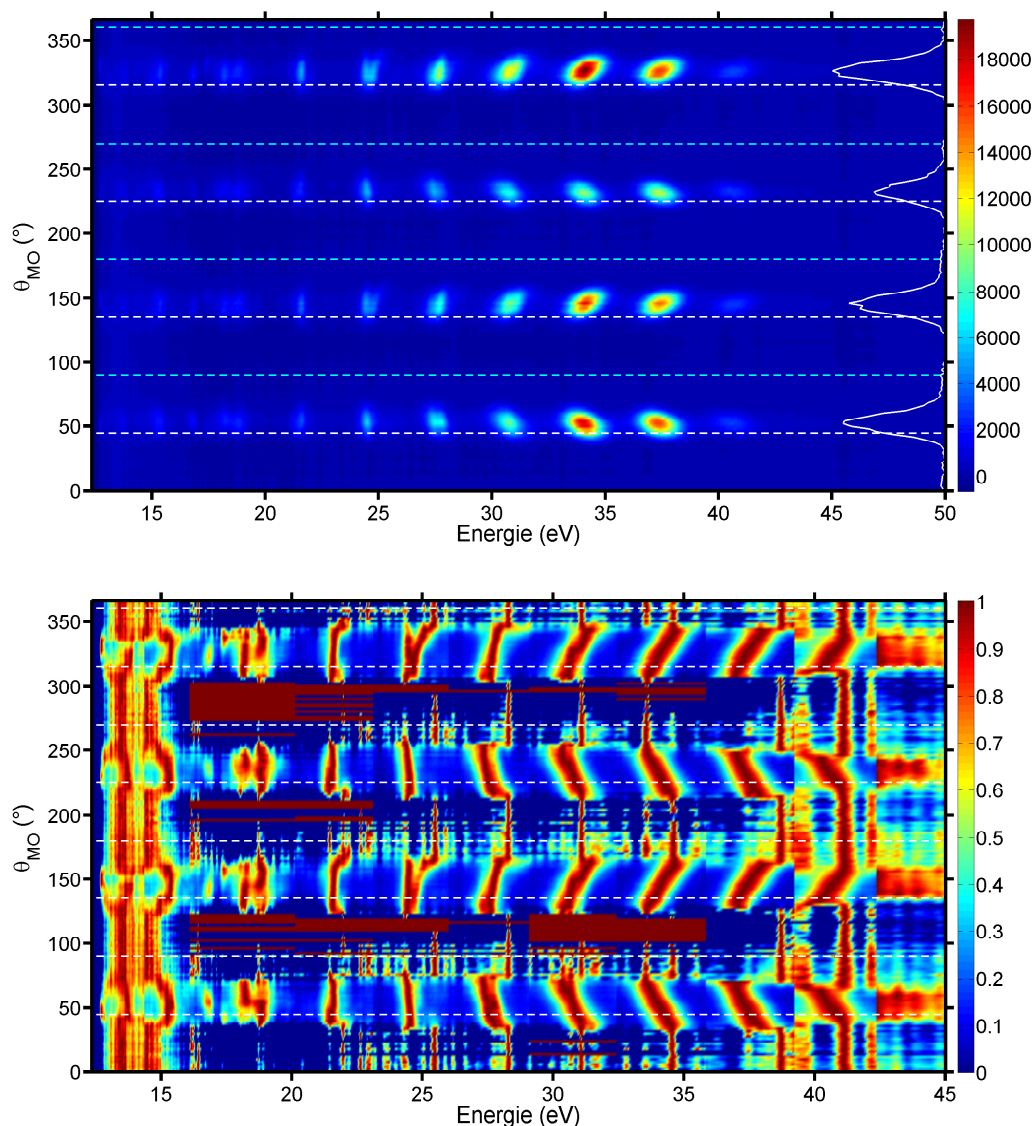


FIGURE 3.48 – Évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} de la première lame. Le signal intégré spectralement est dessiné en courbe blanche en vertical. On a toujours $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$. Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec des impulsions de $\tau_{IR} = 9$ fs, et $\delta = 10.2$ fs pour la lame. L'évolution normalisée harmonique par harmonique est aussi présentée.

3.3. Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

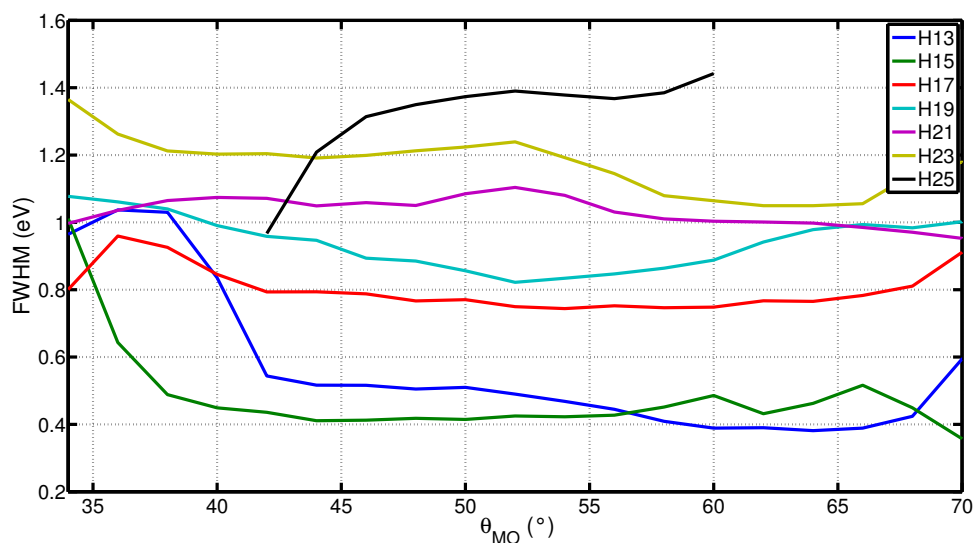


FIGURE 3.49 – Évolution de la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques en fonction de l'orientation θ_{MO} , pour le premier cadran avec $\theta_{MO} \in [34 : 70]^\circ$ (zones avec au moins 10% du signal maximum)

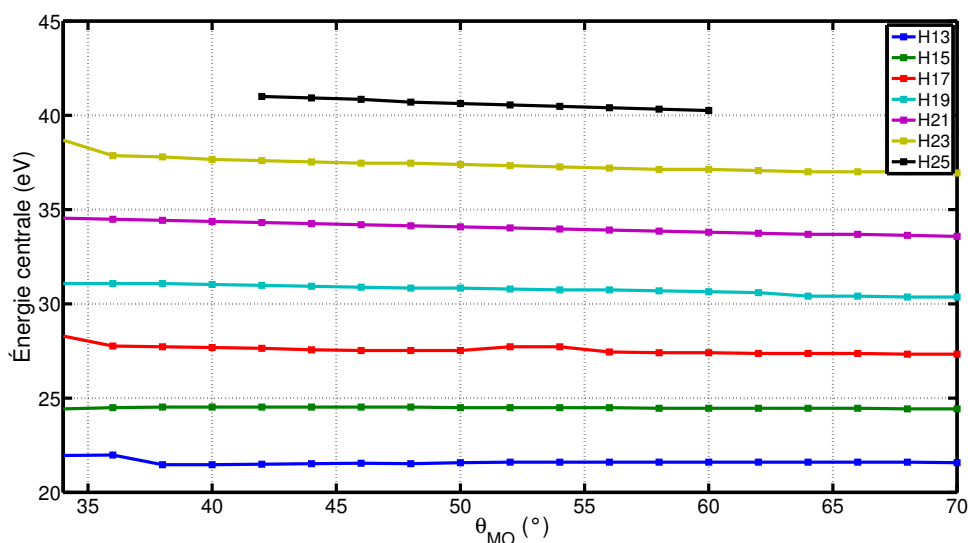


FIGURE 3.50 – Évolution de l'énergie centrale des harmoniques en fonction de l'orientation θ_{MO} pour $\theta_{MO} \in [34 : 70]^\circ$ (zones avec au moins 10% du signal maximum).

En comparaison avec la situation en Section 3.2, on retrouve le même comportement et le même type d'évolution :

- Une largeur à mi-hauteur quasi constante, indépendante de l'orientation θ_{MO} , comme le montre la Figure 3.49. On retrouve aussi une évolution régulière de la largeur spectrale avec l'ordre harmonique, qui augmente lorsque l'ordre harmonique augmente.
- Décalage de la fréquence centrale des harmoniques avec l'orientation θ_{MO} , avec une symétrie de 180° , impliquant un changement de sens pour le décalage (vers le bleu pour un cadran, vers le rouge pour le cadran suivant). Le décalage en énergie augmente encore avec l'ordre harmonique, passant de 150 meV pour

l'harmonique 13 à 950 meV pour l'harmonique 23, sur un intervalle allant de $\theta_{MO} = 36^\circ$ à $\theta_{MO} = 70^\circ$. Pour l'harmonique 25, on a même un décalage en énergie de 750 meV pour un intervalle allant de $\theta_{MO} = 42^\circ$ à $\theta_{MO} = 60^\circ$. Ces décalages en énergie sont donnés en Figure 3.50.

- Un signal intégré périodique, de périodicité 90° . Le maximum de signal se trouve décalé dans le front descendant par rapport à la position θ_{ZO} , de 6° .

On estime la largeur minimale de la porte à partir de la largeur spectrale moyenne pour les harmoniques, et compare avec les valeurs attendues par calcul théorique. Les différentes valeurs sont résumées dans le Tableau 3.15.

	H13	H15	H17
$\langle FWHM \rangle$ (meV)	460 (± 30)	430 (± 30)	760 (± 40)
$\tau_{gate} (\propto \frac{1}{\Delta\omega})$ (fs)	3.9 (± 0.4)	4.3 (± 0.3)	2.4 (± 0.3)
$\tau_{gate}[2]$ (fs)	1.6 (± 0.2)	1.7 (± 0.2)	1.5 (± 0.2)
	H19	H21	H23
$\langle FWHM \rangle$	880 (± 40)	1040 (± 50)	1160 (± 50)
$\tau_{gate} \propto \frac{1}{\Delta\omega}$ (fs)	1.8 (± 0.15)	1.6 (± 0.15)	1.5 (± 0.15)
τ_{gate} (fs) [2]	1.5 (± 0.2)	1.5 (± 0.2)	1.5 (± 0.2)

TABLE 3.15 – Largeurs spectrales à mi-hauteur moyennes des harmoniques et largeurs de porte estimées via le principe d'incertitude, présenté en Équation (3.10), et via les simulations de l'Équation (3.2).

Les durées théoriques correspondent aux durées minimales estimées à partir des largeurs spectrales pour les harmoniques de plus haut ordre. En comparant les Figure 3.9, Figure 3.20, et Figure 3.48, l'évolution du spectre harmonique est similaire, tout en ayant changé le déphasage introduit par la lame multiordre entre les deux situations. Retrouver les mêmes signatures et la même évolution est en accord avec les simulations, où le déphasage introduit par la première lame, dans la configuration porte étroite ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} - 45^\circ$), n'a pas d'influence.

À partir de la Figure 3.50, l'évolution relative de α_q pour le chemin court est inscrite dans le rapport entre les pentes des différentes courbes. Ainsi, en prenant comme référence la pente d'une harmonique de la coupure, où α_q constant égal 13, on extrait une valeur relative de α_q pour les autres harmoniques. Pour $\alpha_{court,H25} = 13$, on a respectivement $\alpha_{court,H13} = 3.66$, $\alpha_{court,H15} = 1.2$, $\alpha_{court,H17} = 6.6$, $\alpha_{court,H19} = 6.8$, $\alpha_{court,H21} = 8.7$, et $\alpha_{court,H23} = 9.1$. On trouve une évolution régulière pour le α_q du chemin court (sauf H15), qui augmente assez rapidement avec l'ordre harmonique.

Pour conclure, les simulations et les expériences ont montré que le déphasage de la lame multiordre épaisse n'avait pas d'importance lorsque l'on restait dans une configuration classique de porte étroite ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$), mais que l'on pouvait obtenir des configurations plus complexes pour la porte de polarisation en changeant ce déphasage et en changeant l'orientation des axes neutres de la lame d'ordre zéro. On a étudié plusieurs cas :

- Configuration porte étroite ($\theta_{ZO} = 45^\circ + \theta_{MO}$) vers porte large ($\theta_{ZO} = \theta_{MO}$), $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{4} = \frac{\pi}{2}$: C'est la configuration la plus usuelle, où l'on passe d'une porte étroite $\theta_{ZO} = \theta_{MO} + 45^\circ$ à une porte large $\theta_{ZO} = \theta_{MO}$, sans déplacement de la porte. On joue uniquement sur la durée du confinement temporel, en changeant l'orientation θ_{ZO} . Cette configuration est uniquement valable lorsque $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{4}$. Le centre

3.3. Influence du déphasage induit par la lame biréfringente épaisse sur la porte de polarisation

de la porte n'est pas déplacé. Cette situation a été mise en évidence au travers des simulations, mais aussi expérimentalement, avec augmentation de la largeur spectrale des harmoniques associé à une baisse de signal quand on augmente le confinement temporel.

- Configuration porte étroite décalée avec $\theta_{ZO} = \theta_{MO} + 45^\circ$, θ_{MO} variable : Le confinement temporel est conservé, avec une position de porte contrôlable, ce qui a été montré expérimentalement avec deux durées d'impulsions différentes au travers de plusieurs signatures spectrales (variations de signal harmonique intégré, changement de fréquence des pics harmoniques, largeurs spectrales constantes), et retrouvé via des simulations avec un dipôle modèle simple. Avec ces expériences, des valeurs de α_q ont pu être estimées à plusieurs reprises pour les harmoniques H11 à H19. Des premières situations de α_{eff} négatifs pour les harmoniques du plateau, avec la trajectoire courte, ont été observées. Dans cette configuration de porte avec une position contrôlable, le déphasage de la lame multiordre n'a pas d'impact, comme montré au travers des simulations à trois déphasages différentes : $\frac{\lambda}{4}$, $\frac{\lambda}{2}$ et $\frac{\lambda}{3}$. Ceci a été illustré par les observations expérimentales avec deux lames multiordres de déphasages différents. L'optimisation de l'efficacité de la génération d'harmoniques d'ordre élevé confinée via la porte asymétrique est une méthode valable, quelque soit le déphasage introduit par la lame multiordre épaisse.
- Configuration porte décalée avec $I(t)$ constant $\theta_{MO} = 45^\circ$, θ_{ZO} variable, $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{2} = \pi$:
Dans le cas où le déphasage de la lame multiordre est de $\frac{\lambda}{2}$, en tournant l'orientation des axes de la seconde lame θ_{ZO} avec θ_{MO} fixe, les évolutions sont plus complexes. Dans cette configuration, il est possible de déplacer le centre de la porte, sans changer le profil d'intensité en sortie des lames, mais le confinement temporel est changé, car on observe une déformation de la porte.

Pour le prochain chapitre, on revient à une configuration standard de la porte de polarisation, en configuration porte étroite. Le but est d'arriver à des situations compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées, et en chercher des signatures spectrales dans les évolutions du spectre XUV.

Chapitre 4

Génération de continuum spectral XUV : configurations compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées

4.1 Du continuum spectral aux impulsions attosecondes isolées

Le Chapitre 3 précédent a montré que l'on a un bon contrôle de la porte de polarisation, avec différentes configurations. Dans cette partie, on se focalise sur le confinement temporel avec la porte de polarisation en configuration "porte étroite" ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$). On a vu plusieurs signatures de confinement temporel dans les Section 3.3 et Section 3.2.5, avec un élargissement spectral significatif des harmoniques. Dans cette partie, on veut observer des spectres avec des harmoniques aussi larges spectralement que possible, en poussant le confinement temporel au maximum, jusqu'à des situations où l'on génère un continuum spectral [52, 56, 120]. La génération d'impulsions attosecondes isolées doit se traduire par la présence d'un continuum dans le spectre. Pour obtenir des impulsions isolées via le confinement temporel, il faut avoir une largeur de porte qui limite l'émission à une impulsion attoseconde isolée, soit $\tau_{gate} < \frac{T_0}{2}$. Néanmoins, avoir un continuum spectral n'est pas directement équivalent à la génération d'impulsions attosecondes isolées [52].

Pour augmenter le confinement temporel via la porte de polarisation, il y a plusieurs paramètres sur lesquels on agit :

- Pour un délai δ fixe, diminuer la durée τ_{IR} permet d'obtenir une porte plus courte (voir Équation (3.2)). Ici, cela veut dire utiliser une impulsion plus courte en sortie de la post-compression. On augmente la pression dans le capillaire et réajuste finement le chirp avec les miroirs chirpés et les prismes en silice pour avoir des impulsions plus courtes.
- Augmenter le délai δ , ce qui est possible avec une lame multiordre plus épaisse, pour τ_{IR} fixe.
- Augmenter l'énergie avant génération pour avoir une coupure plus haute en énergie, et donc des harmoniques plus sensibles au confinement temporel.

La pression dans la cellule est aussi un paramètre sur lequel on peut agir. Elle permettra de faire ressortir plus ou moins les harmoniques d'ordre plus élevé, notamment à

plus forte pression. Comme évoqué en Section 3.2.5, il existe des situations où le spectre harmonique est continu lorsque la CEP n'est pas stabilisée, en particulier lorsque qu'il est moyenné sur plusieurs tirs laser donc plusieurs CEP, sans que cela corresponde à une impulsion attoseconde isolée [142]. Sans stabilisation de la CEP, dans le cas d'une largeur de porte de polarisation sub $\frac{T_0}{2}$, on peut avoir génération d'une impulsion attoseconde isolée, ou bien deux impulsions attosecondes avec le même spectre.

Avec la CEP stabilisée, pour deux valeurs de $\phi_{CEP} = 0$ à $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ et une durée d'émission de $\tau_{gate} = \frac{T_0}{2} = 1.33$ fs, on passe d'une situation où l'on génère une impulsion attoseconde isolée, à deux impulsions attosecondes. Ces situations sont illustrées en Figure 4.1. Le modèle utilisé est décrit ci-dessous.

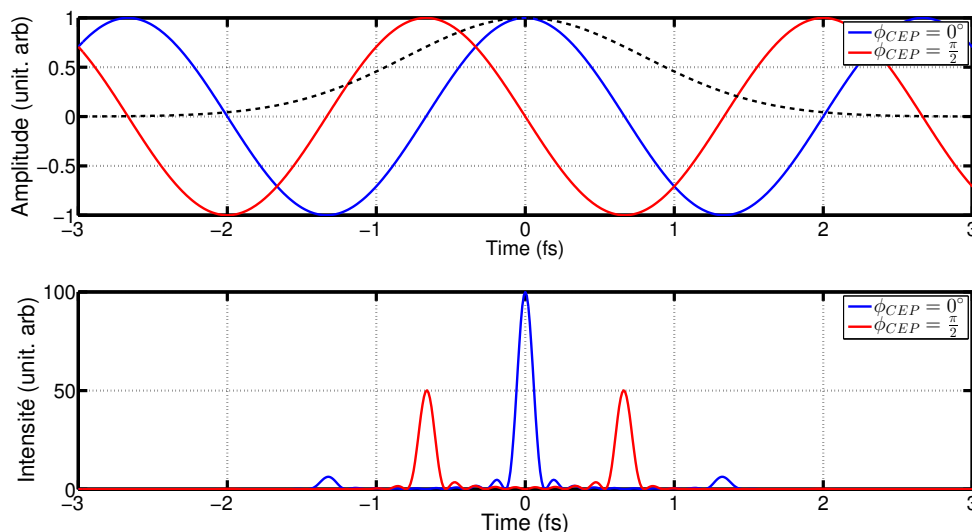


FIGURE 4.1 – Comparaison des deux émissions XUV avec une CEP fixe à $\phi_{CEP} = 0$ et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ respectivement, avec $\tau_{gate} = 1.33$ fs. La courbe du dessus présente le champ infini de départ pour les deux valeurs de ϕ_{CEP} , en trait plein bleu pour 0 et rouge pour $\frac{\pi}{2}$, ainsi que la Gaussienne définissant la durée d'émission XUV, en pointillés noirs. La courbe du dessous présente le profil d'intensité temporel pour $\phi_{CEP} = 0$ en trait plein bleu et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ en trait plein rouge.

La Figure 4.1 montre que pour deux valeurs de CEP fixes différentes, l'émission XUV sera différente, et ce pour une même durée de porte (ici $\tau = 1.33$ fs).

Les caractéristiques spectrales des harmoniques varient elles aussi en fonction de la CEP, les structures harmoniques apparaissant pour certaines valeurs de la CEP. Dans un premier temps, on se restreint à des situations sans la stabilisation de la CEP. Dans ce cas, les largeurs spectrales à mi-hauteur des harmoniques sont étudiées. On simule l'évolution du spectre harmonique moyenné sur toutes les CEP entre 0 et π pour des largeurs de porte entre 0.6 fs et 2 fs. On part d'un champ E_{IR} infini temporellement, de période $T_0 = 2.66$ fs. On définit ensuite une Gaussienne d'émission G_{eff} , dont la largeur à mi-hauteur définit le confinement temporel de l'émission XUV. En première approximation, on se limite aux cas où la phase $\alpha_q I$ est nulle, et toutes les harmoniques sont en phase et de même amplitude. Les impulsions attosecondes sont donc considérées Fourier limitées. Le champ harmonique total s'écrit alors :

$$E_{tot,XUV}(t) = \sum_{q_i=q_1}^{q_N} e^{i(q_i(\omega_0 t + \phi_{CEP}))} \quad (4.1)$$

Le spectre $|\tilde{E}_{tot,XUV}(\omega)|^2$ est obtenu en prenant la transformée de Fourier du champ $E_{tot,XUV}$, en moyennant sur toutes les valeurs de ϕ_{CEP} entre 0 et π . Le profil d'intensité attoseconde est obtenu en prenant $I(t) = E_{tot,XUV}(t)E_{tot,XUV}(t)^*$. L'évolution du spectre moyenné sur ϕ_{CEP} est retranscrite en Figure 4.2. On définit le contraste spectral comme le rapport entre le minimum et le maximum de signal pour une harmonique.

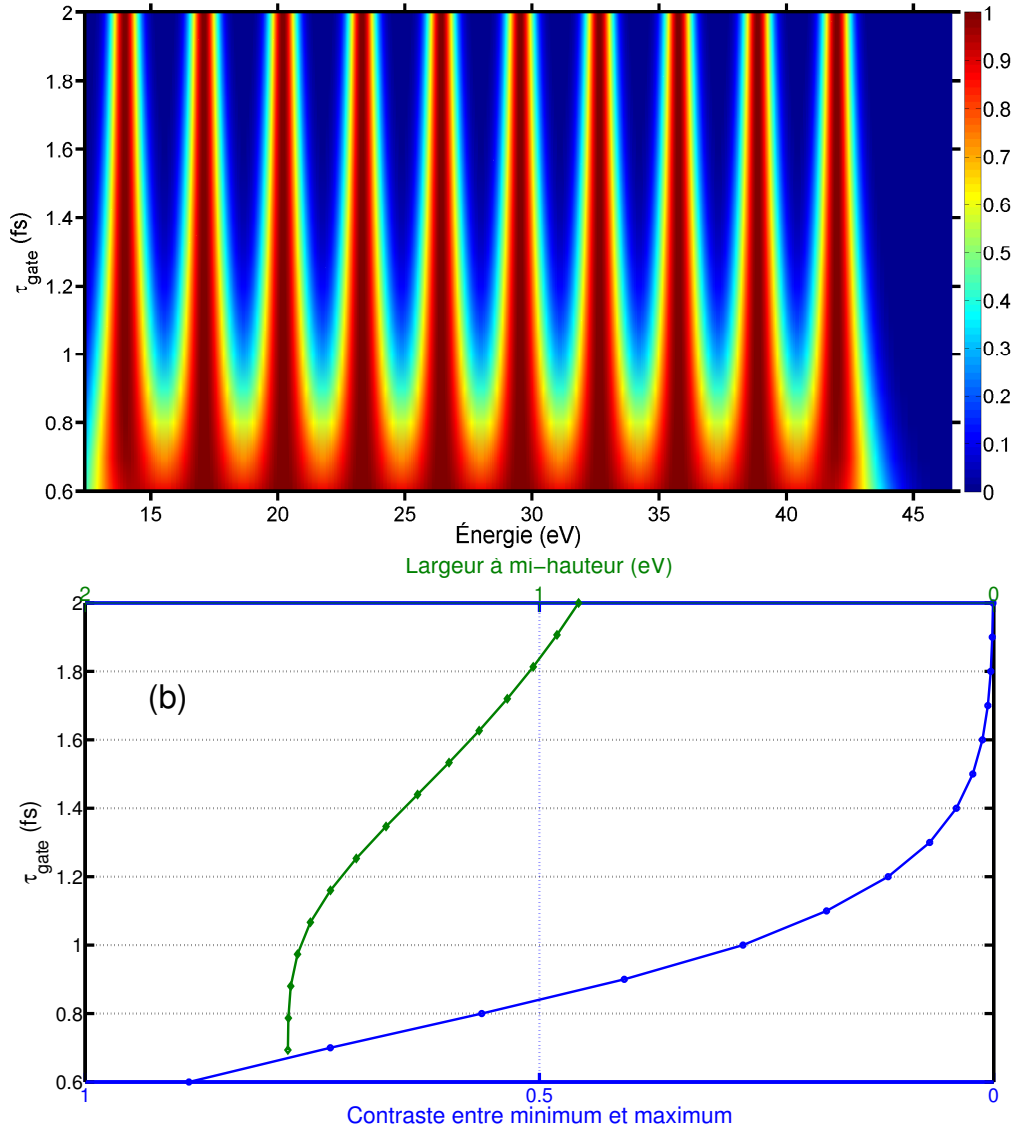


FIGURE 4.2 – (a) Évolution simulée du spectre harmonique moyenné sur toutes les valeurs de CEP entre 0 et π en fonction de la durée d'émission τ_{gate} . Le contraste varie de manière continue. L'évolution du contraste spectral (bleu) $C = \text{minimum}/\text{maximum}$ et de la largeur spectrale à mi-hauteur (vert) sont également données sur la figure (b), en fonction de τ_{gate} .

On considère que l'on obtient un continuum spectral lorsque le contraste spectral est supérieur à 50 %, avec le CEP non stabilisée. Dans le domaine temporel, on peut considérer que l'on a une impulsion attoseconde isolée lorsque le contraste entre l'impulsion principale et les impulsions secondaires est de 10% ou moins en ordre de grandeur. D'après les simulations en Figure 4.2, observer un continuum correspond donc à une largeur de porte inférieure à 0.9 fs. Au dessus de cette valeur, les structures

harmoniques réapparaissent rapidement. Il faut donc une largeur de porte en dessous du demi-cycle optique lorsque la CEP n'est pas stabilisée.

Dans le cas où la CEP est stabilisée et pour une largeur de porte de $\tau_{gate} = 1.33$ fs, le profil d'intensité est illustré en Figure 4.1 pour deux valeurs de ϕ_{CEP} , 0 et $\frac{\pi}{2}$. On obtient les deux situations : une impulsion attoseconde isolée, avec deux répliques de faible amplitude, pour $\phi_{CEP} = 0$, et deux impulsions attosecondes de même amplitude pour $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$. Le contraste entre les répliques et l'impulsion principale pour $\phi_{CEP} = 0$ est de 6%, contre 100% pour les deux impulsions dans le cas $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$. Les deux répliques sont séparées de $\frac{T_0}{2} = 1.33$ fs.

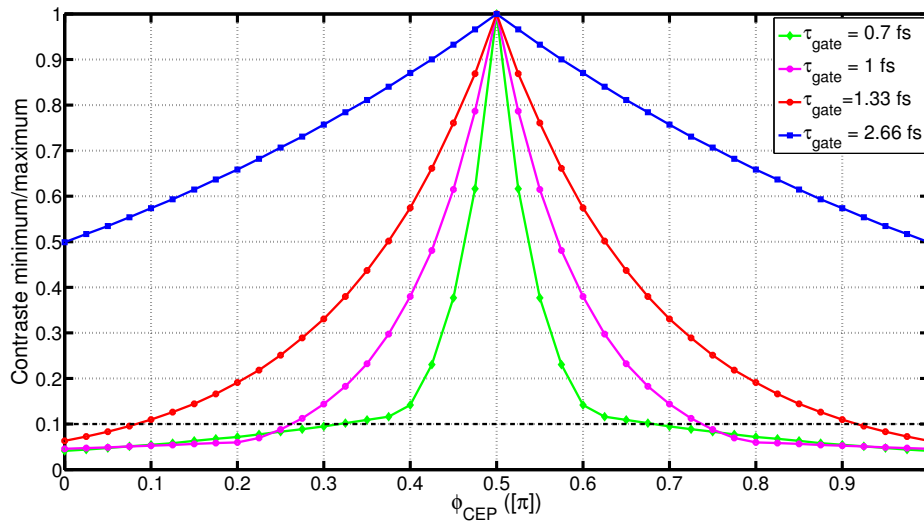


FIGURE 4.3 – Évolution du contraste temporel pour différentes largeurs de porte τ_{gate} en fonction de ϕ_{CEP} . Le contraste est défini comme le rapport entre l'intensité du pic principal et l'intensité du premier pic secondaire.

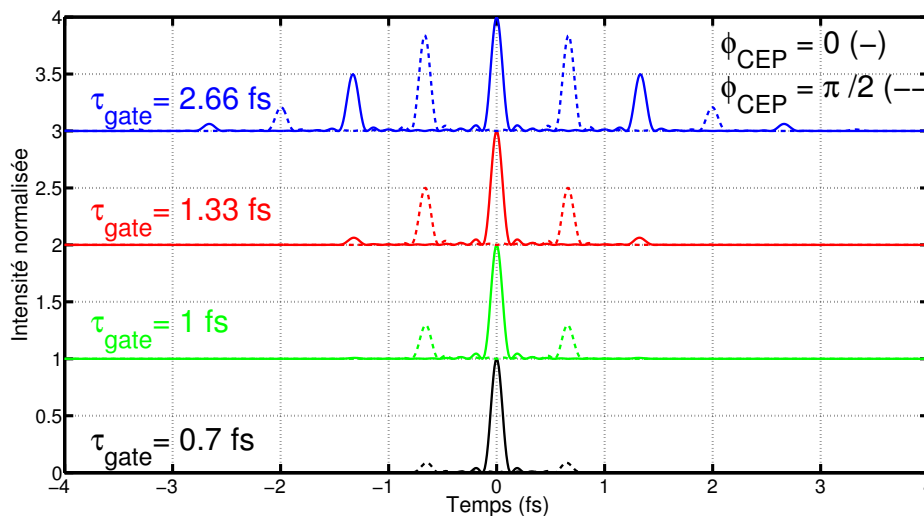


FIGURE 4.4 – Profils temporels en intensité pour différentes largeurs de porte τ_{gate} pour deux CEP, $\phi_{CEP} = 0$ en trait plein et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$ en trait pointillé. Les profils temporels sont normalisés par le maximum du profil pour $\phi_{CEP} = 0$ et chaque τ_{gate} .

L'évolution du contraste temporel (rapport entre l'amplitude de l'impulsion secondaire et l'amplitude de l'impulsion principale) est donnée en Figure 4.3 en fonction de ϕ_{CEP} , pour une largeur de porte $\tau_{gate} = 1.33$ fs. Les profils temporels simulés pour différentes largeurs de porte, à $\phi_{CEP} = 0$ et $\phi_{CEP} = \frac{\pi}{2}$, sont donnés en Figure 4.4.

Une ligne horizontale pour le contraste temporel de 10% est dessinée en pointillés noirs. Cette délimitation permet de visualiser la gamme dans laquelle le critère isolé est valide ou non. Pour une porte de $\tau_{gate} = 2.66$ fs, soit un cycle optique, le contraste est au minimum de 50% pour les CEP de 0 et π , et 100 % pour $\frac{\pi}{2}$. Dans ce cas, le critère pour obtenir une impulsion attoseconde isolée n'est jamais vérifié. Dans le cas d'une largeur de porte de $\tau_{gate} = 1.33$ fs, le contraste est au minimum de 6% pour une CEP de 0 ou π , et de 100 % pour une CEP de $\frac{\pi}{2}$. Dans ce cas précis, l'impulsion générée peut être considérée comme isolée lorsque la CEP se situe dans une gamme $[0 : 0.1\pi] \cup [0.9\pi : \pi]$. La stabilisation de la CEP est donc cruciale même avec une porte de largeur sub demi-cycle optique.

L'évolution du contraste temporel est aussi dessinée pour deux autres largeurs de porte τ_{gate} . Jusqu'à une porte de largeur $\tau_{gate} = 0.7$ fs, le contraste est toujours de 100% pour une CEP de $\frac{\pi}{2}$. La gamme dans laquelle l'impulsion vérifie le critère de 10% sur le contraste temporel augmente jusqu'à $[0 : 0.3\pi] \cup [0.7\pi : \pi]$ pour $\tau_{gate} = 0.7$ fs. Ces évolutions montrent que la CEP est un paramètre crucial pour pouvoir justifier l'obtention d'une impulsion attoseconde isolée, car pour deux CEP différentes et une porte de polarisation de largeur sub $\frac{T_0}{2}$, on peut avoir une ou deux impulsions attosecondes générées, donc perdre le caractère isolé. Néanmoins, l'efficacité de génération est plus faible dans le cas avec deux impulsions que dans le cas avec une impulsion attoseconde isolée, où l'efficacité est maximum. Avec stabilisation de ϕ_{CEP} , une largeur de porte $\tau_{gate} = 1.33$ fs = $\frac{T_0}{2}$ est suffisante pour obtenir une impulsion attoseconde isolée. Avec ϕ_{CEP} aléatoire, pour s'assurer d'avoir une situation où l'on génère en moyenne une impulsion attoseconde isolée, on doit aller chercher des confinements temporels plus forts que le demi-cycle optique, et se placer dans une situation avec $\tau_{gate} \approx 0.7-0.8$ fs.

Ce modèle suppose qu'il n'y a pas ou peu de décalage spectral des harmoniques avec ϕ_{CEP} . Ceci est justifié expérimentalement à posteriori.

4.2 Signatures spectrales du confinement temporel de l'émission XUV

4.2.1 Réalisation expérimentale : sans stabilisation de la CEP, impulsions de durée $\tau_{IR} \approx 7$ fs

Dans un premier temps, l'observation expérimentale d'harmoniques larges s'effectue via le montage expérimental développé à l'ILM, illustré en Figure 3.7. Les paramètres libres sont τ_{IR} et δ . Les harmoniques sont générées dans l'argon, dans une cellule de 6 mm de long. La focale du miroir de focalisation est de $f = 60$ cm. Cela donne un w_0 de 50 μm ($Z_R = 2$ mm). La pression de néon est de 1083 mbar dans le capillaire. En réajustant finement le chirp de l'impulsion avec les wedges en silice, on obtient au minimum de durée une impulsion de durée $\tau_{IR} = 7.2$ fs.

Pour créer la porte de polarisation, on utilise une lame multiordre d'épaisseur 381 μm , que l'on place d'abord à $\theta_{MO} = 45^\circ$. Cette lame multiordre induit un délai de 12.3 fs. La seconde lame est une lame d'ordre zéro $\frac{\lambda}{4}$ achromatique, fixée à $\theta_{ZO} = 0^\circ$ au départ. Dans ce cas, la largeur de porte estimée est de $\tau_{gate} = 0.67$ fs, via

l'Équation (3.2), et un continuum spectral avec un bon contraste devrait être observable dans ces conditions. La pression dans la cellule est de 30 mbar. On observe le spectre harmonique avec un spectromètre XUV champ plan, dans deux configurations, porte étroite (confinement maximum) et sans confinement.

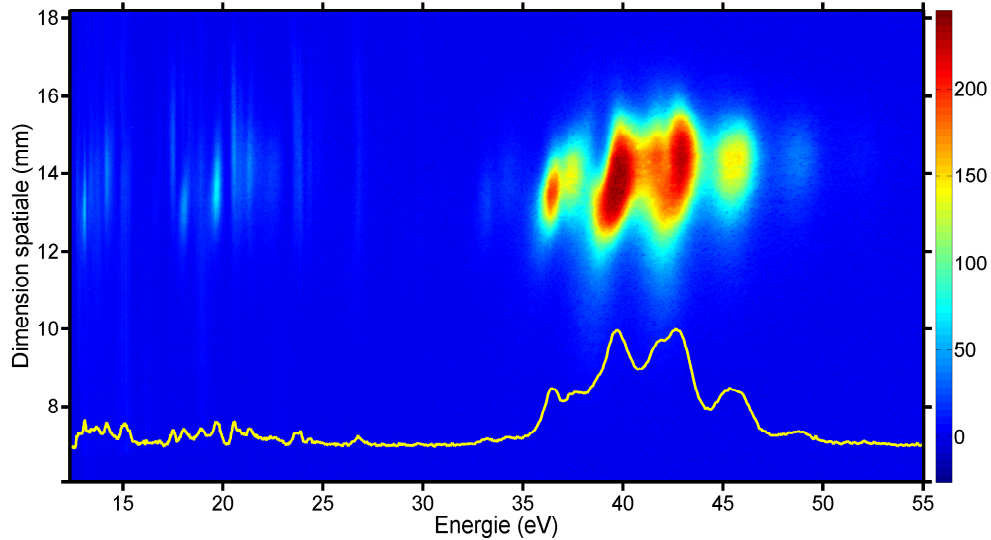


FIGURE 4.5 – Image spatio-spectrale obtenue avec $P = 50$ mbar en amont de la cellule d'argon, avec la porte de polarisation en configuration porte étroite ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$), et $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs, soit $\tau_{gate} = 0.67$ fs. Le spectre intégré spatialement sur toute la dimension spatiale est tracé en jaune. Les hautes tensions des MCP sont à -1200 V.

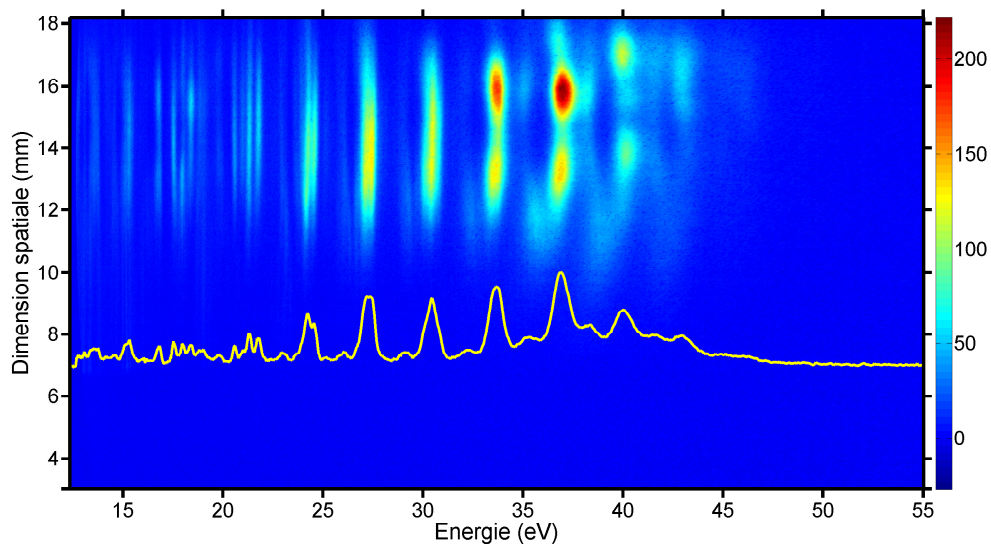


FIGURE 4.6 – Image spatio-spectrale obtenue avec $P = 50$ mbar en amont de la cellule d'argon sans confinement temporel ($\theta_{MO} = \theta_{ZO} = 0^\circ$), et $\tau_{IR} = 7.2$ fs. Le spectre intégré spatialement sur toute la dimension spatiale est tracé en jaune. Les hautes tensions des MCP sont à -1100 V.

La Figure 4.5 est une image spatio-spectrale obtenue en porte étroite dans ces conditions expérimentales. Le spectre est constitué d'harmoniques d'ordres élevés larges,

4.2. Signatures spectrales du confinement temporel de l'émission XUV

formant quasiment un continuum. Ce continuum s'étale d'environ 35 eV à 47 eV. Des structures harmoniques restent présentes sur ce spectre, avec un contraste de 72%. L'utilisation d'une pression élevée dans la cellule permet de faire ressortir les harmoniques les plus hautes. Les harmoniques les plus basses sont quasiment absentes dans le spectre avec ce confinement.

En comparaison, le spectre sans confinement temporel $\theta_{MO} = \theta_{ZO} = 0^\circ$, est donné en Figure 4.6. L'impact du confinement temporel via la porte de polarisation est visible sur la largeur spectrale des harmoniques, qui augmente lorsque l'on est en configuration porte étroite. Les structures harmoniques sont visibles pour le spectre donné en Figure 4.6, et on retrouve le signal pour les harmoniques les plus basses. Le contraste spectral avec le confinement temporel est de 72 %, contre moins de 10% sans confinement, entre 37 et 40 eV.

La tension des MCP est de -1100 V pour le spectre en Figure 4.6 et de -1200 V pour le spectre en Figure 4.5. Une augmentation de 50 V de tension correspond à un facteur 2 sur le signal en sortie. On a donc un facteur 4 entre les deux situations pour le signal maximum en ordre de grandeur.

On a donc trouvé une configuration qui permet d'obtenir un premier spectre harmonique avec des harmoniques larges, avec seulement quelques structures harmoniques présentes et un contraste spectral de 72%.

Le confinement de l'émission XUV par porte de polarisation étant un effet au niveau de l'atome unique, il convient de vérifier que ce continuum n'est pas dû à des effets collectifs comme une modification du spectre IR avec la pression ou des effets de propagation. Avec une modification du contenu spectral de l'infrarouge, le contenu spectral de l'XUV est lui aussi modifié. Pour vérifier que l'observation de ce continuum n'est pas dû à ces effets collectifs, on fait varier la pression dans la cellule en gardant les autres conditions expérimentales inchangées. L'évolution du spectre harmonique est présentée en Figure 4.7 pour des pressions d'argon différentes, respectivement 25, 35, 45 et 55 mbar.

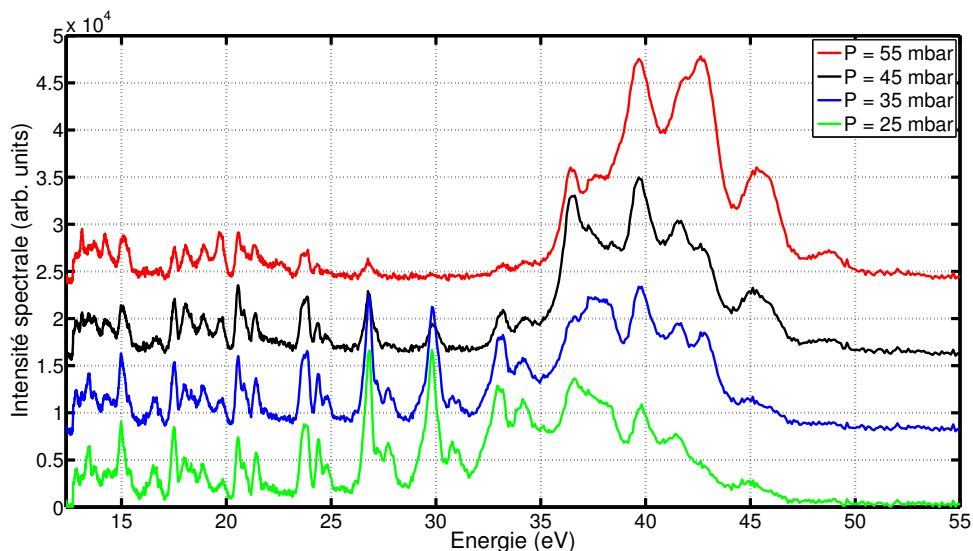


FIGURE 4.7 – Spectres harmoniques en fonction de la pression dans la cellule. On a $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La largeur de la porte calculée via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$.

Sur la Figure 4.7, on voit que le continuum obtenu dans la gamme 35 - 50 eV

reste présent pour toutes les pressions entre 25 et 55 mbar. Avec une pression plus basse, les harmoniques les plus basses réapparaissent. Le continuum observé semble donc indépendant de la pression dans la cellule.

La durée de porte associée via l'Équation (3.2) est de 0.67 fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$. Les simulations de la Figure 3.38 montrent que pour une durée d'émission de 0.67 fs, le contraste spectral est de 70%, donc des structures harmoniques encore présentes mais un fond continu prédominant. Cette situation correspond à celles que l'on observe en Figure 4.7 et Figure 4.5, dans la gamme 35-50 eV. Pour les spectres à 55 mbar et 25 mbar sur la Figure 4.7, le contraste autour de l'harmonique la plus intense (valeur du minimum local autour du pic maximum divisé par la valeur maximum du signal) est de 81% et 64% respectivement. Cette valeur de contraste est cohérente avec les valeurs de contraste simulées en Figure 4.2, donc compatible avec une durée de porte de 0.7 fs environ (sub $\frac{T_0}{2}$).

Le fait de faire l'intégration sur l'entièreté de la dimension spatiale peut amener à observer des spectres continus lorsque le profil spatial est très inhomogène. Pour s'affranchir de cet effet, la Figure 4.8 montre l'évolution du spectre en fonction de la pression, mais en intégrant sur une bande autour du maximum de signal. L'évolution du spectre en intégrant sur une partie spatiale de l'image est donnée en Figure 4.8.

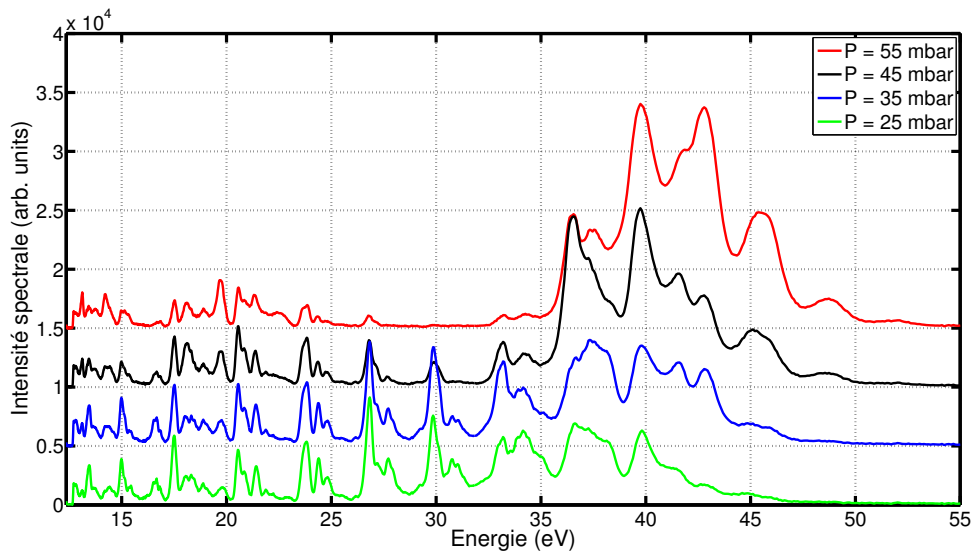


FIGURE 4.8 – Spectres harmoniques en fonction de la pression d'argon dans la cellule, avec $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La largeur calculée de la porte via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$. L'intégration spatiale est faite sur une bande réduite de 75 pixels au centre, sur l'axe.

Sur la Figure 4.8, où une intégration spatiale autour du centre du faisceau est réalisée, le continuum reste présent avec les différentes pressions. Les structures harmoniques sont légèrement plus marquées avec cette intégration limitée qu'avec l'intégration sur toute la dimension spatiale, en particulier à faible pression. Pour $P = 25$ mbar, le continuum s'étale de 30 eV à 43 eV. Pour $P = 55$ mbar, il s'étale de 36 eV à 49 eV.

Le contraste des spectres à 55 mbar et 25 mbar est respectivement de 82% et 56%, soit des valeurs proches pour les spectres de la Figure 4.7, et en accord avec les simulations des valeurs de contraste de 70% en Figure 4.2 pour de telles durées de porte $\tau_{gate} = 0.67$ fs.

D'autres spectres avec des harmoniques larges ont été observés, quasiment continus

4.2. Signatures spectrales du confinement temporel de l'émission XUV

sur les harmoniques de plus haut ordre, pour des conditions expérimentales légèrement différentes. Deux images spatiospectrales avec le spectre harmonique associé pour deux pressions différentes sont données en Figure 4.9 et Figure 4.10.

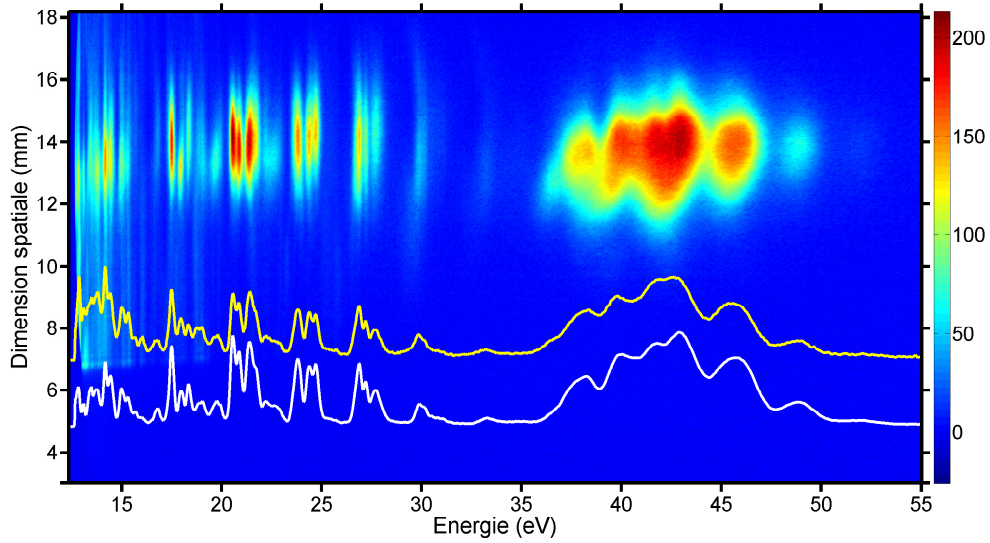


FIGURE 4.9 – Image spatiospectrale obtenue avec $P = 75$ mbar dans la cellule, porte de polarisation en configuration porte étroite, $\tau_{IR} = 7.2$ fs. Le spectre intégré spatialement est tracé en jaune, et le spectre avec une intégration spatiale réduite sur 75 pixels de l'axe en blanc. On a $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} = -10^\circ$. La largeur de la porte étroite estimée via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs et $\epsilon_{thr} = 0.1$.

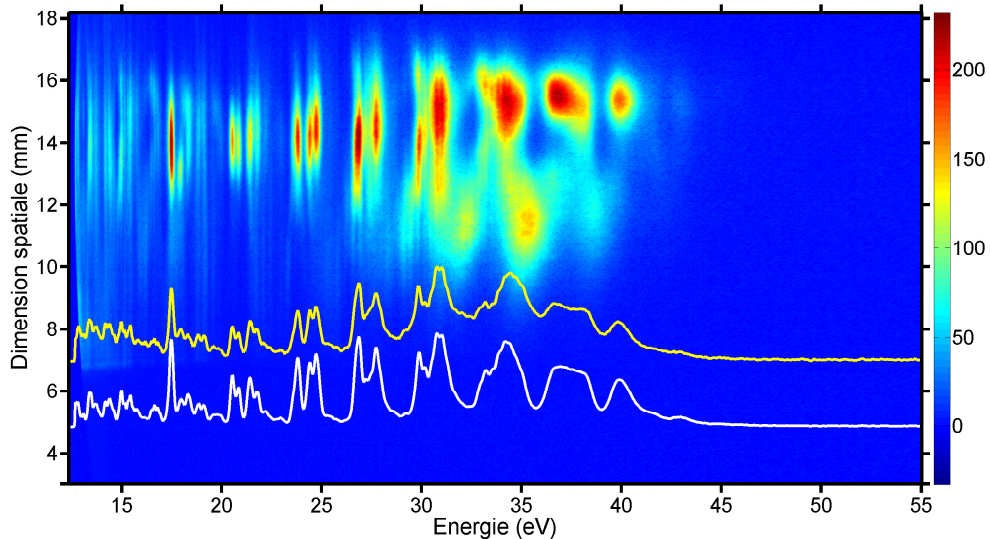


FIGURE 4.10 – Image spatiospectrale obtenue avec $P = 25$ mbar dans la cellule, porte de polarisation en configuration porte étroite, $\tau_{IR} = 7.2$ fs. Le spectre intégré spatialement est tracé en jaune, et le spectre avec une intégration spatiale réduite sur 75 pixels en blanc. On a $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} = -10^\circ$. La largeur de la porte étroite estimée via l'Équation (3.2) est $\tau_{gate} = 0.67$ fs, pour $\tau_{IR} = 7.2$ fs, $\delta = 12.3$ fs et $\epsilon_{thr} = 0.1$.

On a toujours des impulsions d'une durée $\tau_{IR} = 7.2$ fs, ainsi que les mêmes lames pour la porte de polarisation : multiordre d'épaisseur $e = 381 \mu\text{m}$, lame d'ordre zéro $\frac{\lambda}{4}$

d'ordre zéro épaisse. Les deux pressions utilisées sont respectivement $P = 75$ mbar et $P = 25$ mbar. On a légèrement décalé notre porte de polarisation, de manière similaire à la méthode expliquée en Section 3.2, afin d'optimiser le signal XUV. Les orientations des lames sont $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} = -10^\circ$.

Les Figure 4.9 et Figure 4.10 montrent un spectre assez continu pour 75 mbar, avec un profil spatial régulier, contrairement au spectre à 25 mbar. Les structures harmoniques sur les harmoniques de plus bas ordre sont présentes dans les deux cas. Le continuum obtenu s'étale de 36 eV à 47 eV en Figure 4.9 et de 29 eV à 41 eV en Figure 4.10. Pour le spectre à faible pression $P = 25$ mbar, l'intégration spatiale sur une bande ou sur toute la dimension change la forme du spectre. Pour ce cas ci, le profil spatial est donc à prendre en compte dans l'analyse.

On a évoqué dans les Section 3.2.5 et Section 3.3 que dans la configuration porte étroite, le déphasage de la première lame ne joue pas sur le confinement temporel dans la configuration porte étroite. Ainsi, une autre lame introduisant un délai similaire à la lame de $381 \mu\text{m}$ doit également conduire à observer un continuum. On vérifie ceci expérimentalement. Le montage expérimental reste le même, voir Figure 3.7. Ici, la lame multiordre introduit un délai plus faible, de $\delta = 10.2$ fs. On augmente la pression dans le capillaire à 1430 mbar pour favoriser l'élargissement spectral, et des impulsions courtes en sortie du capillaire. La seconde lame est la lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro achromatique. Pour cette mesure, on a une pression de $P = 44$ mbar, dans une cellule de 6 mm remplie d'argon. Les impulsions ont une durée $\tau_{IR} = 7.3$ fs. L'orientation θ_{MO} est fixée à 45° . Dans un premier temps, on a $\theta_{ZO} = 0^\circ$ pour avoir la porte dans la configuration "porte étroite". Les images spatiospectrales et spectres associés pour les configurations porte étroite et porte large sont données respectivement en Figure 4.12 et Figure 4.11. Les tensions des MCP sont les mêmes pour les deux spectres.

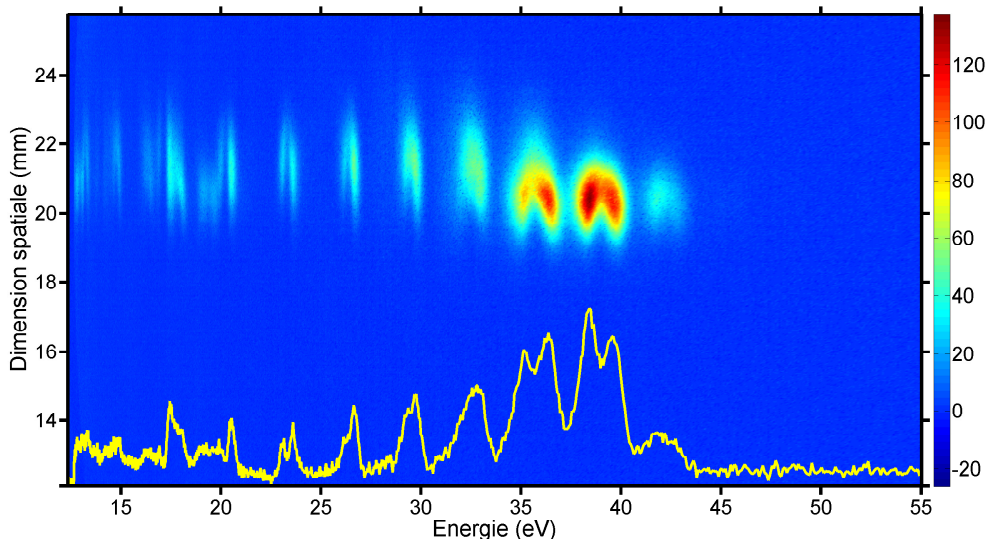


FIGURE 4.11 – Image spatiospectrale pour la configuration sans confinement temporel $\theta_{MO} = \theta_{ZO}$. Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec $P = 44$ mbar. La durée des impulsions utilisées est de $\tau_{IR} = 7.3$ fs, avec une lame multiordre qui introduit un délai $\delta = 10.2$ fs.

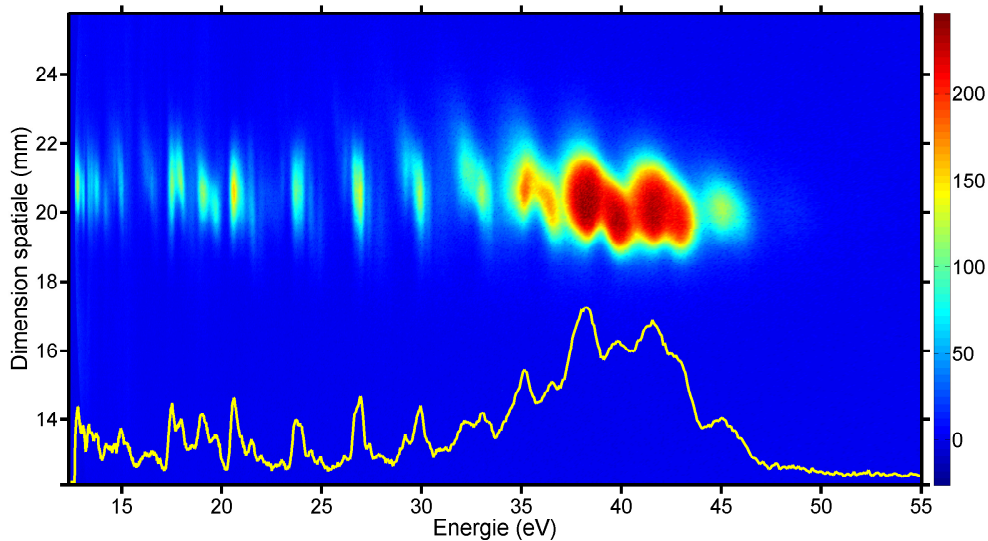


FIGURE 4.12 – Image spatio-spectrale pour la configuration porte étroite $\theta_{MO} = 35^\circ$ et $\theta_{ZO} -10^\circ$. Les harmoniques sont générées dans l'argon, avec $P = 44$ mbar. La durée des impulsions utilisées est de $\tau_{IR} = 7.3$ fs, avec une lame multiordre qui introduit un délai $\delta = 10.2$ fs. La largeur de porte calculée via l'Équation (3.2) est de $\tau_{gate} = 0.73$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$.

Les Figure 4.11 et Figure 4.12 illustrent bien l'effet du confinement temporel en passant d'une situation sans à une situation avec confinement temporel. On obtient un spectre continu dans la gamme 35-45 eV en porte étroite, avec peu de structures harmoniques, contrairement au spectre en porte large où les structures harmoniques sont plus marquées. Le contraste spectral est respectivement de 72% en porte étroite et de 18% en porte large. Le contraste de 72% trouvé expérimentalement est cohérent avec les valeurs de contraste simulées (voir la Figure 4.2).

Les deux positions en Figure 4.11 et Figure 4.12 sont des positions remarquables de la porte de polarisation, respectivement porte large et étroite. On étudie aussi l'évolution du spectre harmonique en fonction de θ_{ZO} , entre ces positions particulières. Les tensions sur les MCP restent les mêmes pour chaque spectre de cette série de mesures. En changeant l'orientation θ_{ZO} , la largeur de la porte change, donc la largeur spectrale des harmoniques doit changer avec θ_{ZO} .

L'évolution des spectres bruts en fonction de θ_{ZO} est donnée en Figure 4.13 (a) et avec normalisation spectre par spectre par le maximum (b). Deux images spatio-spectrales avec le spectre intégré correspondant sont données en Figure 4.11 et Figure 4.12. Entre les deux situations, en comparant les deux spectres, on a dans un cas des structures harmoniques assez marquées en porte large, et un spectre plutôt continu dans la coupure en porte étroite.

Le contraste dans la gamme 35-45 eV évolue aussi avec θ_{ZO} . Le continuum en Figure 4.12 s'étend de 33 eV à 46 eV. Cette situation est bien illustrée par l'évolution globale dans les spectrogrammes Figure 4.13. On voit deux cadrans distincts, avec une périodicité de 90° . Un premier cadran autour de la position porte large ($\theta_{ZO} = 45^\circ_{[90^\circ]}$), où les structures harmoniques sont assez bien définies et se déplacent avec θ_{ZO} , avec une coupure plus basse en énergie. Un deuxième cadran autour de la position porte étroite ($\theta_{ZO} = 90^\circ_{[90^\circ]}$).

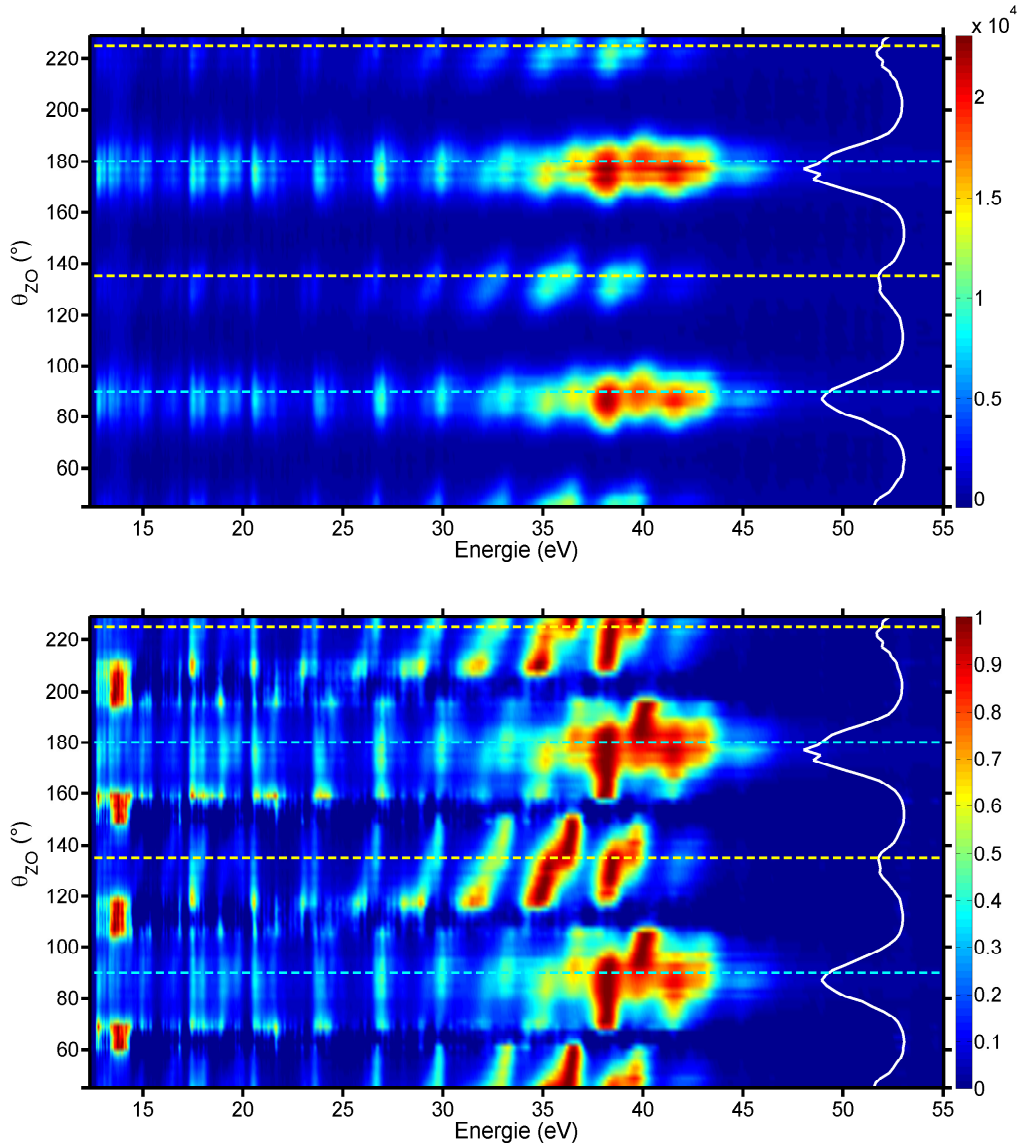


FIGURE 4.13 – Spectrogramme en fonction de θ_{ZO} pour $\theta_{MO} = 45^\circ$, et spectrogramme normalisé spectre à spectre par le maximum. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec $P = 44$ mbar. Pour $\epsilon_{thr} = 0.1$, la largeur de porte estimée via Équation (3.2), en configuration porte étroite, est de $\tau_{gate} = 0.73$ fs pour $\theta_{ZO} = 0^\circ_{[90^\circ]}$. Les positions remarquables de porte étroite sont dessinées en ligne pointillés cyan, et les positions sans confinement en jaune.

On observe un continuum dans la gamme 35-45 eV pour la porte étroite. Le signal intégré en Figure 4.13 montre que l'on a un bon signal en comparant la situation avec et sans confinement temporel, respectivement $\theta_{ZO} = 0^\circ$ et $\theta_{ZO} = 45^\circ$. Les tensions des MCP n'ont pas été changées pour cette série de mesures. La Figure 4.13 montre un signal plus élevé lorsque l'on est en porte étroite (pointillés en cyan $\theta_{ZO} = 0^\circ_{[90^\circ]}$) que dans la position où l'on n'attend pas de confinement temporel (pointillés en jaune $\theta_{ZO} = 45^\circ_{[90^\circ]}$). Cela peut être expliqué par le fait que la lame multiordre utilisée n'introduit pas un déphasage $\frac{\lambda}{4}$, et que dans la configuration où l'on attendrait une porte large avec un signal plus élevé, on retrouve une porte différente car $\phi_{MO} \neq \frac{\pi}{4}$. Par exemple, un déphasage $\phi_{MO} = \frac{\lambda}{2}$ induirait une évolution de l'ellipticité avec une porte où l'émission au centre de l'impulsion est supprimée (voir Figure 3.39). Cela peut

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

donner un signal plus fort dans la configuration étroite que dans la configuration "sans confinement temporel".

En conclusion sur cette partie, nous avons réussi à trouver des situations où l'on observe des spectres continus, larges, sur les harmoniques de la coupure essentiellement. Les paramètres principaux influents sont :

- la durée des impulsions τ_{IR} , que l'on a réduit jusqu'à 7 fs via la post compression.
- Le délai δ introduit par la lame. Ici, on a pu observer pour deux délais différents, $\delta = 12.3$ fs et $\delta = 10.2$ fs, des spectres continus en configuration porte étroite. En effet, en réduisant trop la largeur de la porte, on peut passer à une situation où l'on génère 1 ou 0 impulsion.
- La pression dans la cellule d'argon. Au travers des exemples, on a vu que le continuum que l'on observait expérimentalement était conservé pour différentes pressions. On a pu favoriser le signal sur les harmoniques hautes en augmentant la pression, et ainsi mieux voir un spectre continu dans cette gamme d'énergie. À plus haute pression, les harmoniques basses disparaissent car elles sont réabsorbées. Le foyer est situé au début de la cellule ($Z_R = 2$ mm pour une cellule de 6 mm de long).

Ces différentes situations ont été obtenues sans avoir la stabilisation de la CEP, et donc le spectre observé est une moyenne sur toutes les valeurs de CEP. Dans ce cas, nous pouvons uniquement dire que ces spectres sont compatibles avec une émission d'une impulsion attoseconde isolée, ou deux impulsions. Nous avons par la suite implémenté la porte de polarisation sur un système avec la CEP stabilisée.

4.3 Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

4.3.1 Conditions expérimentales et mise en place

Dans la continuité de ce que l'on a observé en termes de spectres continus avec notre système développé à l'ILM, nous avons collaboré avec le Lund Laser Center pour travailler avec un système CEP stable avec des impulsions IR courtes de quelques cycles optiques. À partir de ce système, nous avons implémenté la porte de polarisation avec pour but d'observer des spectres continus et des signatures spectrales d'impulsions attosecondes isolées. Le système utilisé est un OPCPA stabilisé en CEP [103, 143, 144], délivrant des impulsions de quelques cycles optiques IR, centrées à 815 nm, à un taux de répétition de 200 kHz. La durée typique des impulsions obtenues est de 6.3 fs. La dispersion des impulsions est finement contrôlée avec une paire de prismes en BK7. La durée des impulsions est mesurée par une mesure Dscan, montrée en Figure 4.14. Dans le gaz de génération d'harmoniques d'ordres élevés, la durée est minimisée par l'extension du spectre harmonique en cherchant la plus grande énergie de coupure.

La stabilisation de la CEP post-oscillateur est assurée via un stereo-ATI [145, 146, 147], système basé sur l'ionisation au dessus du seuil pour permettre la mesure et le suivi de la CEP. Il permet d'avoir la CEP stabilisée en entrée de la chambre de génération [103, 143]. La génération d'harmoniques est faite dans un jet de gaz d'argon. Le diamètre du nozzle est de 42 μm . Le faisceau est focalisé dans le jet par un miroir sphérique de focale 10 cm. Le montage expérimental est décrit en Figure 4.16. Il permet

d'observer le spectre XUV via un spectromètre champ plan sans fente d'entrée et de caractériser le profil temporel des impulsions XUV. Les lames de calcite, multiordre et d'ordre zéro sont installées avant le miroir de renvoi vers la chambre harmonique. L'ajustement de la dispersion se fait en regardant la coupure la plus grande pour la génération d'harmoniques à l'aide d'une paire prismes en silice et de miroirs chirpés [103].

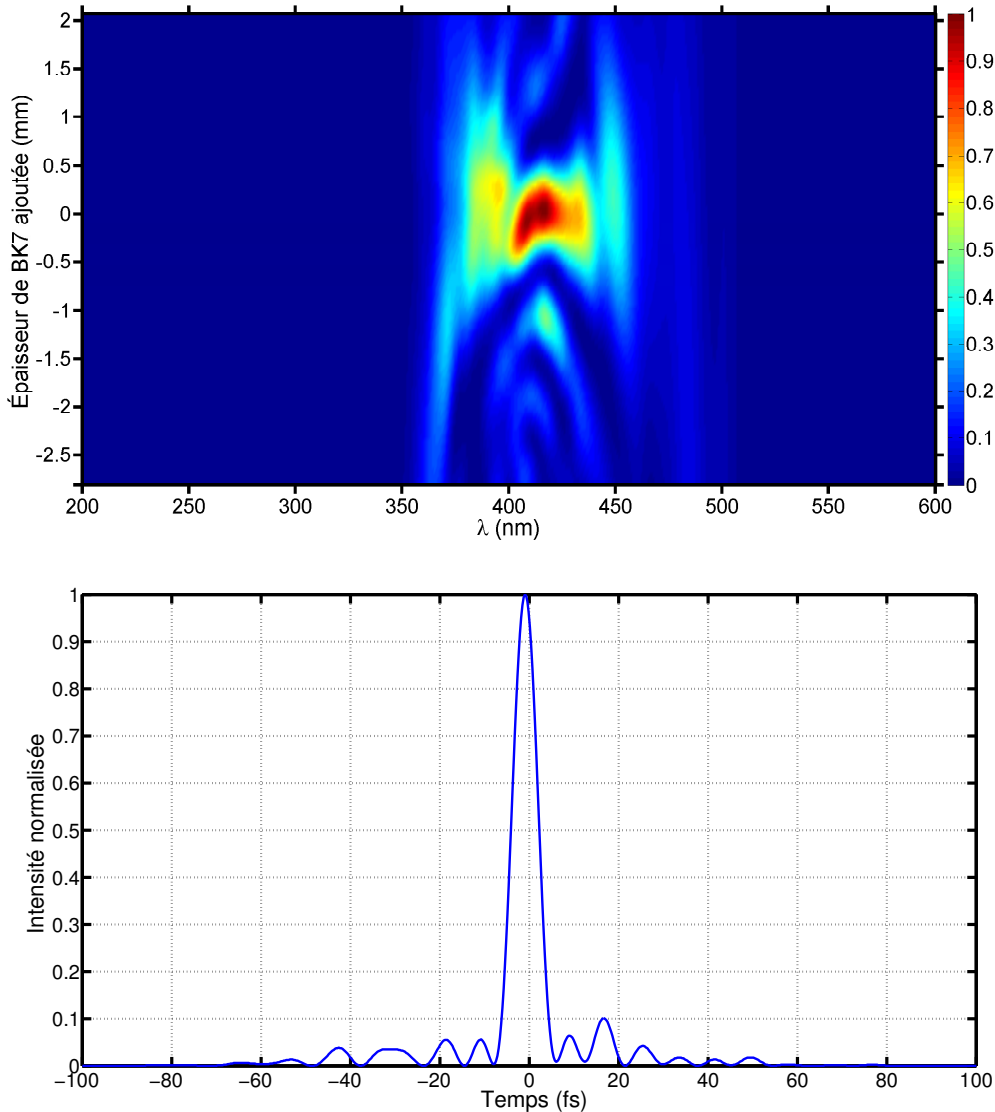


FIGURE 4.14 – Trace Dscan obtenue en fonction d'une épaisseur de BK7 ajoutée pour introduire la dispersion. Sur la figure du dessous, le profil temporel de l'impulsion fondamentale est reconstruit à partir de la trace Dscan. L'impulsion a une durée de $\tau_{IR} = 6.4$ fs à mi-hauteur.

L'évolution d'un spectre de génération d'harmoniques en fonction de la CEP est donnée en Figure 4.15. La CEP est bien contrôlée par le stereo-ATI et les cycles de CEP sont visibles directement sur le spectrogramme. Le spectre moyenné sur les valeurs de la CEP est dessiné en jaune également.

Les structures harmoniques dans le spectre moyenné sur les valeurs de la CEP montrent que dans cette situation, sans la CEP stabilisée, nous ne sommes pas dans le cas où l'on peut avoir un spectre continu. La fréquence centrale des harmoniques

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

varie avec la valeur de la CEP [142], ce que l'on retrouve sur notre spectrogramme. Le décalage en fréquence sur $[0 : \pi]$ pour la CEP est de 0.6 eV pour les harmoniques de plus fort signal.

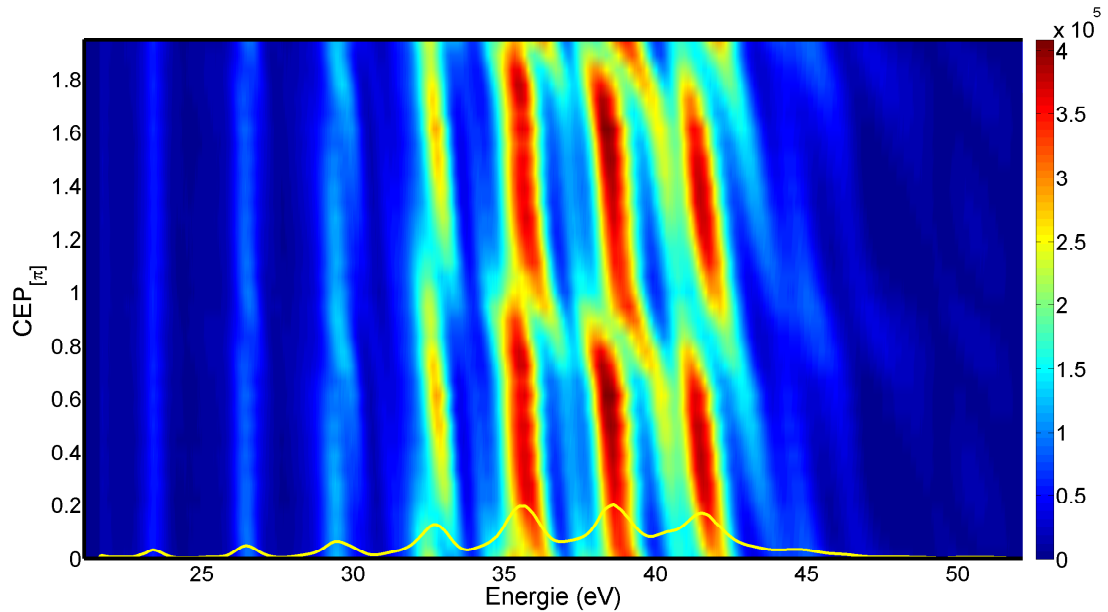


FIGURE 4.15 – Spectrogramme harmonique en fonction de la valeur de la CEP fixée par le stereo-ATI. On observe bien deux cycles de CEP sur $[0 : 2\pi]$. Le spectre moyenné sur toutes les CEP est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées avec des impulsions de 6.3 fs dans un jet de gaz d'argon, avec une focalisation de $f = 5$ cm.

Le montage expérimental a la particularité de comporter de nombreuses réflexions sur des miroirs à un angle d'incidence de 45° . Avoir des miroirs à un angle d'incidence à 45° modifie l'état de polarisation si ce dernier n'est pas purement s ou p. Ainsi, en partant au départ d'une polarisation circulaire, on arrive à avoir une polarisation quasi linéaire après quelques réflexions à 45° (au nombre de 6 entre l'extérieur de la chambre et le jet de gaz harmonique). Pour la porte de polarisation, on arrive alors à une situation où l'effet de cette dernière peut totalement s'annuler par les réflexions sur les miroirs. Nous avons essayé de comprendre d'où vient ce phénomène et d'estimer son impact sur la porte de polarisation.

Une autre spécificité du montage expérimental est l'utilisation d'une lame biréfringente multiordre d'épaisseur variable. Elle est créée avec deux prismes en quartz mobiles tête bêche et 2 prismes en silice non biréfringents pour assurer une dispersion quasi constante. Pour connaître ses caractéristiques, il a fallu la calibrer par des mesures optiques.

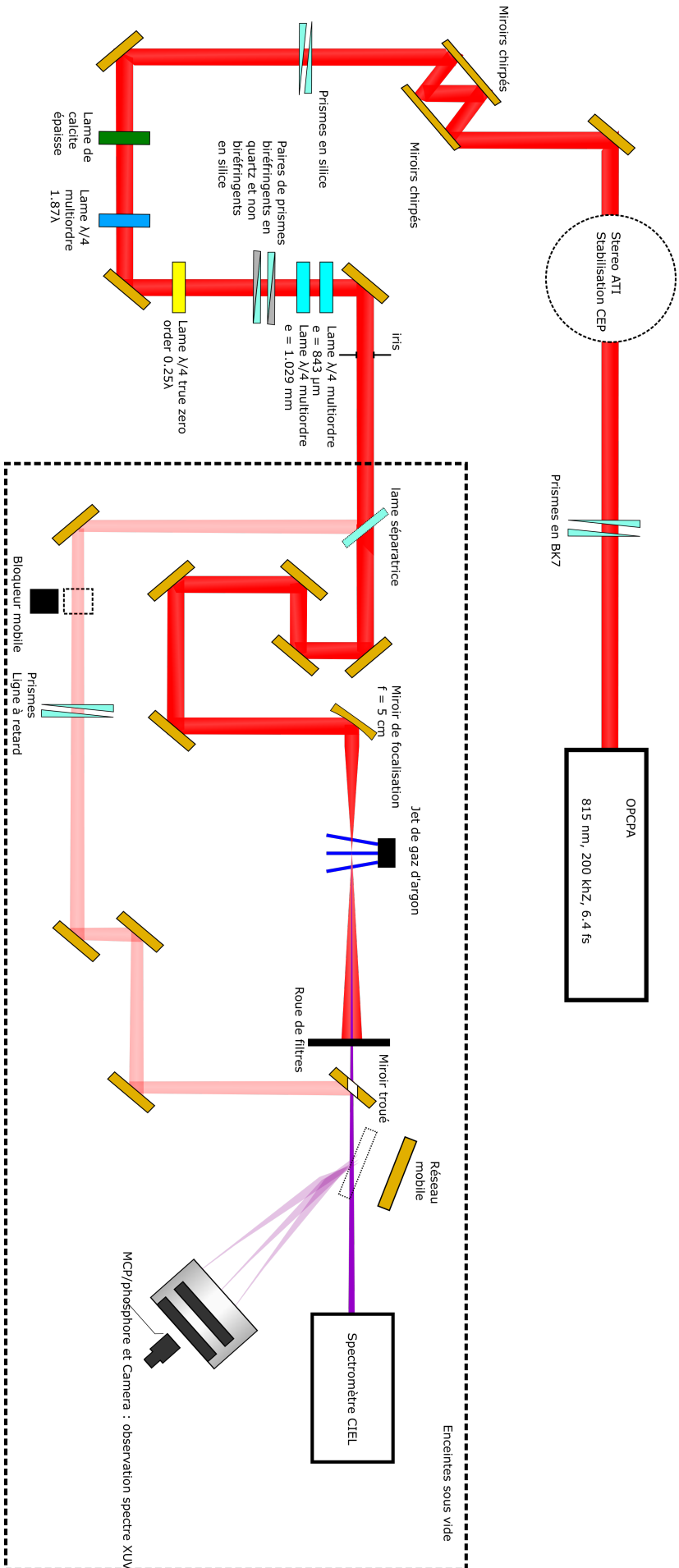


FIGURE 4.16 – Montage expérimental utilisé au Lund Laser Center. L'ORCPA délivre des impulsions de 6.4 fs, avec un taux de répétition de 200 kHz, d'une longueur centrale de 815 nm. Le stereo-ATI permet d'avoir la CEP stabilisée en entrée de chambre. Le jet de gaz est un jet de gaz d'argon. La focalisation se fait avec un miroir en aluminium, de focale $f = 5 \text{ cm}$. Un réseau est mobile, et permet d'observer le spectre XUV. Le spectromètre CIEL permet la détection de photoélectrons pour des expériences pompe-sonde pour caractériser les profils temporels des impulsions XUV.

4.3.2 Calibration de la lame biréfringente d'épaisseur variable et mesure du délai zéro

Pour ces mesures, on utilise une lame birefringente d'épaisseur variable, constituée de plusieurs éléments biréfringents et non biréfringents :

- Deux prismes biréfringents tête bêche en quartz. Avec une polarisation linéaire qui n'est pas orientée selon les axes neutres des prismes biréfringents, l'impulsion fondamentale est séparée en deux répliques, décalées temporellement. Le délai δ entre les répliques dépend directement de l'épaisseur e traversée. Les amplitudes des deux répliques seront en $\cos(\alpha)$ et $\sin(\alpha)$ avec α l'angle entre la polarisation incidente et les axes neutres prismes (de la même manière que pour une lame multiordre en Section 3.1). Pour avoir une épaisseur variable, les prismes sont translatés l'un par rapport à l'autre. Le faisceau reste fixe et traverse une épaisseur de quartz qui dépend de la position des prismes. Le délai entre les deux répliques varie en fonction de la position des prismes. De cette manière, on obtient une lame biréfringente d'épaisseur variable [122].
- Deux prismes non biréfringents en silice, installés sous forme de paire de manière similaire aux prismes en quartz. Sans cette deuxième paire de prismes, lorsque l'épaisseur de quartz varie, l'épaisseur traversée par le faisceau n'est pas constante. Travailler avec des impulsions courtes sensibles à la dispersion rend nécessaire d'avoir un système neutre en dispersion. En ajoutant cette deuxième paire de prismes avec un déplacement opposé aux prismes biréfringents, on rend l'épaisseur traversée de verre constante quelle que soit la position des prismes. Le système devient neutre ou quasi neutre en dispersion à la différence de dispersion entre la silice et le quartz près : 42 fs^2 pour le quartz contre 36 fs^2 pour la silice.
- Deux lames biréfringentes de compensation. Dans une situation avec uniquement les prismes (biréfringents et non biréfringents), on ne peut avoir que des épaisseurs positives, quelle que soit la position des prismes. Il y a toujours une épaisseur minimale traversée, donc un délai minimum introduit par les prismes. Pour avoir des délais négatifs, ou une épaisseur "négative", il faut compenser le délai minimal des prismes. Ceci est fait en ajoutant des lames biréfringentes multiordre, comme en Figure 4.17. Les axes rapides et lents de ces lames sont en opposition avec les axes rapides et lents des prismes. On obtient ainsi une configuration où l'on a des épaisseurs "négatives" et "positives", donc des délais positifs et négatifs pour les deux répliques.

Le montage de la lame d'épaisseur variable est illustré en Figure 4.17. Les lames de compensations sont respectivement d'épaisseur 1.029 mm et 0.843 mm.

Pour caractériser l'épaisseur de la lame d'épaisseur variable, plus précisément la position où l'épaisseur est nulle, nous avons effectué des mesures d'interférences spectrales. La lame biréfringente d'épaisseur variable a ses axes neutres horizontaux et verticaux. L'orientation de la polarisation linéaire incidente est contrôlée par une lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro. En changeant l'orientation des axes neutres de la lame de calcite par rapport à la polarisation incidente, on impose la direction de la polarisation linéaire en sortie. L'orientation de la lame de calcite est $\theta_{calcite} = 40^\circ$, les axes neutres des éléments biréfringents sont horizontaux et verticaux. Le faisceau est transmis par un polariseur (analyseur) orienté à 45° des axes neutres de la lame d'épaisseur variable qui projette les deux répliques sur le même axe pour les faire interférer. On observe le signal avec un spectromètre, en fonction de l'épaisseur de la lame biréfringente, en

fonction de la position des prismes. Entre la sortie des lames et l'analyseur, il y a deux réflexions à 45 ° sur des miroirs argentés protégés.

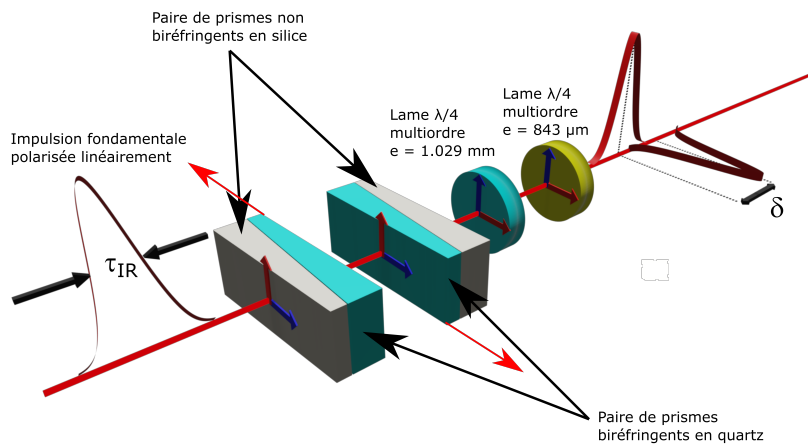


FIGURE 4.17 – Illustration du montage utilisé pour obtenir une lame biréfringente d'épaisseur variable. Les prismes en bleu clair sont les prismes biréfringents en quartz. Les prismes en gris sont les prismes en silice non biréfringents. Les lames de compensations sont aussi dessinées, avec leur épaisseur associée. Les deux répliques en sortie sont espacées d'un délai δ , dépendant de l'épaisseur de quartz e traversée, donc de la position des prismes. Le mouvement des 4 prismes est simultané. Les axes lents sont représentés par des flèches bleues, et les axes rapides par des flèches rouges.

Pour caractériser et calibrer cet interféromètre à séparation de polarisation, le spectre IR est mesuré après l'analyseur en fonction de la position des prismes biréfringents. Le spectrogramme obtenu est représenté en Figure 4.18.

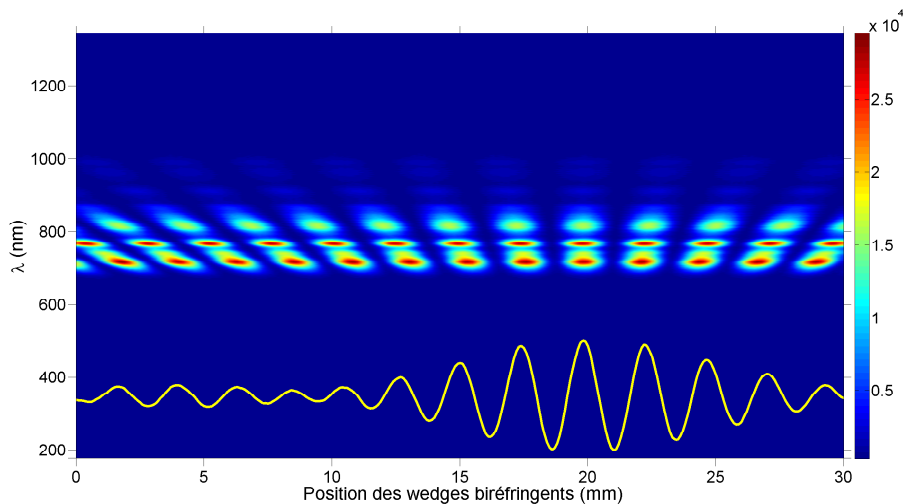


FIGURE 4.18 – Trace interférométrique obtenue en fonction de la position des prismes biréfringents. Le signal intégré est dessiné en trait plein jaune. Le délai 0 se situe au maximum du signal intégré, ici pos = 19.8 mm, là où le déphasage est nul pour toutes les longueurs d'onde.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

Le signal intégré sur les longueurs d'onde est représenté en jaune sur la figure. Pour un déphasage de $\delta\phi = 0_{[\pi]}$, on aura un signal maximum, par interférences constructives, et un signal minimum lorsque $\delta\phi = \frac{\pi}{2}_{[\pi]}$. Si le signal est maximum pour toutes les longueurs d'onde à la fois, la lame d'épaisseur variable est équivalente à une absence de lame, donc un délai nul. Le délai 0 de l'interféromètre se trouve donc à l'endroit où le signal est maximum pour toutes les longueurs d'onde.

La calibration du délai introduit par la lame d'épaisseur variable en fonction de la position des prismes biréfringents est aussi obtenue par une mesure spectrale. Dans ce cas, les lames de précompensation sont enlevées, il n'y a que les prismes biréfringents. Les cannelures spectrales sont mesurées pour plusieurs positions des prismes, et on fait un ajustement par une fonction dépendante des indices n_o et n_e pour le quartz. Un exemple de cannelures spectrales est donné en Figure 4.19.

Les cannelures prennent la forme :

$$I(\lambda) = A_0 \left[\cos \left(2\pi \frac{n_e - n_o}{\lambda} e \right) \right]^2 + B \quad (4.2)$$

avec n_e et n_o les indices extraordinaire et ordinaire du quartz, λ la longueur d'onde, B une constante qui dépend du ratio entre les amplitudes des deux répliques et e l'épaisseur de quartz biréfringent.

On fait correspondre cette fonction en Équation (2) avec les cannelures spectrales observées expérimentalement. Un exemple d'ajustement est donné en Figure 4.19. Les paramètres d'ajustement sont A , e et ϕ tels que, avec $x(\lambda) = \frac{n_e - n_o}{\lambda}$, :

$$I(\lambda)_{réel} = A + \cos(2\pi x(\lambda)e + \phi)^2 \quad (4.3)$$

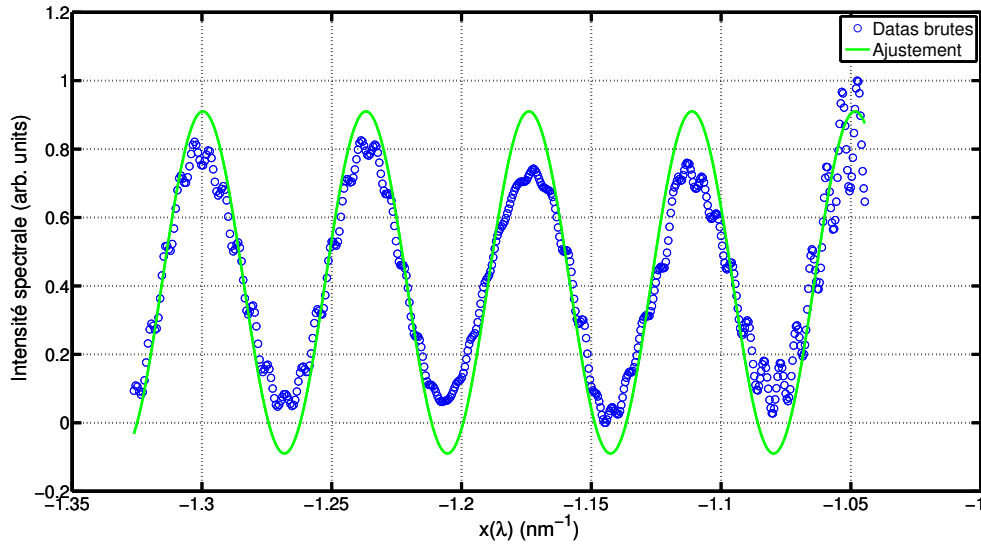


FIGURE 4.19 – Exemple de cannelures spectrales pour $p = 30$ mm, en symboles ronds bleus. L'ajustement via $I(\lambda)_{réel} = A + \cos(2\pi x(\lambda)e + \phi)^2$ est dessiné en vert, pour $p = 30$ mm, et $e = 1.58$ mm.

L'épaisseur correspondant à une position des prismes est donc connue en mesurant un spectre. On mesure le spectre cannelé pour plusieurs positions des prismes biréfringents. L'évolution du spectre en fonction de la position est donnée en Figure 4.20. À chaque spectre et chaque position des prismes est associée une épaisseur biréfringente,

qui permet d'obtenir l'évolution de l'épaisseur biréfringente en fonction de la position des prismes en Figure 4.21.

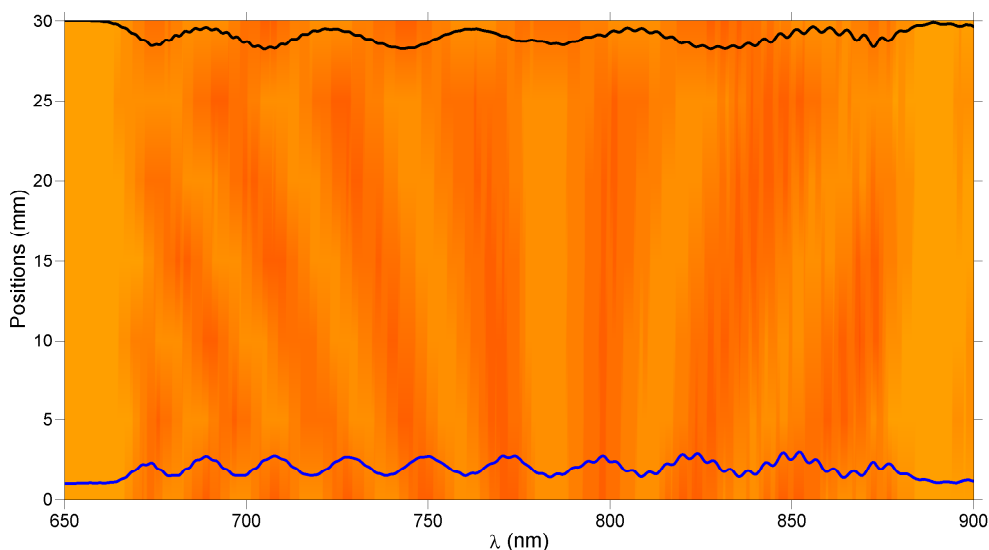


FIGURE 4.20 – Spectres cannelés en fonction de la position des prismes. En courbe noire le spectre pour la position $p = 30$ mm et en courbe bleue le spectre pour la position $p = 0$ mm.

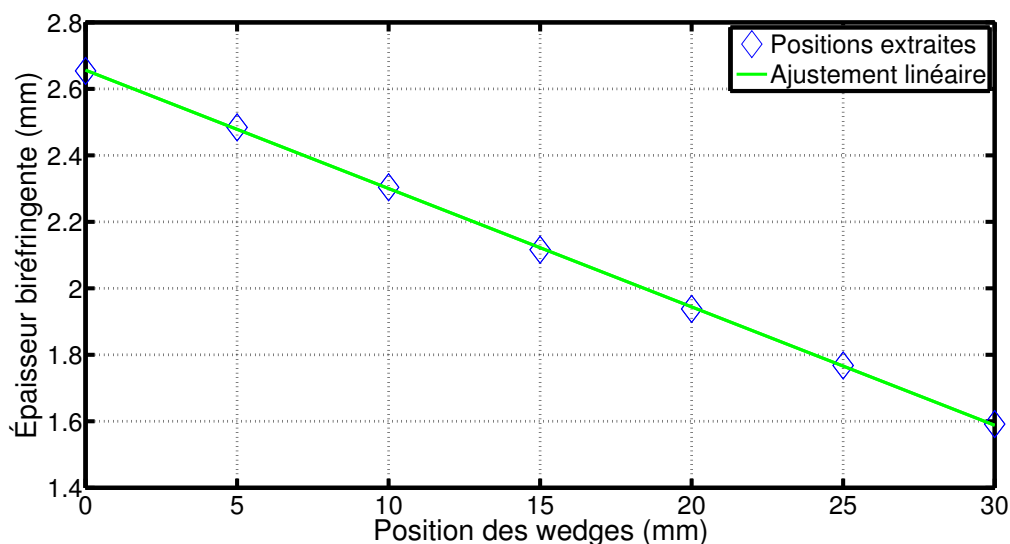


FIGURE 4.21 – Évolution de l'épaisseur de quartz biréfringente traversée en fonction de la position des prismes. L'ajustement linéaire $e = a \times position + b$ est très bon, avec $a = -0.036$ et $b = 2.64$ mm.

En faisant un ajustement linéaire, on obtient le facteur entre épaisseur et position des prismes, donc la calibration optique du délai en fonction de la position des prismes. On obtient également l'épaisseur minimale biréfringente pour les prismes, qui peuvent se déplacer dans la gamme $[0 : 30]$ mm.

Les épaisseurs trouvées pour les différentes positions sont données dans le Tableau 4.1. On trouve une épaisseur biréfringente minimale de 1.58 mm, soit un délai

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

minimal de 43 fs avec les prismes seuls. Le calibration des prismes donne un coefficient de 0.036 mm d'épaisseur par mm de position des prismes.

Positions (mm)	0	5	10	15	20	25	30
Épaisseur (mm)	2.64	2.48	2.3	2.12	1.94	1.76	1.58

TABLE 4.1 – Épaisseurs biréfringentes trouvées via les ajustements sur les cannelures spectrales pour les différentes positions des prismes biréfringents.

Avec cette étude spectrale, on a donc une caractérisation complète du système de compensation de délais entre les polarisations *s* et *p*, avec les prismes biréfringents et deux miroirs à 45°.

4.3.3 Implémentation de la porte de polarisation sur le système CEP stable

4.3.3.1 Compensation du décalage de propagation entre polarisations *s* et *p*

Le délai 0 introduit par l'ensemble prismes biréfringents et lames de compensation a été mesuré en plusieurs points du montage expérimental afin de déterminer si les miroirs ont un effet dépendant de la polarisation, et quels éléments peuvent ainsi modifier l'état de polarisation. En introduisant un état de polarisation avec deux impulsions polarisées *s* et *p* avant le polariseur et décalées temporellement, si des éléments optiques induisent une différence de propagation entre *s* et *p*, le délai 0 mesuré doit être décalé. La mesure du délai 0 suit la même procédure que celle présentée en Figure 4.18.

La première mesure, qui sert de référence, est faite avant la chambre de génération, au même endroit qu'en Figure 4.18. La deuxième mesure se fait après quatre réflexions sur des miroirs argent à 45° supplémentaires par rapport à la mesure en entrée de chambre, à l'intérieur de la chambre de génération d'harmoniques. Au total, il y a 5 réflexions sur des miroirs argent protégés et 1 réflexion sur un miroir aluminium protégé. La dernière mesure est réalisée après le jet de gaz pour la génération, après 6 réflexions supplémentaires (5 sur des miroirs en argent et 1 sur un miroir de focalisation en aluminium). Au total, il y a 7 réflexions sur des miroirs argent protégés et 1 réflexion sur un miroir aluminium pour cette mesure. Les trois spectrogrammes similaires à celui en Figure 4.18 fournissent le signal intégré en fonction de la position des prismes. Les spectrogrammes associés aux positions à l'intérieur de la chambre de génération et après le jet de gaz sont donnés respectivement en Figure 4.22 et Figure 4.23. Les signaux intégrés associés à ces trois mesures sont présentés en Figure 4.24.

La position du délai 0 évolue avec le nombre de réflexions sur les miroirs. Les deux impulsions créées par le passage dans les prismes biréfringents sont polarisées *s* et *p* en sortie de ces derniers. Il y a donc un décalage temporel graduel qui apparaît avec les réflexions à 45° sur les miroirs. Pour les trois mesures, on trouve respectivement le délai 0 :

- À la position 19.8 mm lorsque l'on mesure avant d'entrer dans la chambre de génération (au total 2 réflexions sur des miroirs argent protégés à 45 degrés par rapport à la sortie des prismes biréfringents et l'analyseur).
- À la position 18.6 mm lorsque l'on mesure après quatre réflexions à 45° sur les miroirs (au total 6 réflexions sur des miroirs argent à 45 degrés par rapport à la

sortie de la lame).

- À la position 17.3 mm lorsque l'on mesure après le jet de gaz (au total 7 réflexions sur des miroirs argent à 45° et une réflexion sur un miroir aluminium parabolique à 45° par rapport à la sortie de la lame).

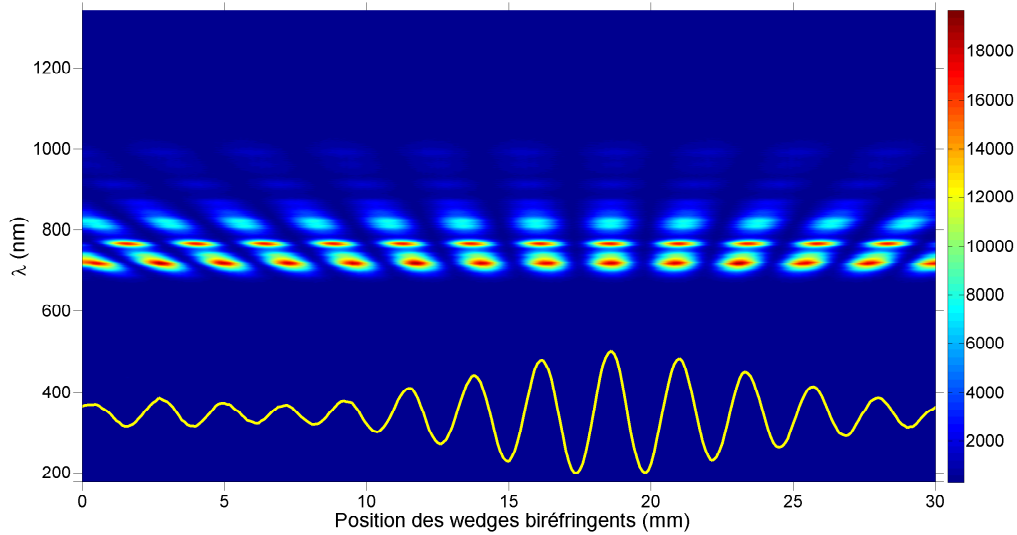


FIGURE 4.22 – Spectrogramme obtenu en fonction de la position des prismes biréfringents après quatre réflexions à 45°. Le signal intégré de la trace est dessiné en jaune. Le délai 0 se situe au maximum du signal intégré, ici $\text{pos} = 18.6 \text{ mm}$

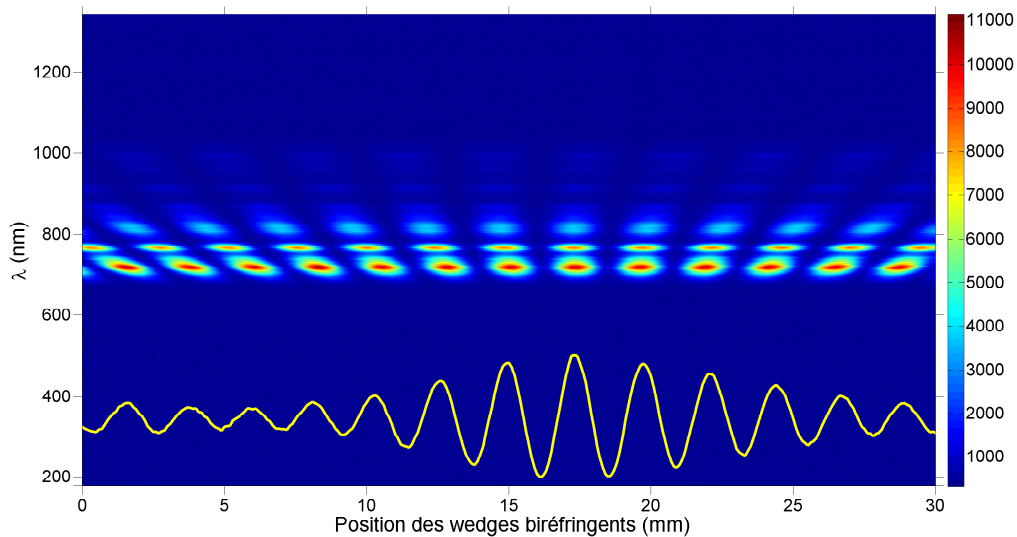


FIGURE 4.23 – Spectrogramme obtenu en fonction de la position des prismes biréfringents après le jet de gaz. Le signal intégré de la trace est dessiné en jaune. Le délai 0 se situe au maximum du signal intégré, ici $\text{pos} = 17.3 \text{ mm}$

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

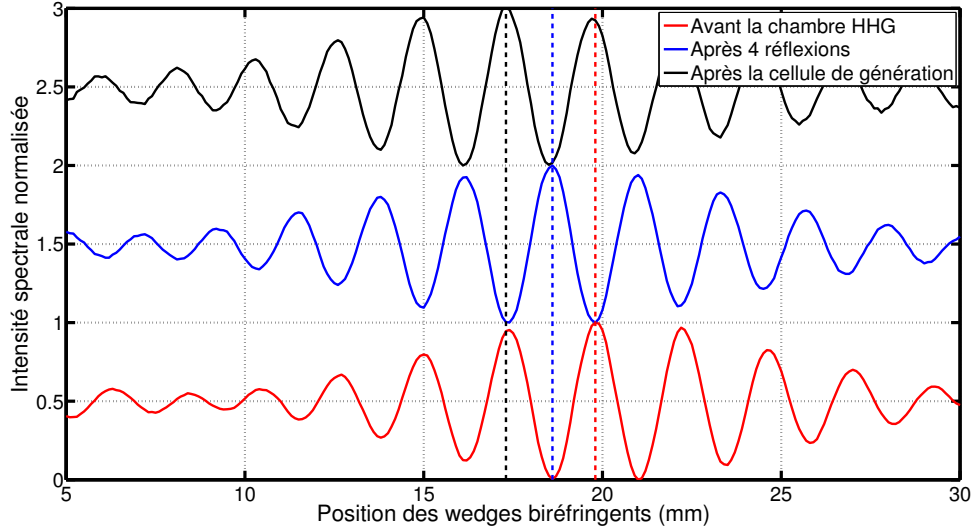


FIGURE 4.24 – Comparaisons des signaux intégrés obtenus pour les différentes mesures de délais 0. On trouve un décalage progressif du maximum avec l'augmentation du nombre de réflexions à 45° . Le délai 0 se trouve au maximum du signal intégré. Les positions du maximum pour chaque signal sont respectivement 19.8 mm, 18.6 mm et 17.3 mm.

Le délai 0 évolue donc significativement avec le nombre de réflexions à 45° , et ce décalage doit être compensé pour implémenter la porte de polarisation dans le jet de gaz. En reprenant la calibration de la Section 4.3.2, le décalage entre l'entrée de la chambre de génération et la sortie de la cellule est de 2.5 mm en position de prismes, donc 0.045 mm de quartz, soit un délai de 1.45 fs. Les causes de ce décalage seront discutées dans une prochaine section.

Pour la porte de polarisation, on vise un délai $\delta \approx \tau_{IR}$ avec $\tau_{IR} \approx 6.4$ fs. Un décalage de $\frac{\delta}{3}$ modifie donc l'état de polarisation. Les prismes biréfringents permettent donc de précompenser ce décalage temporel entre les polarisations s et p. On adopte alors la configuration suivante pour l'implémentation de la porte de polarisation :

- une lame multiordre, introduisant un déphasage de 1.87λ .
- une lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro "true zero order", introduisant un déphasage de 0.25λ .
- un montage de compensation incluant les prismes biréfringents et prismes de compensation, ainsi que les lames multiordre de compensation. On précompense ainsi le décalage temporel entre s et p via la biréfringence, en induisant un délai de signe opposé, réglable via la position des prismes. La position de travail se situe donc autour de 16.9 mm, soit l'équivalent d'une réflexion sur miroir argent supplémentaire par rapport au délai 0 mesuré en référence (une des deux réflexions est uniquement un miroir de collecte, commun à toutes les mesures optiques).

Ce décalage dû à la propagation est aussi visible dans l'évolution du spectre harmonique en fonction de la position des prismes biréfringents. Deux cas de figures sont possibles : un cas où la polarisation est purement horizontale ou verticale (s et p dans notre cas), et l'autre où la polarisation est une combinaison linéaire de s et p (ici à 45° de l'horizontale et de la verticale $s+p$ ou $s-p$). En regardant où se trouve le maximum de signal pour le spectre harmonique en fonction de la position des prismes dans ces deux cas, on doit retrouver le décalage de propagation entre les deux polarisations s et p.

Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon. Le fait de générer dans un jet de gaz, assimilé à un milieu infiniment fin, limite les effets de réabsorption et d'accord de phase, comparativement à la génération dans une cellule de gaz comme à l'iLM. La pression locale peut être plus grande avec un jet de gaz, mais demande un alignement beaucoup plus précis. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs. La lame d'épaisseur variable est composée des prismes biréfringents en quartz et des prismes non biréfringents en silice ainsi que d'une lame multiordre d'épaisseur $e = 1.029$ mm et d'une lame multiordre d'épaisseur $e = 0.843$ mm. La lame de calcite épaisse est placée avant cette lame d'épaisseur variable, avec une lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro pour tourner la polarisation avant la lame de calcite. Les axes neutres de la lame d'épaisseur variable restent horizontaux et verticaux. Une deuxième lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro est placée avant l'entrée de la chambre, après la lame d'épaisseur variable.

- Dans le cas où la polarisation est purement s et p , l'orientation des axes neutres de la lame calcite est tournée de 45° , et l'orientation des axes neutres de la première lame $\frac{\lambda}{2}$ est tournée de 22.5° . Les axes neutres de la seconde lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro sont laissés horizontaux et verticaux. Les polarisations de sortie sont s et p .
- Dans le cas où la polarisation est une combinaison de s et p , l'orientation des axes neutres de la lame calcite est tournée de 45° , et l'orientation des axes neutres de la première lame $\frac{\lambda}{2}$ est tournée de 22.5° . L'orientation de la deuxième lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro est tournée de 22.5° par rapport à l'horizontale. Cela permet de tourner les polarisations, et d'obtenir une polarisation $s + p$ et $s - p$.

L'évolution du spectre harmonique en fonction de la position des prismes est donnée en Figure 4.25 pour les polarisations $s + p$ et $s - p$ et en Figure 4.26 pour la polarisation purement s et p .

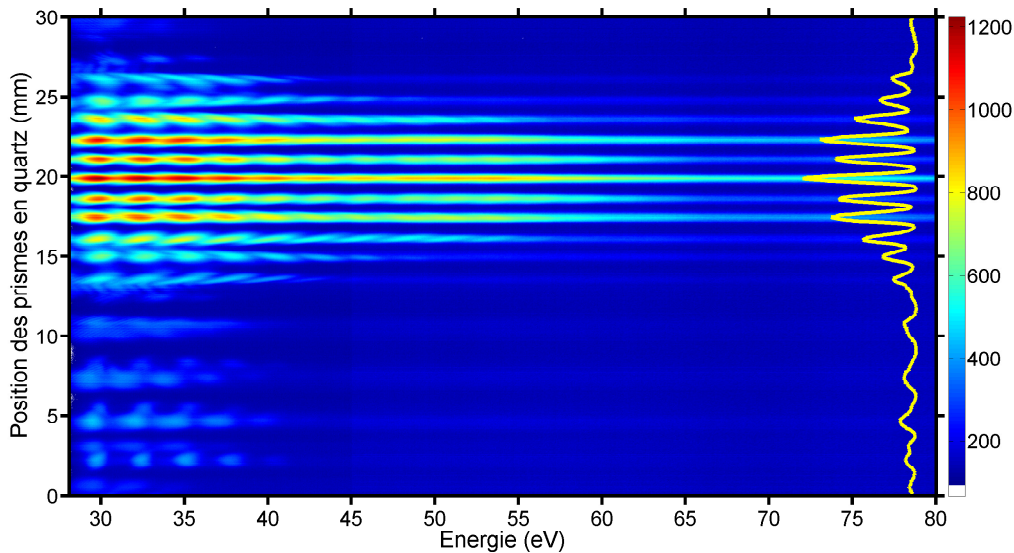


FIGURE 4.25 – Évolution du spectre harmonique en fonction de la position des prismes biréfringents avec des polarisations $s + p$ et $s - p$. Le signal intégré spectralement est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon avec des impulsion de durée $\tau_{IR} = 6.4$ fs.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

Sur les Figure 4.26 et Figure 4.25, les évolutions sont très différentes, avec un maximum de signal de signal intégré qui n'est pas le même pour les deux situations. Les pics présents dans l'évolution du signal intégré sont aussi plus larges en Figure 4.26.

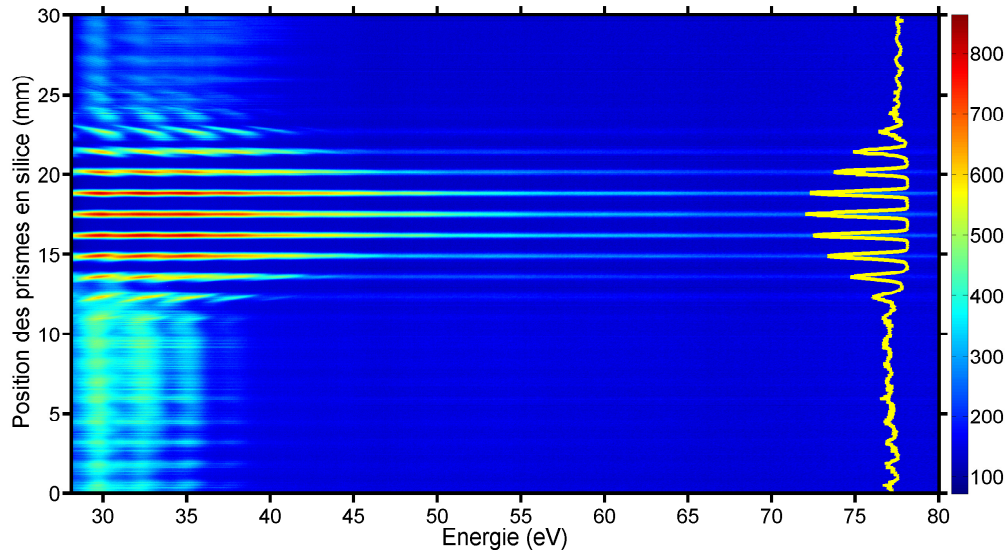


FIGURE 4.26 – Évolution du spectre harmonique en fonction de la position des prismes biréfringents avec des polarisations s et p . Le signal intégré spectralement est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon avec des impulsions de durée $\tau_{IR} = 6.4$ fs. Les impulsions s et p sont séparées puis recombinaées au niveau de l'interféromètre à séparation de polarisation.

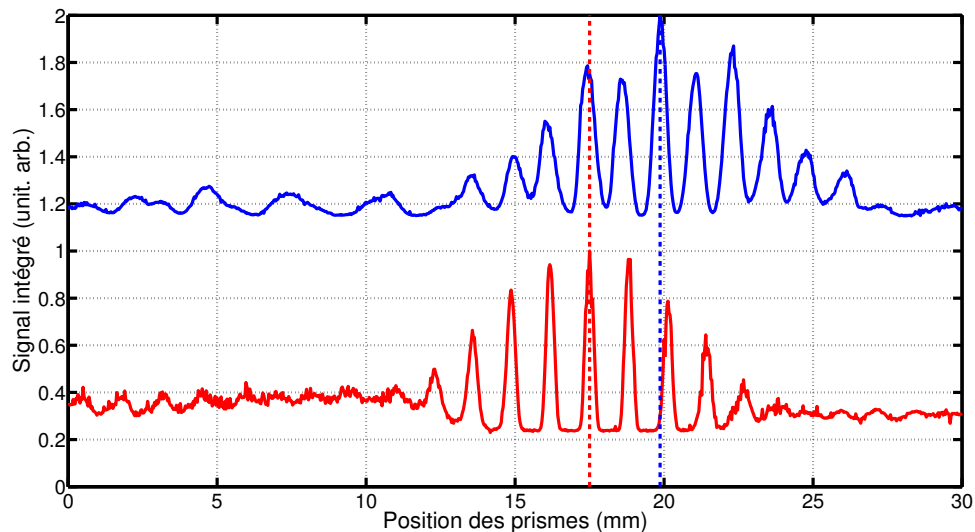


FIGURE 4.27 – Signal intégré spectralement en fonction de la position des prismes en quartz pour les deux situations : polarisation s en rouge et polarisation $s + p$ en bleu. Une ligne en pointillés est repérée pour chaque signal, marquant le maximum. Les positions des maxima sont respectivement à 19.8 mm pour les polarisations $s + p$ et $s - p$ et à 17.2 mm pour les polarisations s et p .

La superposition de ces deux signaux intégrés est donnée en Figure 4.27. Le décalage entre les maxima est de 19.8mm pour les polarisations $s + p$ et $s - p$ à 17.2mm pour les

polarisations s et p . Ces valeurs concordent avec celles mesurées via la mesure optique d'interférences IR/IR (décalage de 2.5 mm en position des prismes biréfringents). En ayant tourné la polarisation s et p de 45° avant l'entrée de la chambre, on retrouve la position du délai 0 mesurée optiquement avant l'entrée de la chambre.

Il existe un décalage de propagation entre la polarisation s et la polarisation p , qui est visible sur les deux. Ce décalage est retrouvé à travers deux mesures : la mesure optique d'interférences IR/IR et la mesure avec la génération d'harmoniques. Ce décalage doit être pris en compte lorsque l'état de polarisation est complexe, comme avec la porte de polarisation.

4.3.3.2 Réalisation expérimentale de la porte de polarisation

La lame multiordre 1.87λ est orientée avec $\theta_{MO} = 45^\circ$ et la lame $\frac{\lambda}{4}$ d'ordre zéro est orientée avec $\theta_{ZO} = 0^\circ$. On génère les harmoniques dans un jet de gaz d'argon. La dispersion des impulsions est compensée avec des prismes en SiO_2 et optimisée pour avoir τ_{min} là où l'on a la plus grande coupure dans le spectre harmonique (réglé avec $\theta_{MO} = 0^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$). La durée mesurée τ_{IR} via Dscan est de 6.4 fs. On donne l'évolution du spectre harmonique en fonction de la dispersion ajoutée dans une configuration neutre (sans porte de polarisation) en Figure 4.28, avec les axes neutres des lames orientés selon la polarisation incidente. La durée minimum τ_{min} dans le jet est obtenue pour la position $e = 34.9$ mm.

On observe le spectre harmonique avec la porte de polarisation en configuration porte étroite. Dans cette configuration, on peut observer le comportement du spectre harmonique en fonction du délai s-p introduit par les prismes biréfringents, donc de la position des prismes. Cette évolution est donnée en Figure 4.29.

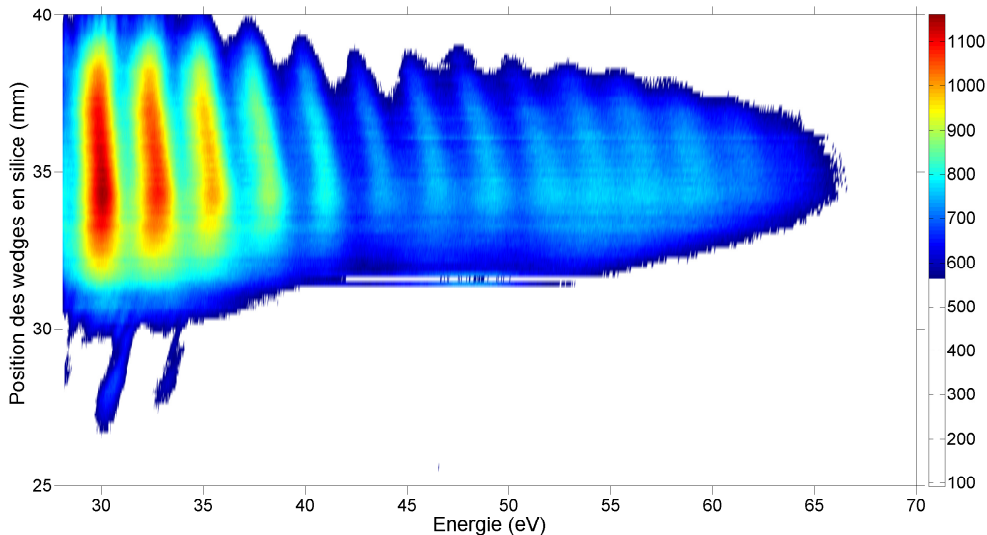


FIGURE 4.28 – Évolution du spectre harmonique en fonction de la dispersion introduite sur l'impulsion IR. Les axes neutres des différentes lames sont horizontaux et verticaux, orientés selon la polarisation incidente, $\theta_{MO} = 0^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée minimale dans le milieu générateur est obtenue lorsque la fréquence de la coupure est maximale.

La compensation du délai entre les polarisations s et p se trouve là où l'on a deux signatures de la présence d'une porte étroite : une baisse de signal et un élargissement spectral. Avec les mesures effectuées en Figure 4.24, la précompensation doit se trouver

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

à la position 17.3 mm. Sur la figure Figure 4.29, autour de la position 16.9 mm, le signal est plus bas que les deux maxima de signal respectivement à 17.4 mm et 16.3 mm. Les spectres sont donnés en Figure 4.31. La compensation du délai entre s et p se trouve donc à cette position. Le signal intégré est donné en Figure 4.30. La position de travail, qui correspond au minimum de signal global et local, se trouve bien autour 16.9 mm.

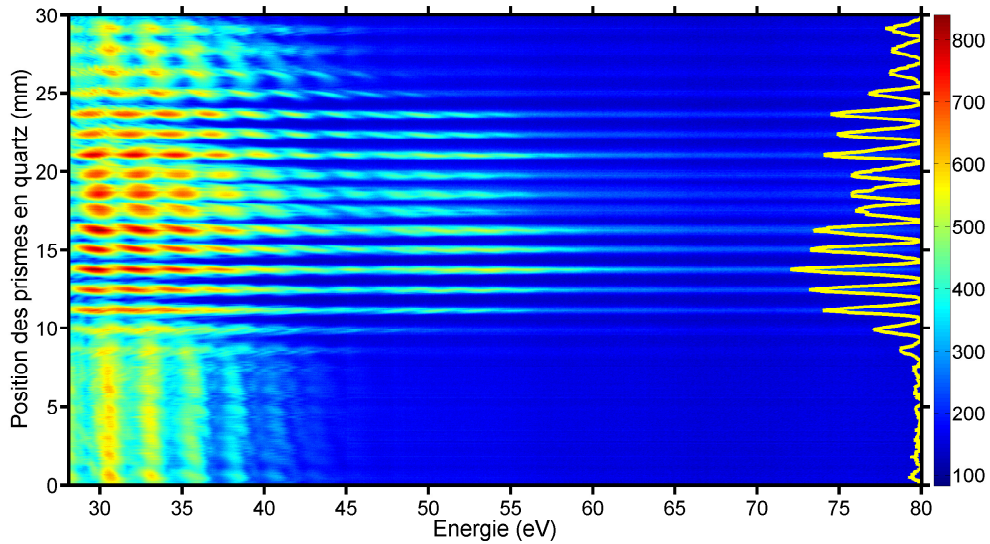


FIGURE 4.29 – Évolution du spectre harmonique en fonction de la position des wedges biréfringents dans la configuration porte étroite, $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. Le signal intégré est dessiné en vertical en jaune. On a $\tau_{IR} = 6.4$ fs, $\delta = 4.66$ fs, donc une largeur de porte estimée via Équation (3.2) de $\tau_{gate} = 0.9$ fs, pour $\epsilon_{thr} = 0.1$.

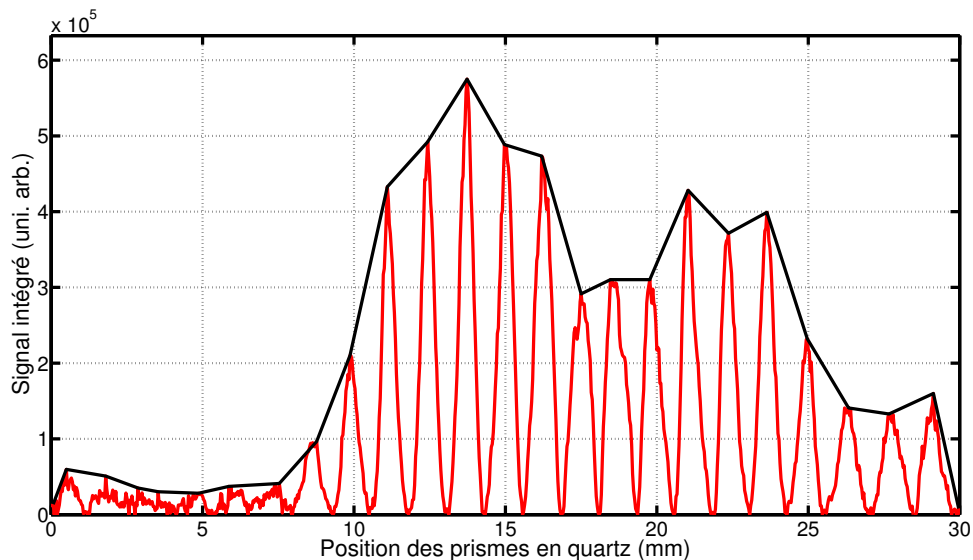


FIGURE 4.30 – Évolution du signal intégré spectralement en fonction de la position des prismes biréfringents. La position de travail choisie se situe dans le creux autour de 16.9 mm en position des prismes. L'enveloppe supérieure est dessinée en trait plein noir. Le signal intégré correspond au signal en jaune en Figure 4.29

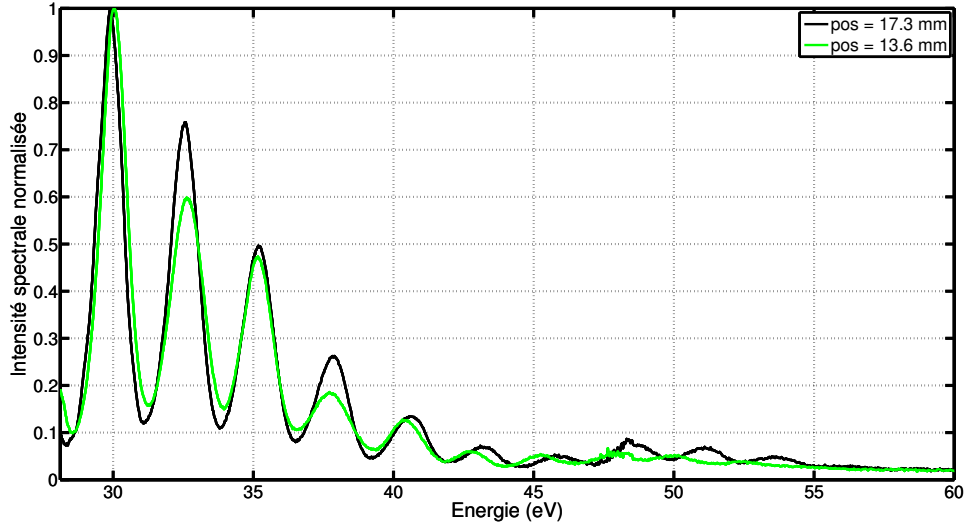


FIGURE 4.31 – Spectres harmoniques pour deux positions des prismes biréfringents, respectivement 13.6 mm et 17.3mm. La plus grande coupure et les harmoniques les plus larges spectralement sont obtenus à 17.3 mm, proche du délai 0 extrait en Figure 4.24.

On se place à la position 16.9 mm pour les prismes biréfringents. Avec la CEP stabilisée sur l'oscillateur uniquement, la stabilisation de la CEP à long terme n'est pas assurée en entrée de chambre de génération d'harmoniques. Pour voir si l'on a des effets de CEP, on peut la varier finement à l'aide des prismes en BK7. Pour cela, on ajoute de l'épaisseur de verre traversée, de valeur très faible, pas par pas. On utilise les mêmes prismes en BK7 utilisés pour le Dscan de la Figure 4.28 mais en faisant des pas beaucoup plus fins. On calcule l'équivalent d'épaisseur de BK7 pour obtenir un décalage de π pour la CEP. On part de l'indice de phase du BK7 calculé avec les coefficients de Sellmeier [148] :

$$n_{\phi}(\lambda) = \sqrt{1 + \frac{1.03961212\lambda^2}{\lambda^2 - 0.00600069867} + \frac{0.231792344\lambda^2}{\lambda^2 - 0.0200179144} + \frac{1.01046945\lambda^2}{\lambda^2 - 103.560653}} \quad (4.4)$$

L'indice de groupe est calculé comme $n_g = n_{\phi} - \lambda \frac{dn_{\phi}(\lambda)}{d\lambda}$. L'évolution de n_g et n_{ϕ} est donnée en Figure 4.32.

Pour avoir un décalage de π sur la CEP, il faut une épaisseur optique correspondant à un décalage de $\frac{\lambda}{2}$, soit :

$$e(\lambda) = \frac{\lambda n_g}{2(n_g(\lambda) - n_{\phi}(\lambda))} \quad (4.5)$$

L'évolution de cette épaisseur est donnée en Figure 4.32 également. Une épaisseur de $\approx 38 \mu\text{m}$ induit un décalage de π pour la CEP [103, 149]. Il faut avoir un pas d'épaisseur plus fin pour voir des effets de CEP. On doit aussi rester autour de la dispersion optimale pour l'impulsion. Pour calibrer l'épaisseur introduite par les prismes en BK7 et les wedges en silice, on compare pour chacun deux mesures de type Dscan, avec un ajout ou non d'une lame de silice de 1 mm. Connaissant le décalage dans les deux mesures et l'épaisseur introduite, on calibre les deux paires de prismes. Pour les prismes en silice, on trouve un décalage de position 10.5 mm, pour 1 mm d'ajout de silice. Un step de 1 mm en transmission correspond donc à $1/10.5 = 0.095 \text{ mm} = 95 \mu\text{m}$ d'épaisseur ajoutée. De la même manière, pour les prismes non biréfringents en BK7,

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

on trouve un décalage de 5 mm pour 1 mm d'épaisseur, soit $1/5 = 0.2$ mm = 200 μm d'épaisseur de BK7 ajoutée pour un pas d'un mm.

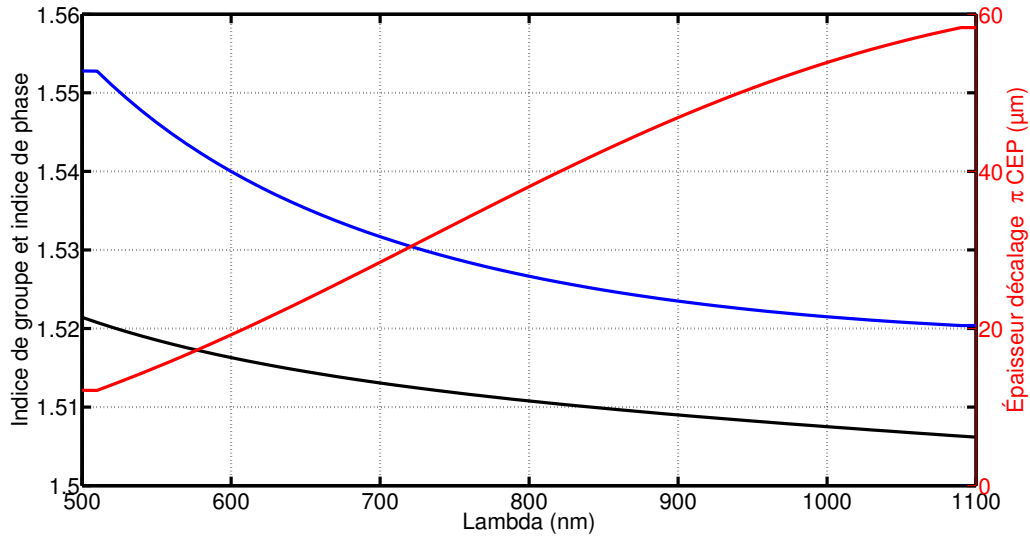


FIGURE 4.32 – Évolution des indices de groupe (trait plein bleu) et phase (trait plein noir) ainsi que de l'épaisseur de BK7 nécessaire pour décaler ϕ_{CEP} de π en fonction de λ la longueur d'onde. Les indices sont calculés par l'Équation (4.4) et $n_g = n_\phi - \lambda \frac{dn_\phi(\lambda)}{d\lambda}$.

L'évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur de BK7 introduite est donnée en Figure 4.33.

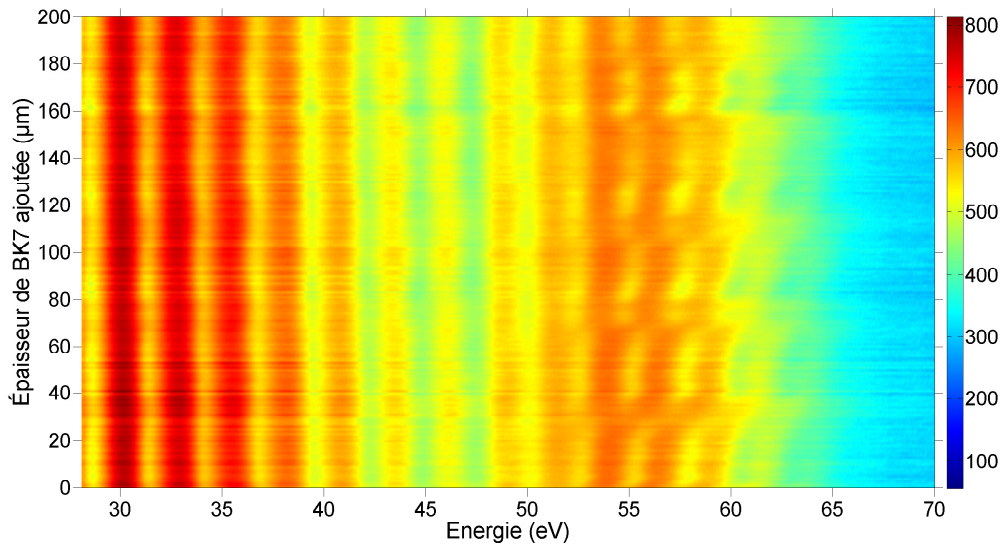


FIGURE 4.33 – Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de BK7 introduite, qui permet de contrôler la CEP. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, en configuration porte étroite (avec une lame multiordre 1.87λ et une lame d'ordre zéro 0.25λ , $\theta_{MO} = 45^\circ$, $\theta_{ZO} = 0^\circ$). Pour certaines CEP, les structures harmoniques disparaissent pour les harmoniques de la coupure. Le minimum de Cooper apparaît dans les spectres harmoniques autour de 50 eV.

Les spectres sont intégrés à partir des images prises en échelle logarithmique base 10, ce qui permet de mieux voir les harmoniques de la coupure par rapport à l'échelle

linéaire. Deux images à deux épaisseurs différentes, avec les spectres intégrés correspondants, sont données respectivement en Figure 4.34 et Figure 4.35. Les épaisseurs respectives de BK7 pour ces deux images sont $e = 32 \mu\text{m}$ et $e = 49 \mu\text{m}$, ce qui est équivalent à un changement de $\frac{\pi}{2}$ pour la CEP.

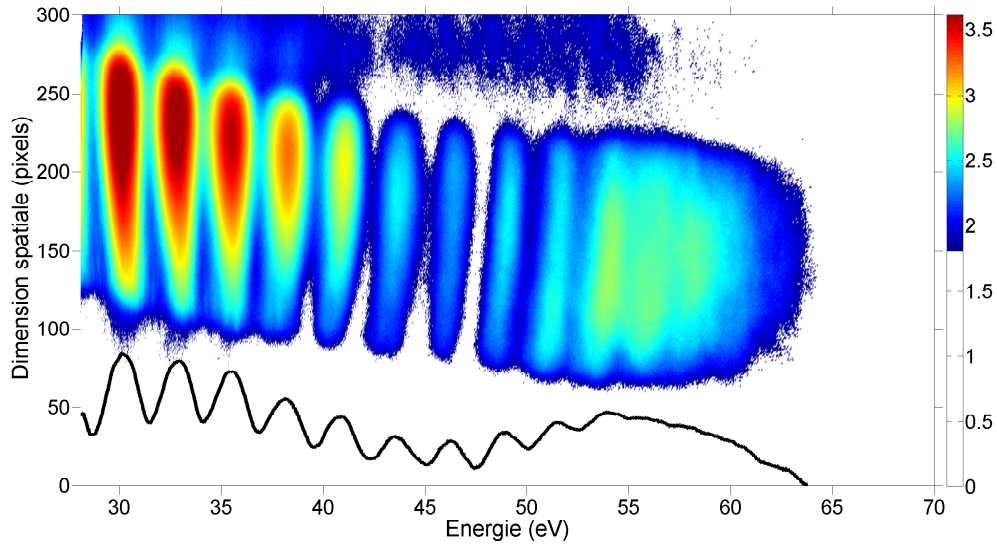


FIGURE 4.34 – Image spatio-spectrale harmonique pour une épaisseur introduite de $32 \mu\text{m}$ en Figure 4.33, avec le spectre intégré dessiné en noir sur la figure. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2 \text{ fs}$, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$, et la position de précompensation $\text{pos} = 16.9 \text{ mm}$ pour les prismes en quartz.

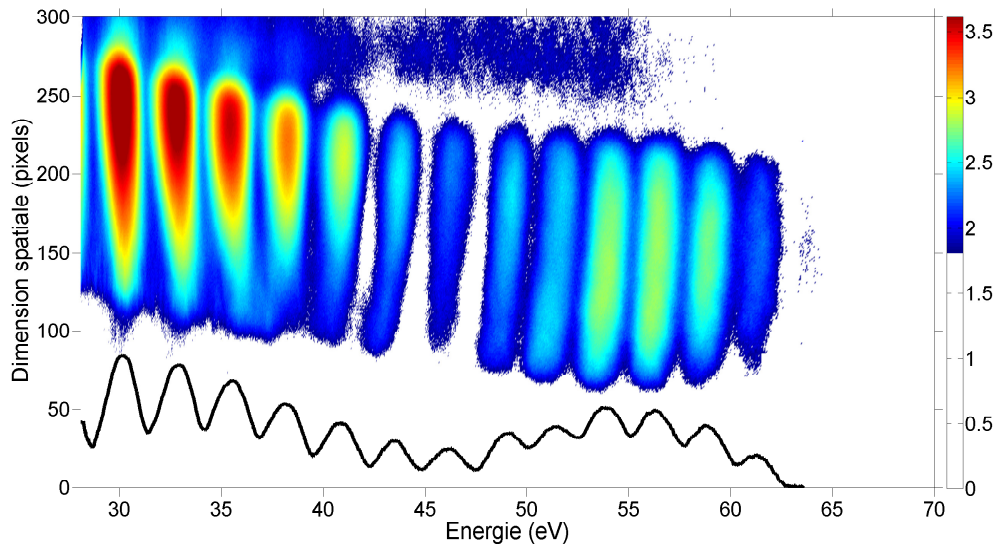


FIGURE 4.35 – Image spatio-spectrale harmonique pour une épaisseur introduite de $49 \mu\text{m}$, avec le spectre intégré dessiné en noir sur la figure. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2 \text{ fs}$, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$, et la position de précompensation $\text{pos} = 16.9 \text{ mm}$ pour les prismes en quartz.

Le comportement de la fréquence centrale des harmoniques est aussi légèrement différent pour les harmoniques basses et les harmoniques hautes. Les harmoniques

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

basses sont très peu affectées par la CEP, avec une fréquence centrale qui varie très peu. Pour les harmoniques les plus hautes, la fréquence centrale et la largeur spectrale varient de manière cyclique.

Pour les harmoniques les plus hautes, dans la coupure, les structures harmoniques sont présentes, sur un fond continu, pour la Figure 4.35. Pour la Figure 4.34, les structures harmoniques ont disparu, et on obtient un continuum XUV dans la coupure du spectre harmonique. Ce continuum s'étale de 47 eV à 63 eV. Faire varier la CEP de manière fine nous permet donc de voir deux situations apparaître, où l'on a soit des structures harmoniques larges sur fond continu, soit un continuum pour les harmoniques de la coupure.

Pour revenir au calcul du décalage de π pour la CEP en Figure 4.32, on regarde sur la Figure 4.33 les différentes positions, épaisseurs pour lesquelles on obtient un continuum dans le spectre harmonique. La Figure 4.32 montre que cette apparition du continuum est périodique avec l'ajout de l'épaisseur de BK7. Cela correspond à du "CEP cycling". Chaque réapparition du continuum marque un décalage de π sur la CEP. Ici, on obtient un continuum autour des épaisseurs suivantes : 32 μm , 68 μm , 106 μm , 143 μm et 179 μm . Un exemple de continuum retrouvé sur une image spatiospectrale est donné en Figure 4.36. L'écart moyen entre les différentes positions est de 36.6 μm , ce qui correspond à l'épaisseur moyenne pour un cycle de π en CEP. On retrouve une valeur similaire à celle calculée en Figure 4.32, qui est de 38 μm . La précompensation a donc permis d'observer des situations avec des spectres continus au niveau de la coupure du spectre harmonique. Ces spectres sont continus pour certaines CEP, et les structures réapparaissent avec une CEP de $\frac{\pi}{2}$ plus loin. Le contraste dans le cas d'une CEP $\frac{\pi}{2}$ est de 70%.

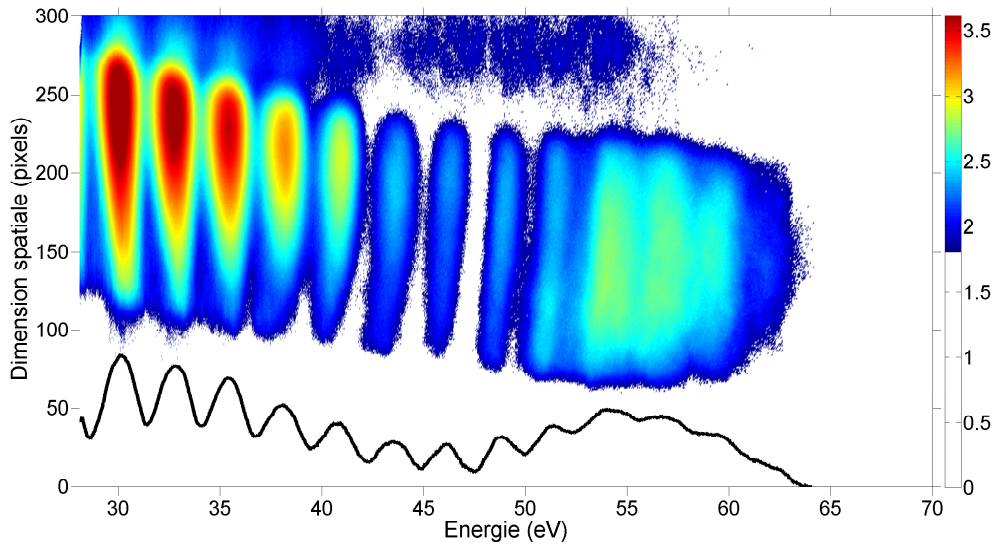


FIGURE 4.36 – Image spatiospectrale harmonique pour une épaisseur introduite de 66 μm , avec le spectre intégré dessiné en noir sur la figure. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.2$ fs, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = \theta_{ZO} + 45^\circ$, et la position de précompensation $\text{pos} = 16.9$ mm pour les prismes en quartz.

La reproductibilité de l'expérience a été vérifiée en faisant la même mesure sur une autre journée. Dans cette série de mesures, le stereo-ATI [145, 146, 147] est en fonctionnement, permettant la stabilisation de la CEP à long terme. Pour faire varier la CEP, on doit alors utiliser les prismes en silice fondue plutôt que les prismes en BK7,

qui fixent la dispersion optimale pour les impulsions en entrée du système du stereo-ATI. Cela permet d'avoir la CEP stabilisée sur le long terme au niveau de l'entrée de la chambre de génération, et non plus à court terme. On se remet à la position de la compensation avec les prismes biréfringents. La génération d'harmoniques se fait dans un jet de gaz d'argon, avec des impulsions IR de durée $\tau_{IR} = 6.3$ fs. Les lames utilisées pour la porte de polarisation sont respectivement une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ (mesuré optiquement) et une lame 0.25λ d'ordre zéro. Le délai introduit par la première lame est de $\delta = 4.97$ fs à 820 nm. L'évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur relative ajoutée de SiO_2 est donnée en Figure 4.37.

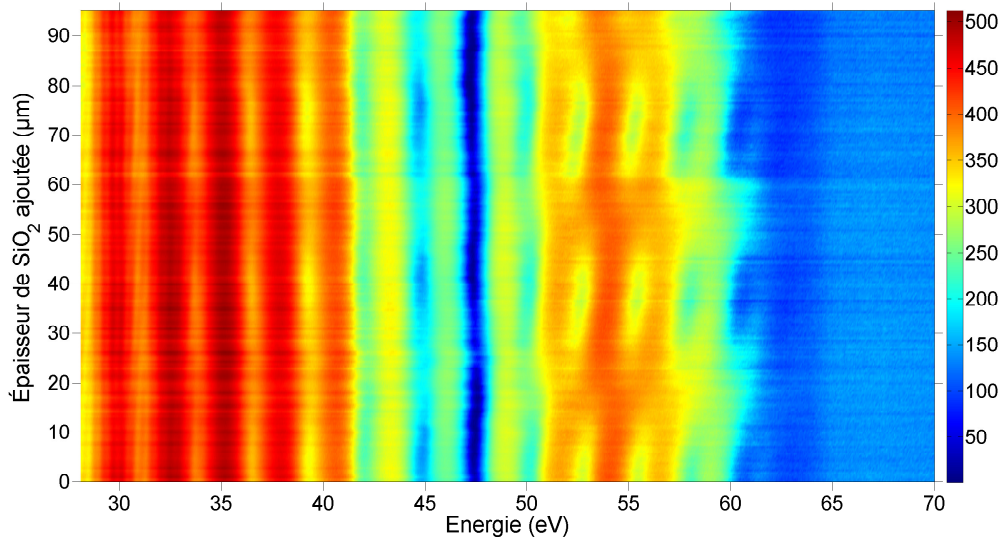


FIGURE 4.37 – Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 introduite, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ et une lame d'ordre d'épaisseur 0.25λ , soit $\delta = 4.97$ fs. On distingue le minimum de Cooper autour de 47 eV dans les spectres harmoniques. La position de la précompensation est à 16.9 mm pour les prismes biréfringents.

Sur la Figure 4.37, le continuum apparaît bien pour certaines épaisseurs, donc certaines CEP. On retrouve une situation similaire à celle en Figure 4.33. On distingue de manière claire le minimum de Cooper [150, 151] autour de 47 eV, avec une chute du signal harmonique autour de cette énergie. Les spectres harmoniques obtenus pour plusieurs épaisseurs différentes en Figure 4.38.

Les Figure 4.37 et Figure 4.38 montrent que les structures harmoniques disparaissent bien d'une épaisseur à l'autre, de manière cyclique. Le continuum spectral généré dans le spectre harmonique est reproductible d'une épaisseur à une autre périodiquement. Ce continuum s'étale de 49 à 63 eV.

En comparaison avec cette série de mesures, on se place maintenant à une position où l'on ne compense plus avec les prismes biréfringents, soit à la position 19.8 mm, là où l'on avait le délai 0 avant d'entrer dans la chambre de génération. On regarde à nouveau l'évolution du spectre harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 ajoutée. Les autres paramètres expérimentaux n'ont pas changé. L'évolution du spectre harmonique est donnée en Figure 4.39, et est très différente de l'évolution montrée en Figure 4.37.

Les Figure 4.37 et Figure 4.39 montrent bien que sans la bonne compensation avec les prismes biréfringents, le continuum spectral obtenu en Figure 4.37 n'apparaît plus,

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

quelle que soit l'épaisseur de SiO_2 introduite. La CEP n'a plus d'effet sur l'apparition du continuum dans la coupure dans les mesures montrées en Figure 4.39. Ceci confirme encore que l'état de polarisation est modifié lorsque l'on ne compense pas la différence de propagation entre s et p pour le montage expérimental, et que la configuration porte étroite n'existe plus au niveau du milieu générateur sans précompensation. Une superposition de plusieurs spectres est donnée en Figure 4.40. On voit effectivement que la CEP ne joue plus sur la disparition des structures harmoniques dans la coupure, via Figure 4.39 et Figure 4.40.

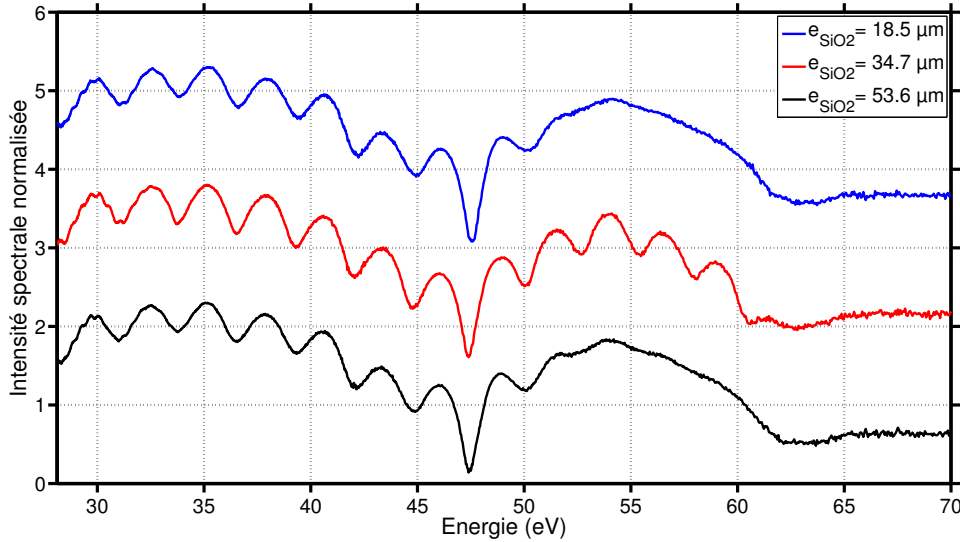


FIGURE 4.38 – Spectres harmoniques intégrés pour différentes épaisseurs relatives ajoutées de SiO_2 , respectivement $18.5 \mu\text{m}$, $34.7 \mu\text{m}$ et $53.6 \mu\text{m}$. On a décalé les spectres en ordonnée pour mieux observer les différences. On a toujours la porte en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$.

On a donc montré que l'on pouvait générer un continuum dans le spectre harmonique avec une porte de polarisation, même avec un montage expérimental ayant des effets polarisants.

On retourne à la position de la précompensation pour les prismes biréfringents, soit 16.9mm . Jusqu'ici les mesures ont été réalisées sans filtre métallique, donc sans sélection spectrale réelle des harmoniques. Le filtre métallique en zirconium peut être utilisé pour sélectionner les harmoniques les plus hautes et enlever le fondamental rémanent. On vérifie si l'on conserve le continuum spectral en introduisant un filtre métallique en sortie de la cellule de génération. Avec le filtre, on s'assure de garder les harmoniques de la coupure, là où les signatures spectrales observées correspondent à une impulsion attoseconde isolée.

Le continuum se trouvant dans une gamme de 15 eV au dessus de 50 eV environ, on sélectionne un filtre métallique en zirconium, d'une épaisseur de 200 nm . L'évolution du spectre harmonique est donnée en Figure 4.41 pour plusieurs CEP. Le continuum est toujours présent et bien isolé. La transmission des harmoniques basses est nulle.

On retrouve le continuum pour certaines CEP en Figure 4.41. Le continuum est bien isolé, avec une transmission par le filtre nulle pour les harmoniques les plus basses. Avec le filtre métallique, on observe un continuum entre 51 eV et 65 eV . Une superposition de spectres pour plusieurs épaisseurs est donnée en Figure 4.42, montrant les effets de CEP sur la disparition et apparition des structures harmoniques pour le continuum

spectral.

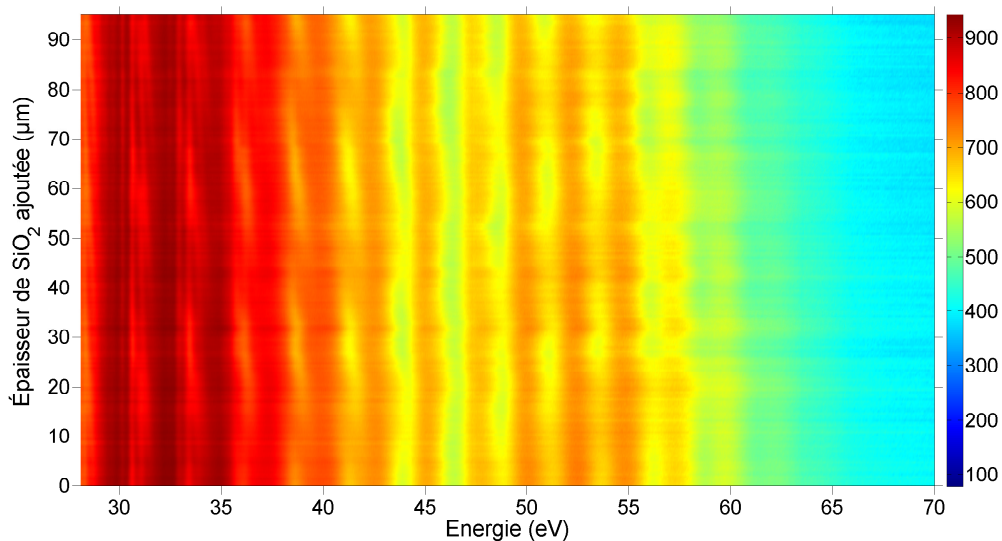


FIGURE 4.39 – Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 introduite, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ et une lame d'ordre 0 0.25λ . La position de la précompensation est à 19.8 mm pour les prismes biréfringents.

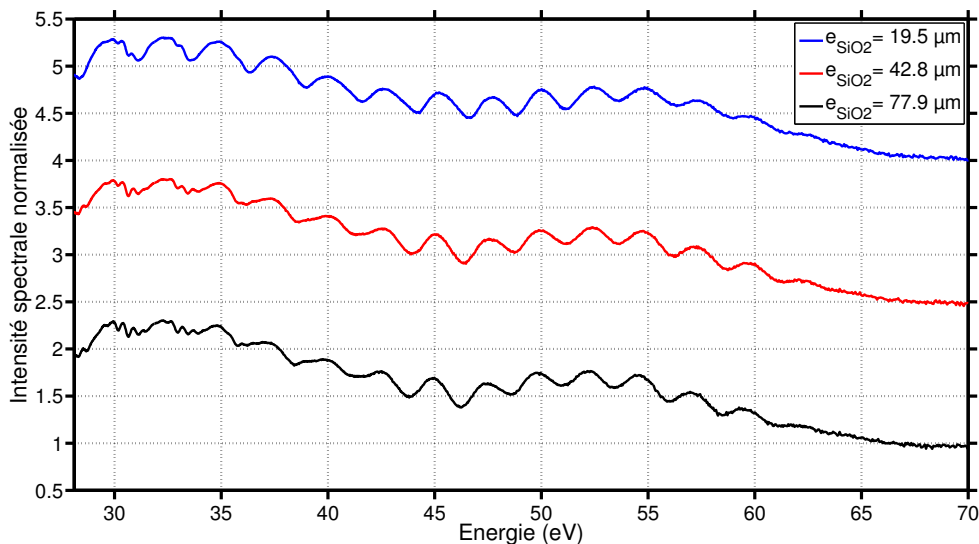


FIGURE 4.40 – Spectres harmoniques intégrés pour différentes épaisseurs relatives ajoutées de SiO_2 , respectivement $18.5 \mu\text{m}$, $34.7 \mu\text{m}$ et $53.6 \mu\text{m}$. Les spectres sont décalés en ordonnée. La configuration de la porte est toujours porte étroite, mais il n'y a pas de précompensation de décalages dûs à la propagation.

Le comportement du continuum spectral est similaire avec et sans filtre métallique, avec les mêmes effets de CEP sur les structures harmoniques.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

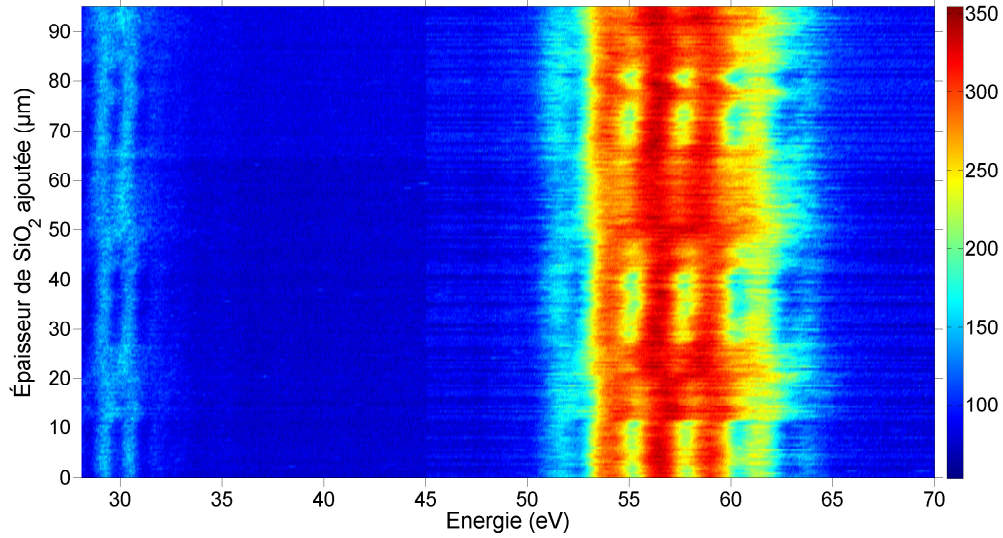


FIGURE 4.41 – Spectrogramme harmonique en fonction de l'épaisseur de SiO_2 introduite, en configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 6.4$ fs, avec génération dans un jet de gaz d'argon, une lame multiordre d'épaisseur 1.87λ , soit $\delta = 4.97$ fs, et une lame d'ordre 0. Les prismes de précompensation sont à 16.9 mm. Le filtre est en zirconium, d'épaisseur 200 nm.

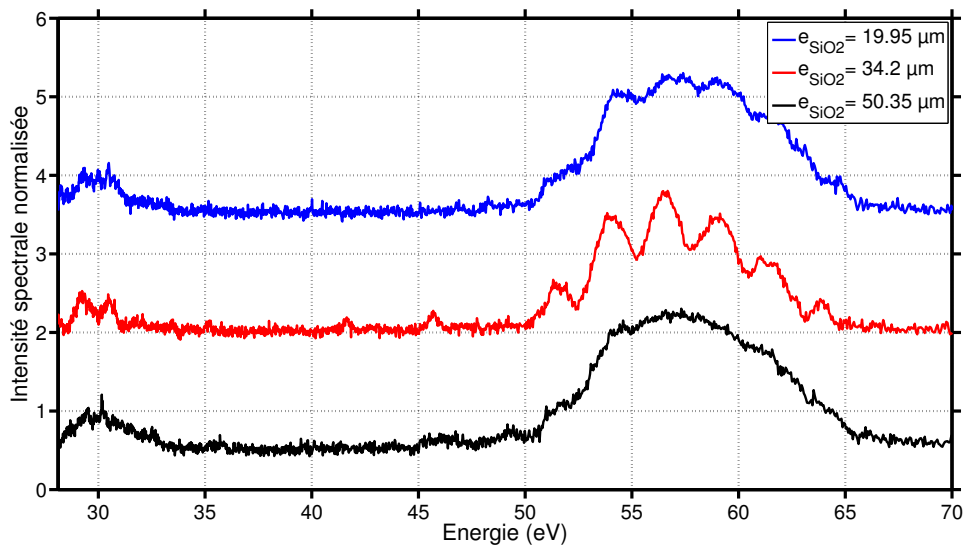


FIGURE 4.42 – Spectres harmoniques intégrés pour différentes épaisseurs relatives ajoutées de SiO_2 , respectivement $19.9 \mu\text{m}$, $34.2 \mu\text{m}$ et $50.4 \mu\text{m}$. Les spectres sont décalés en ordonnée. Les structures observées autour de 30 eV sont des ordres 2 du réseau.

Dans la position où l'on obtient la bonne compensation avec les prismes biréfringents, on observe aussi l'évolution du spectre harmonique en fonction de l'ouverture de la porte. Pour se faire, on se place à $\theta_{MO} = 45^\circ$ fixe et on change l'orientation θ_{ZO} . On passe d'une porte étroite à une porte large lorsque l'on passe de $\theta_{ZO} = 0^\circ$ à $\theta_{ZO} = \pm 45^\circ$. Pour observer ce comportement, on effectue un spectrogramme en fonction de l'épaisseur de silice pour quelques orientations θ_{ZO} entre la configuration porte large

$\theta_{MO} = 45^\circ$ avec $\theta_{ZO} = 45^\circ$ et la configuration porte étroite $\theta_{MO} = 45^\circ$ et $\theta_{ZO} = 0^\circ$. Les conditions expérimentales sont les mêmes : impulsions de durée $\tau_{IR} = 6.2$ fs, $\delta = 4.97$ fs, génération dans un jet de gaz d'argon. Dans cette série, il n'y pas le filtre métallique en zirconium, ce qui nous permet de voir l'ensemble du spectre harmonique.

L'évolution du spectre harmonique en fonction de θ_{ZO} est donné en Figure 4.43. Pour chaque orientation θ_{ZO} , on obtient un spectrogramme qui varie avec l'épaisseur de silice ajoutée. On sélectionne un spectre à une même épaisseur pour toutes les graduations θ_{ZO} , ce qui nous permet d'obtenir la Figure 4.43.

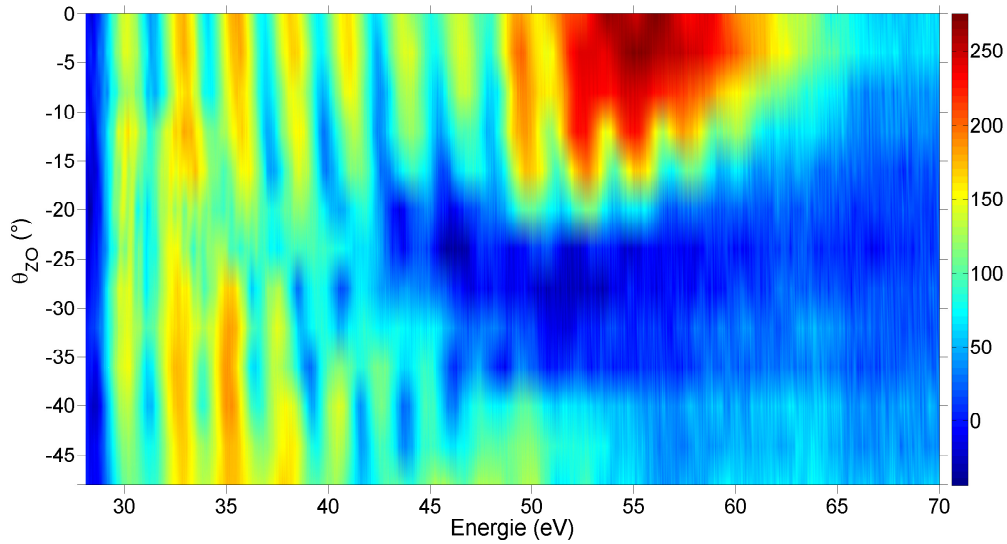


FIGURE 4.43 – Spectrogramme harmonique en fonction de l'orientation θ_{ZO} . θ_{MO} reste fixé à 45° . Les harmoniques sont générées avec des impulsions de durée $\tau_{IR} = 6.2$ fs, $\delta = 4.97$ fs, dans un jet de gaz d'argon.

La Figure 4.43 montre une évolution régulière du spectre. Le continuum dans les harmoniques de la coupure est conservé de 0° à -10° environ. $\theta_{ZO} = 0^\circ$ correspond à la situation porte étroite, et $\theta_{ZO} = 45^\circ$ correspond à la porte large. Entre 10° et 45° , on voit les structures harmoniques apparaître là où l'on avait le continuum. Une illustration de ce comportement pour les spectres est donnée en Figure 4.44 et Figure 4.45. On calcule l'évolution de la durée de la porte via l'Équation (3.2)[2], avec les conditions expérimentales évoquées précédemment : $\tau_{IR} = 6.4$ fs, $\delta = 4.97$ fs, $\epsilon_{thr} = 0.10$ (valeur prise dans le Tableau 3.1).

θ_{ZO} ($^\circ$)	0°	-4°	-8°	-12°
τ_{gate} (simulations [2]) (fs)	1.18 ± 0.20	1.2 ± 0.21	1.24 ± 0.22	1.30 ± 0.24
θ_{ZO} ($^\circ$)	-16°	-20°	-24°	-28°
τ_{gate} (simulations [2]) (fs)	1.40 ± 0.26	1.55 ± 0.30	1.78 ± 0.36	2.12 ± 0.46

TABLE 4.2 – Largeurs de porte estimées via Équation (3.2) en fonction de θ_{ZO} avec $\delta = 4.97$ fs, $\tau_{IR} = 6.4$ fs, $\epsilon_{thr} = 0.1$. On se limite aux premières positions après la position porte étroite, pour se focaliser sur la transition continuum vers structures harmoniques.

Les Figure 4.44 et Figure 4.45 montrent que les structures harmoniques dans la coupure apparaissent entre $\theta_{ZO} = -8^\circ$ et $\theta_{ZO} = -12^\circ$.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

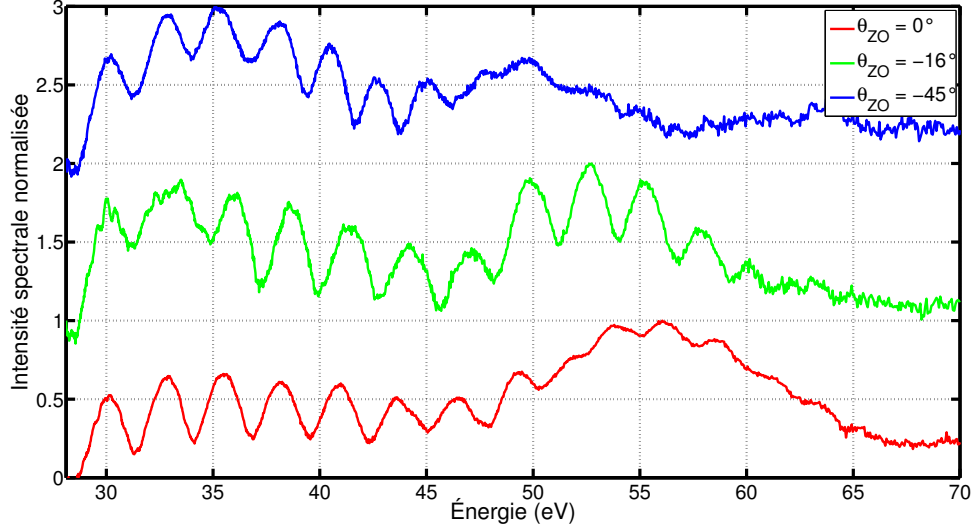


FIGURE 4.44 – Spectres harmoniques pour $\theta_{MO} = 45^\circ$ et quelques orientations θ_{ZO} : $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (trait plein rouge, porte étroite), $\theta_{ZO} = -16^\circ$ (trait plein vert, porte intermédiaire) et $\theta_{ZO} = -45^\circ$ (trait plein bleu, porte large).

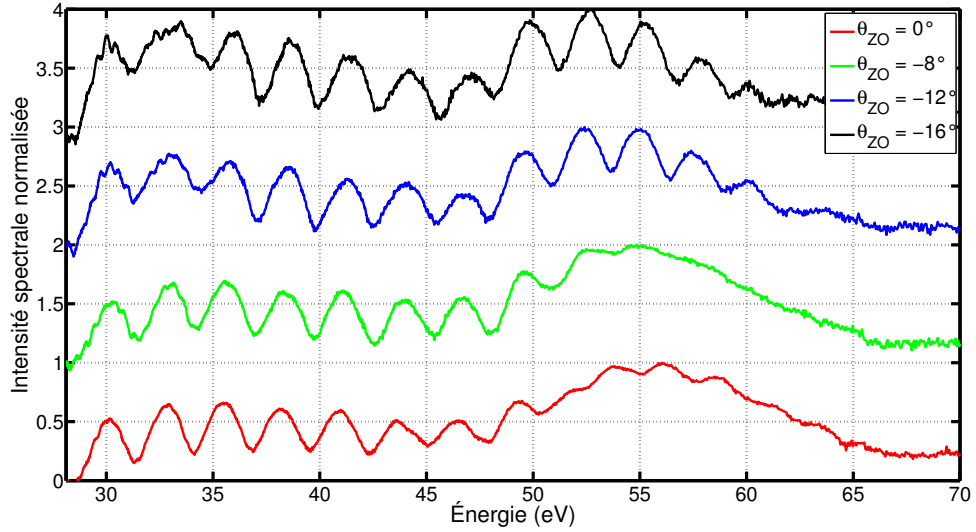


FIGURE 4.45 – Spectres harmoniques pour quelques orientations θ_{ZO} , respectivement $\theta_{ZO} = 0^\circ$ (trait plein rouge, porte étroite), $\theta_{ZO} = -8^\circ$ (trait plein vert, porte intermédiaire), $\theta_{ZO} = -12^\circ$ (trait plein bleu, porte intermédiaire) et $\theta_{ZO} = -16^\circ$ (trait plein noir, porte intermédiaire). On a $\theta_{MO} = 45^\circ$.

D'après le Tableau 4.2, la largeur de la porte simulée pour ces deux graduations est respectivement de 1.24 ± 0.22 fs et 1.30 ± 0.24 fs. La CEP était stabilisée pour l'expérience. La longueur d'onde centrale du spectre de l'impulsion IR est 815 nm. On obtient donc un demi-cycle optique de 1.35 fs. Les structures apparaissant pour la position $\theta_{ZO} = -12^\circ$, avec une largeur de porte de 1.30 ± 0.24 fs proche de la valeur du demi cycle optique. Les structures harmoniques apparaissent donc là où, lorsque la CEP est stabilisée, l'on obtient une porte durée de porte sub-cycle optique. Voir les structures harmoniques disparaître expérimentalement autour de la largeur sub demi-cycle optique est bien cohérent avec les simulations dans lesquelles passer de la génération

d'une impulsion attoseconde isolée à deux impulsions attosecondes correspond à passer d'un continuum spectral pour l'impulsion attoseconde isolée à l'apparition de structures harmoniques pour la génération de deux impulsions attosecondes.

Le décalage spectral induit par effets de CEP en porte étroite ($\tau_{gate} \approx \frac{T_0}{2}$) peut être quantifié en revenant à l'observation des spectres continus en Figure 4.37 et Figure 4.41. En effet, une variation de la CEP peut introduire un changement de fréquence centrale pour les harmoniques [142]. Dans le cas d'une CEP aléatoire, où le spectre observé est une moyenne sur toutes les valeurs de ϕ_{CEP} , cela peut amener à l'observation d'un continuum spectral fictif, qui ne correspond pas à la génération d'une impulsion attoseconde isolée. Pour cela, il faut que l'écart en énergie soit significatif devant la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques et devant l'espacement spectral entre chaque harmonique.

La situation observée précédemment nous permet de quantifier le décalage spectral induit par des effets de CEP avec la porte de polarisation. Pour ceci, on compare deux spectres XUV obtenus pour deux épaisseurs distinctes $e_{SiO_2} = 30.87 \mu\text{m}$ et $e_{SiO_2} = 43.7 \mu\text{m}$. Comparer ces deux spectres revient à comparer le décalage spectral maximal pour les harmoniques en fonction de ϕ_{CEP} . La superposition de ces deux spectres est donnée en Figure 4.46.

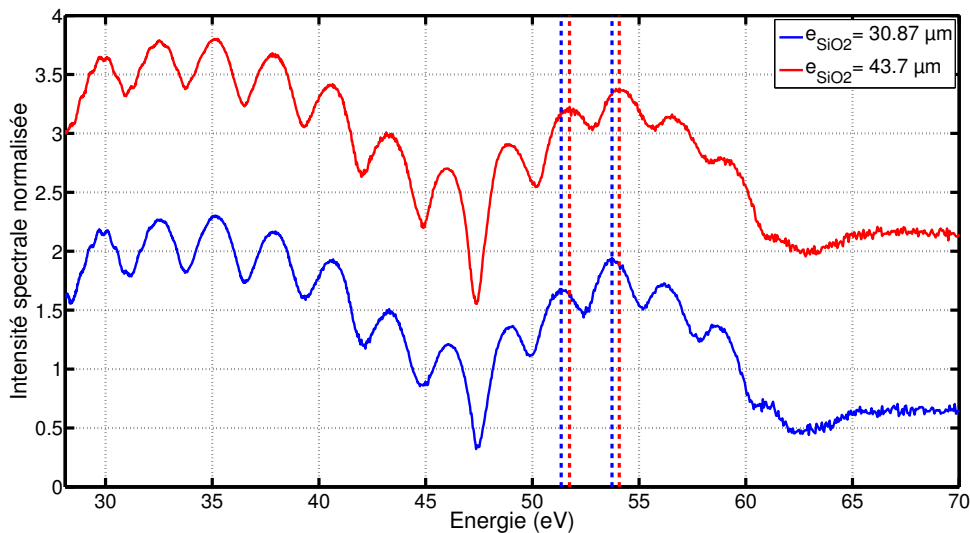


FIGURE 4.46 – Comparaison de deux spectres XUV à deux épaisseurs $e_{SiO_2} = 30.87 \mu\text{m}$ (bleu) et $e_{SiO_2} = 43.7 \mu\text{m}$ (rouge), extraits de la Figure 4.37. L'énergie des pics de deux harmoniques de la coupure est repérée en pointillés de même couleur pour chaque spectre.

La Figure 4.46 montre deux choses :

- Pour les harmoniques du plateau, l'énergie centrale est très peu affectée par ϕ_{CEP} . En effet, pour les harmoniques avant le minimum de Cooper dans le spectre, le changement d'énergie centrale est inférieur à 100 meV, soit la résolution spectrale, pour toutes les harmoniques du plateau.
- Pour les harmoniques de la coupure, on observe effectivement un effet de décalage spectral. En le quantifiant pour deux harmoniques, on obtient un décalage spectral de l'ordre de 300 meV (entre les pointillés rouges et les pointillés bleus sur la Figure 4.46). Ce décalage spectral est négligeable devant la largeur spectrale à mi-hauteur des harmoniques ($\approx 1.55 \text{ eV}$), ainsi que devant l'espacement

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

entre deux harmoniques.

Le décalage spectral avec les effets de CEP en porte étroite ($\tau_{gate} \approx \frac{T_0}{2}$ est donc insuffisant pour générer un continuum spectral lorsque que ϕ_{CEP} est aléatoire. Les spectres continus avec ϕ_{CEP} aléatoire observés à l'iLM ne sont donc pas dûs à ces effets de décalage spectral, ce qui nous permet de conclure que ce continuum ne peut être dû qu'à la génération d'une impulsion attoseconde isolée.

En conclusion sur cette partie, nous avons observé expérimentalement les phénomènes suivants :

- Nous avons réussi via la porte de polarisation, avec des impulsions courtes de $\tau_{IR} = 6$ fs, à générer des spectres XUV avec des harmoniques très larges, même des spectres continus pour les harmoniques de la coupure pour certaines valeurs ϕ_{CEP} .
- Ces spectres continus ont d'abord été générés avec la CEP stabilisée à court terme, puis avec la CEP stabilisée à long terme en entrée de chambre de génération via le stereo-ATI [145, 146, 147]. Des effets de CEP ont été observés sur les structures harmoniques du spectre XUV, avec apparition d'un continuum ou de structures harmoniques larges de manière reproductible.
- Avec le filtre métallique de zirconium, la partie continue du spectre a pu être isolée et le fondamental infrarouge retiré. Le comportement du continuum par rapport à la variation de la CEP est resté le même que sans le filtre. Mais une impulsion attoseconde isolée a potentiellement pu être sélectionnée entre le filtre et le réseau.
- L'apparition des structures harmoniques sur la partie continue du spectre a pu être observée aussi via l'élargissement de la porte de polarisation, avec une transition continuum-structures estimée similaire entre simulations et expériences. Cette transition se trouve lorsque la durée de la porte est proche du demi-cycle optique de la fréquence IR fondamentale moyenne.
- Les effets de décalage spectral observés en faisant varier ϕ_{CEP} montrent que ces décalages spectraux sont insuffisants pour générer un continuum fictif avec moyennage sur une CEP aléatoire, comme on a pu observer à l'iLM. L'observation de ces spectres continus, avec le fait que l'on a montré que les effets de propagation étaient aussi insuffisants pour les générer, nous permet de les associer à la génération d'une impulsion attoseconde isolée.
- Ces signatures spectrales de spectres continus sont compatibles avec la génération d'une impulsion attoseconde isolée, de par la largeur spectrale et les effets de CEP/confinement temporel que l'on a pu observer.

4.3.4 Décalage temporel en propagation entre polarisation s et p : Effet Goos-Hänchen

4.3.4.1 Mesures de l'effet Goos Hänchen avec une lampe blanche : Reproduction de l'effet sur un deuxième système

Dans le but de vérifier si l'effet observé en utilisant le système de Lund n'était pas un artefact de mesure, on a cherché à reproduire l'effet à l'institut Lumière Matière. L'idée de l'expérience est d'effectuer la même mesure interférométrique que celle effectuée dans la Section 4.3.2, mais avec un nombre de réflexions à 45 degrés que l'on peut changer, et où l'on peut changer le type de miroirs. Le principe reste le même. Le rayonnement initial est séparé en deux parties de polarisations croisées et décalées

temporellement. Le décalage temporel est relié à l'épaisseur de la lame d'épaisseur variable formée à partir des prismes biréfringents et des lames de quartz de compensation. La polarisation du rayonnement initial est orientée à 45° des axes neutres de la lame d'épaisseur variable. La polarisation linéaire du rayonnement initial est assurée par la présence d'un polariseur, qui assure une polarisation linéaire p après transmission. Une fois séparée en deux, le rayonnement est propagé sur un chemin avec un nombre de réflexions à 45° variable, qui est un nombre de miroirs que l'on ajoute pour les différentes mesures. Après propagation et réflexions, le rayonnement est transmis au travers d'un analyseur, dont l'orientation est croisée avec celle du premier polariseur. La lumière transmise est ensuite observée à l'aide d'un spectromètre IR. Pour une configuration donnée, donc un nombre de réflexions à 45° donné, on enregistre une série de spectres IR en fonction du délai entre les deux rayonnements. Ici, on parle d'impulsion, mais on utilise une lampe blanche, et non pas un laser comme dans les expériences précédentes. La lampe blanche permet d'avoir un spectre large. Avant d'entrer dans le premier polariseur, la lumière passe au travers d'un iris pour réduire la divergence de la source.

Avec cette mesure, on obtient une évolution du spectre IR en fonction de la position des prismes biréfringents. Cette évolution est donnée pour 0 miroirs et 4 miroirs en argent protégés en Figure 4.47, avec des miroirs argent protégés Thorlabs. Les franges se redressent en se rapprochant du délai 0, comme sur la mesure effectuée en Section 4.3.2.

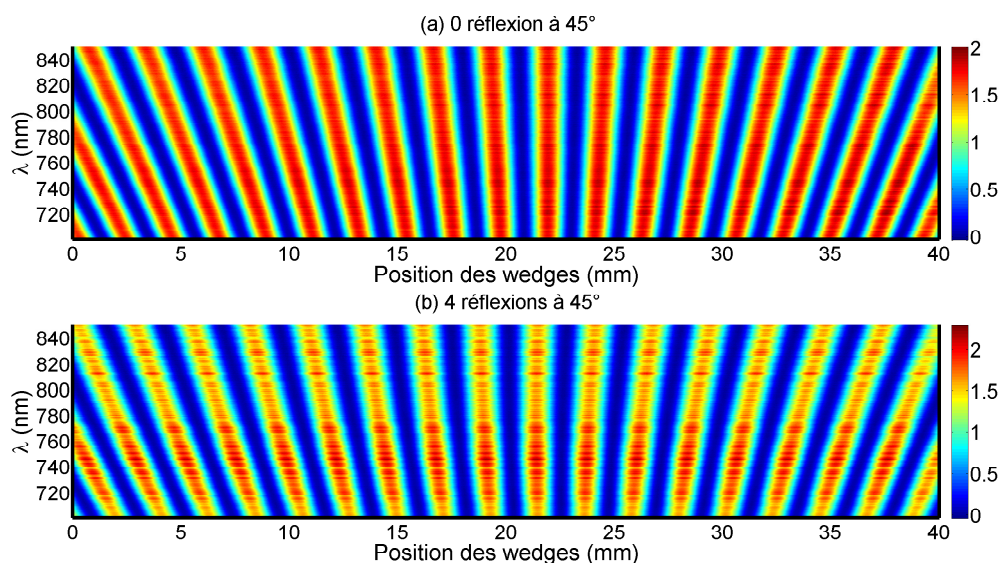


FIGURE 4.47 – Évolution du spectre IR en fonction de la position des wedges pour deux situations : (a) avec 0 réflexion à 45° et (b) avec 4 réflexions à 45° sur des miroirs argent protégés.

La Figure 4.47 montre que la position pour laquelle toutes les longueurs d'onde sont en phase, ie lorsque le signal pour toutes les longueurs d'onde est maximal au même moment, change avec le nombre de réflexions. À partir de ces cartes, on intègre spectralement pour obtenir un signal intégré en fonction de la position des prismes qui oscille. L'enveloppe de la valeur absolue de ces oscillations est ensuite extraite. L'idée est d'observer la position pour laquelle l'enveloppe de ces oscillations est maximum en fonction du nombre de réflexions. Un exemple d'oscillations, de valeur absolue d'oscillations et d'enveloppe est donné en Figure 4.48.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

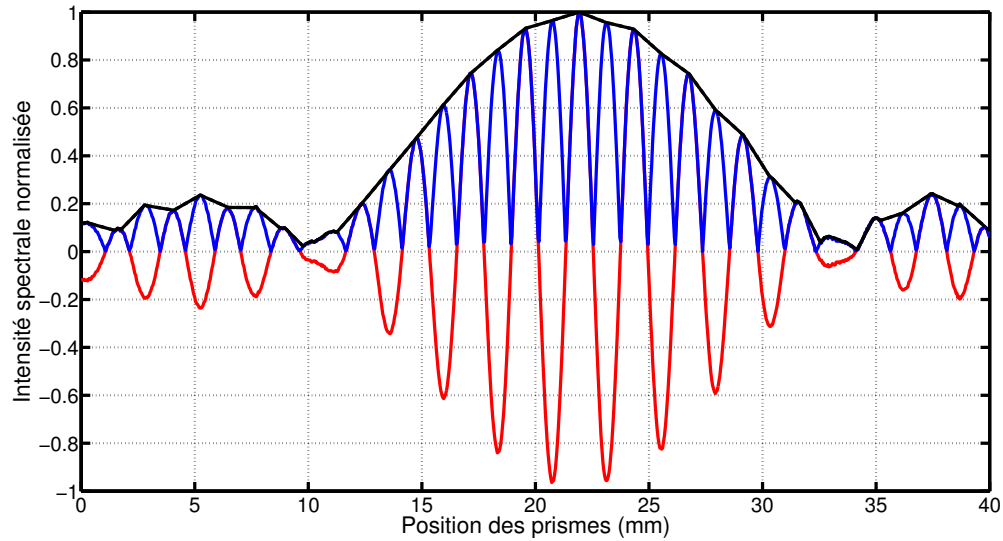


FIGURE 4.48 – Oscillations obtenue par intégration spectrale de la carte présentée en Figure 4.47. Les oscillations sont dessinées en trait plein rouge, la valeur absolue en trait plein bleu et l’enveloppe interpolée sur la gamme de positions des prismes en trait plein noir.

L'évolution de la position du maximum de l'enveloppe en fonction du nombre de réflexions sur des miroirs protégés en argent Thorlabs est donnée en Figure 4.49.

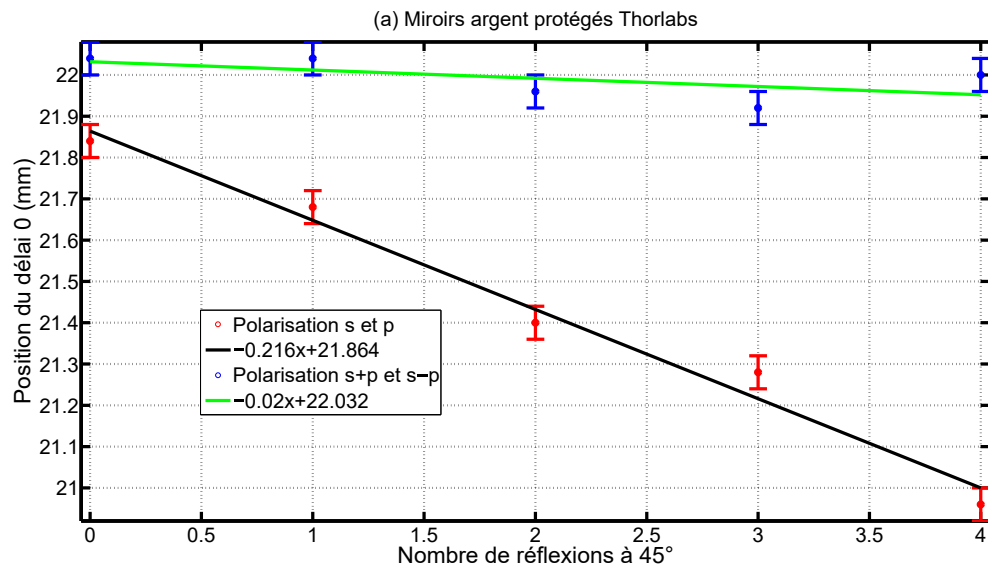


FIGURE 4.49 – Évolution de la position du maximum de l’enveloppe en fonction du nombre de réflexions à 45° pour des miroirs en argent protégés Thorlabs. La situation pour une polarisation s et p est dessinée en trait plein rouge qu’une polarisation $s-p$ et $s+p$ bleu. Un ajustement linéaire est effectué pour ces deux évolutions. L’ajustement pour la polarisation s et p est donnée en trait plein noir, et celui pour la polarisation $s+p$ et $s-p$ en trait plein vert. Les coefficients associés à chaque fit sont donnés dans la légende.

Sur la figure, on donne cette évolution pour deux situations :

- s et p en laissant la lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro avec ses axes horizontaux et verticaux.
- $s + p$ et $s - p$ en tournant la polarisation s et p en sortie de 45° à l'aide de la lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro

La Figure 4.49 montre que la position du maximum de l'enveloppe évolue de manière linéaire avec le nombre de réflexions sur des miroirs argent lorsque la polarisation est s et p . Pour une polarisation $s + p$ et $s - p$, la position est quasi constante. L'incertitude sur la position est de l'ordre du pas du moteur. En reliant ça avec le délai 0, cela montre qu'il y a un écart de positions des prismes, donc d'épaisseur, pour lequel on retrouve un délai nul entre les polarisations s et p . Ce délai disparaît bien lorsque l'on regarde une combinaison linéaire des deux polarisations avec la situation $s + p$ et $s - p$.

En effectuant un fit avec une fonction linéaire, on peut obtenir la contribution d'un miroir en argent protégé. Ici, on trouve qu'un miroir en argent correspond à un décalage de -0.216 mm en termes de position des prismes. En utilisant la calibration des prismes biréfringents, on obtient un délai de -0.247 fs. Expérimentalement, les données de la Section 4.3.2 montrent un décalage de 1.2 mm en positions des prismes pour quatre miroirs argent protégés, soit 0.3 mm par réflexion. On retrouve l'ordre de grandeur de la contribution, mais l'accord est moyen entre les deux valeurs retrouvées expérimentalement. Cela peut être dû à plusieurs facteurs :

- Incertitude sur les angles d'incidence : le délai varie avec l'angle d'incidence, et les incertitudes de mesure d'angle d'incidence peuvent induire des changements dans les mesures, et des écarts entre différentes séries de mesures.
- Type de miroir. Ici, on a pris des miroirs en argent protégés de chez Thorlabs, qui correspondaient à la description des miroirs que l'on avait dans le système du Lund Laser Center. Seulement, nous ne pouvons pas nous assurer que ces miroirs sont exactement les mêmes, avec les mêmes propriétés : type de couche de protection, qualité de la couche de protection, séries de miroirs différentes, forme de miroirs différents. Les miroirs utilisés pour faire la mesure à la lampe blanche sont de la même boîte, mais pour le système de Lund, dans les quatre miroirs de la mesure, on a deux miroirs identiques et deux miroirs taillés et collés sur deux prismes. On ne peut donc pas s'assurer que ces quatre miroirs sont exactement les mêmes, et les mêmes que ceux qu'on utilisé à l'ILM. Ces différences peuvent aussi provoquer des écarts entre les mesures expérimentales de l'ILM et les mesures effectuées à Lund.

La même mesure est effectuée pour des miroirs en argent protégés Eksma optimisés femtosecondes, ainsi que des miroirs aluminium Thorlabs. La contribution pour chaque miroir doit changer avec le matériau, en passant de l'argent à l'aluminium, mais également en changeant de marque, car la couche de protection pour les miroirs Eksma Optics n'est pas forcément la même que celle pour les miroirs argent de chez Thorlabs. L'évolution de la position de l'enveloppe est donnée sur la Figure 4.50 (b) pour les miroirs argent protégés d'Eksma, ainsi que pour les miroirs alu Thorlabs sur la figure (c).

La Figure 4.50 montre à nouveau une évolution de la position du maximum de l'enveloppe lorsque la polarisation est s et p , et une évolution quasi nulle lorsque que la polarisation est $s + p$ et $s - p$. Les variations pour l'évolution quasi nulle pour les miroirs Eksma, qui est périodique avec le nombre de réflexions à 45° , est sûrement dû à une incertitude sur l'orientation de la $\frac{\lambda}{2}$, qui crée une polarisation $s + p$ et $s - p$ à un angle proche de 45° , mais pas exactement à 45 degrés. Si l'on tournait la polarisation parfaitement de 45 degrés, les points en bleu sur la Figure 4.50 donneraient

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

probablement une ligne parfaitement plane en fonction du nombre de miroirs.

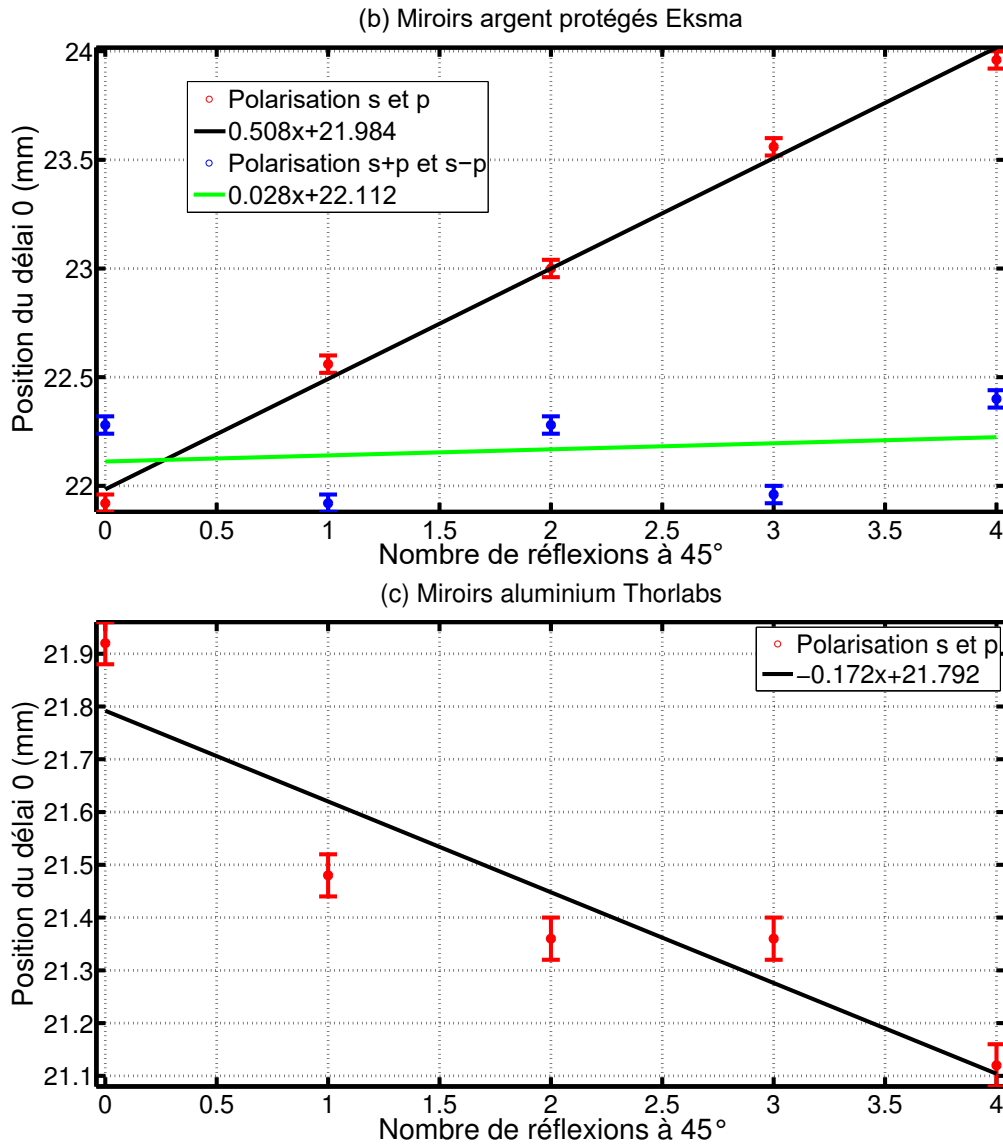


FIGURE 4.50 – Évolution de la position du maximum de l’enveloppe en fonction du nombre de réflexions à 45° pour des miroirs en argent protégés Eksma Optics (b) et pour des miroirs aluminium Thorlabs (c). La situation pour une polarisation s et p est dessinée en trait plein rouge qu’une polarisation $s - p$ et $s + p$ bleu. Un ajustement linéaire est effectué pour ces deux évolutions. L’ajustement pour la polarisation s et p est donnée en trait plein noir, et celui pour la polarisation $s + p$ et $s - p$ en trait plein vert. Les coefficients associés à chaque fit sont donnés dans la légende.

Autre observation, la contribution associée à un miroir Eksma est deux fois plus grande que pour un miroir en argent Thorlabs, et de sens inverse. Ce changement peut être expliqué par le changement du type de couche de protection, qui peut différer d’une marque à l’autre. Pour le miroir en aluminium, le délai introduit par le miroir est de signe inverse par rapport à un miroir en argent Eksma. On voit donc que le type de matériau influe aussi sur le sens du décalage temporel introduit par le miroir. En comparant les différentes mesures, on voit que le décalage dépend fortement du type de miroir utilisé (couche de protection, matériau, marque), et est propre à chaque miroir.

En utilisant la calibration des prismes effectuées en Section 4.3.2 pour transfor-

mer l'écart de position en délai, on trouve que cinq contributions de miroirs argent et une contribution d'un miroir aluminium valent $5 \times 0.216 + 0.172$ mm, soit 1.25 mm en positions de prismes. Expérimentalement, on a trouvé 2.5 mm. On a donc réussi à reproduire l'effet expérimentalement à la lampe blanche, mais les deux mesures ne donnent pas le même résultat dans des conditions proches. Cela est sûrement dû au fait que les miroirs utilisés dans l'expérience à la lampe blanche ne sont pas les mêmes miroirs que ceux utilisés dans le montage expérimental du Lund Laser Center. Néanmoins, l'effet n'est pas un artefact de mesure propre à un montage, mais est observable dans plusieurs situations avec de multiples réflexions sur des miroirs à 45° .

4.3.4.2 Simulations de l'effet Goos-Hänchen à partir de la littérature

Dans la Section 4.3.3, nous avons vu que pour le montage expérimental utilisé, nous avons besoin de compenser un délai entre les polarisations s et p induit par la propagation. Ce décalage change avec le nombre de réflexions à 45° , comme montré en Figure 4.24. En précompensant cet effet avec les prismes biréfringents en quartz, on a vu en Section 4.3.3 que l'on conservait l'état de polarisation entre l'entrée de la chambre et l'endroit où les harmoniques sont générées. L'effet Goos-Hänchen [152, 153, 154] est un candidat pertinent pour expliquer ce délai qui varie avec la polarisation et le nombre de miroirs sur le chemin du faisceau.

Pour cet effet, un déphasage entre les polarisations s et p est introduit lorsque l'on passe d'une surface comme le verre à une surface métallique, comme l'argent, d'indice plus faible. Physiquement cela se traduit aussi par un décalage spatial, la polarisation p rentrant à l'intérieur du métal comme par effet de peau avant d'être réfléchi. Les miroirs utilisés dans le montage expérimental sont des miroirs protégés, avec une couche de protection en silice d'une épaisseur d'environ 100 nm (données Thorlabs). Il faut aussi avoir un angle d'incidence supérieur à l'angle critique de réflexion totale. La situation correspond donc à la description de l'effet Goos-Hänchen [153, 154, 155, 156]. Cet effet prend place lorsque un faisceau arrive à une interface entre deux milieux 1 et 2. En passant du milieu 1 au milieu 2, si l'indice de réfraction du milieu 2 est plus petit, il pourra y avoir un effet Goos-Hänchen. Cet effet se traduit par un changement de phase à la réflexion à l'interface, ajouté à un décalage spatial. Ce changement de phase et ce décalage spatial sont dépendants de la polarisation considérée. Les valeurs de changement de phase ne seront pas les mêmes pour la polarisation s et pour la polarisation p. Le décalage spatial induit par cet effet est calculé entre la polarisation s et la polarisation p.

Les phases des coefficients de réflexion pour les polarisations s et p sont calculées à partir de la partie imaginaire des coefficients de réflexion complexe de Fresnel, en utilisant la loi de Descartes également :

$$\Phi_s(\omega, \theta) = \text{Im}(\log[\frac{n_1 \cos(\theta) - (n_2^2 - n_1^2 \sin^2(\theta))^{\frac{1}{2}}}{n_1 \cos(\theta) + (n_2^2 - n_1^2 \sin^2(\theta))^{\frac{1}{2}}}]]) \quad (4.6)$$

$$\Phi_p(\omega, \theta) = \text{Im}(\log[\frac{n_2^2 \cos(\theta) - n_1(n_2^2 - n_1^2 \sin^2(\theta))^{\frac{1}{2}}}{n_2^2 \cos(\theta) + n_1(n_2^2 - n_1^2 \sin^2(\theta))^{\frac{1}{2}}}]]) \quad (4.7)$$

avec n_1 l'indice de réfraction de silice (couche protectrice du miroir), n_2 l'indice de réfraction complexe de l'argent, et θ l'angle d'incidence du faisceau sur le miroir. L'indice de réfraction de silice n_1 et l'indice n_2 de l'argent sont tabulés [148]. Ici, le déphasage se calcule pour un miroir seulement.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

Ces phases dépendent directement de ω via la dépendance en ω des indices de réfraction, mais aussi de θ via la réflexion à l'interface entre les deux milieux. Le délai associé à l'effet Goos-Hänchen se compose de deux termes [155, 156], reliées aux dérivées des phases $\Phi_p(\omega, \theta)$ et $\Phi_s(\omega, \theta)$. On a $\phi_{s,p}$ la différence de phase à la réflexion entre les polarisations s et p et $\tau_{s,p}$ le délai entre la polarisation s et pour la polarisation p tels que [156] :

$$\Phi_{tots,p} = \Phi_{s,p} - \tan(\theta) \frac{\partial \Phi_{s,p}}{\partial \theta} \quad (4.8)$$

Donc :

$$\tau_{s,p} = \frac{\partial \Phi_{s,p}}{\partial \omega} - \tan(\theta) \frac{\partial^2 \Phi_{s,p}}{\partial \theta \partial \omega} \quad (4.9)$$

le premier terme correspond à la phase des coefficients de réflexion complexe, et le deuxième terme au délai associé au décalage spatial. En calculant la phase associée à l'effet Goos-Hänchen pour les deux polarisations, on peut calculer le profil temporel pour les deux polarisations après modifications de la phase, en simulant un spectre.

On effectue ces simulations en partant d'un spectre Gaussien de largeur 40 nm. En prenant les évolutions des indices de l'argent [148], de l'aluminium [157] et de la silice dans la littérature [148], la phase de Goos-Hänchen $\Phi_{tots,p}$ pour les deux polarisations s et p est calculée, et le profil d'intensité pour s et p reconstruit. On regarde ensuite l'écart temporel entre les deux pics des deux profils temporels. Le résultat des simulations pour un miroir en argent protégé par une couche de SiO_2 (a), un miroir en argent protégé par une couche de MgF_2 (b) et un miroir en aluminium protégé par une couche de SiO_2 (c) est donné en Figure 4.51.

Au travers des simulations présentées en Figure 4.51, des décalages temporels similaires à ceux observés en Section 4.3.2 à Lund, et en Section 4.3.4.1 à l'Institut Lumière Matière sont retrouvés. Le décalage associé aux miroirs argent est de 270 as par réflexion dans les simulations. Expérimentalement, on trouve un décalage temporel de 1.2 fs pour 4 miroirs argent à Lund soit 310 as par miroir, et 230 as pour les mesures de l'ILM. Les simulations montrent donc un décalage qui se situe entre les deux valeurs expérimentales. L'accord est correct. Pour le miroir aluminium, les mesures de Lund ont montré une contribution beaucoup plus conséquente pour l'ajout de un miroir en argent et un miroir en aluminium. En effet, une contribution d'un miroir argent et d'un miroir aluminium donnait un écart de position de prismes de 1.3 mm, soit 1.35 fs. En retirant une contribution d'un miroir argent mesurée expérimentalement, on trouve 1 fs pour le miroir aluminium. Pour les mesures effectuées à Lyon, on trouve 180 as pour un miroir. On a donc des résultats plus disparates entre les deux mesures expérimentales, mais aussi les simulations.

L'effet Goos-Hänchen se retrouve bien dans les simulations. Ici, on a pris les simulations avec des impulsions plutôt longues, avec une largeur spectrale de 40 nm. Le fait de travailler avec des largeurs spectrales plus grandes expérimentalement amène à aussi observer une dépendance plus forte avec ω . Par exemple, l'indice de l'aluminium évolue plus significativement que l'indice de l'argent avec ω . En conséquence, le retard $\frac{\partial \Phi_{s,p}}{\partial \omega}$ induit par la phase du coefficient de réflexion complexe de Fresnel pour un miroir argent est quasi constant sur une gamme de longueur d'onde située entre 400 nm et 1000 nm, mais le retard pour le miroir aluminium dans la même gamme de longueur d'onde change de signe. Pour raffiner ces simulations, on peut effectuer des simulations plus poussées en étudiant l'effet avec un spectre plus large. Une illustration de cette évolution du délai entre polarisation s et polarisation p uniquement pour la

phase du coefficient de réflexion de Fresnel est donnée en Figure 4.52 pour une interface SiO_2 /argent et SiO_2 /aluminium. Pour un miroir aluminium, le délai va donc dépendre fortement de la largeur spectrale considérée, des composantes spectrales majoritaires dans le spectre, ainsi que de la longueur d'onde centrale du spectre.

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

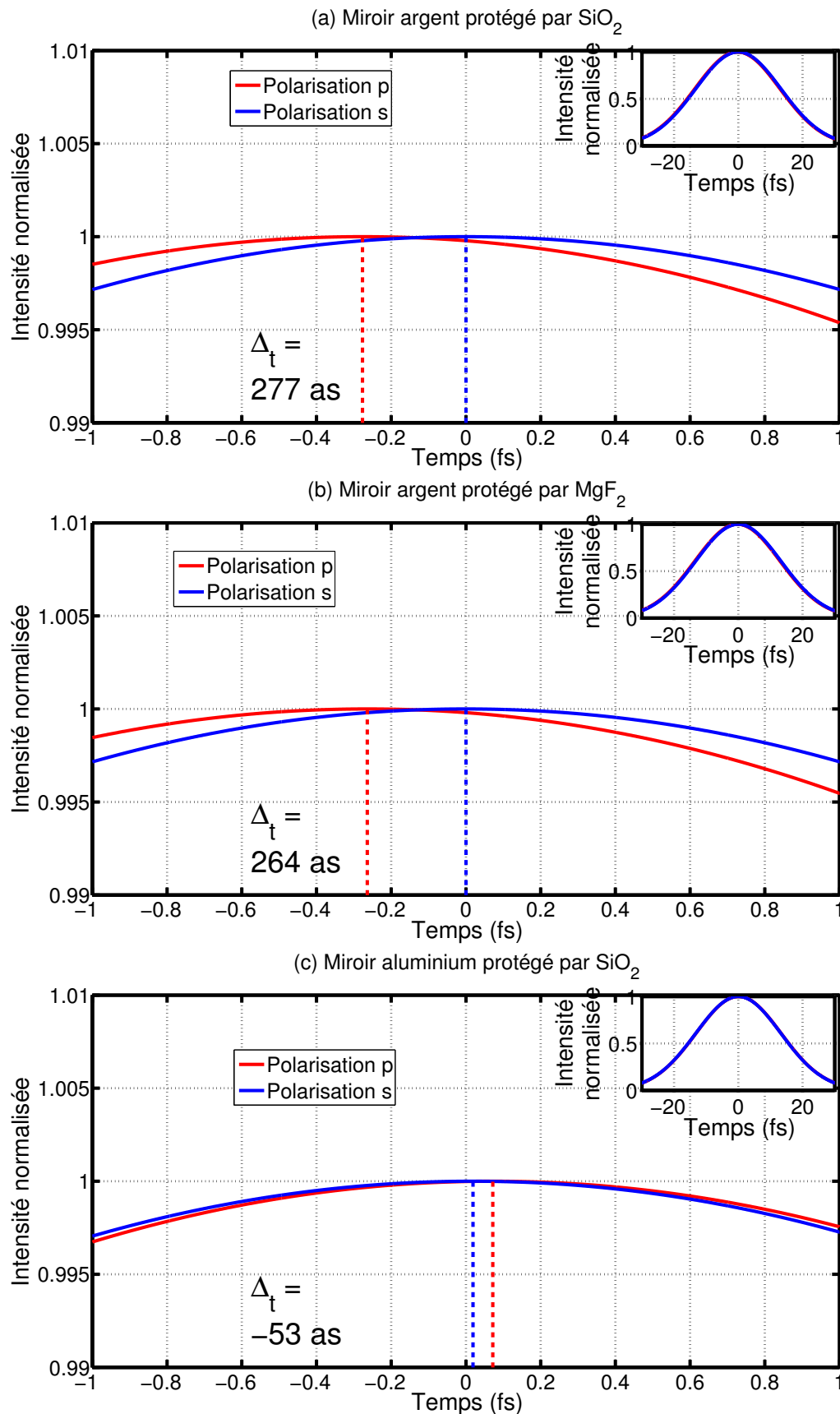


FIGURE 4.51 – Profils temporels et décalages entre polarisation s et polarisation p pour un miroir en argent protégé par une couche de SiO_2 (a), un miroir en argent protégé par une couche de MgF_2 (b) et un miroir en aluminium protégé par un couche de SiO_2 (c). Les différentes figures sont zoomées autour du délai 0. Les inserts donnent l'évolution globale des profils temporels simulés. Le décalage temporel entre les pics est donné pour chaque situation : (a) 277 fs, (b) 264 as, (c) - 53 as.

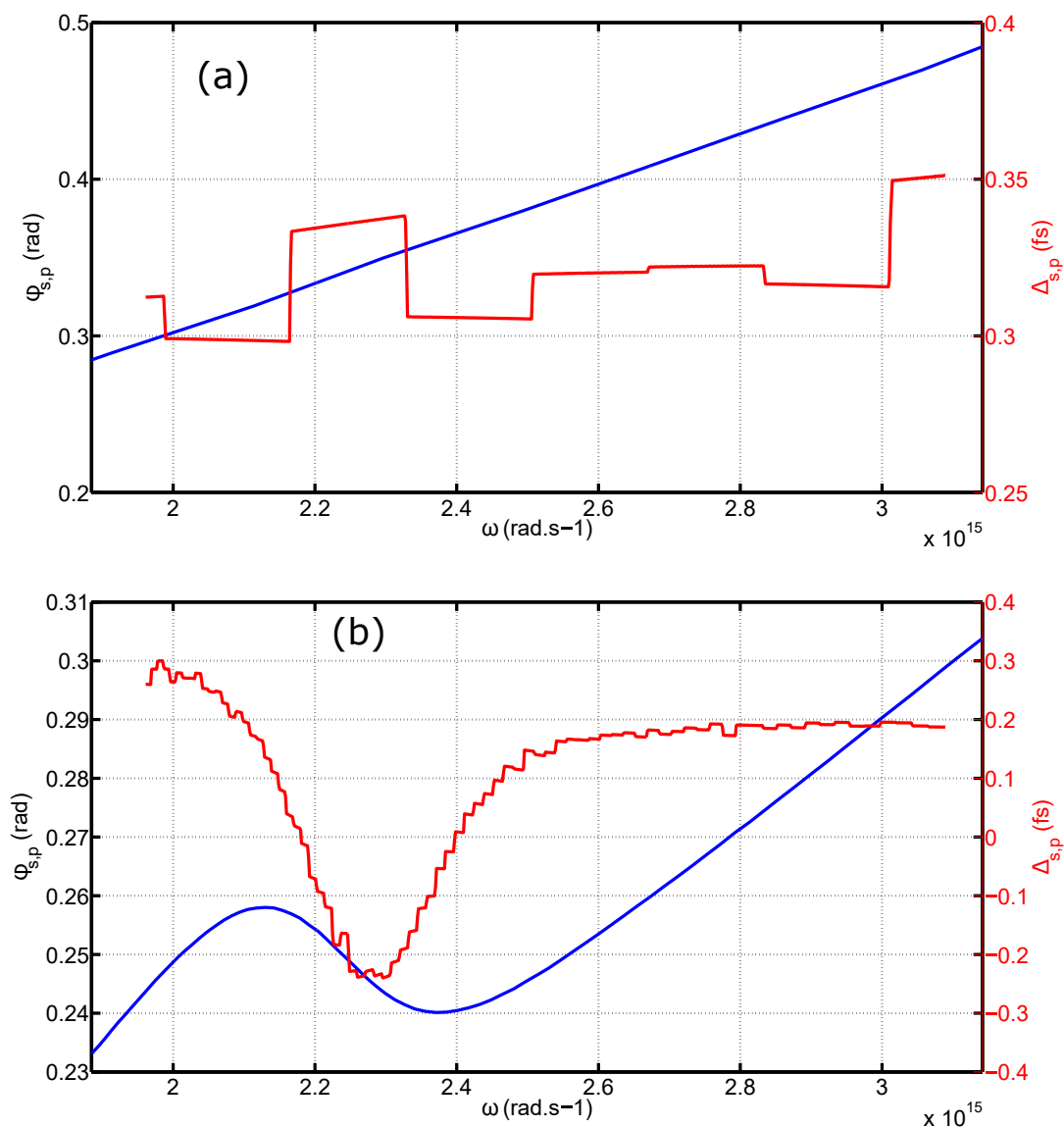


FIGURE 4.52 – Évolution de la différence de phase et du délai entre les polarisations s et p pour (a) une interface SiO₂/argent et (b) une interface SiO₂/aluminium en fonction de ω . Le délai associé au miroir argent est bien quasi constant en fonction de ω , alors que le délai de l'aluminium varie significativement avec ω .

Pour conclure sur cette partie :

- On a vu expérimentalement des décalages temporels dans la propagation entre deux polarisations s et p avec des mesures au Lund Laser Center. Ces mesures se traduisent par un décalage du délai 0 dans des expériences interférométriques IR/IR avec un interféromètre à séparation de polarisation. La mesure de ce décalage est faite à l'aide d'interférences spectrales entre deux répliques jumelles de l'impulsion fondamentale. L'impulsion fondamentale est séparée en deux impulsions par une lame biréfringente d'épaisseur variable dont les axes sont orientés à 45° de la polarisation de l'impulsion fondamentale. Les deux rayonnements sont ensuite projetés sur le même axe, après propagation, via un polariseur. En ajoutant une lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro avant la propagation, on peut comparer deux situations. Une situation où l'on va observer un décalage de propagation entre s et p , et une situation où le décalage observé sera nul, car on aura une combi-

4.3. Utilisation d'un système CEP stable avec des impulsions courtes de quelques cycles optiques $\tau_{IR} = 6.4$ fs

naison linéaire des polarisations s et p sur chaque bras. En effectuant ces deux mesures, le décalage induit par une ou plusieurs réflexions à 45 degrés dans la propagation a été mesuré.

- Afin de vérifier que ce décalage n'était pas propre au montage expérimental, nous avons effectué des mesures complémentaires à l'Institut Lumière Matière avec une lampe blanche. Dans ces expériences, la mesure s'effectue avec le même système que celui utilisé à Lund. La mesure a été effectuée pour les situations avec polarisation s et p , et polarisations $s + p$ et $s - p$. Ce type de mesure a aussi été effectué avec différents miroirs : miroirs argent protégés avec une couche de silice (Thorlabs), miroirs aluminium protégés (Thorlabs), miroirs argent protégés avec une couche de protection "enhanced" (Eksma Optics). Les résultats des expériences ont montré que ce décalage varie significativement en fonction de plusieurs propriétés : matériau qui compose le miroir, matériau utilisé pour la couche de protection, qualité de la couche de protection. Néanmoins, les décalages observés à l'Institut Lumière Matière et à Lund restent dans le même ordre de grandeur.
- Les résultats des expériences ont été comparés à des simulations de la propagation via l'effet Goos-Hänchen [154, 156] pour les polarisations s et p . L'accord est bon pour les miroirs en argent, mais pas pour les miroirs en aluminium, en considérant une largeur spectrale de 40 nm, avec une longueur d'onde centrale de 800 nm. Les différentes mesures expérimentales et les simulations montrent un mauvais accord sur les miroirs aluminium.
- L'effet de décalage de propagation expliqué par l'effet Goos-Hänchen reste néanmoins une approche concluante, de par les deux mesures expérimentales effectuées sur deux montages expérimentaux différents, ainsi que les simulations effectuées.
- La conclusion reste que l'effet est un effet qui est visible sur plusieurs systèmes expérimentaux, que l'on peut simuler. L'accord entre les différentes mesures et simulations est qualitativement correct, mais présente des écarts quantitatifs. Cela incite à ce que pour quantifier cet effet sur un système précis, il faille effectuer une mesure directe, car les propriétés des différents miroirs, la géométrie du système et la gamme de longueur spectrale de l'impulsion fondamentale sont d'autant de paramètres qui influent sur la difficulté à prédire et être quantitatif sur l'impact de cet effet pour un montage expérimental précis. Cet effet devient d'autant plus important que le nombre de réflexions augmente ou que l'on utilise des impulsions fondamentales de plus en plus courtes. Nous avons proposé une méthode simple et compacte basée sur un interféromètre à séparation de polarisation pour effectuer cette mesure de manière précise et quantitative.

En conclusion sur ce chapitre, plusieurs situations ont été observées :

- On a pu générer des spectres continus XUV dans plusieurs situations. Dans un premier temps à l'ILM, avec des impulsions de 7-8 fs sans stabilisation de la CEP. Nous avons pu obtenir des spectres continus dans les harmoniques de la coupure, qui s'étalent sur une dizaine d'eV. Ces spectres continus apparaissent bien avec le confinement temporel, et sont analysés en prenant en compte le fait que la CEP n'est pas stabilisée.
- Pour implémenter la porte de polarisation dans un montage expérimental avec de multiples réflexions à 45° sur des optiques, comme en Figure 4.16, il faut prendre en compte des effets de dépolarisation. Dans notre cas, cet effet de dépolarisation s'est traduit par un décalage temporel croissant entre les polarisations s et p .

Ce décalage a pu être compensé via une lame d'épaisseur variable et a permis d'implémenter la porte de polarisation.

- Le décalage temporel entre s et p a pu être quantifié au travers de mesures optiques et simulé via des effets de réflexion avec l'effet Goss-Hänchen. Les simulations sont qualitativement en accord avec les mesures optiques.
- Dans un second temps, en collaboration avec le Lund Laser Center, nous avons utilisé un système stabilisé en CEP avec des impulsions de quelques cycles optiques ($\tau_{IR} = 6.4$ fs). Après compensation des effets de polarisation, nous avons observé des spectres continus dans de multiples situations : avec et sans filtre métallique, apparition du continuum en fonction de la CEP, non apparition du continuum quelle que soit la CEP lorsque la précompensation n'est plus bonne.

Ces signatures spectrales sont compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées, dans la gamme spectrale de la coupure. Une caractérisation temporelle du profil XUV est nécessaire pour justifier le caractère isolé de l'impulsion.

- Au travers de simulations, on a vu que l'on peut obtenir des impulsions attosecondes isolées avec un bon contraste temporel tout en ayant des structures harmoniques dans certaines situations. Un exemple de situation sera vu en Section 5.3, avec une reconstruction via le spectromètre CIEL montrant une impulsion attoseconde isolée malgré les structures harmoniques encore présentes dans le spectre XUV.

Chapitre 5

Caractérisations temporelles d'impulsions XUV

5.1 Méthodes de caractérisations temporelles XUV

De nombreuses méthodes ont été développées pour la caractérisation temporelle des impulsions XUV. Le montage sur lequel ces caractérisations reposent varie d'une méthode à une autre. Différentes méthodes fréquemment utilisées sont listées dans cette Section 5.1. Une première méthode, RABBITT [34, 158], est une méthode de cross-corrélation entre une impulsion XUV à caractériser et une impulsion IR sonde de durée femtoseconde. Un spectre de photo-électrons émis par photoionisation à deux couleurs (XUV et IR) est enregistré, en fonction du délai entre l'impulsion XUV et l'impulsion IR. Dans le spectre de photo électrons apparaissent à la fois des bandes d'énergies distinctes pour l'absorption de chaque harmonique, mais aussi des bandes intermédiaires, caractéristiques de l'absorption d'un photon XUV et d'un photon IR. Les caractéristiques de ces bandes intermédiaires donnent directement accès à une relation de phase entre deux harmoniques consécutives. En croisant le spectre harmonique pour les amplitudes relatives et les phases relatives obtenues par la mesure RABBITT, le train d'impulsions attosecondes peut être reconstruit, avec une résolution sub-femtoseconde. Le principe de cette méthode sera discuté plus en détail en Section 5.2.

Une méthode d'autocorrélation XUV, adaptée de la méthode d'autocorrélation infrarouge [78, 159], a été développée également [41, 42]. Le signal non-linéaire induit par la superposition de deux répliques de l'impulsion XUV à caractériser est étudié en fonction du délai XUV/XUV. Cette méthode requiert une intensité XUV importante afin d'induire le phénomène non linéaire.

Dans la lignée de RABBITT, la méthode FROG-CRAB [35, 160], inspirée de la méthode FROG [161], permet aussi la caractérisation des trains d'impulsions attosecondes. L'impulsion XUV est aussi focalisée dans un gaz. Le spectre de photoélectrons est étudié en fonction du délai entre l'impulsion XUV et une porte (porte de phase ou d'amplitude) qui est fréquemment reliée à l'impulsion fondamentale. Comme dans le RABBITT, des bandes secondaires apparaissent dans le spectre de photoélectrons avec la présence de l'IR. Par des algorithmes de projections, la porte et l'impulsion XUV peuvent être reconstruits totalement. Ces algorithmes sont de plusieurs types, on peut citer par exemple PCGPA [35, 162] ou encore des algorithmes de Ptychographie [70, 163]. Dans le cas d'une mesure FROG CRAB, la reconstruction permet de retrouver à la fois l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes, mais aussi le profil d'intensité de l'impulsion attoseconde, ce qui en fait une mesure complète.

Des méthodes de type "streaking" ont aussi été développées [33, 36, 37, 38, 39]. Ces méthodes sont basées sur l'observation de l'évolution du spectre de photoélectrons en fonction du délai entre l'impulsion XUV et une impulsion IR refocalisées sur une cible gazeuse. L'impulsion XUV vient ioniser l'atome, libérant des électrons. L'énergie et la trajectoire de ces électrons est ensuite modifiée par la présence du champ IR, de plus grande durée. L'évolution du spectre de photoélectrons en fonction du délai IR/XUV dépend directement des caractéristiques de l'impulsion XUV. Ces méthodes ont permis la première caractérisation d'une impulsion attoseconde isolée [33].

D'autres méthodes basées sur l'ionisation ont été développées, comme l'ionisation par paliers [40]. Cette méthode repose sur une double ionisation d'un milieu gazeux en deux temps. Une ionisation a lieu avec une impulsion IR femtoseconde, utilisée comme pompe, et une deuxième avec une impulsion XUV à caractériser, utilisée comme sonde. En suivant l'évolution de la population d'ions doublement ionisés en fonction du délai XUV/IR, la durée des impulsions est retrouvée à partir des informations obtenues sur la crosscorrélation entre infrarouge et XUV.

Dans les Chapitre 3 et Chapitre 4, les caractérisations des impulsions XUV étaient essentiellement spectrales, en regardant uniquement le comportement du spectre XUV pour différents paramètres. Dans cette partie, on se focalise sur l'aspect caractérisation temporelle des impulsions XUV. Plusieurs méthodes de caractérisation seront discutées : RABBITT, streaking, perturbation par ellipticité et SWING XUV.

5.2 Méthode RABBITT : caractérisation des trains d'impulsions attosecondes via interférences XUV/IR à deux photons

La méthode RABBITT [34] est une méthode qui repose sur l'implémentation d'un interféromètre XUV/IR. Les faisceaux XUV et IR sont recombinaés sur un milieu gazeux, et on observe le spectre de photoélectrons en fonction du délai entre XUV et IR.

Le montage utilisé expérimentalement est donné en Figure 5.1. Une source commerciale laser délivre des impulsions de durée $\tau_{IR} = 30$ fs à 5 kHz, avec un spectre centré à 800 nm. Le faisceau est ensuite séparé en deux bras par une lame séparatrice 50/50, avec un bras pour la génération d'harmoniques. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon de 1 cm de longueur. La focale de la lentille est de 30 cm. Une lame en Nb_2O_5 est placée pour atténuer l'IR rémanent et séparer l'XUV généré de l'IR restant. Le spectre XUV est observé via un spectromètre avec un réseau. Ce spectromètre n'est pas champ plan, il ne permet pas d'observer le profil spatial et le profil spectral en même temps.

Le second bras est composé d'une ligne à retard. Deux prismes en silice sont placés sur une platine motorisée, de manière à avoir une épaisseur traversée variable, donc un délai variable entre les deux bras. La recombinaison des deux bras se fait au niveau d'un miroir troué. Ce miroir laisse passer l'XUV par son trou, et renvoie une partie de l'IR du second bras sur le même chemin que l'XUV. Deux fuites sur certaines optiques comme la lame de Nb_2O_5 sont collectées et envoyées dans un spectromètre visible. Les franges d'interférences entre ces deux fuites donnent l'information sur le délai entre les deux bras, et donc la possibilité de le stabiliser de manière active en suivant ces cannelures. Le contrôle de ce délai se situe en dessous de la femtoseconde [76]. Une lame

5.2. Méthode RABBITT : caractérisation des trains d'impulsions attosecondes via interférences XUV/IR à deux photons

$\frac{\lambda}{2}$ avec polariseur est installée sur le second bras, permettant de régler la puissance IR dans ce dernier.

Après recombinaison, les deux faisceaux des deux bras sont envoyés vers l'intérieur du VMI (Velocity Map Imaging) [164], dans la zone d'interaction. Cette zone d'interaction est ici un jet de gaz d'argon. La focalisation de l'XUV dans la zone d'interaction se fait par un miroir torique en or. Un filtre métallique peut être installé pour couper le fondamental rémanent sur le bras XUV. Les filtres à disposition sont des filtres en aluminium et en étain, d'une épaisseur de 200 nm. Pour cette partie, le filtre en aluminium sera utilisé.

Dans le montage utilisé à l'ILM, donné en Figure 5.1, l'observation du spectre de photoélectrons se fait via un VMI [164]. Le principe de ce VMI est donné en Figure 5.2. Les faisceaux XUV et IR sont focalisés au niveau de la zone d'interaction, ionisant le milieu et libérant des électrons. Le recouvrement spatial et temporel entre l'XUV et l'IR est vérifié en deux temps. Le recouvrement spatial est vérifié par la superposition des deux faisceaux sur une caméra CCD (au niveau du miroir mobile). Il est également vérifié par mesure de temps de vol. Par ionisation, on crée des ions ainsi que des photoélectrons.

Les électrons sont libérés dans une sphère autour de la zone d'interaction. La vitesse d'échappement des électrons dépend directement de leur énergie. Une fois libérés, ces électrons sont accélérés vers les galettes de microcanaux (MCP), où le signal sera amplifié. L'écran phosphore permet ensuite de convertir le signal amplifié d'électrons en signal lumineux. Ce signal lumineux est observé via une caméra CCD. Les galettes de microcanaux et l'écran phosphore possèdent chacun leur haute tension, respectivement V_3 et V_4 , qui permettent l'accélération des électrons et l'amplification du signal.

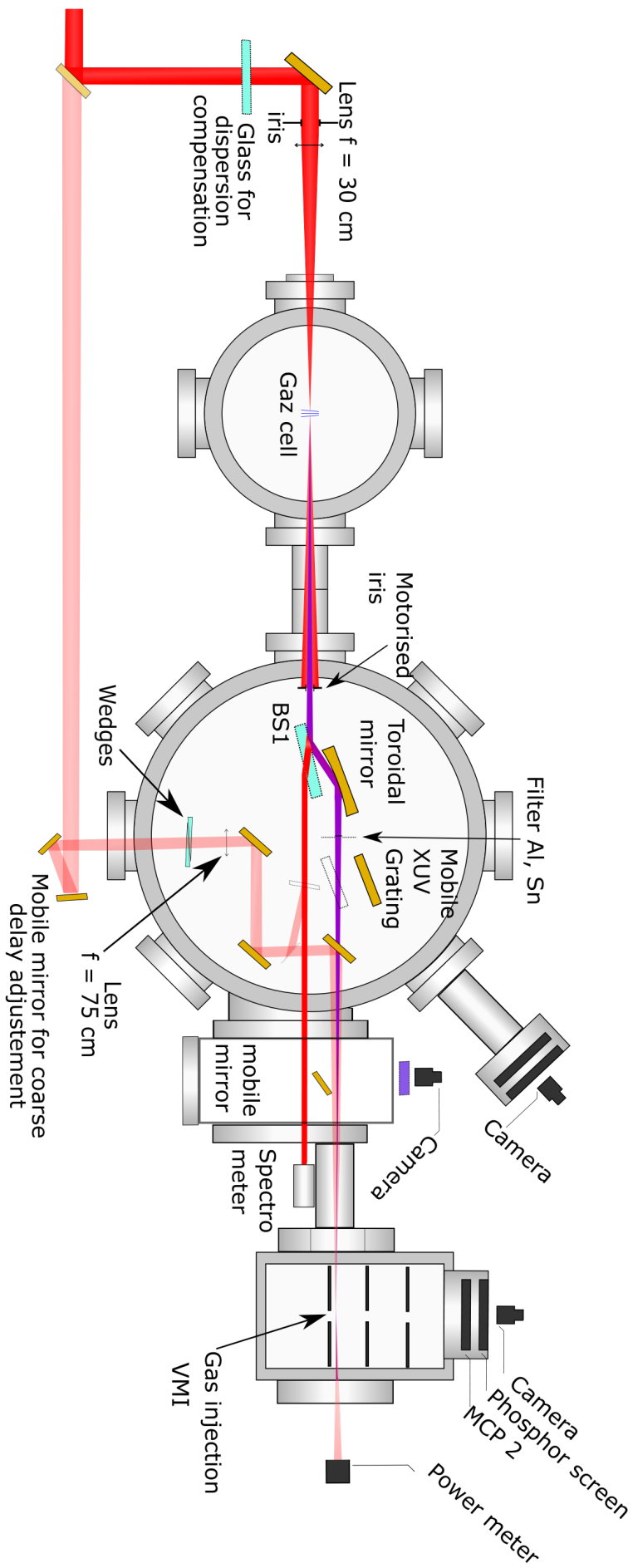


FIGURE 5.1 – Montage expérimental de l'ILM utilisé pour les expériences pompe/sonde et les mesures RABBITT. Le spectre harmonique est observé juste après la cellule de génération, et le VMI/spectromètre d'électrons est placé en bout de chaîne. L'interféromètre est stabilisé activement par un suivi interférométrique.

5.2. Méthode RABBITT : caractérisation des trains d'impulsions attosecondes via interférences XUV/IR à deux photons

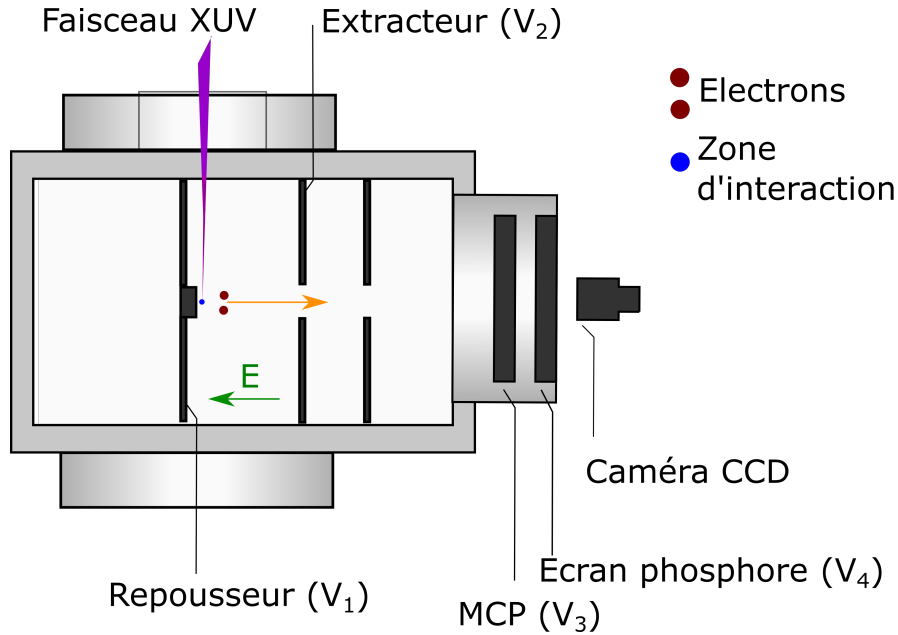


FIGURE 5.2 – Principe du VMI. Quatre hautes tensions sont appliquées pour mesurer le spectre de photoélectrons par effet de lentille électrique. La zone d'interaction, ici de l'argon, est dessinée en bleu. La direction de déplacement des électrons est dessinée en orange. Le repousseur et l'extracteur servent de lentille électronique. Le détecteur se compose de galettes de microcanaux, d'un écran en phosphore et d'une caméra CCD.

Dans le cas idéal, la source de photoélectrons serait considérée comme un point unique. Seulement, la source n'est pas ponctuelle, et pour pouvoir enregistrer un spectre de photoélectrons résolu en énergie, il faut pouvoir distinguer les électrons d'une même énergie quelque soit le point source. Deux autres hautes tensions sont appliquées au niveau de deux électrodes, le repousseur et l'extracteur. La combinaison de ces hautes tensions permet d'avoir un effet similaire à une lentille optique, mais pour les électrons [165]. Pour chaque énergie d'électrons, on aura un même point d'impact sur le détecteur. Le rapport entre les tensions V_1 et V_2 est définie par la relation de Parker [164]. Ce rapport détermine la façon dont les électrons ou les ions seront focalisés sur le détecteur. Il y a trois configurations possibles :

- Configuration "temps de vol" : $V_{rep} = 2V_{ext}$. Dans cette configuration, la lentille électronique agira de manière à avoir les ions de même rapport $\frac{M}{Z}$ qui arrivent en même temps sur le détecteur. Dans notre cas, elle permet notamment de régler le recouvrement spatial entre l'XUV et l'IR en observant les pics de masse de l'eau et de l'hydrogène.
- Configuration neutre $V_{rep} = V_{ext}$ (imagerie de position). C'est une configuration utilisée pour vérifier le recouvrement spatial entre les deux faisceaux.
- Configuration VMI $V_{rep} \approx \frac{3}{2}V_{ext}$ (imagerie de vitesse). Les électrons de même énergie sont focalisés sur un même anneau sur le détecteur. Cette configuration est utilisée pour l'enregistrement de photoélectrons.

Lorsque l'XUV est seul, le photoélectron est créé avec une énergie bien définie, $E = \hbar\omega_q - I_p = q\hbar\omega_0 - I_p$ avec q l'ordre harmonique et I_p le potentiel d'ionisation de la cible, ici l'argon. En ajoutant l'IR, de nouvelles énergies sont accessibles, notamment l'énergie $(q+1)\hbar\omega_0 - I_p$. Pour cette même énergie de photons intermédiaire, appelée sideband, on a deux chemins possibles : absorption de l'harmonique d'ordre q et absorption d'un photon IR ou bien absorption de l'harmonique d'ordre $q+2$ et émission d'un photon

IR. Ces deux chemins quantiques mènent à la même énergie, donc à la création de deux paquets d'onde de même énergie, avec des phases qui peuvent être différentes. La situation est illustrée en Figure 5.3.

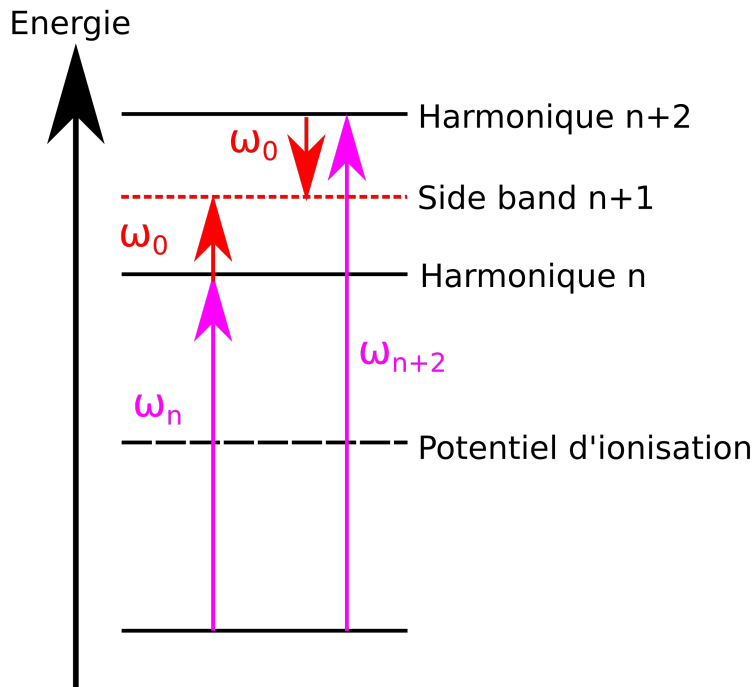


FIGURE 5.3 – Illustration de la situation avec la création de deux paquets d'onde de même énergie, avec deux chemins quantiques différents menant à l'énergie de la sideband. La sideband, entre deux harmoniques, apparaît lorsque l'IR et le XUV se recouvrent temporellement et spatialement. L'XUV est dessiné en violet, l'IR en rouge. Le potentiel d'ionisation est dessiné en pointillés.

Ces deux paquets d'onde quantiques peuvent interférer, avec des interférences qui dépendent du délai entre XUV et IR. En suivant l'évolution de ce signal d'interférences, de sideband, en fonction du délai XUV/IR, des oscillations sont observées.

Deux images VMI sont données en Figure 5.4. Dans l'image du haut, on observe uniquement des bandes d'énergie qui correspondent aux harmoniques. Ces bandes d'énergies se présentent sous forme de cercles concentriques, dont le rayon est relié à l'énergie du photoélectron. Dans l'image du bas, de nouvelles bandes apparaissent entre les bandes des harmoniques. Ce sont les sidebands.

Pour chaque délai, on enregistre une image VMI comme en Figure 5.4. À partir de cette image, une inversion d'Abel est réalisée pour obtenir le spectre et la distribution angulaire des photoélectrons. Le spectrogramme RABBITT en Figure 5.5 comprend N spectres de photoélectrons pour N délais XUV-IR.

L'intégration en énergie autour de l'énergie de la sideband permet de trouver le signal, qui s'apparente à des oscillations. Deux exemples de signaux intégrés sont donnés pour une harmonique et une sideband en Figure 5.5.

5.2. Méthode RABBITT : caractérisation des trains d'impulsions attosecondes via interférences XUV/IR à deux photons

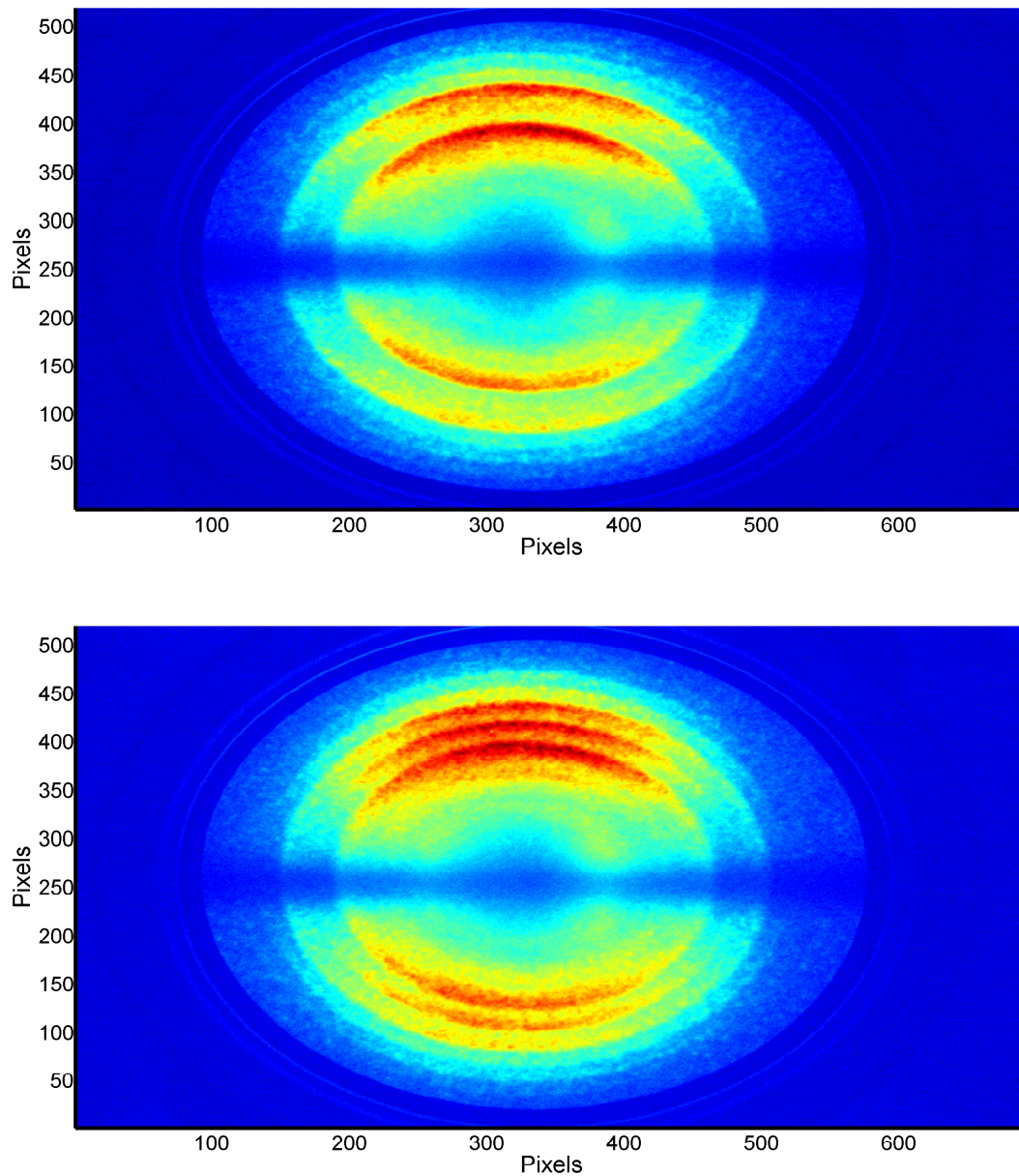


FIGURE 5.4 – Images VMI de photoélectrons pour deux situations différentes. L'image du dessus présente le cas où l'on a un signal de sideband nul, avec des cercles concentriques correspondant uniquement aux énergies des harmoniques. L'image du dessous présente le cas où le signal de sideband apparaît, avec de nouveaux cercles qui apparaissent entre les cercles concentriques des harmoniques. On suit l'évolution du signal correspondant à ces cercles pour les sidebands en fonction du délai $\tau_{IR,XUV}$ entre l'XUV et l'IR.

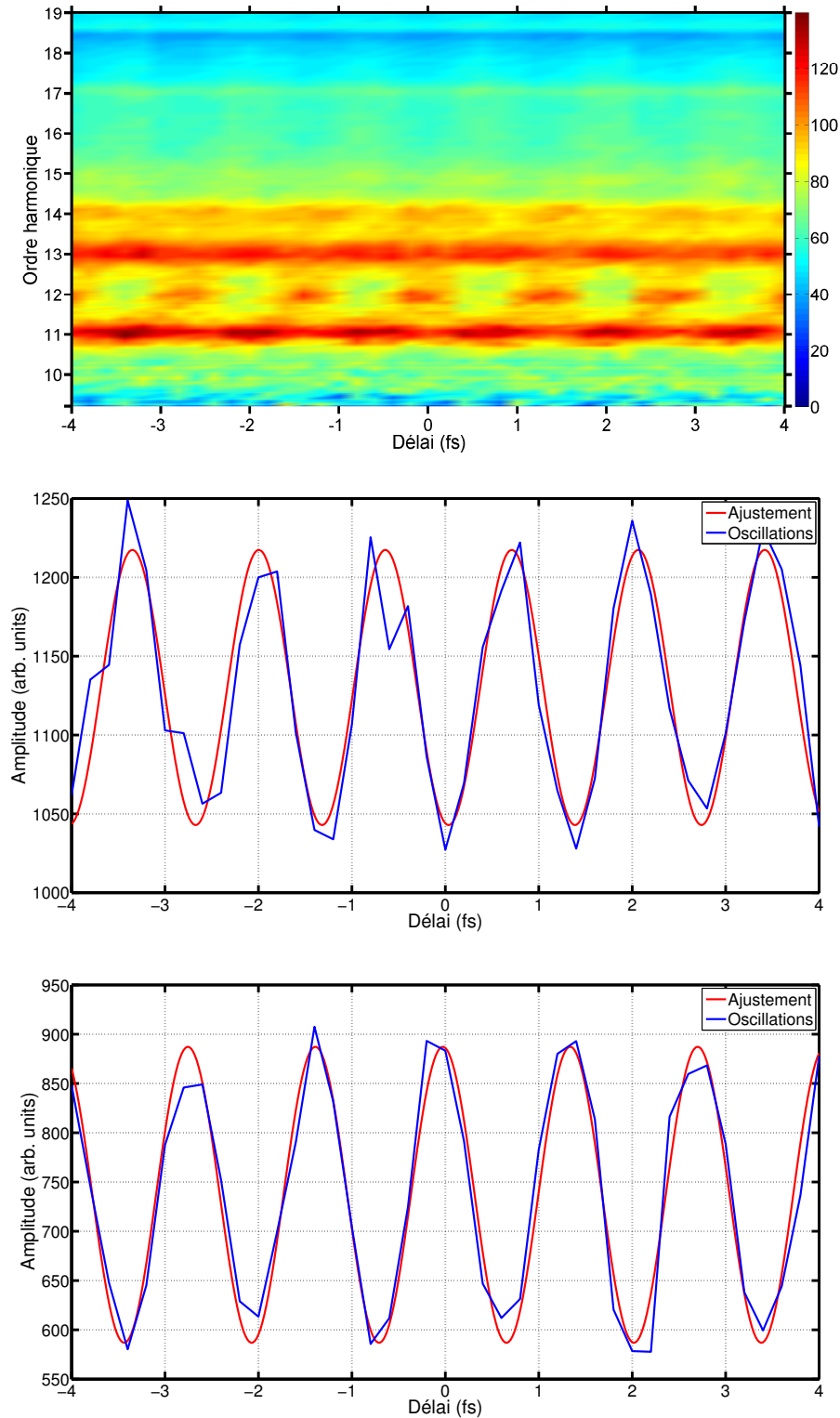


FIGURE 5.5 – Spectrogramme RABBITT obtenu expérimentalement. Les harmoniques sont générées dans une cellule d’argon avec des impulsions IR de durée $\tau_{IR} = 30$ fs. Un filtre métallique en aluminium est mis sur le chemin du bras XUV. La zone d’interaction dans le VMI est un jet d’argon. Évolution du signal intégré pour une harmonique (figure du milieu) et une sideband (figure du dessous) en fonction du délai XUV/IR. Les données brutes sont dessinées en trait plein bleu. Un ajustement par une fonction en Équation (5.1) est dessiné en trait plein rouge.

5.2. Méthode RABBITT : caractérisation des trains d'impulsions attosecondes via interférences XUV/IR à deux photons

Le signal intégré se comporte bien comme des oscillations, avec une évolution quasi-sinusoidale en fonction du délai. Les oscillations sont décalées de $\frac{T_0}{2}$ entre harmoniques et sidebands. La période des oscillations trouvée pour les harmoniques est de 2.33×10^{15} rad.s⁻¹, soit proche des 2.35×10^{15} rad.s⁻¹ pour une longueur d'onde de 800 nm. Le signal est plus fort pour les harmoniques 11 et 13 que pour les harmoniques 15 et 17.

Le signal des oscillations d'ordre $q + 1$ s'apparente à une fonction sinusoidale, qui s'écrit [34] :

$$S_{Sideband} = C + A \cos(2\omega_0\tau + \phi_{at} + \Delta\phi_{q,q+2}) \quad (5.1)$$

avec $\Delta\phi_{q,q+2} = \phi_{q+2} - \phi_q$.

Le déphasage entre deux harmoniques consécutives est connu à partir de la phase de la sideband associée. Les phases des différentes harmoniques sont reconstruites une à une, en prenant comme référence la phase d'une des harmoniques. Avec le spectre harmonique connu également, on connaît l'amplitude relative et la phase relative de chacune des harmoniques, et le profil temporel est reconstruit comme :

$$I(t) = \left(\sum_q \sqrt{S(\omega_q)} \cos(\omega_q t + \phi_q) \right)^2 \quad (5.2)$$

avec q l'ordre harmonique, ϕ_q la phase trouvée à partir des oscillations et $S(\omega_q)$ l'amplitude de l'harmonique.

En appliquant cette reconstruction aux mesures présentées jusqu'à maintenant, le profil reconstruit est donné en Figure 5.6.

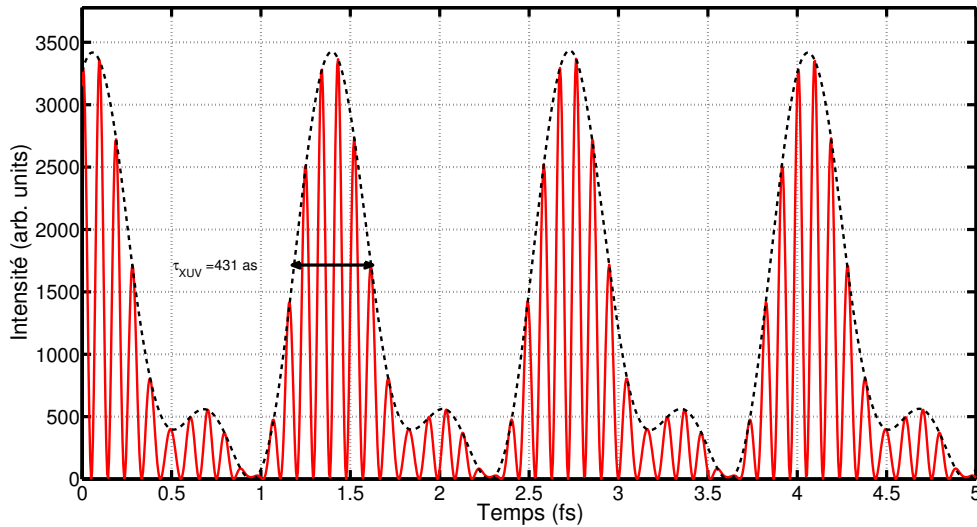


FIGURE 5.6 – Profil temporel reconstruit à partir des mesures RABBITT. Le profil d'intensité obtenu à partir du champ est dessiné en trait plein rouge, et l'enveloppe haute de ce profil est dessiné en trait pointillé noir. La largeur à mi-hauteur du profil d'intensité pour une impulsion est de $\tau_{XUV} = 431$ as. Ici, le train d'impulsions attosecondes est considéré infini dans la reconstruction.

Dans cette reconstruction, l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes est supposée infinie. Le train d'impulsions attosecondes est bien présent, et la largeur à mi-hauteur de chaque impulsion donne une durée de 431 as. On est donc arrivé à caractériser temporellement le profil d'intensité de l'impulsion attoseconde. Néanmoins l'enveloppe reste à déterminer. Cette mesure RABBITT peut être complétée par une

mesure FROG CRAB pour obtenir l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes également.

Une mesure FROG CRAB a été effectuée dans les mêmes conditions expérimentales que la mesure RABBITT présentées en Figure 5.5. La gamme de délai scannée est élargie à $[-40 : 40]$ fs, avec un pas de 0.2 fs. Les harmoniques sont générées dans le krypton, et un filtre en aluminium de 200 nm d'épaisseur est placée sur le chemin de l'XUV, ce qui limite le spectre harmonique aux harmoniques 11, 13, 15 et 17. La cible d'interaction XUV/IR est un jet d'argon. Le délai est stabilisé activement. La trace obtenue lors de la mesure est donnée en Figure 5.7.

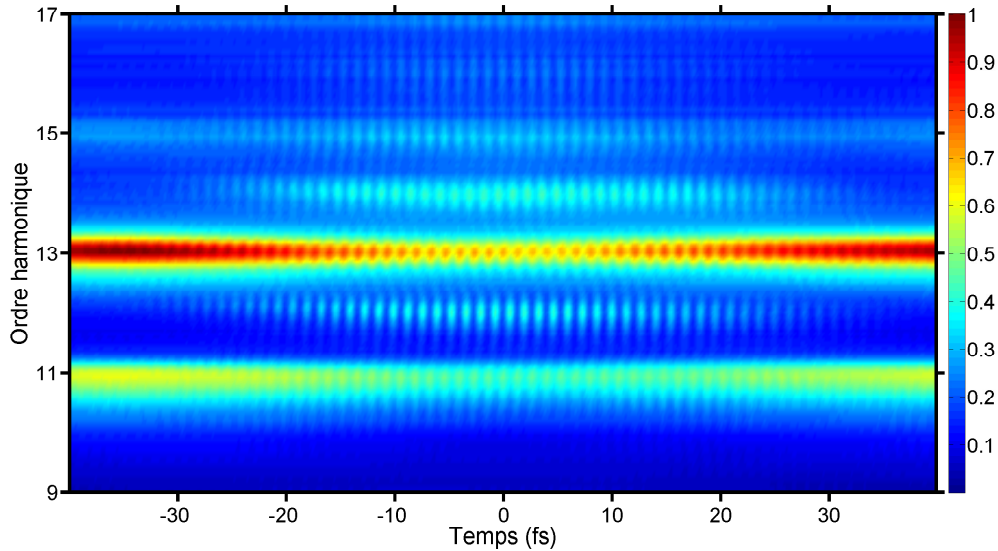


FIGURE 5.7 – Trace FROG CRAB obtenue expérimentalement avec génération d'harmoniques dans une cellule de krypton, avec des impulsions de $\tau_{IR} = 30$ fs. La cible d'interaction est un jet de gaz d'argon. La gamme de délais scannée va de -40 à 40 fs pour couvrir au maximum l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes.

Des oscillations similaires à celles observées dans la trace RABBITT en Figure 5.5 sont visibles. La différence se situe dans l'évolution de l'amplitude des oscillations avec le délai. Dans la trace en Figure 5.7, l'amplitude des oscillations décroît avec le délai. Cette évolution est la signature directe d'une enveloppe temporelle pour la génération des impulsions attosecondes. L'information sur la durée du train d'impulsions est inscrite à l'intérieur de l'évolution de cette amplitude. Elle correspond à la cross-corrélation entre l'enveloppe du train d'impulsions attosecondes et l'impulsion IR fondamentale.

En regardant à nouveau les oscillations, la trace RABBITT est retrouvée, et la durée des impulsions attosecondes est estimée. La procédure est la même que celle expliquée précédemment. Le profil reconstruit pour les impulsions attosecondes est donné en Figure 5.8. La durée des impulsions attosecondes retrouvées est de $\tau_{XUV} = 336$ as, à mi-hauteur. La reconstruction présente aussi une impulsion supplémentaire dans le train, avec un rapport d'amplitude de 30% entre l'impulsion principale et l'impulsion secondaire. La durée retrouvée est néanmoins de quelques centaines d'attosecondes comme pour la mesure RABBITT. Pour avoir une reconstruction complète du train, avec son enveloppe, une analyse plus poussée par ptychographie[163, 70] ou PCGPA [35] est nécessaire.

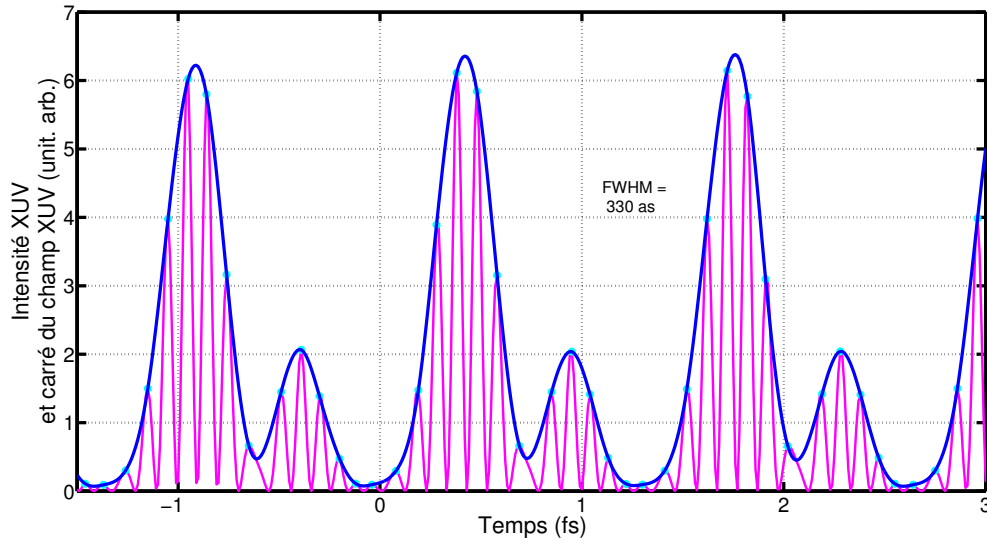


FIGURE 5.8 – Profil temporel reconstruit pour les impulsions attosecondes à partir des oscillations trouvées en Figure 5.7, en se retraçant à une gamme temporelle proche du maximum de l’enveloppe des oscillations.

5.3 Reconstruction de profils temporels XUV avec le spectromètre CIEL

Dans la partie précédente, nous avons étudié les signatures spectrales du confinement temporel par porte de polarisation, et obtenu des spectres XUV continus en utilisant le montage du Lund Laser Center en Figure 4.16. Néanmoins, on a vu en Section 4.1 que des spectres harmoniques avec des structures harmoniques encore présentes peuvent correspondre à des impulsions attosecondes isolées, entourées de post ou pré impulsions de faible intensité. Dans cette partie, on se focalise sur la génération d’harmoniques avec des impulsions de quelques cycles optiques sans porte de polarisation. Le profil temporel XUV est caractérisé via le spectromètre CIEL [166, 167, 1].

Dans un premier temps, on observe le spectre XUV de génération d’harmoniques dans les conditions expérimentales suivantes. Le montage expérimental est celui utilisé en Figure 4.16. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d’argon, avec des impulsions de durée $\tau_{IR} = 5.9$ fs. La CEP est stabilisée à long terme en entrée de chambre via le stereo-ATI. La dispersion est optimisée pour avoir la plus grande coupure dans le spectre harmonique. Le spectre harmonique optimisé est donné en Figure 5.9.

Le spectre harmonique présente des harmoniques larges spectralement, avec des largeurs à mi-hauteur supérieure à 1 eV, mais les structures harmoniques sont présentes. Le spectre n’est pas continu et le contraste est de 27%.

Le spectromètre CIEL permet de détecter les photoélectrons ainsi que les ions. Il permet aussi d’effectuer des mesures pompe/sonde en étant couplé à un interféromètre XUV/IR. Les ions et photoélectrons sont détectés avec deux détecteurs différents. Un champ électrique E est appliqué au niveau de la zone d’interaction, ce qui permet de séparer les ions et les photoélectrons de par le signe de leur charge. Le champ magnétique B induit une trajectoire circulaire pour les électrons [167]. Pour emmener les faisceaux vers CIEL, le réseau de diffraction est déplacé et les faisceaux sont focalisés par un miroir torique. Une illustration de l’intérieur de CIEL est donnée en Figure 5.10.

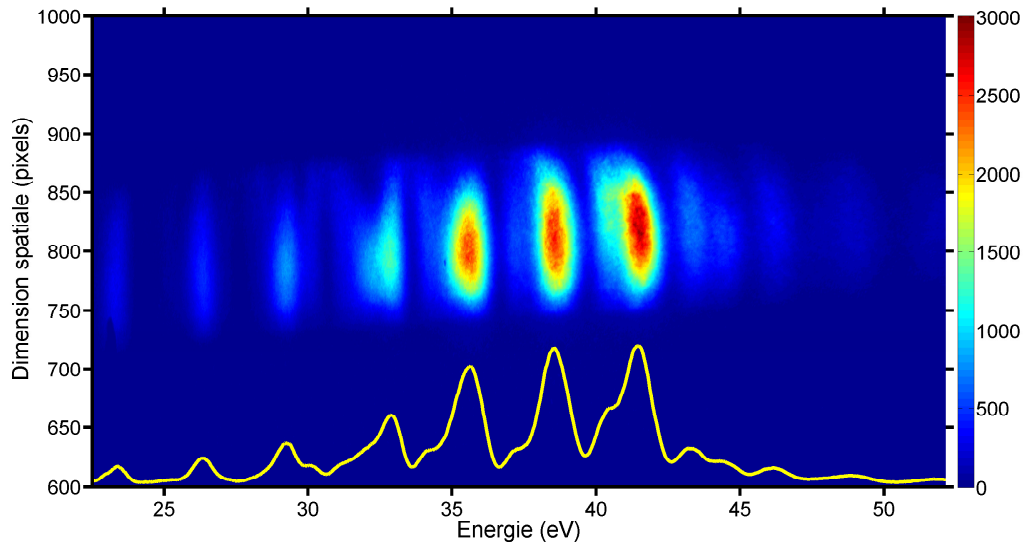


FIGURE 5.9 – Image spatio-spectrale harmonique obtenue après optimisation de la dispersion et de la valeur de la CEP pour utiliser le spectromètre CIEL. Le spectre harmonique est dessiné en jaune. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d’argon, avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 5.9$ fs. La CEP est stabilisée via le stereo-ATI.

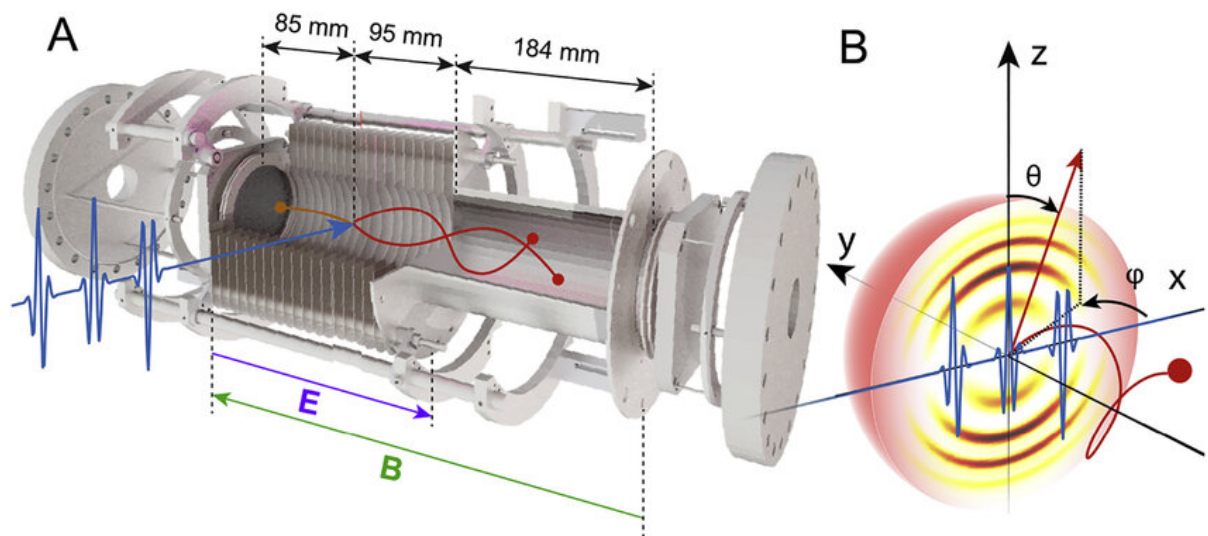


FIGURE 5.10 – (A) Illustration du fonctionnement du spectromètre CIEL. Les faisceaux arrivent sur la zone d’interaction et les ions et photoélectrons sont étudiés avec deux détecteurs différents. Le trajectoire des photoélectrons est dessinée en rouge, et la trajectoire des ions en orange. (B) Système de coordonnées utilisés pour la détection des ions et photoélectrons. La figure est issue de [1].

La caractérisation des profils temporels XUV se fait par enregistrement d’une trace de streaking [36, 37]. Pour chaque délai XUV/IR, on enregistre un spectre d’électrons en temps de vol. Le spectre en temps de vol est converti en spectre de photoélectrons en énergie. Ainsi, le spectre de photoélectrons est enregistré en fonction du délai entre l’XUV et un bras sonde IR, l’IR étant retardé par la ligne à retard présentée en Figure 4.16. La trace FROG CRAB présentée en Figure 5.12 est obtenue en répétant la mesure du spectre de photoélectrons en fonction du délai entre l’XUV et l’IR. Le scan

5.3. Reconstruction de profils temporels XUV avec le spectromètre CIEL

est fait pour un délai XUV/IR allant de -5 fs à 25 fs. L'hélium est utilisé pour la zone d'interaction. La CEP est stabilisée via le stereo-ATI. Les conditions expérimentales pour la génération d'harmoniques ont été données en début de Section 5.3. Le filtre métallique utilisé est un filtre en aluminium.

Par algorithme de reconstruction [168], la trace (b) en Figure 5.12 est reconstruite. La différence entre la trace expérimentale et la trace reconstruite est donnée en figure (c). L'erreur moyenne totale est de quelques %, ce qui donne un bon accord. Le profil XUV reconstruit est dessiné en Figure 5.11. La largeur à mi-hauteur du pic principal est de $\tau_{XUV} = 0.2 \text{ fs} = 200 \text{ as}$. Le profil d'intensité reconstruit montre une impulsion principale et une impulsion secondaire, décalée temporellement de $\delta t = 1.34 \text{ fs}$. Le contraste temporel entre les deux pics est de 7% et 11%. L'impulsion attoseconde principale peut être considérée comme isolée avec un contraste faible en intensité. On observe donc une situation dans laquelle des structures harmoniques sont présentes dans le spectre XUV, même au niveau de la coupure, spectre qui permet malgré tout d'obtenir une impulsion quasi isolée lorsque l'on caractérise le profil temporel XUV.

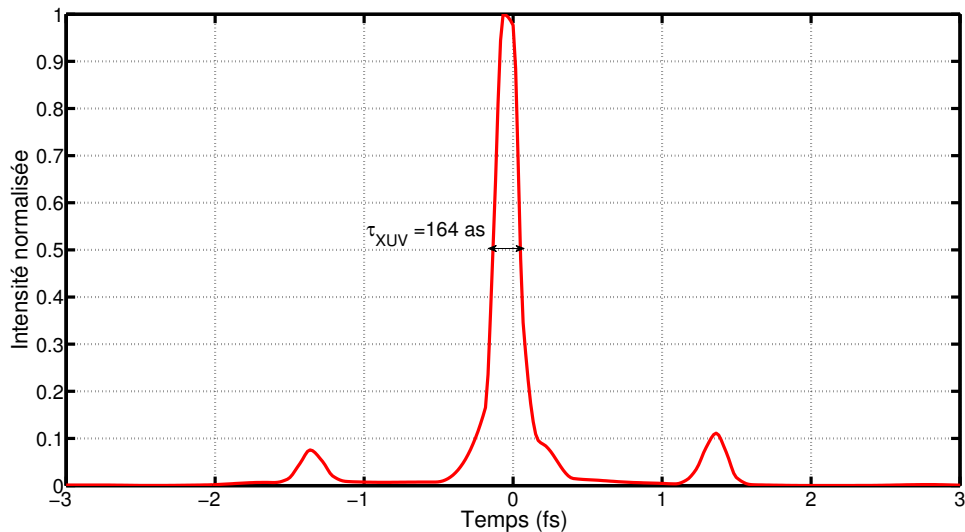


FIGURE 5.11 – Profil temporel reconstruit à partir des traces de streaking en Figure 5.12. Le profil reconstruit montre une impulsion principale avec deux impulsions secondaires, avec un contraste de 7% et 11% entre les deux. La durée de l'impulsion attoseconde principale est de $\tau_{XUV} = 164 \text{ as}$.

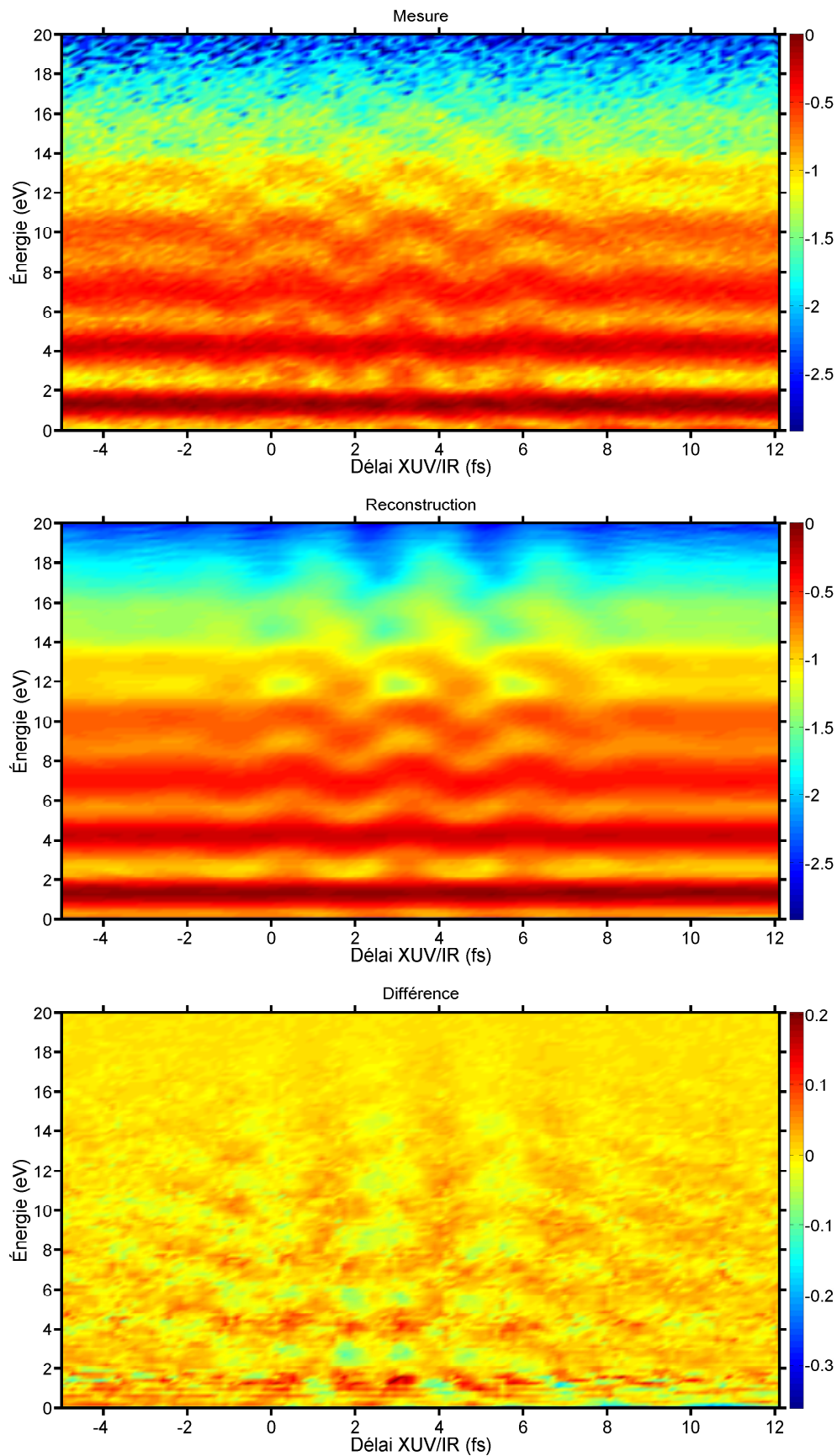


FIGURE 5.12 – Traces de streaking mesurée, reconstruite et différence entre les deux traces, respectivement de haut en bas. L'erreur est d'environ 3% entre la trace reconstruite et la trace mesurée. Les traces mesurées et reconstruites sont données en échelle logarithmique. L'accord entre la reconstruction et la mesure est bon.

5.4 L'ellipticité comme sonde pour l'émission XUV

Dans les Chapitre 3 et Chapitre 4, l'ellipticité du champ fondamental était utilisée comme outil de confinement temporel de l'émission XUV, via la porte de polarisation. Dans les Section 5.1 et Section 5.2, les méthodes de caractérisation évoquées sont essentiellement basées sur l'implémentation d'un interféromètre XUV/IR, stabilisé en délai à une résolution sub-femtoseconde, ainsi que la détection de photoélectrons. La plupart des méthodes présentées en Section 5.1 sont des méthodes ex-situ. Des méthodes in-situ sont développées [169, 170], basées sur l'utilisation de deux couleurs [171], méthodes qui restent intéressantes en raison de leur simplicité.

Nous avons cherché à utiliser l'ellipticité comme outil de caractérisation du profil temporel femtoseconde de l'XUV, et non plus comme outil de confinement temporel de l'émission XUV.

Une méthode utilisant l'ellipticité pour la caractérisation des temps d'émission a été développée afin d'observer le profil attoseconde des impulsions XUV [172]. En étudiant l'évolution du signal en fonction d'une ellipticité constante, les instants d'émission de chaque harmonique sont retrouvés, au niveau attoseconde, en bon accord avec le modèle utilisé.

Dans notre cas, on cherche principalement à caractériser l'enveloppe femtoseconde de chaque harmonique.

La méthode que l'on développe dans cette Section 5.4 est une méthode qui recoupe plusieurs aspects :

- Montage plus compact, plus simplifié qu'un interféromètre classique à résolution temporelle attoseconde.
- Mesure in situ.
- Mesure tout optique, qui nécessite l'enregistrement de spectres XUV, en perturbant légèrement le champ générateur principal.
- Se baser sur l'ellipticité et les propriétés de la génération d'harmoniques pour caractériser l'émission XUV.

Le principe de cette méthode est expliqué en Section 5.4.1.

5.4.1 Principe général de la méthode : perturbation de l'émission XUV par modulation d'ellipticité

La méthode de perturbation par modulation d'ellipticité se base sur le principe suivant. Une perturbation, réplique de l'impulsion génératrice principale qui se propage avec l'impulsion principale, est déplacée/décalée temporellement par rapport à cette dernière. La polarisation de la perturbation est linéaire et croisée avec la polarisation linéaire de l'impulsion principale. Pour chaque délai entre l'impulsion principale et la perturbation, le profil d'ellipticité change. L'ellipticité devient dépendante du temps. La perturbation affecte différentes parties de l'impulsion principale lors de la génération d'harmoniques. Pour un délai fixé, un profil XUV perturbé est obtenu, et le signal XUV décroît, dans le cas où la perturbation impacte l'intervalle de temps dans lequel la génération d'harmoniques d'ordres élevés a lieu. En déplaçant la perturbation, on obtient donc un signal XUV qui change en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale. La génération d'harmoniques étant très sensible à l'ellipticité, une perturbation de $\approx 1\%$ en intensité suffit à la perturber.

Pour créer cette perturbation décalée temporellement par rapport à une impulsion principale, on part d'une seule impulsion au départ. Cette impulsion est transmise au

travers d'un cristal biréfringent, avec une orientation α de sa polarisation par rapport aux axes neutres du cristal biréfringent. Après passage dans le cristal, on obtient deux répliques de l'impulsion avant passage, une selon l'axe lent du cristal et une selon l'axe rapide. La réplique dite "perturbation" avec une amplitude de $\sin(\alpha)$, et une réplique "impulsion principale" d'amplitude $\cos(\alpha)$. Le décalage temporel entre les deux répliques dépend de l'épaisseur et de la biréfringence du cristal utilisé. Pour rester avec une perturbation faible en amplitude, on se restreint à des petits angles α inférieurs à 10° . Ceci permet d'introduire une perturbation sans affecter les paramètres déterminants de la durée de l'émission : intensité de l'impulsion, taux d'ionisation, accord de phase [109].

5.4.2 Simulations de la perturbation du signal XUV par porte d'ellipticité

On simule l'évolution d'une impulsion fondamentale IR après passage dans une lame biréfringente d'épaisseur variable. L'impulsion fondamentale est représentée par un spectre et une phase de départ : $S_{IR}(\omega)$ et $\phi_{IR}(\omega)$. L'épaisseur de la lame est e_{lame} , associée à un délai δ_{lame} .

La phase ajoutée par la propagation dans le quartz dépend de l'axe sur lequel l'impulsion se propage. On note $\phi_{add,o}$ et $\phi_{add,e}$ les phases ajoutées par la propagation selon l'axe ordinaire et selon l'axe extraordinaire respectivement.

$$\phi_{add,o} = \frac{\omega}{3e8}(n_o - 1)e_{lame} - \left. \frac{d\phi_{add,o}}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0) \quad (5.3)$$

$$\phi_{add,e} = \frac{\omega}{3e8}(n_e - 1)e_{lame} - \left. \frac{d\phi_{add,o}}{d\omega} \right|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0) \quad (5.4)$$

avec ω_0 la fréquence centrale du spectre de l'impulsion fondamentale. Le terme $\frac{d\phi_{add,o}}{d\omega}(\omega - \omega_0)$ permet le retrait de la phase linéaire relative, et de recentrer les profils vers $t = 0$. Cela permet d'obtenir le délai introduit par la différence de propagation entre l'axe ordinaire et l'axe extraordinaire. Les champs E_o et E_e sont calculées à partir des phases et de l'amplitude spectrale :

$$E_o(t) = \sum_{\omega} A_o \sqrt{S_{IR}(\omega)} \exp(i\omega t + i\phi_{add,o}(\omega) + i\phi_{init}) d\omega \quad (5.5)$$

$$E_e(t) = \sum_{\omega} A_e \sqrt{S_{IR}(\omega)} \exp(i\omega t + i\phi_{add,e}(\omega) + i\phi_{init}) d\omega \quad (5.6)$$

avec ϕ_{init} la phase initiale de l'impulsion, A_o et A_e les amplitudes respectives sur chaque axe, donc de l'impulsion principale et de la perturbation. Pour une perturbation se propageant selon l'axe ordinaire du cristal, on a $A_o = \sin(\alpha)$ et $A_e = \cos(\alpha)$ par projection.

Le profil d'intensité en sortie de la lame d'épaisseur variable se calcule à partir du champ :

$$I_o(t) = E_o(t)E_o(t)^* \quad (5.7)$$

$$I_e(t) = E_e(t)E_e(t)^* \quad (5.8)$$

$$E_{tot}(t) = \sqrt{I_o(t) + I_e(t)} \quad (5.9)$$

$E_{tot}(t)$ est un champ qui oscille avec t , entre une enveloppe minimale et une enveloppe maximale. Le profil d'ellipticité pour un délai, une épaisseur, se calcule comme étant le rapport entre l'enveloppe maximum et l'enveloppe minimum. Soit env_{max} et env_{min} les enveloppes maximum et minimum de E_{tot} , l'ellipticité $\epsilon(t)$ est :

$$\epsilon(t) = \frac{env_{min}}{env_{max}} \quad (5.10)$$

Le profil d'ellipticité qui change en fonction du temps et qui est différent pour chaque délai entre la perturbation et l'impulsion fondamentale permet de créer une modulation d'ellipticité, donc d'efficacité[54], pour sonder le profil XUV. La porte d'efficacité G_{eff} s'exprime directement en fonction de l'ellipticité :

$$G_{eff}(\delta, t) = \exp\left(-\ln(2) \frac{\epsilon^2(t, \delta)}{\epsilon_{thr}^2}\right) \quad (5.11)$$

avec ϵ_{thr} l'ellipticité critique définie dans le Chapitre 3. Ceci est valable dans le cas où l'ellipticité introduite est constante. On a aussi vu que ce modèle était correct dans le cas de la porte de polarisation, qui introduit une ellipticité dépendante du temps. Ici, on fait l'hypothèse que l'expression reste valable dans le cas d'une ellipticité dépendante du temps.

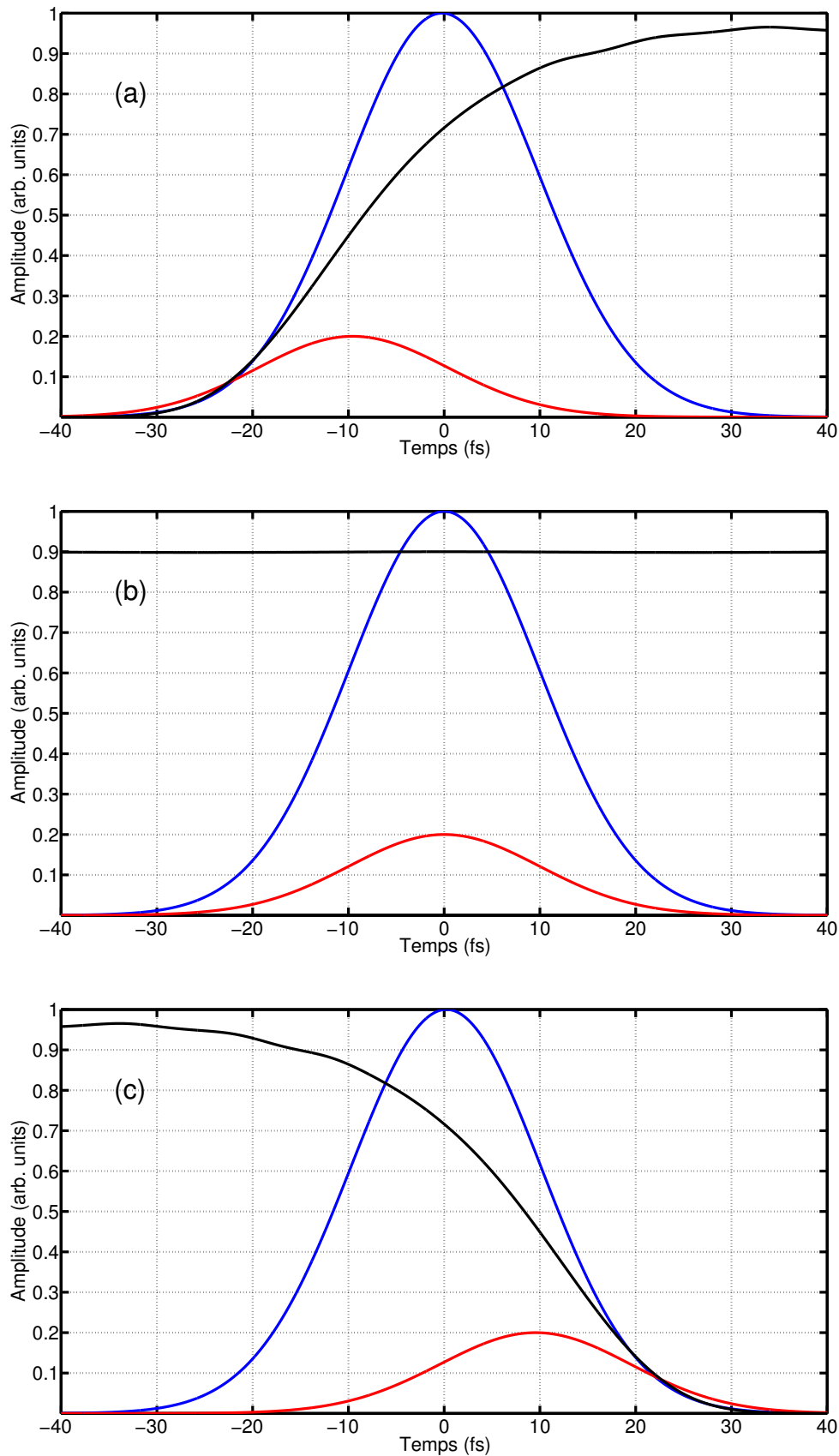


FIGURE 5.13 – Représentation du profil d’intensité de l’impulsion principale (trait plein bleu), de l’impulsion perturbatrice (trait plein rouge) et de la fonction d’efficacité G_{eff} en trait plein noir, pour trois épaisseurs de la lame biréfringente d’épaisseur variable. L’intensité de la perturbation est multipliée par 20 pour apparaître sur la figure. La durée de l’impulsion IR est de 25 fs. Les épaisseurs représentées sont respectivement $e = 1980.29$ mm (a) , $e = 0$ mm (b) et $e = 0.29$ mm (c). Le matériau biréfringent considéré est le quartz.

La Figure 5.13, illustre l'évolution de la fonction d'efficacité pour plusieurs épaisseurs biréfringentes, pour une position où la perturbation est dans le front montant de l'impulsion (a), au délai 0 (b) et dans le front descendant de l'impulsion (c). La perturbation étant fixée à 1% de l'impulsion principale en intensité, son amplitude est multipliée par 20 pour apparaître sur la figure. L'impulsion principale est dessinée en trait plein bleu, la perturbation en trait plein rouge et la fonction d'efficacité $G_{eff}(\delta, t)$ = correspondante en trait plein noir. Le profil utilisé pour l'infrarouge est un profil Fourier Limit d'un spectre Gaussien de largeur à mi-hauteur de 40 nm, centré à 800 nm. La durée de l'impulsion TF est de 25 fs.

Le profil XUV à caractériser est défini par $I_{XUV}(t)$. Le signal XUV émis en présence de la perturbation, change avec δ et s'écrit :

$$S_{XUV,perturb}(\delta) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{XUV}(t) \exp\left(-\ln(2)\frac{\epsilon^2(t, \delta)}{\epsilon_{thr}^2}\right) dt \quad (5.12)$$

Pour illustration, on considère un profil I_{XUV} Gaussien tel que $I_{XUV} = \exp\left(-4\ln(2)\left(\frac{t}{\tau_{XUV}}\right)^2\right)$, avec $\tau_{XUV} = 10$ fs. On prend une impulsion IR avec un spectre Gaussien de largeur à mi-hauteur de 40 nm. L'impulsion IR a donc une durée de 25 fs en Fourier Limit. La perturbation a une amplitude de 7 % par rapport à l'impulsion principale. L'ellipticité critique pour les différentes harmoniques évolue comme les mesures expérimentales données dans le Tableau 3.2 ($\epsilon_{thr} = 0.16$ pour H9, $\epsilon_{thr} = 0.1$ pour H25). L'évolution du signal $S_{XUV,perturb}(\delta)$ avec ces paramètres est donnée en Figure 5.14 pour les harmoniques 11, 15 et 19.

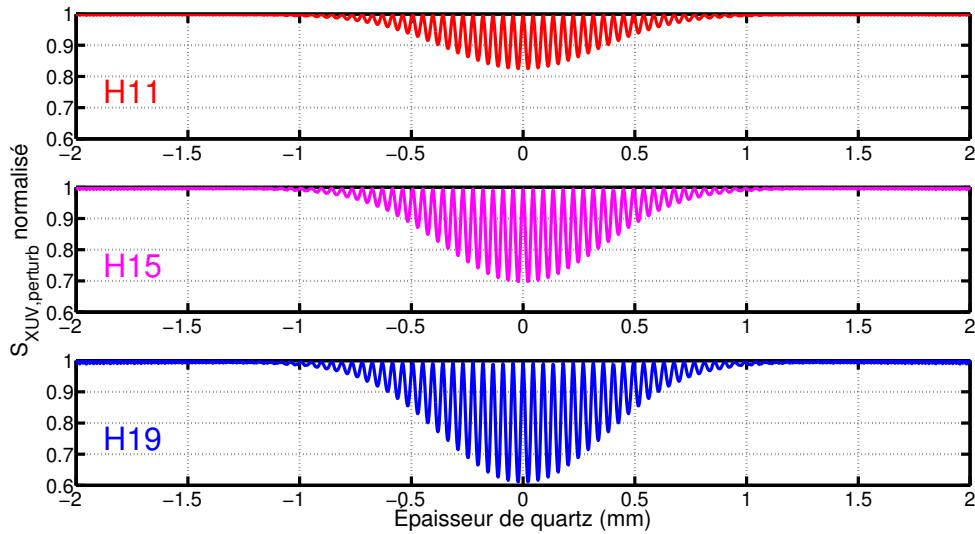


FIGURE 5.14 – Évolution du signal perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta)$ normalisé en fonction de l'épaisseur de quartz, reliée au délai entre perturbation et impulsion principale. Trois courbes sont présentées pour les harmoniques 11, 15 et 19. Le spectre de l'IR est Gaussien de largeur à mi-hauteur 40 nm. Le profil XUV est Gaussien de durée $\tau_{XUV} = 10$ fs. Les ellipticités critiques ϵ_{thr} sont respectivement 0.16 pour H11, 0.13 pour H15 et 0.1 pour H19.

Sur la Figure 5.14, les signaux intégrés pour les différentes harmoniques présentent des similitudes. Lorsque la perturbation est très décalée temporellement, le signal XUV n'est pas perturbé, donc maximum et constant. Cette situation arrive pour les épaisseurs $e > 1$ mm et $e < -1$ mm sur la Figure 5.14. Des oscillations sont aussi présentes

dans l'évolution de $S_{XUV,perturb}$. La période de ces oscillations est de $\frac{T_0}{2}$ avec T_0 le demi-cycle optique correspondant à la fréquence centrale de l'IR.

Ces oscillations existent car l'ellipticité dépend du déphasage. Pour un déphasage $\frac{\lambda}{4}$, la polarisation est elliptique, avec comme ellipticité le rapport des amplitudes entre perturbation et impulsion principale. Pour ce déphasage, le signal harmonique est très affecté par la perturbation. Dans le cas d'un déphasage $\frac{\lambda}{2}$, la polarisation est linéaire et non plus elliptique, donc le signal harmonique n'est pas perturbé, car la fonction d'efficacité est constante égale à 1. L'orientation de la polarisation linéaire est tournée d'un angle $\text{atan}\left(\frac{E_{perturb}(t)}{E_{principale}(t)}\right)$, avec $E_{perturb}(t)$ et $E_{principale}(t)$ les amplitudes de la perturbation et de l'impulsion principale. L'intensité totale $absE_{perturb}(t)^2 + absE_{principale}^2$ reste proche de l'intensité $E_{principale}^2$ à 1% près pour $E_{perturb} \leq 1\%$.

Le déphasage passe de $\frac{\lambda}{4}$ à $\frac{\lambda}{2}$ périodiquement tous les demi-cycles optiques. Entre ces deux déphasages remarquables, les différentes épaisseurs intermédiaires correspondent à des déphasages intermédiaires. Une oscillation correspond donc à scanner tous les déphasages possibles. Les oscillations sont directement reliées à cette variation de déphasage.

L'évolution de l'ellipticité critique avec l'ordre harmonique q se retrouve dans la différence entre signal maximum et signal minimum au délai 0, donc à épaisseur nulle. Au délai 0, ϵ est constante pour tout t . Plus l'ellipticité critique est petite, plus le signal perturbé sera bas par rapport au signal maximum.

Les simulations sont étendues à plusieurs types de profils XUV à reconstruire :

- $I_{XUV} = \exp\left(-4 \ln(2)\left(\frac{t}{\tau_{XUV}}\right)^2\right)$ Gaussien centré à $t = 0$
- $I_{XUV} = \exp\left(-4 \ln(2)\left(\frac{t-10}{\tau_{XUV}}\right)^2\right)$ Gaussien décalé de 10 fs
- $I_{XUV} = \exp\left(-4 \ln(2)\left(\frac{t}{\tau_{XUV}}\right)^2\right) + \exp\left(-4 \ln(2)\left(\frac{t-10}{\tau_{XUV}}\right)^2\right)$ avec $\tau_{XUV} = 5$ fs
- $I_{XUV} = \exp\left(-4 \ln(2)\left(\frac{t-10}{\tau_{XUV}}\right)^2\right)$ lorentzienne

L'épaisseur de quartz varie entre -2 mm et 2 mm. L'évolution du signal intégré pour une harmonique est donné pour ces profils XUV en Figure 5.15. Pour un même profil IR, l'évolution du signal intégré perturbé est bien différente selon les caractéristiques du profil XUV. L'évolution du signal perturbé contient donc les informations sur le profil temporel des harmoniques non perturbé $I_{XUV}(t)$.

Le décalage temporel de l'XUV par rapport à l'impulsion génératrice se retrouve bien dans le signal perturbé, comme montré sur la Figure 5.15 avec le profil Gaussien décalé. Cette information se retrouve aussi dans la valeur du minimum de l'enveloppe. Il y a donc une redondance pour certaines informations dans l'observation du signal XUV perturbé. L'évolution est différente en passant d'une lorentzienne à une Gaussienne, notamment dans la largeur de l'enveloppe inférieure, et la gamme dans laquelle les oscillations sont visibles. En connaissant le profil IR, les informations sur le profil XUV sont inscrites dans l'évolution du signal intégré $S_{XUV,perturb}(\delta)$.

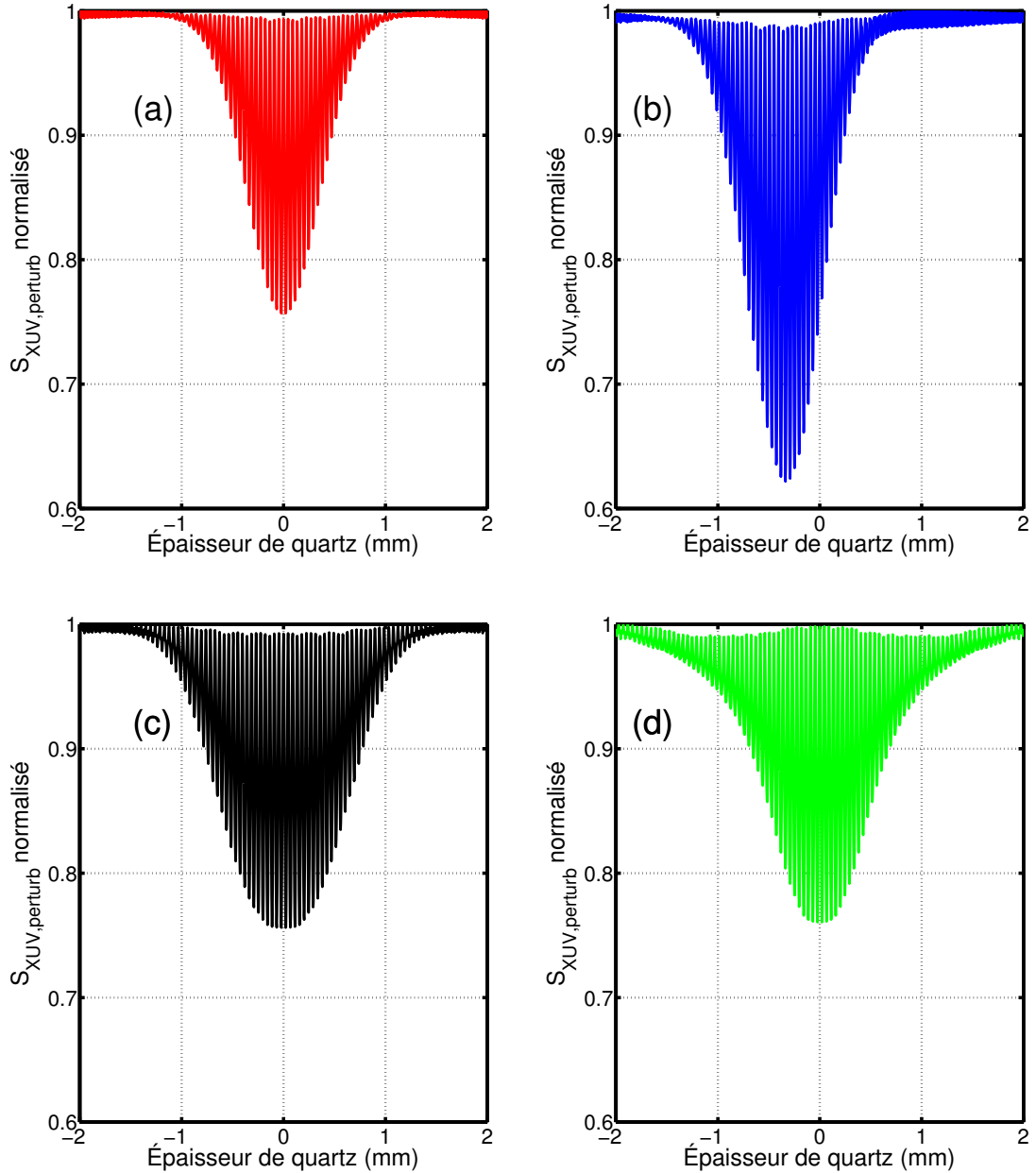


FIGURE 5.15 – Évolution du signal perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta)$ pour différents profils XUV. Sur la figure sont dessinés les signaux perturbés pour : un profil Gaussien centré en trait plein rouge (a), un profil Gaussien décalé de 10 fs en trait plein bleu (b), un profil composé de deux Gaussiennes décalées de 10 fs en trait plein noir (c) et un profil lorentzien en trait plein vert (d). La durée τ_{XUV} est fixée à 10 fs pour ces deux profils. La durée de l'IR est fixe, correspondant à l'impulsion Fourier Limit d'un spectre Gaussien de largeur à mi-hauteur de 40 nm centré à 800 nm, soit $\tau_{IR} = 25$ fs.

5.4.3 Méthode de reconstruction du profil XUV femtoseconde

Le principe de reconstruction est basé sur l'écriture matricielle de l'Équation (5.12). En ne considérant que les déphasages $\Delta\Phi = \frac{\pi}{2}$, donc l'enveloppe minimale du signal perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta)$, ainsi qu'un échantillonnage temporel du profil non perturbé $I_{XUV}(t)$, cette équation peut être reformulée de manière matricielle :

$$S_{XUV,perturb}(\delta_j) = M_{i,j} I_{XUV}(t_i) \quad (5.13)$$

avec la matrice $M_{i,j}$ la matrice d'efficacité, définie par :

$$M_{i,j} = \begin{pmatrix} e^{(-\gamma \times \epsilon(t_1, \delta_1)^2)} & \dots & e^{(-\gamma \times \epsilon(t_1, \delta_n)^2)} \\ e^{(-\gamma \times \epsilon(t_2, \delta_1)^2)} & \dots & e^{(-\gamma \times \epsilon(t_2, \delta_n)^2)} \\ \dots & \dots & \dots \\ e^{(-\gamma \times \epsilon(t_n, \delta_1)^2)} & \dots & e^{(-\gamma \times \epsilon(t_n, \delta_n)^2)} \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

j l'indice correspondant au délai perturbation/impulsion principale et i l'indice correspondant au temps pour le profil d'intensité, et $\gamma = \frac{\ln(2)}{\epsilon_{thr}^2}$. La forme de chacun des coefficients de la matrice $M_{i,j}$ est directement reliée à la forme de la fonction d'efficacité pour un délai δ_j et un temps t_i .

Les coefficients de $M_{i,j}$ sont uniquement calculés à partir du profil IR. L'ellipticité $\epsilon(t, \delta)$ étant un rapport d'amplitude entre la perturbation et l'impulsion principale, qui sont considérées comme deux répliques parfaites déphasées de $\frac{\pi}{2} [\pi]$. La connaissance du profil de l'IR et de l'ellipticité critique ϵ_{thr} permet de connaître chacun des coefficients de $M_{i,j}$.

L'évolution du signal intégré perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta_j)$ est donc directement reliée au profil XUV par une relation matricielle discrète. En évaluant $S_{XUV,perturb}(\delta_j)$ sur un ensemble de délais $\delta_1, \dots, \delta_n$ et en calculant la matrice $M_{i,j}$, le profil XUV non perturbé $I_{XUV}(t_i)$ peut être retrouvé, en résolvant le système montré avec l'Équation (5.13).

Dans cette reconstruction, l'évolution du signal perturbé $S_{XUV,perturb}(\delta_j)$ se réduit uniquement à l'enveloppe inférieure des oscillations, comme celles montrées en Figure 5.14. Cette enveloppe inférieure correspond aux différentes épaisseurs biréfringentes pour lesquelles on obtient un déphasage $\frac{\lambda}{4}$, donc une ellipticité maximum. L'enveloppe évaluée en $\delta_1, \dots, \delta_n$ est notée sous forme d'un vecteur $S_{XUV,perturb}(\delta_j)$ dans l'Équation (5.13). Le profil XUV échantillonné est lui aussi noté sous forme d'un vecteur $I_{XUV}(t_i)$ dans l'Équation (5.13).

La résolution de ce problème revient à un problème de minimisation à n paramètres. Dans ce cas de figure, l'observable est le signal perturbé $S_{XUV,perturb}$, le système d'équations est défini par la matrice $M_{i,j}$ et les paramètres sont directement les points d'échantillonnage du profil XUV $I_{XUV}(t_i)$.

Cette méthode de reconstruction est implémentée sur les profils temporels XUV précédents :

- Un profil centré Gaussien de durée $\tau_{XUV} = 10$ fs centré à $t = 0$ fs.
- Un profil Gaussien de durée $\tau_{XUV} = 10$ fs décalé de -10 fs.
- Un profil composé de deux Gaussiennes de durée $\tau_{XUV} = 5$ fs, décalées temporellement de 10 fs, avec un rapport d'amplitude de 0.5 pour 1.

L'algorithme utilisé pour résoudre l'Équation (5.13) est un algorithme de minimisation de type Levenberg-Marquardt [95]. Les profils temporels initiaux et reconstruits sont présentés en Figure 5.16. Les profils initiaux sont dessinés en trait plein, et les reconstructions sont dessinées en symbole. L'accord entre les profils temporels initiaux et les profils temporels reconstruits est très bon, avec une erreur RMSE inférieure à 1%, pour chaque profil.

À partir de l'enveloppe inférieure des oscillations, le profil temporel XUV peut être reconstruit par cet algorithme de minimisation dans des conditions optimales.

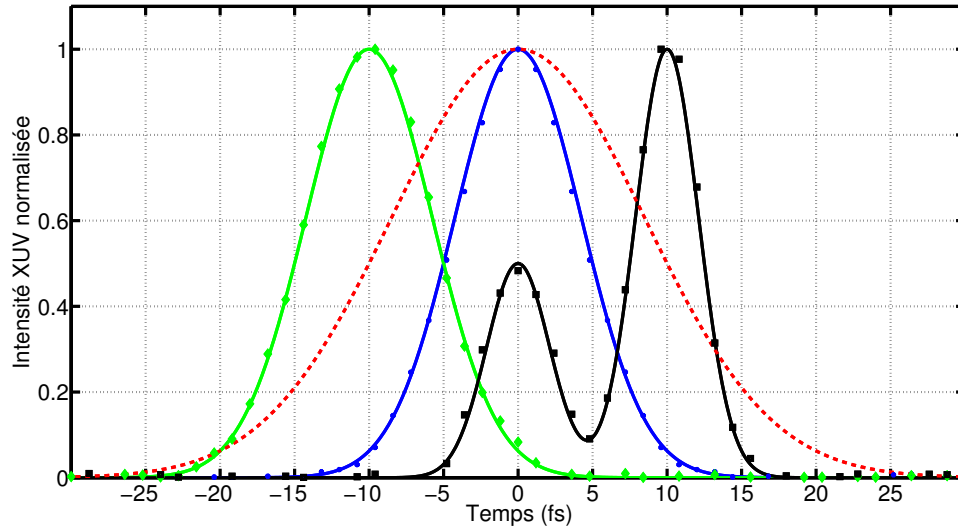


FIGURE 5.16 – Les profils d'intensité XUV initiaux sont dessinés en lignes pleines et les profils reconstruits par le processus de minimisation en symboles. La figure illustre la reconstruction pour trois profils XUV : un profil Gaussien de 10 fs FWHM centré à 0 fs (bleu, étoiles), un profil Gaussien de 10 fs FWHM centré à -10 fs (vert, diamants) et deux profils Gaussiens de 5 fs FWHM, respectivement centrés à 0 et +10 fs, avec d'amplitudes 0,5 et 1 respectivement (noir, carrés). Le nombre de paramètres d'échantillonnage est de 51 points sur une plage de -30 à 30 fs. Les erreurs RMSE calculées sont respectivement : 0,01, 0,009, 0,01. La ligne rouge en pointillés représente le profil IR normalisé, utilisé pour calculer la matrice d'efficacité.

5.4.4 Réalisation expérimentale à l'ILM : impulsions IR de 30 fs

Pour obtenir cette perturbation décalée temporellement, réplique de l'impulsion principale, on utilise à nouveau des propriétés de biréfringence. En Figure 4.17, une lame d'épaisseur variable est illustrée, permettant de créer deux répliques d'une impulsion IR, décalées temporellement. Le décalage est réglable par la position des prismes, permettant d'avoir différentes épaisseurs biréfringentes traversées. Pour faire la mesure par perturbation par ellipticité, il faut pouvoir scanner des épaisseurs "négatives". Ces épaisseurs négatives sont accessibles si les lames de compensation en Figure 4.17 induisent une compensation plus grande que le délai minimum des prismes biréfringents. La gamme dans laquelle on peut effectuer la mesure, déterminée par la gamme maximum de déplacement des prismes biréfringents, est de 30 fs environ.

La calibration de la lame d'épaisseur variable a été effectuée en Section 4.3.2. En ajustant l'orientation α de la polarisation par rapport aux axes neutres du cristal avant de passer dans la lame d'épaisseur variable, on règle le rapport des amplitudes entre l'impulsion principale et la perturbation. Le rapport $\tan(\alpha)$ donne l'ellipticité introduite au délai 0 entre la perturbation et l'impulsion principale. Une incertitude de 1° sur α donne une incertitude de 10% sur l'amplitude de la perturbation (1% par rapport à une amplitude de 10% en ordre de grandeur).

L'objectif est d'observer l'évolution du spectre harmonique en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale. Une évolution de signal harmonique par harmonique est ensuite extraite en intégrant dans une gamme spectrale autour de

chaque fréquence harmonique.

Le montage expérimental utilisé est donné en Figure 3.7. Le capillaire est pompé à vide. Les impulsions utilisées ont une durée de 30 fs, caractérisées par autocorrélation, avec un chirp minimisé autant que possible. La gamme idéale de scan pour la perturbation se situe entre $-2\tau_{IR}$ et $+2\tau_{IR}$ (voir Section 5.4.2). Scanner l'entièreté de la gamme $[-2\tau_{IR}, +2\tau_{IR}]$ en une fois n'a pas été possible dans cette configuration. Les wedges permettent de scanner sur une gamme maximum de délais de 30 fs. Le scan s'effectue donc en deux parties.

La lame d'épaisseur variable est composée des éléments suivants :

- Une paire de prismes biréfringents en quartz avec une paire de prismes non biréfringents en silice pour limiter les changements de dispersion.
- Une lame multiordre en quartz d'épaisseur $e=1.029$ mm.
- Une lame multiordre en quartz d'épaisseur $e=0.843$ mm.
- Une lame multiordre en quartz d'épaisseur $e=0.513$ mm.
- Une lame multiordre en quartz d'épaisseur $e=0.381$ mm.

Avec les lames multiordre tête bêche, un premier scan est effectué. Pour le deuxième, l'orientation des axes neutres de la lame d'épaisseur $e = 0.513$ mm est tournée de 90° . La gamme de délai scannée est décalée de 2 fois le délai introduit par la lame, soit environ 30 fs. Via ces deux scans, on couvre une gamme de $\approx [-\tau_{IR}, +2\tau_{IR}]$ avec recouvrement autour du délai 0.

La focale du miroir est de $f = 60$ cm. Les harmoniques sont générées dans une cellule de gaz d'argon, avec une pression amont de 30 mbar. L'évolution du signal intégré pour les deux scans est donnée en Figure 5.17.

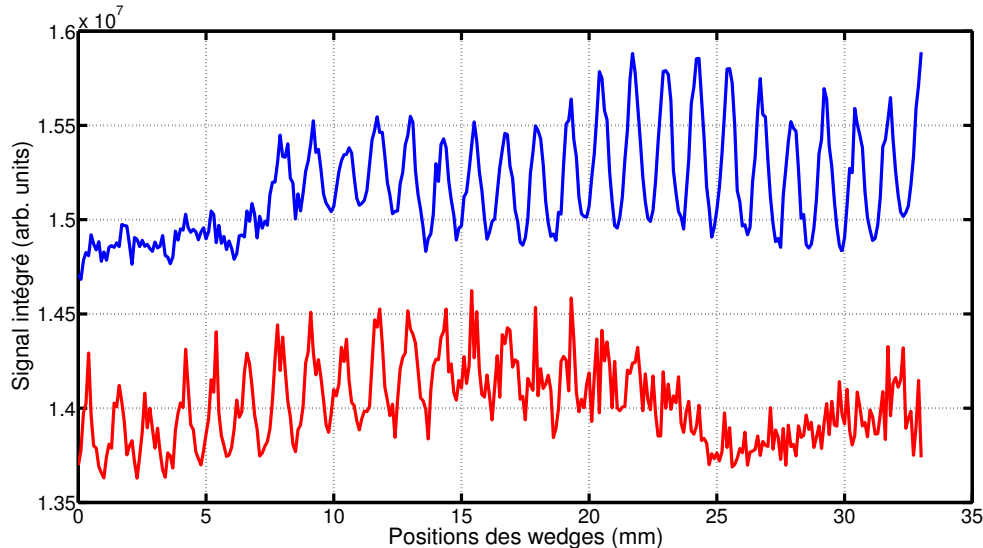


FIGURE 5.17 – Évolution du signal XUV intégré spatialement et spectralement en fonction de la position des prismes biréfringents. Les deux scans sont dessinées en rouge et en bleu. Un raccordement entre les deux scans est ensuite réalisé (voir texte). Les pas sont d'un mm en position des prismes, ce qui correspond environ à 0.1 fs par pas.

Le signal harmonique perturbé montre des oscillations claires, qui disparaissent pour les grands délais. Ces oscillations sont similaires à celles simulées en Figure 5.14. Des fluctuations lentes de signal font que l'enveloppe maximale du signal n'est pas constante dans les mesures expérimentales. Ces fluctuations lentes peuvent être dûes

à la stabilité de la source laser, la stabilité du pointé de faisceau par rapport au trou d'entrée de la cellule de gaz, des fluctuations de pression ou encore aux fluctuations de températures dans la pièce. La durée d'un scan est d'environ 2 heures, ce qui reste long. Sur la partie de scan dessinée en rouge, le niveau du signal est aussi légèrement différent par rapport à la partie dessinée en bleu. Le fait d'avoir deux parties différentes pour couvrir l'entièreté de la gamme de délai implique un post traitement complexe, en plus du raccord à effectuer entre les deux scans.

En Figure 5.17, l'intégration est faite sur toutes les longueurs d'onde du spectre. L'intégration peut être faite autour des fréquences harmoniques pour extraire le même type de signal pour chaque harmonique du spectre XUV.

Le post traitement réalisé est le suivant. Dans un premier temps, l'échelle de position des prismes biréfringents est convertie en échelle de délai via la calibration de l'épaisseur (voir Section 4.3.2) en considérant l'indice de groupe. L'intégration est faite autour de chaque harmonique. L'évolution des deux parties de scans est donnée en Figure 5.18 pour l'harmonique 15.

Dans un second temps, il est nécessaire de raccorder les scans. Sur la figure Figure 5.18, les deux parties de scan se recouvrent bien sur une gamme de délai, avec quelques oscillations communes. Pour effectuer le raccord, le délai moyen de la gamme de recouvrement est calculé, comme étant le centre de la gamme. Le raccord est donc fait en ce point de délai moyen. Le point de raccord est donné en ligne de pointillés noirs sur la Figure 5.18.

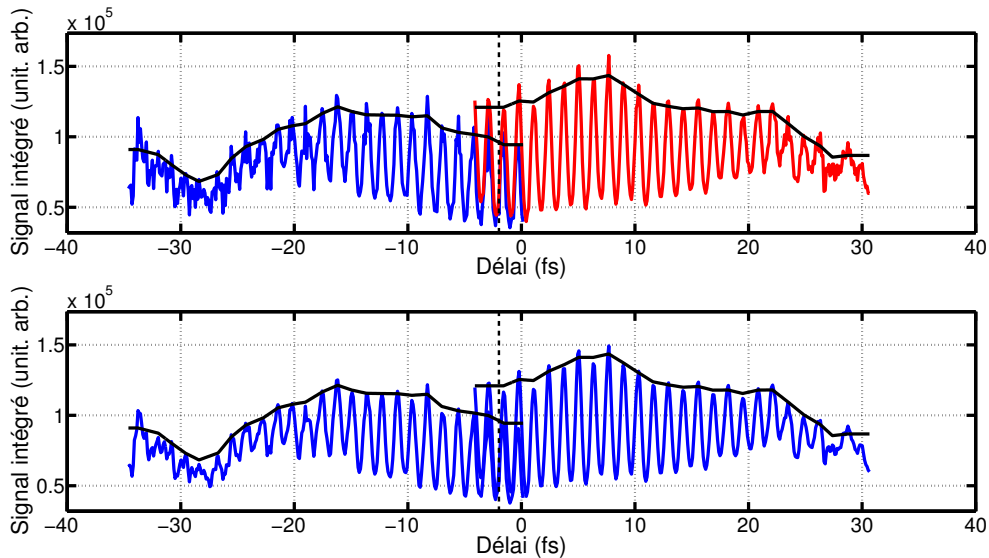


FIGURE 5.18 – Évolution du signal intégré harmonique en fonction du délai XUV/IR pour l'harmonique H15. La figure du dessus montre le signal brut avec l'échelle de délai et les deux parties constituant le scan complet. La figure du dessous montre ces deux mêmes parties, mais avec un lissage sur 4 points. L'enveloppe supérieure des deux parties est dessinée en trait plein noir. Le trait vertical de pointillés noirs représente le délai moyen de la gamme dans laquelle les deux parties de scan se recouvrent.

Pour s'affranchir des fluctuations lentes, nous avons utilisé une propriété remarquable liée à l'approche de perturbation par modulation d'ellipticité. Cette propriété est le fait que pour un déphasage $\frac{\lambda}{2}[\pi]$, le signal est maximum égal à une constante, égale à l'intégrale du signal XUV non perturbé. Ces variations lentes étant assez aléatoires et difficiles à décorrélérer, on divise le signal intégré par l'enveloppe supérieure

du signal lissé pour faire correspondre les signaux perturbés avec cette propriété. Les maxima locaux du signal intégré sont repérés, donnant l'enveloppe supérieure. En divisant le signal par cette enveloppe supérieure lissée, le signal maximum est ramené à 1, et les maxima correspondent alors aux déphasages $\frac{\lambda}{2}$, "sans perturbation", comme sur les simulations en Figure 5.14. L'enveloppe maximum lissée est représentée en trait plein noir pour les deux parties de scan sur la Figure 5.18. Les fluctuations lentes sont visibles directement dans l'évolution de cette enveloppe.

Pour compléter le traitement des données, un lissage Gaussien du signal est effectué sur 4 points. Cela permet d'éliminer quelques sauts et fluctuations point à point dans le signal. La comparaison entre le signal non lissé et le signal lissé est donnée en Figure 5.18, respectivement sur l'image du dessus pour le signal non lissé, et l'image du dessous pour le signal lissé.

Les signaux obtenus après post traitement pour deux harmoniques différentes sont donnés en Figure 5.19.

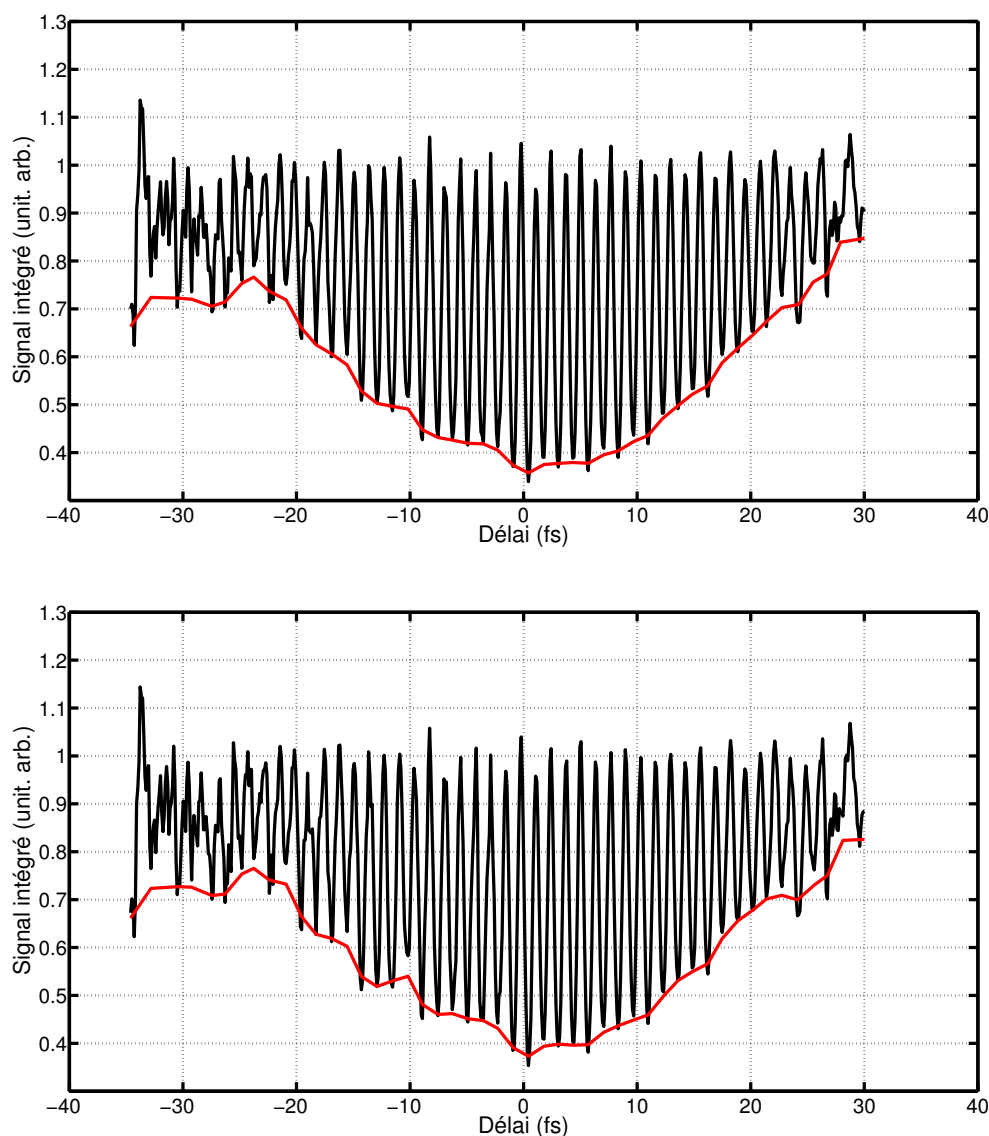


FIGURE 5.19 – Évolution du signal intégré pour les harmoniques H15 et H17, en fonction du délai, après le post traitement et le raccord entre les deux parties de scans. L'enveloppe basse de ce signal est dessinée en trait plein rouge.

Après traitement, les oscillations sont plus régulières. La période des oscillations trouvée est de $\frac{3.1+10.19}{10} = 1.29$ fs, moyennée sur 10 oscillations, soit une valeur proche de $\frac{T_0}{2} = 1.33$ fs pour 800 nm, soit une erreur relative de 4%.

Le rapport entre le maximum et le minimum du signal intégré donne les informations sur l'amplitude de la perturbation pour une ellipticité critique donnée. Ici, le rapport minimum/maximum est de 0.38 pour l'harmonique H15 et 0.36 pour l'harmonique H17. Pour une ellipticité critique de 13% pour H15 et une ellipticité critique de 11% pour H17, un rapport minimum/maximum correspond à une amplitude de perturbation de $15.1\% \pm 1\%$ pour H15 et $13.9\% \pm 1\%$ pour H17. L'amplitude de la perturbation est définie par l'orientation des axes neutres de la lame de calcite $\theta_{calcite}$, telle que $A_{perturb} = \tan(\theta_{calcite})$. Dans l'expérience, $\theta_{calcite} = 8^\circ$, soit $\tan(\theta_{calcite}) = 0.145 = 14.5\%$. Il y a donc un bon accord sur cette valeur, à 0.5% près avec les expériences. Une analyse plus profonde et des essais de reconstruction seront réalisés dans le Section 5.4.6.

L'expérience est répétée avec des impulsions plus courtes. Les harmoniques sont générées dans l'argon. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 22$ fs. L'orientation de la lame de calcite est fixée à $\theta_{calcite} = 10^\circ$, soit une perturbation d'amplitude 17% au délai 0 maintenant. La configuration des lames est la même que précédemment. Le même post-traitement est appliqué sur les données. L'évolution du signal intégré est présentée pour trois harmoniques H13, H17, et H21 en Figure 5.20. La superposition des enveloppes basses est donnée en Figure 5.21.

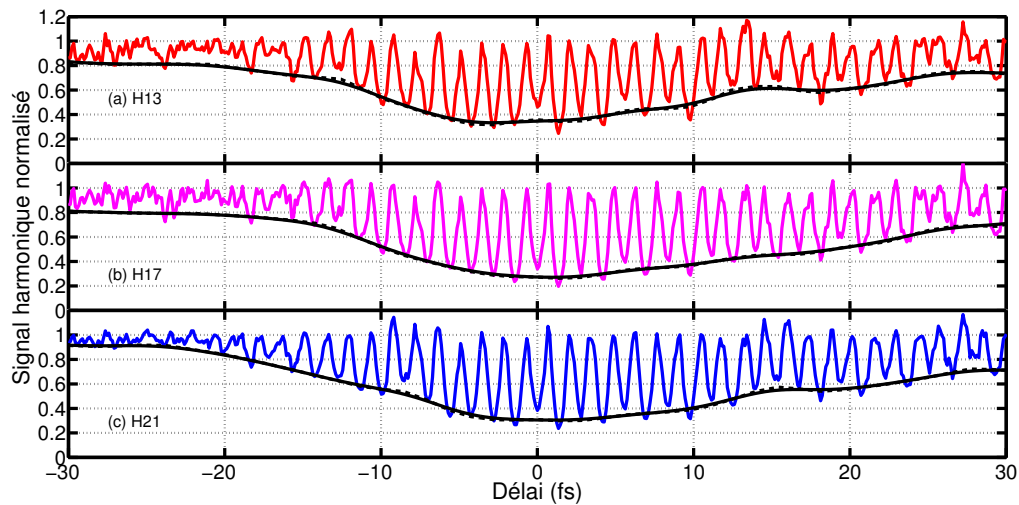


FIGURE 5.20 – Évolution du signal intégré en fonction du délai pour les harmoniques : H13 (a), H17 (b) et H21 (c). L'enveloppe basse lissée des oscillations de chaque signal est dessinée en ligne de pointillés noirs, et l'enveloppe lissée sur 3 points en trait plein noir.

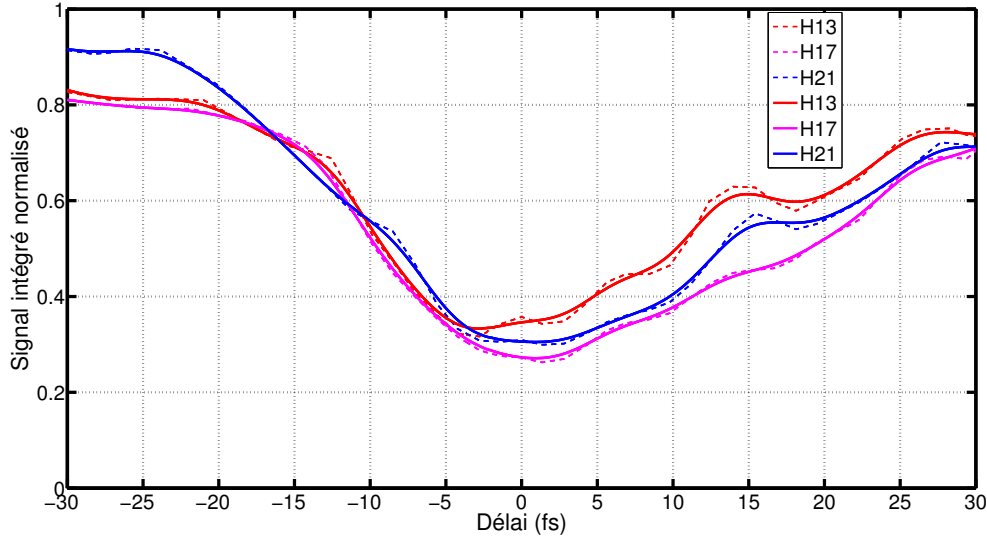


FIGURE 5.21 – Enveloppes basses des signaux obtenus en Figure 5.20. Le résultat pour les harmoniques H13, H17 et H21 est présenté. L'enveloppe non lissée est dessinée en trait pointillés et l'enveloppe lissée est dessinée en trait plein.

Sur les Figure 5.20 et Figure 5.21, les signaux et les enveloppes retrouvées ont une évolution similaire à celle simulée en Figure 5.14, en retrouvant bien les oscillations. Néanmoins, une forte asymétrie est visible dans l'évolution des enveloppes basses.

L'évolution de l'enveloppe dans les délais positifs n'est pas le même pour H13, H17 et H21. De plus, le minimum de l'enveloppe augmente avec l'ordre harmonique. Ces différences entre harmoniques peuvent s'expliquer de la manière suivante :

- Pour le minimum, à amplitude de perturbation constante, c'est la sensibilité à l'ellipticité qui vient jouer. Ici, le minimum est de plus en plus bas en augmentant l'ordre harmonique, ce qui correspond à avoir une ellipticité critique de plus en plus basse en augmentant l'ordre harmonique. Ce comportement correspond à ceux mesurés en Section 3.1.2.
- Il y a une asymétrie délai positif/délai négatif. Dans ce cas ci, le profil de l'IR et/ou le profil XUV peuvent jouer. Avoir un profil temporel XUV asymétrique donnera une évolution de l'enveloppe asymétrique, pour un IR donné. De même pour un IR asymétrique et un profil temporel XUV symétrique. La connaissance du profil temporel de l'IR est cruciale, pour décorrélérer les comportements et les informations obtenues par l'enveloppe basse.

Les propriétés de génération d'harmoniques peuvent aussi influencer. Par exemple, dans le cas où l'on aurait ionisation dans le front montant de l'impulsion, venir perturber la génération dans le front montant montrerait des différences d'évolution en fonction de l'ordre harmonique. Au contraire, avec la perturbation dans le front descendant, le milieu générateur serait déjà affecté par l'ionisation, et les différences lorsque l'on perturbe le front descendant seraient moins grandes.

- Le fait d'avoir une évolution différente pour l'enveloppe des différentes harmoniques, dans les délais positifs, implique que le profil temporel XUV pour chaque harmonique n'est pas le même pour un même profil infrarouge.

L'évolution du spectre après post-traitement est donnée en Figure 5.22.

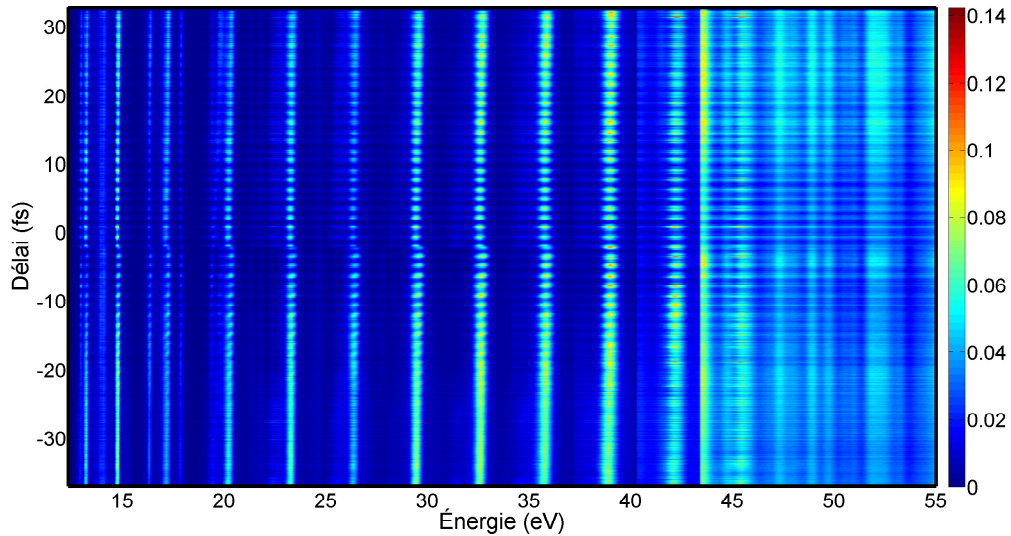


FIGURE 5.22 – Évolution normalisée harmonique par harmonique du spectre XUV en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale. Les impulsions ont une durée de $\tau_{IR} = 22$ fs. Le point de raccord se situe autour du délai -2 fs.

En conclusion sur ces expériences avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 30$ fs et $\tau_{IR} = 22$ fs :

- Avec la lame d'épaisseur variable présentée en Figure 4.17, on a pu construire un interféromètre stable compact à partir des éléments biréfringents.
- On a pu observer sur deux expériences une évolution du signal intégré qui correspond aux simulations en figure 5.14. Les données ont nécessité un post traitement supplémentaire.
- Le scan se faisait ici en deux parties, car la gamme à scanner est large devant la gamme utile des prismes biréfringents. Chaque partie de scan dure environ 2 heures, ce qui reste conséquent et nécessite une grande stabilité.
- Le fait d'avoir un raccord à effectuer entre les deux scans est une contrainte supplémentaire.

Sur ce dernier point, il existe plusieurs solutions :

- Remplacer les prismes biréfringents en quartz par des prismes avec une biréfringence plus forte. Pour une même gamme de déplacement des prismes, la gamme de délais couverte serait plus grande. Nous ne disposons pas des optiques nécessaires pour le réaliser.
- Travailler avec des impulsions plus courtes en ne changeant pas le système. Utiliser une durée d'impulsion qui positionne la gamme $[-2\tau_{IR}; 2\tau_{IR}]$ dans la gamme de déplacement utilisable des prismes permet d'avoir un seul scan à effectuer.
- Réduire le temps d'acquisition pour avoir moins de fluctuations lentes. Ceci est aussi possible avec des impulsions courtes.

Avec toutes ces pistes d'améliorations, nous avons cherché à travailler avec des impulsions plus courtes, tout en conservant un système laser stable, avec le même interféromètre utilisé dans cette partie. Ceci a été réalisé dans le cadre d'une collaboration avec le Lund Laser Center (LaserLab campaign n°LLC002578).

5.4.5 Utilisation d'impulsions de quelques cycles optiques : $\tau_{IR} \approx 5.4$ fs

Dans cette partie, l'expérience est reproduite avec le système de Lund décrit en Figure 4.16. Le montage est similaire, avec des prismes biréfringents, des lames de compensation ainsi qu'un système de génération d'harmoniques d'ordres élevés. Les harmoniques sont générées dans un jet de gaz d'argon. La dispersion des impulsions est optimisée en regardant là où la coupure du spectre XUV a la plus haute énergie, avec la polarisation orientée selon les axes neutres de la lame d'épaisseur variable.

Pour avoir une compensation de dispersion optimale sur toute la gamme de délais, la position des prismes biréfringents est fixée au milieu de la gamme utilisable lorsque que l'on optimise la dispersion. La lame d'épaisseur variable reste la même que celle utilisée en Section 5.4.4, avec une combinaison des prismes biréfringents et non biréfringents, ainsi que des lames de compensation. Les épaisseurs des lames de compensation sont $e = 1.029$ mm et $e = 0.843$ mm. La durée des impulsions, mesurée via Dscan, est de $\tau_{IR} = 5.4$ fs. Le profil temporel de l'impulsion fondamentale est donné en Figure 5.23. L'orientation de la lame de calcite $\theta_{calcite}$ est fixée à 8° par rapport aux axes neutres de la lame d'épaisseur variable, ce qui correspond à une perturbation d'amplitude $\tan(\theta_{calcite}) = 14\%$, soit 2% en intensité. La CEP n'est pas stabilisée dans cette expérience.

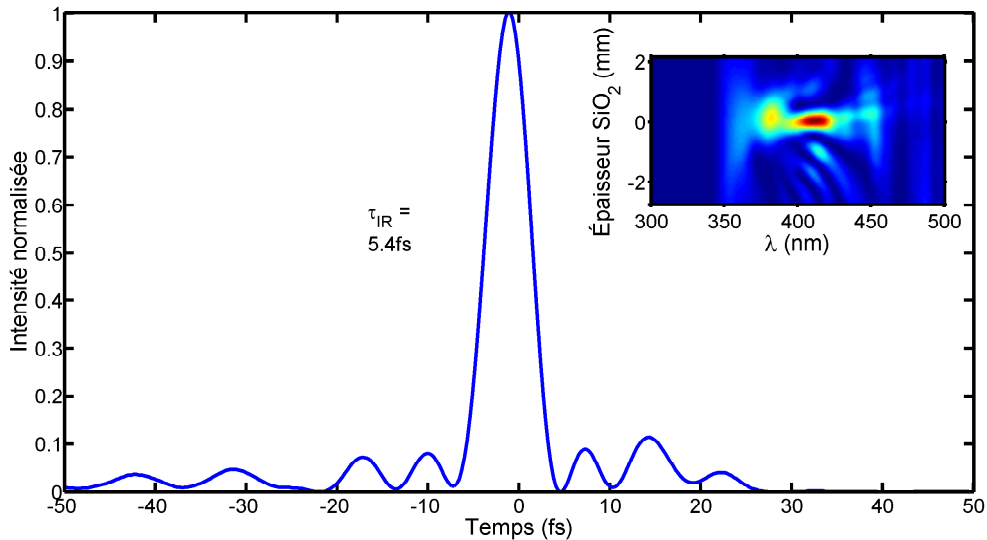


FIGURE 5.23 – Profil temporel de l'impulsion fondamentale IR retrouvé par mesure Dscan. La largeur à mi-hauteur du pic principal est de $\tau_{IR} = 5.4$ fs. La trace Dscan est mise en insert sur la figure.

L'évolution du spectre XUV en fonction du délai entre perturbation et impulsion principale est donnée en Figure 5.24. Le signal intégré spectralement montre de claires oscillations en fonction du délai. Les harmoniques sont encore bien séparées spectralement, ce qui permet de faire des intégrations harmoniques par harmoniques. L'évolution du signal intégré pour plusieurs harmoniques est donnée en Figure 5.26.

La gamme de délais utilisable permet bien de résoudre, en un seul scan, l'entièreté des oscillations et de l'enveloppe basse de ces dernières. La période des oscillations est calculée sur 6 oscillations, soit $T = \frac{8.08+1.71}{6}$ fs = 1.35 fs. Pour une longueur d'onde de 820 nm, soit la longueur d'onde moyenne du spectre de l'impulsion fondamentale,

un demi-cycle optique correspond à 1.36 fs. L'accord entre l'expérience et la valeur théorique est donc bon et les oscillations ont une période de $\frac{T_0}{2}$.

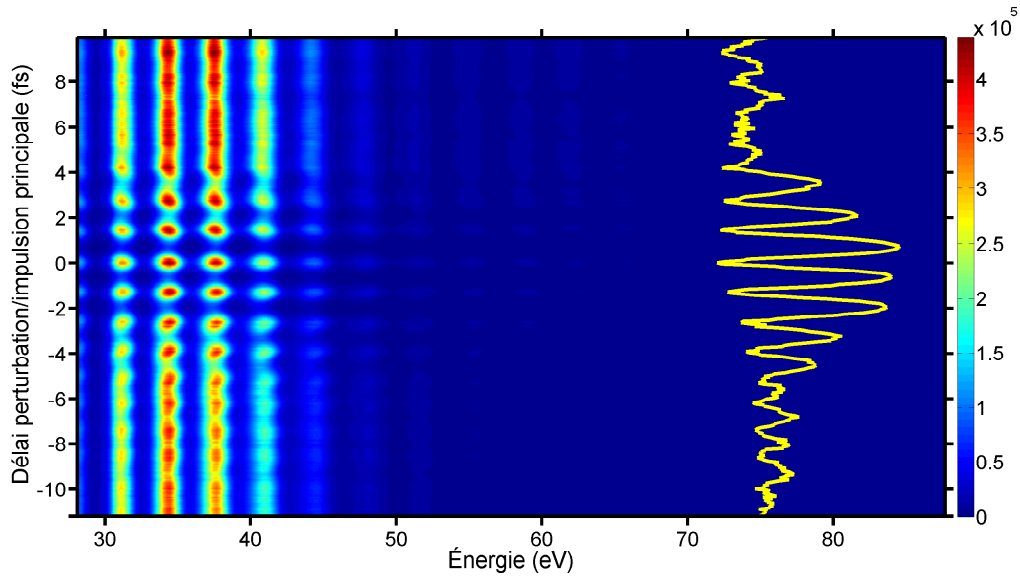


FIGURE 5.24 – Évolution du spectre XUV en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale de durée $\tau_{IR} = 5.4$ fs. Le signal intégré spectralement est représenté en trait plein jaune en vertical. L'amplitude de la perturbation est de 14% de l'impulsion principale.

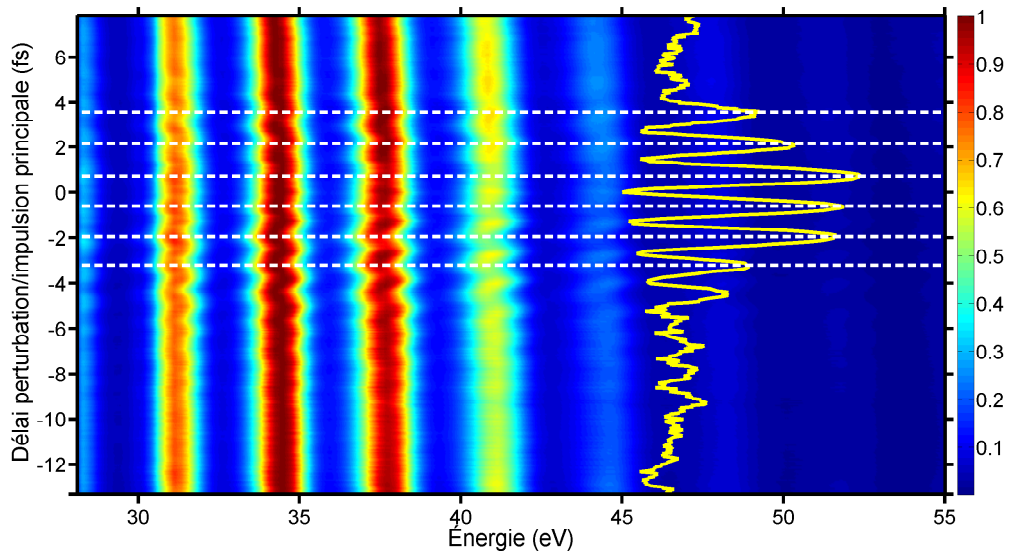


FIGURE 5.25 – Évolution du spectre XUV normalisé en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale de durée $\tau_{IR} = 5.4$ fs. Le signal intégré spectralement est représenté en trait plein jaune en vertical. L'amplitude de la perturbation est de 14.5% de l'impulsion principale. Chaque spectre est normalisé par le maximum. Les minima de signal intégré sont repérés par des lignes de pointillés blancs.

Sur la Figure 5.24, un délai négatif correspond à avoir la perturbation dans le front montant, et inversement la perturbation dans le front descendant pour un délai positif.

Une observable expérimentale est en accord avec ceci : l'énergie centrale des harmoniques dans les minima de signaux intégrés. De ce fait, si la perturbation est dans le front montant, on doit perturber la génération des fréquences "bleues" de l'harmonique, donc favoriser l'observation des fréquences "rouges" de l'harmonique. Dans ce cas, l'énergie centrale de l'harmonique est effectivement décalée vers le rouge, donc vers une énergie plus basse. La conclusion est inversée pour la situation où l'on a la perturbation dans le front descendant. Sur la Figure 5.24, il est difficile de voir directement l'énergie centrale au niveau des minima, car le signal est faible. Pour aller le voir, on normalise le spectrogramme par le maximum de signal, et ceci pour chaque spectre. Cela donne le spectrogramme en Figure 5.25.

Lorsque l'on étudie l'énergie centrale des harmoniques, notamment les trois premières harmoniques du spectre, on observe des décalages en énergie. Pour les minima du côté des délais positifs, l'énergie centrale est décalée vers le bleu, ce qui correspond bien à une perturbation des fréquences harmoniques dans le front descendant. De même, l'énergie centrale est bien décalée vers les énergies plus basses, lorsque la perturbation est dans le front montant avec un délai négatif. On a donc une confirmation expérimentale supplémentaire du sens de déplacement front montant/front descendant de la perturbation.

La Figure 5.26 représente trois figures pour les signaux perturbés. Entre chaque figure, une correction supplémentaire est effectuée. Pour la première figure, les signaux perturbés montrent un minimum déplacé par rapport au délai 0 attendu avec la seule calibration des wedges. Pour cette première figure, le délai 0 a été mesuré pour une situation en dehors de la chambre de génération (avec 2 réflexions à 45° sur des miroirs argent protégés). Or, au délai $0 \pm \frac{\lambda}{4}$, l'ellipticité est constante et de même valeur pour chaque harmonique. La valeur du signal perturbé au délai 0 ne dépend donc que de la valeur de l'ellipticité critique de chaque harmonique, ainsi que de l'amplitude de la perturbation. Pour les harmoniques hautes, les ellipticités critiques mesurées à Lund (voir Figure 3.4) sont relativement proches pour H19 à H31, avec une valeur que se situe entre 0.1 et 0.09 avec une légère décroissance quand l'ordre harmonique augmente. Ici, les valeurs de signaux perturbés pour chaque harmonique au délai 0 sont très différentes. Cette évolution ne correspond pas à ce que l'on attend, c'est à dire des valeurs de signaux perturbés proches pour toutes les harmoniques autour du délai 0 pour l'enveloppe minimale, car les ellipticités critiques mesurées pour les harmoniques sont très proches (voir Tableau 3.1). Le délai 0 dans le milieu générateur est donc différent de celui mesuré en dehors de la chambre.

Dans le Chapitre 4, le décalage du délai 0 a été observé expérimentalement, en fonction du nombre de réflexions à 45° sur des miroirs avec la propagation du faisceau. Un décalage temporel relié à la différence de propagation entre la polarisation s et la polarisation p est observé à plusieurs reprises. Dans le cas de la perturbation par modulation d'ellipticité, ce décalage est aussi présent, car on travaille avec une polarisation p et une polarisation s pour la perturbation et l'impulsion principale. La géométrie et les composants du système de génération montré en Figure 4.16 n'ayant pas changé entre les deux mesures (entre celles du Chapitre 4 et celle de cette Section 5.4.5), on se sert des mesures du Chapitre 4 pour estimer la correction nécessaire à ajouter à l'échelle de délai.

On parle dans ces paragraphes de décalage en position des prismes biréfringents. Pour passer d'une échelle en position de prismes à une échelle en délai, on utilise la calibration de l'épaisseur des prismes extraite dans la Section 4.3.2 et la phase ajoutée

par une épaisseur biréfringente, ce qui donne la loi :

$$e_{prismes}(p) = -0.035529p + 2.6545 \quad (5.15)$$

$$\delta(p) = (-e_{prismes}(p) + 1.029 + 0.841) \times 1e - 3 \times \frac{(1.53837 - 1.54729)}{3e8} \quad (5.16)$$

en utilisant les indices de phase pour le quartz biréfringent. $e_{prismes}(p)$ représente l'épaisseur de quartz pour la position p , et le $\delta(p)$ le délai correspondant à cette épaisseur. Les épaisseurs ajoutées à $e_{prismes}(p)$ correspondent aux épaisseurs mesurées des lames de compensation. La méthode de mesure des épaisseurs des lames biréfringentes est détaillée en Annexe 1.

Le décalage dû à la propagation doit comporter les contributions de 6 miroirs protégés en argent et d'un miroir en aluminium. Sur les mesures dans le Chapitre 4, le décalage en position des prismes pour la contribution de 5 miroirs en argent et d'un miroir aluminium est de 2.5 mm. Le décalage pour la contribution de 4 miroirs protégés en argent est de 1.2 mm. En sachant ceci, et en supposant que tous les miroirs argent protégés sont identiques, le décalage en position des prismes biréfringents pour 6 miroirs protégés en argent et un miroir en aluminium doit être de $2.5 + \frac{1.2}{4} = 2.8$ mm. L'échelle de position des prismes doit donc être décalée de 2.8 mm pour retrouver une valeur de délai 0 correct. C'est ce qui est fait pour obtenir la figure centrale dans la Figure 5.26.

Dans un second temps, on utilise une propriété de la génération d'harmoniques et de l'ellipticité pour justifier d'une correction supplémentaire mineure pour l'échelle de délais. Au délai 0, le signal perturbé est forcément maximum, égal à 1 si normalisé, car la perturbation n'a pas d'effet au délai 0, l'ellipticité étant nulle. Avec cette propriété, on décale le maximum de signal au délai 0. Cela correspond à un décalage de 120 as, ce qui reste minime par rapport à la correction apportée pour l'effet Goos-Hänchen. Avec ces deux corrections, le signal est centré sur la bonne échelle de délais/positions, comme le montre la figure basse de la Figure 5.26. Il est à noter que la Figure 5.24 montre un spectrogramme avec une échelle déjà corrigée. Les minima au délai $0 \pm \frac{\lambda}{4}$ sont très proches pour toutes les harmoniques.

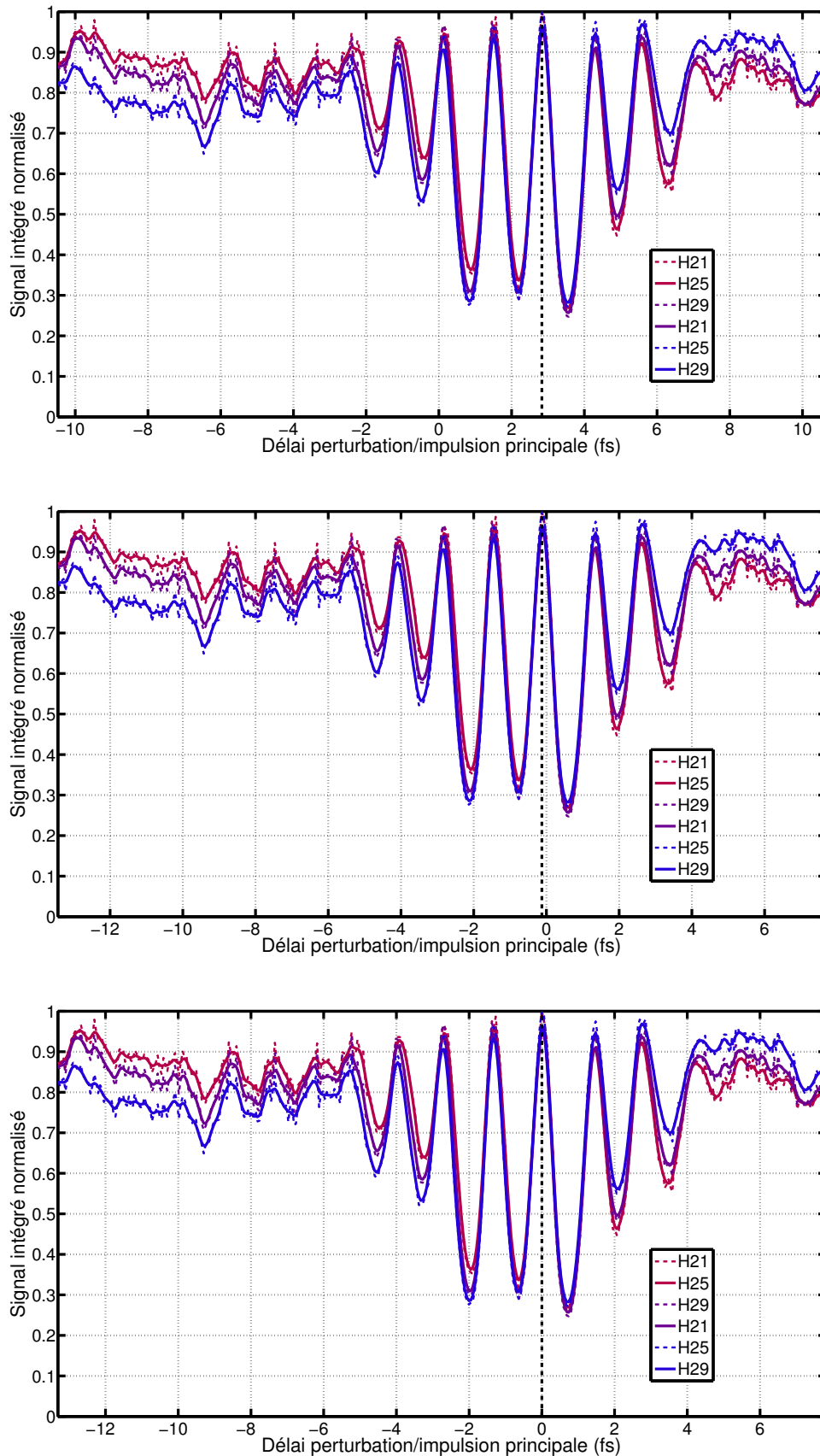


FIGURE 5.26 – Évolution du signal intégré en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale pour trois harmoniques, respectivement H21, H25 et H29. Le signal non lissé est dessiné en pointillés, et le signal lissé en trait plein. Trois images sont présentées, avec une correction du délai 0 supplémentaire à chaque image. Respectivement, de haut en bas, sans correction de l'effet Goos-Hänchen, avec correction de l'effet Goos-Hänchen et avec correction mineure du délai 0. Pour chaque image, la position du maximum est repérée en pointillés noirs.

Les enveloppes basses sont extraites à partir des signaux obtenus en Figure 5.26. Le minimum des différentes enveloppes se situe autour de 0.3 pour le signal normalisé. Dans les mesures d'ellipticité critique du Tableau 3.1 de la Section 3.1.2, on a mesuré une ellipticité critique de 0.10 pour les harmoniques de plus haut ordre. Avoir un minimum de 0.33 pour H21 pour le signal normalisé correspond à une amplitude de perturbation de 14.7%, soit un angle de 8.6° entre la polarisation incidente. Il y a donc un léger décalage entre l'amplitude de 14% théorique calculée avec l'orientation de la lame de calcite $\theta_{calcite}$, et celle estimée expérimentalement. Néanmoins, la perturbation reste dans les marges d'erreur et en bon accord avec la valeur théorique. En termes d'orientation, on trouve 8.6° expérimentalement pour un angle 8° .

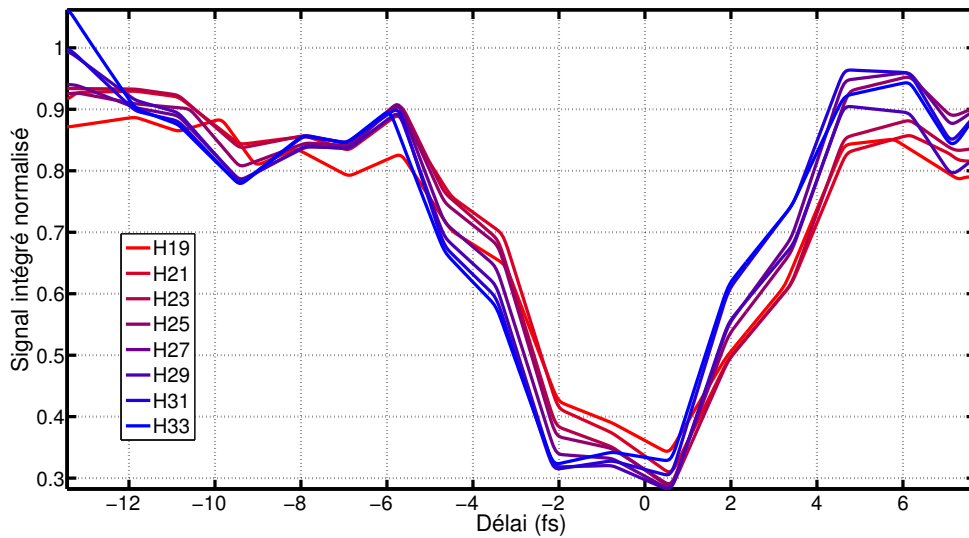


FIGURE 5.27 – Enveloppes basses des signaux intégrés obtenus en Figure 5.26 pour H19 à H33.

De manière inverse, en supposant une valeur de perturbation fixe, la valeur de ϵ_{thr} peut être estimée à partir du rapport minimum/maximum. En effet, à délai 0, la valeur de l'enveloppe correspond à la situation où l'ellipticité est constante pour tout t . En regardant la valeur de signal perturbé au délai, on retrouve ϵ_{thr} pour chaque harmonique, à partir de :

$$\epsilon_{thr} = \epsilon_{theo} \sqrt{\frac{\ln(2)}{-\ln(S_{min})}} \quad (5.17)$$

avec ϵ_{theo} l'ellipticité introduite avec l'angle de la calcite, S_{min} la valeur du minimum de signal.

Ces valeurs estimées sont consignées dans le Tableau 5.1. Pour la mesure avec la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité, les incertitudes donnant les barres d'erreur sont calculées en prenant en compte une erreur d'une demi graduation pour l'orientation, soit ± 0.01 pour l'ellipticité ϵ_{theo} et une erreur d'estimation du signal à 5%, soit ± 0.015 environ pour S_{min} . La comparaison avec l'ellipticité critique des harmoniques trouvée en est faite en Figure 5.28.

De la même manière pour la série effectuée avec la lame d'ordre zéro, les incertitudes sont calculées avec une moitié de graduation, ainsi qu'une erreur de 5% sur l'estimation du signal à mi-hauteur. L'accord entre les deux séries de mesures est correct, avec une

évolution de l'ellipticité critique comparable dans les deux séries de mesures. L'écart relatif entre les valeurs des deux séries est de 10%.

Ordre	H19	H21	H23	H25
S_{min}	0.35 ± 0.015	0.33 ± 0.015	0.30 ± 0.015	0.30 ± 0.015
ϵ_{thr}	0.112 ± 0.016	0.109 ± 0.016	0.104 ± 0.015	0.104 ± 0.015
Ordre	H27	H29	H31	H33
S_{min}	0.29 ± 0.015	0.29 ± 0.015	0.30 ± 0.015	0.33 ± 0.015
ϵ_{thr}	0.103 ± 0.015	0.10 ± 0.015	0.104 ± 0.015	0.109 ± 0.016

TABLE 5.1 – Mesures du signal XUV perturbé au délai 0 pour les différentes harmoniques à partir des enveloppes de la Figure 5.27. Les ellipticités critiques sont calculées avec la formule en Équation (5.17).

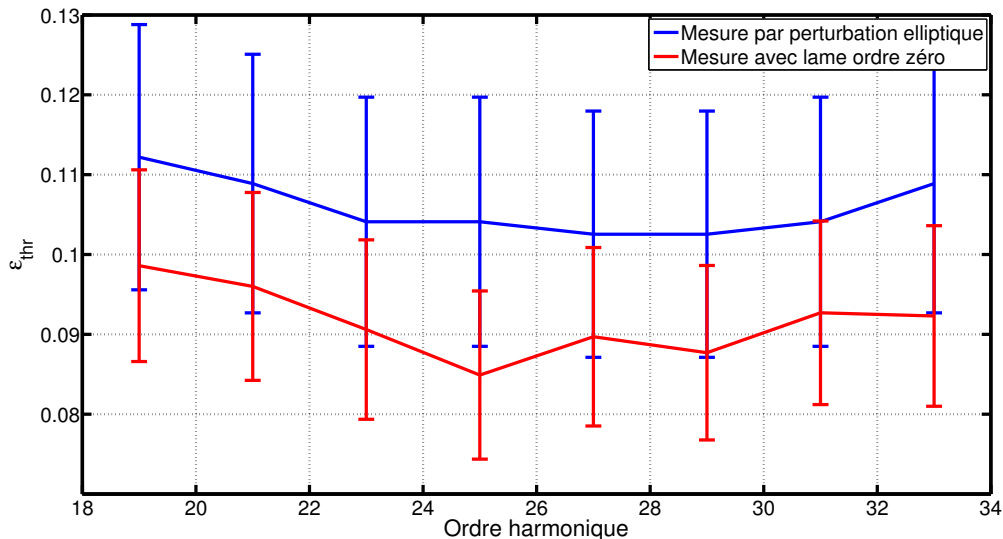


FIGURE 5.28 – Évolution de l'ellipticité critique mesurée en fonction de l'ordre harmonique pour deux mesures différentes : en trait plein rouge en introduisant de l'ellipticité avec une lame d'ordre zéro, et en trait plein bleu avec la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité. L'accord entre les deux mesures est correct.

Sur les Figure 5.27 et Figure 5.26, l'intégration spectrale est réalisée autour d'une harmonique, sur l'entiereté de la dimension spatiale. À partir des images spatio-spectrales, les contributions des chemins longs et des chemins courts peuvent approximativement être séparées. L'évolution du signal intégré spectralement et spatialement est observée pour deux zones différentes sur les images spatio-spectrales. Ces deux zones correspondent à ce que l'on identifie comme la contribution principale du chemin court (peu divergent) et du chemin long (très divergent). Deux intégrations sont donc faites : une intégration sur l'axe et une intégration hors axe.

Les signaux obtenus par ces deux intégrations sont donnés en Figure 5.30. Les enveloppes obtenues pour le chemin long sont symétrisées par rapport à 1 dessinées sur le haut de la figure, et les enveloppes obtenues pour le chemin court sont dessinées en bas sur la figure.

Sur la Figure 5.30, les enveloppes des chemins longs ont aussi un minimum qui se décale avec l'ordre harmonique. Il y a aussi un décalage entre les minima observés pour

le chemin long et ceux observés pour le chemin court. Ce décalage est aussi visible dans la largeur à mi-hauteur de ces différentes enveloppes.

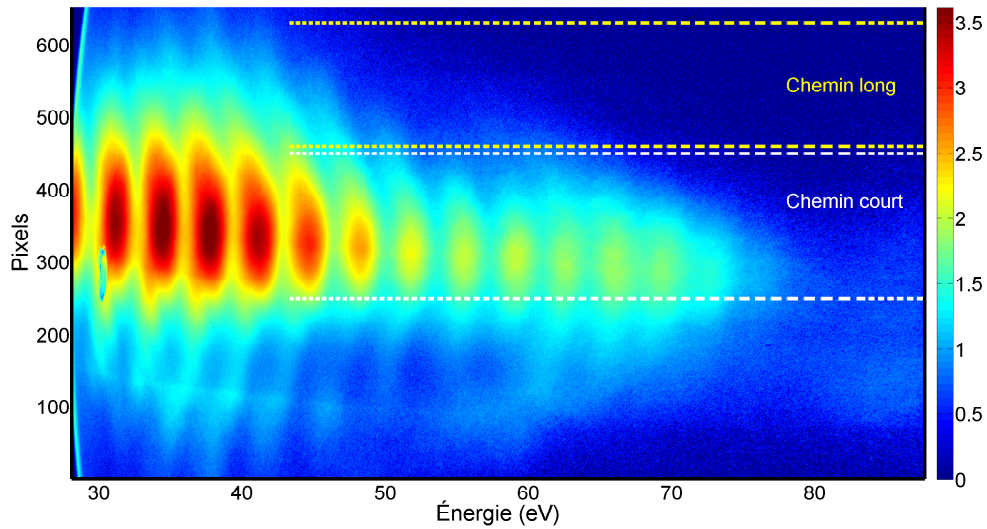


FIGURE 5.29 – Exemple d'image spatiospectrale enregistrée pour une position des prismes biréfringents. La zone d'intégration sur l'axe (chemin court prédominant) est délimitée en blanc. La zone d'intégration hors axe (chemin long prédominant) est délimitée en jaune. Chaque zone à une taille de 200 pixels environ.

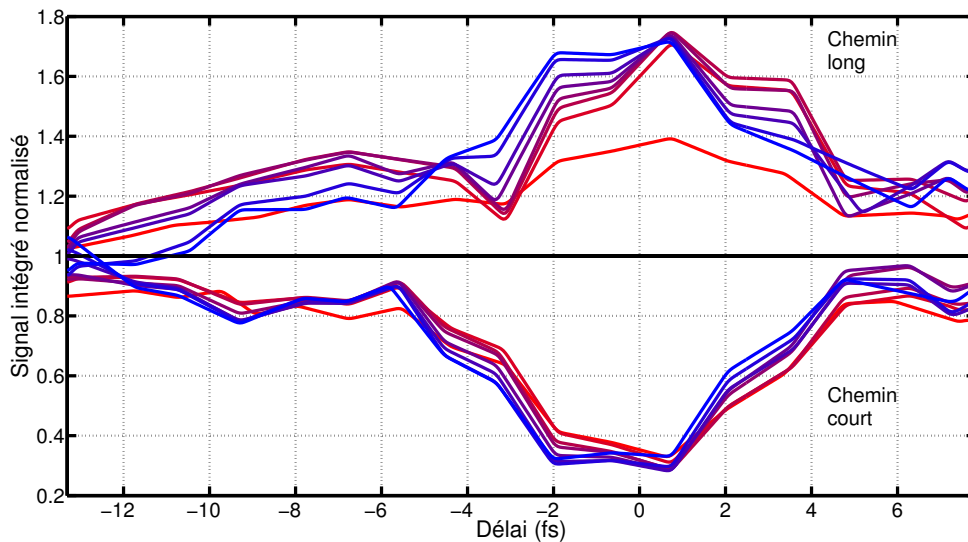


FIGURE 5.30 – Enveloppes basses pour le chemin long et le chemin court en fonction de l'ordre harmonique. Plus la couleur du trait est bleue, plus l'ordre harmonique est grand. Les harmoniques H13 à H27 sont représentées. Les enveloppes basses des chemins longs ont été retournées et décalées en ordonnée.

De manière plus directe, on peut observer des différences en fonction de l'ordre harmonique sur deux observables :

- Le délai pour lequel le signal perturbé atteint 0.5, soit la moitié du maximum est différent pour chaque harmonique, et différent selon si la perturbation est

dans le front montant ou descendant. En donnant cette interprétation comme un temps d'émission moyen pour l'harmonique, ce temps d'émission moyen associé à chacune des harmoniques change avec l'ordre harmonique. Ces temps changent également avec le fait de considérer les trajectoires longues ou les trajectoires courtes.

- La différence entre le temps d'émission moyen dans le front montant et celui dans le front descendant évolue aussi avec l'ordre harmonique. Là aussi, cette différence dépend de l'ordre harmonique, mais aussi du type de trajectoire considéré.

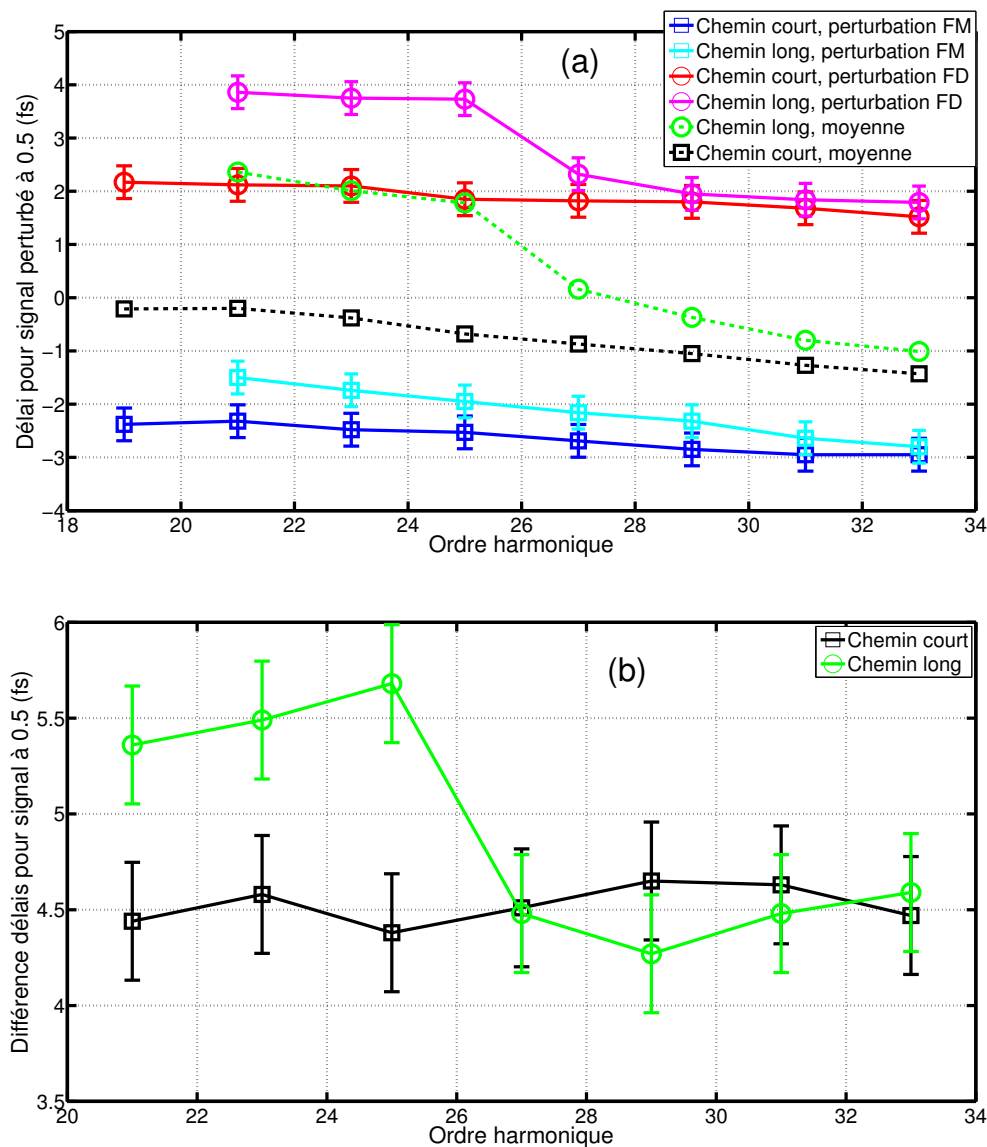


FIGURE 5.31 – (a) Délais pour lequel le signal perturbé, représenté en Figure 5.30, atteint 0.5, pour les trajectoires courtes (carrés) et les trajectoires longues (ronds), pour chaque harmonique, dans le front montant (bleu, cyan) et le front descendant (rouge, magenta). La moyenne des délais est donnée pour le chemin court (noir) et le chemin long (vert) en pointillés. (b) Différence entre les délais pour le chemin long (vert) et le chemin court (noir). Cette différence est associée à une durée moyenne d'émission pour les deux trajectoires.

Pour quantifier ces observations, les délais pour lesquels le signal atteint la moitié du signal maximum sont retranscrites sous forme de courbe (voir Figure 5.31 (a)), ainsi que la différence entre ces délais, pour le chemin court et le chemin long, pour chacune des harmoniques (voir Figure 5.31 (b)).

La Figure 5.31 montre plusieurs choses. D'une part, l'évolution sur la figure (a) montre une tendance à perturber les harmoniques les plus élevées en premier dans le front montant, et disparition de ces dernières en premier dans le front descendant. Ceci est vrai pour le chemin court et le chemin long à la fois. Les délais pour un signal à 0.5 dans le front descendant sont plus proches du maximum d'intensité (délai 0) lorsque l'ordre harmonique augmente. Dans le front descendant, la conclusion est inverse, avec des temps d'émission de plus en plus décalés par rapport au délai 0 lorsque l'ordre harmonique augmente.

En comparant les délais pour un signal à 0.5 pour le chemin court et le chemin long, on voit que le chemin court est émis en premier, puis le chemin long en deuxième. Les temps d'émission pour les deux trajectoires se rejoignent pour les harmoniques de la coupure. Cette observation est cohérente avec le fait que pour les harmoniques de la coupure, les trajectoires courtes et longues sont indissociables.

La figure (b) montre la différence entre les temps de perturbation à 0.5 sur la figure (a), pour les deux trajectoires. Cette différence peut être identifiée comme une durée moyenne d'émission. Les courbes montrent que pour les harmoniques les plus basses comme H21 et H23, la durée d'émission pour le chemin long est plus longue que pour le chemin court. La durée d'émission pour les harmoniques les plus basses et également plus longue. Pour les harmoniques de la coupure, on retrouve une durée d'émission moyenne qui est similaire pour les deux trajectoires aux erreurs près. Ce comportement est cohérent avec le fait que pour le chemin long, la durée d'émission est plus longue que pour le chemin court. La valeur de cette différence doit être uniquement en relatif d'une trajectoire par rapport à l'autre. Ici, on fait une différence entre des temps d'émission pour une valeur de signal à 0.5. Si la valeur considérée pour ces temps d'émission était différente, on aurait obtenu une durée d'émission différente, mais les valeurs relatives de ces durées pour les deux trajectoires ne doivent pas changer. La même étude est effectuée pour une valeur de signal perturbée de 0.6 au lieu de 0.5, et est donnée en Figure 5.32. La séparation entre les deux trajectoires est moins significative, mais les conclusions restent les mêmes. Et la différence de temps d'émission a bien changé entre les deux valeurs.

Pour calculer un temps d'émission moyen pour une harmonique, la moyenne des délais à 0.5 trouvés avec l'analyse présentée dans la Figure 5.31 est faite. Cette somme donne l'évolution du temps d'émission moyen entre front montant et front descendant pour les deux trajectoires courte et longue, et ce pour chaque harmonique. Cette évolution est présentée dans la Figure 5.31 (a). On voit que le chemin court pour les harmoniques a tendance à être émis avant le chemin long. Ce temps moyen est plus proche du délai 0, donc du maximum d'intensité, pour les harmoniques les plus basses, ce qui est contre intuitif. En effet, on attend plutôt un temps d'émission plus proche du maximum d'intensité pour les harmoniques les plus hautes, et non l'inverse, en ne considérant uniquement que la réponse de l'atome unique. Cette évolution reste encore à expliquer pour le temps d'émission. Des effets collectifs peuvent jouer un rôle dans cette évolution, comme l'accord de phase avec des conditions de pression et d'intensité particulières. Néanmoins, le temps d'émission moyen est le même pour les deux trajectoires pour les harmoniques de la coupure, ce qui est cohérent avec tout ce qui a été dit précédemment.

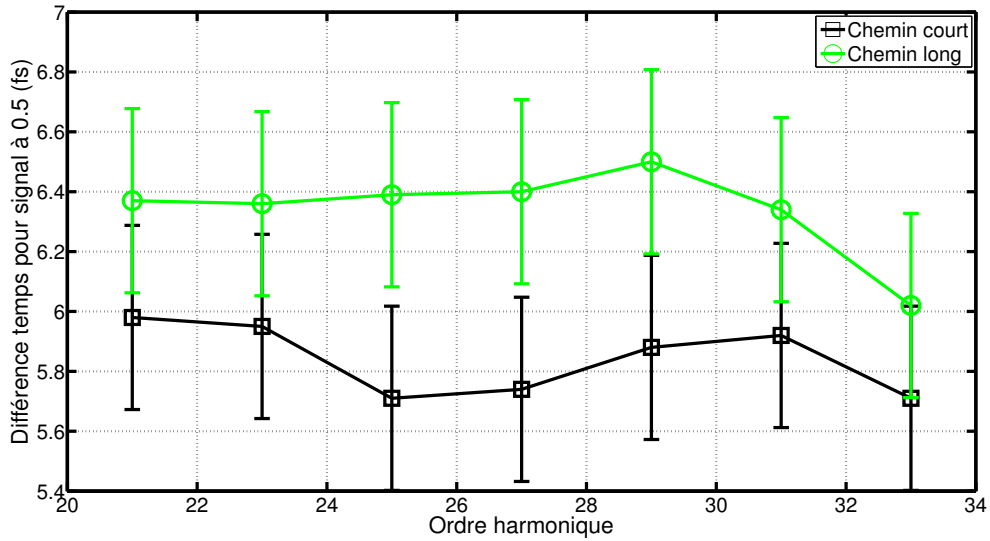


FIGURE 5.32 – Différence entre les délais pour un signal perturbé à 0.6 dans le front montant et le front descendant pour le chemin long et le chemin court. Cette différence est associée à une durée moyenne d’émission pour les deux trajectoires. La valeur de $S_{XUV,pert}$ prise pour trouver les temps d’émission est de 0.6.

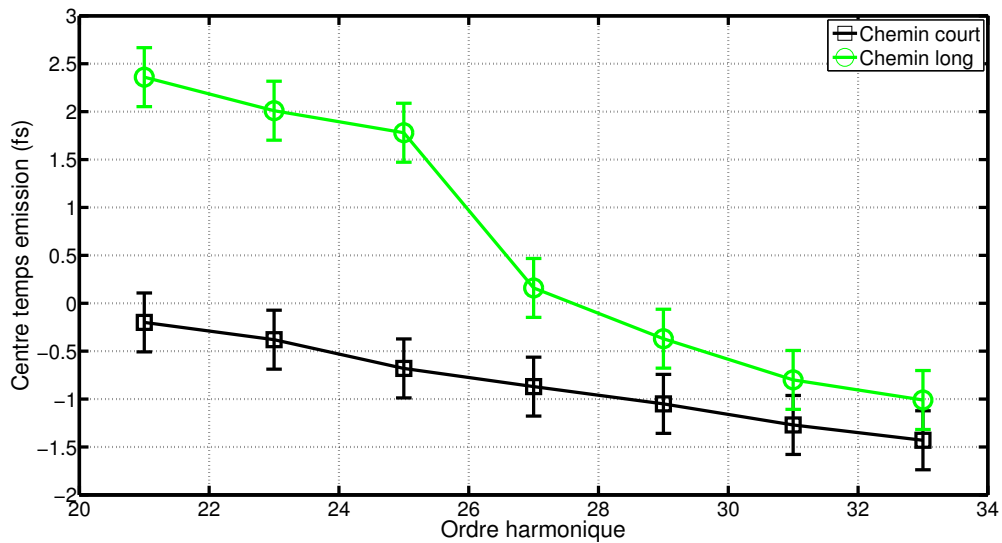


FIGURE 5.33 – Évolution du temps moyen d’émission en fonction de l’ordre harmonique. La courbe noire, symboles carrés, représente le chemin court, et la courbe verte, symboles ronds, le chemin long. Ces temps d’émission moyens sont calculés à partir de la Figure 5.32.

L’expérience a ensuite été réalisée avec des paramètres expérimentaux différents : pour une autre amplitude de perturbation, donc une autre orientation de la lame de calcite $\theta_{calcite}$ et pour deux ouvertures d’iris différentes, donc deux énergies/puissances d’entrée différentes.

L’orientation de la lame de calcite est maintenant fixée à $10^\circ (\pm 1^\circ)$, soit une amplitude de 17.6% en champ pour la perturbation (3% en intensité). Les autres conditions expérimentales restent inchangées. L’évolution du spectre XUV en fonction du délai

dans ces conditions expérimentales est donnée en Figure 5.34. L'évolution du signal perturbé est similaire à celle observée en Figure 5.24, avec un meilleur contraste dans les oscillations de signal intégré. Les minima sont plus bas, à cause de l'amplitude de perturbation plus forte. Les oscillations sont toujours présentes.

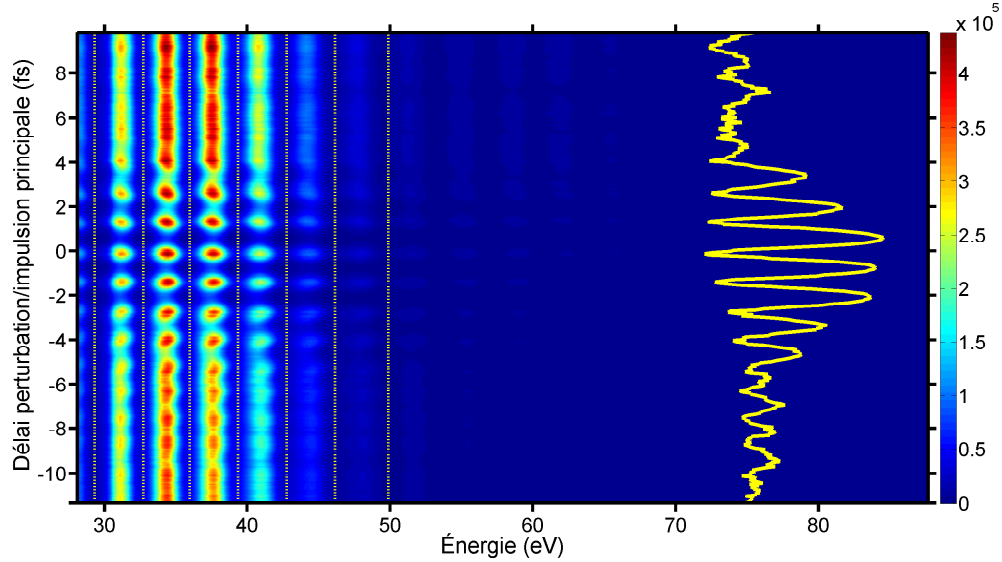


FIGURE 5.34 – Évolution du spectre XUV en fonction du délai entre la perturbation et l'impulsion principale. Le signal intégré spectralement est dessiné en trait plein jaune en vertical. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 5.4$ fs. L'amplitude de la perturbation est de 17,6% ($\theta_{calcite} = 10^\circ$). Les délimitations spectrales pour l'intégration harmonique par harmoniques sont dessinées en lignes pointillées jaunes.

Les contributions du chemin long et du chemin court sont séparées de la même manière qu'en Figure 5.29, et les enveloppes correspondantes sont données dans la Figure 5.35.

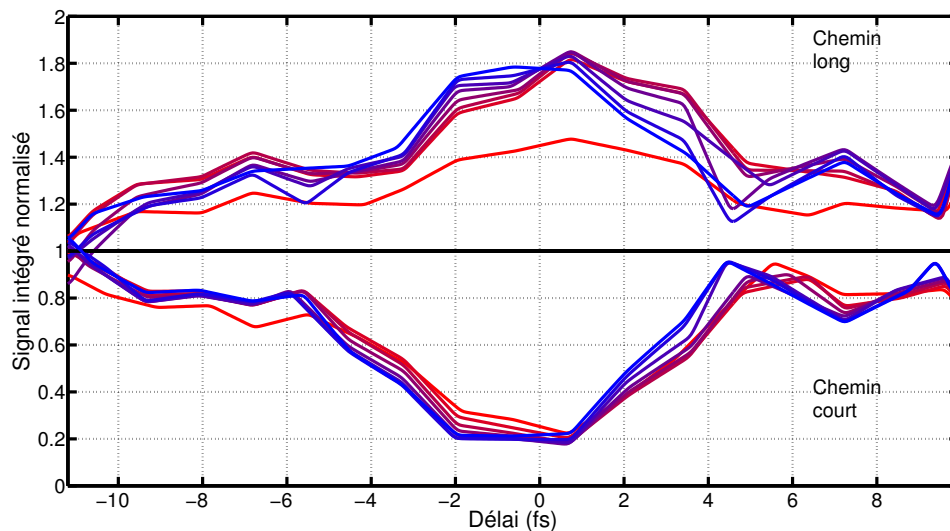


FIGURE 5.35 – Enveloppes basses pour le chemin long et le chemin court en fonction de l'ordre harmonique. Plus la couleur du trait est bleue, plus l'ordre harmonique est grand. Les harmoniques H19 à H33 sont représentées.

La valeur du minimum des enveloppes avec $\theta_{calcite} = 10^\circ$ est bien plus faible que celle avec $\theta_{calcite} = 8^\circ$. Respectivement, le minimum des différentes enveloppes est de 0.18 et 0.25. En prenant une ellipticité critique de 0.10, l'amplitude de la perturbation retrouvée est de $16.3 \pm 0.7\%$. En théorie, avec $\theta_{calcite} = 10^\circ \pm 1^\circ$, on doit avoir une perturbation d'amplitude $17.6 \pm 1\%$ (avec l'incertitude sur la graduation). L'accord est moins bon que sur la mesure précédente, mais reste dans les incertitudes. La période des oscillations trouvées est de $\frac{6.4+1.7}{6} = 1.35$ fs, moyennée sur 6 oscillations. La périodicité n'a donc pas changé.

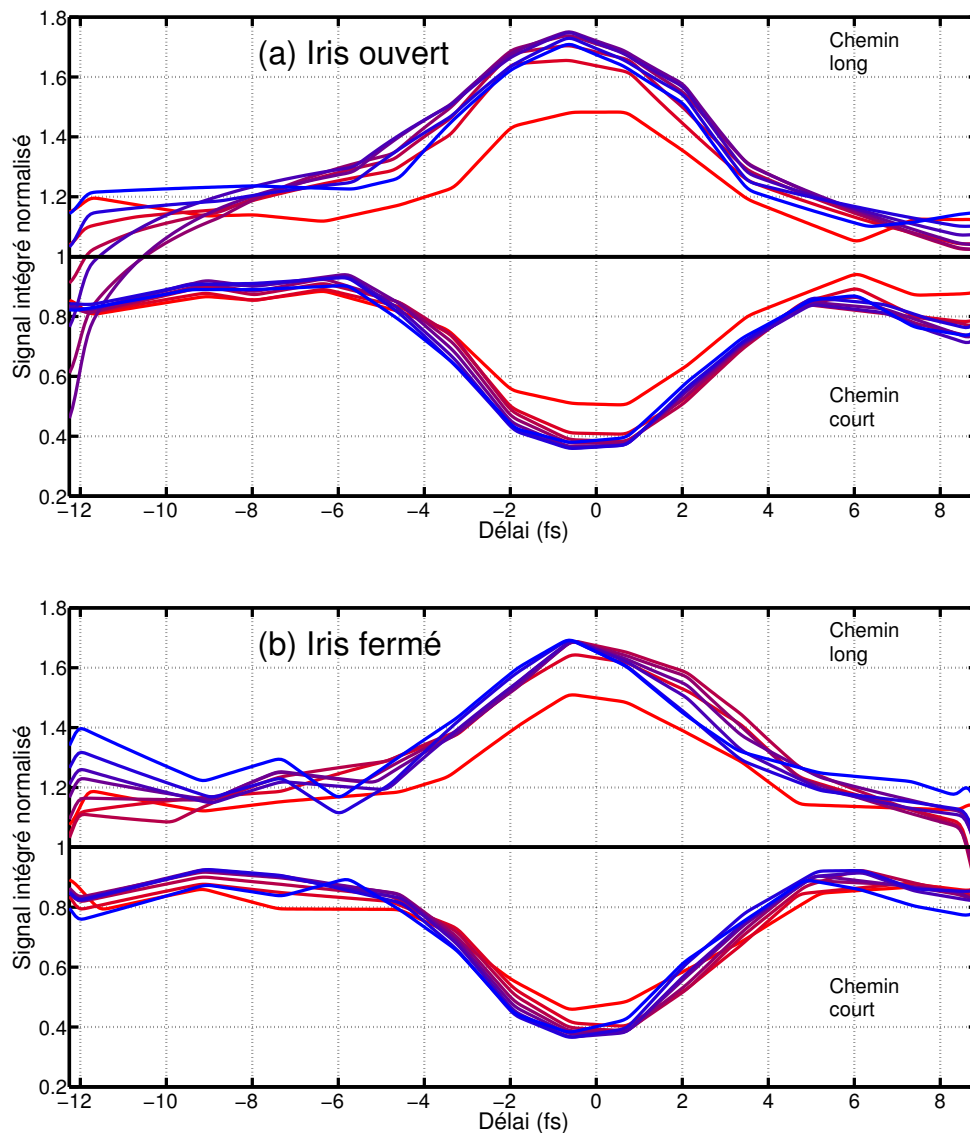


FIGURE 5.36 – Enveloppes basses pour le chemin long et le chemin court en fonction de l'ordre harmonique. Plus la couleur du trait est bleue, plus l'ordre harmonique est grand. Les harmoniques H19 à H33 sont représentées. Les enveloppes basses des chemins longs ont été retournées et décalées en ordonnée. La figure (a) correspond aux enveloppes pour l'iris ouvert, donc l'énergie la plus haute. La figure (b) correspond aux enveloppes pour l'iris fermé, donc l'énergie la plus faible.

De la même manière, on extrait les enveloppes basses pour les mesures à deux énergies différentes, pour deux positions d'iris différentes. La perturbation est laissée

avec une orientation $\theta_{calcite} = 8^\circ$ pour les deux séries de mesures. Les enveloppes basses des signaux intégrés sont présentées dans la Figure 5.36, toujours pour les harmoniques H19 à H33, avec la même méthode de séparation spatiale pour les contributions du chemin long et du chemin court.

La Figure 5.36 montre une évolution régulière de l'enveloppe pour le chemin court et le chemin long. Les temps d'émission associés à la mi-hauteur des enveloppes montrent les mêmes conclusions que précédemment : les harmoniques hautes sont perturbées avant les harmoniques les plus basses dans le front montant. ϵ_{thr} étant similaire pour toutes les harmoniques, les harmoniques hautes devraient être émises après les basses. En ne prenant en compte que la réponse de l'atome unique, on revient à la même conclusion.

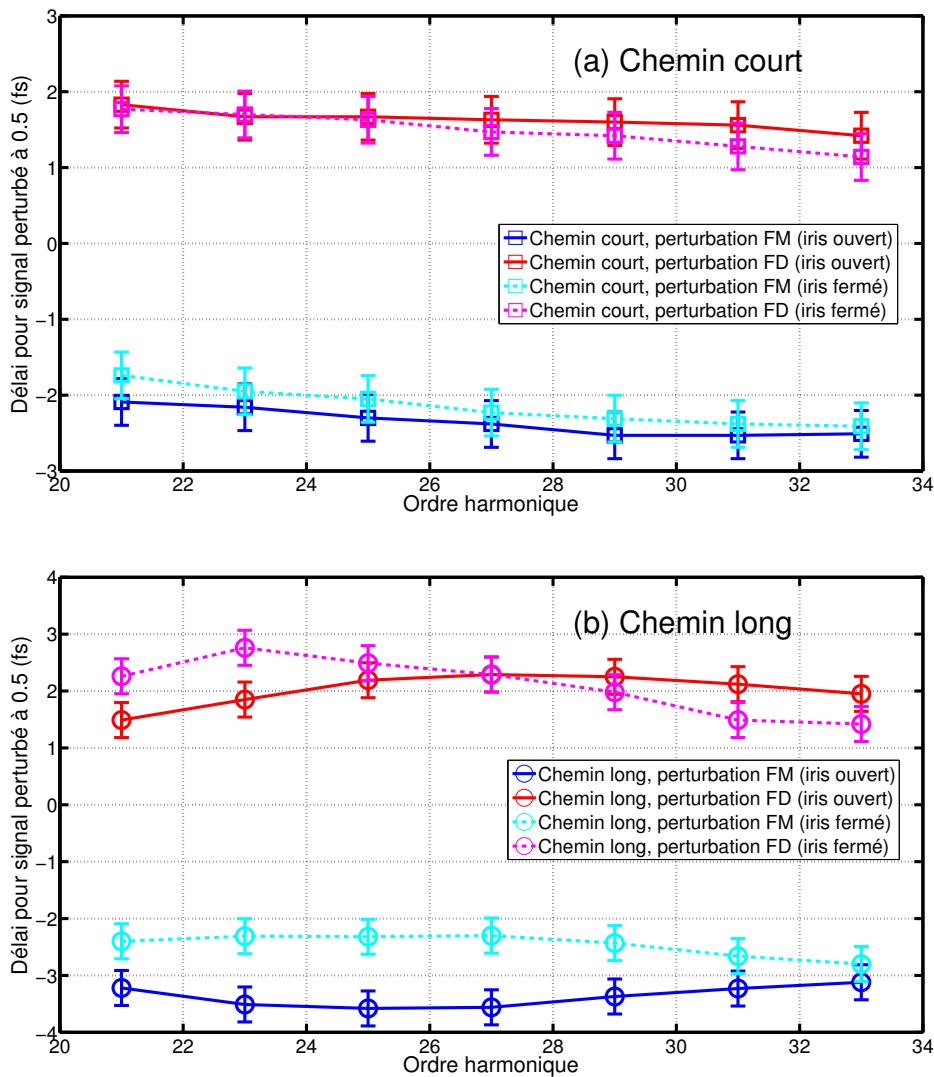


FIGURE 5.37 – Évolution des temps de perturbation à mi-hauteur en fonction de l'ordre harmonique, pour les chemins court (a) et long (b), pour deux ouvertures d'iris. Lorsque l'iris est ouvert, l'énergie d'entrée est plus haute. Le chemin court est représenté symboles carrés, trait plein pour l'iris ouvert, et en symboles carrés, pointillés, pour l'iris fermé. Le chemin long est représenté en symboles ronds, trait plein pour l'iris ouvert et en symboles ronds, pointillés, pour l'iris fermé. Les couleurs bleu et cyan correspond au front montant, et les couleurs rouge et magenta au front descendant.

Pour comparaison, l'étude avec les temps d'émission est effectuée pour ces deux séries de mesures, afin de comparer les changements avec l'énergie de l'impulsion. Les différents temps d'émission pour le chemin court et le chemin long, dans le front montant et le front descendant, pour les deux puissances, sont résumés dans la Figure 5.37. Les temps moyens associés aux temps d'émission à 0.5 ainsi que les durées d'émission moyennes sont dessinés sur la Figure 5.38.

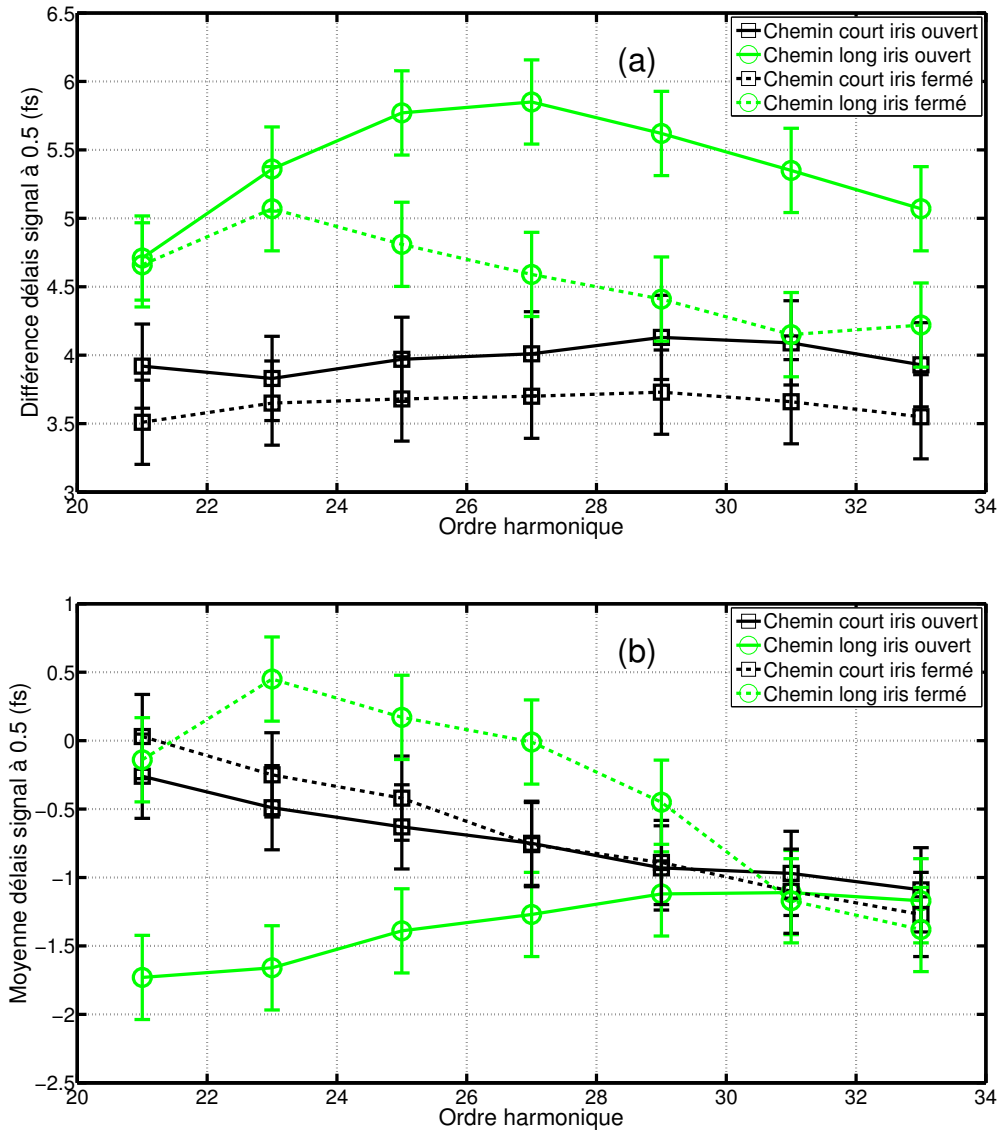


FIGURE 5.38 – Durée d'émission moyenne (a) et temps d'émission moyen (b) en fonction de l'ordre harmonique, pour les deux trajectoires et les deux énergies. Le chemin court est représenté en vert, symboles carrés, trait plein pour l'iris ouvert, et en vert, symboles carrés, pointillés pour l'iris fermé. Le chemin long est représentée en noir, symboles rond, trait plein pour l'iris ouvert et en noir, symboles ronds, pointillés pour l'iris fermé.

En comparant les temps d'émission pour la situation avec l'iris ouvert et la situation avec l'iris fermé, ces temps d'émission sont globalement plus proches du délai 0 lorsque l'iris est fermé, donc que l'intensité pic est plus basse. Cette situation correspond au fait qu'avec un iris fermé, l'intensité pic est plus basse, donc la génération de l'harmo-

nique se fait à des temps plus proches du maximum d'intensité. Pour une énergie plus grande, l'intensité de génération est atteinte plus rapidement, donc les temps d'émission peuvent être plus décalés par rapport au délai 0. Cette conclusion est vérifiée pour les deux trajectoires longues et courtes, comme le montrent les Figure 5.37 (a) et (b).

En ce qui concerne le changement pour la durée d'émission et le temps moyen, la Figure 5.38 montre plusieurs choses. D'une part, la durée d'émission est plus grande pour la situation où l'iris est ouvert, donc avec une énergie d'entrée plus grande. Ceci est vrai pour les deux trajectoires. L'émission du chemin long reste plus longue dans les deux cas, avec un facteur 1.2 à 1.5 entre la durée d'émission du chemin court et celle du chemin long pour les harmoniques.

Pour le temps moyen, la situation avec l'iris fermé montre des temps plus décalés vers le délai 0, avec des temps d'émission similaires pour les harmoniques de la coupure avec iris fermé et iris ouvert. Pour le chemin long, le changement est plus significatif, avec une bonne séparation des temps d'émission entre la situation à iris fermé (temps d'émission moyen entre -0.5 et 0.5 fs pour H21 à H29) et la situation à iris ouvert (temps d'émission moyen entre -2 fs et -1 fs). Le sens d'évolution est aussi inversé. Pour la situation avec l'iris fermé, les temps d'émission décroissent avec l'ordre harmonique pour se rapprocher des temps d'émission de la coupure. Pour la situation avec l'iris ouvert, c'est l'inverse. Le chemin semble donc plus sensible au changement d'énergie d'entrée dans cette mesure.

En conclusion sur cette partie, nous avons eu plusieurs résultats importants :

- Les expériences ont été réalisées avec des impulsions plus courtes de quelques cycles optiques, avec un système plus stable. Les résultats expérimentaux montrent une évolution du spectre similaire aux simulations en Section 5.4.2 et aux paramètres expérimentaux : oscillations retrouvées, signal perturbé au délai 0.
- L'ellipticité critique pour les harmoniques H19 à H33 a été mesurée à nouveau. La comparaison avec la première mesure d'ellipticité du Tableau 3.1 montre des valeurs proches aux barres d'erreurs près. Les valeurs d'ellipticité critiques sont proches à moins de 10% près.
- À partir des enveloppes, une étude de temps d'émission moyens et de durées d'émission relatives a été effectuée. Cette étude a montré des différences entre les deux trajectoires de la génération d'harmoniques, ainsi que des différences lorsque les paramètres expérimentaux ont été changés (énergie d'entrée). Des conclusions cohérentes avec la physique connue de la génération d'harmoniques ont été retrouvées : durées d'émissions du chemin long et du chemin court plus longues pour les harmoniques du plateau que pour les harmoniques de la coupure, temps d'émission moyen décalés dans le front montant, changement des temps d'émission avec changement d'énergie d'entrée. Une conclusion reste néanmoins à expliquer, car les harmoniques les plus hautes sont perturbées avant les harmoniques les plus basses dans le front montant, ce qui laisse penser qu'elles sont émises plus tôt que les harmoniques basses. Cela peut être dû à des effets collectifs. Ce comportement se retrouve à la fois pour le chemin court et le chemin long.
- Le fait de voir directement des différences visuelles sur les enveloppes, en faisant une analyse simple comme précédemment, doit permettre de voir des différences dans les reconstructions des profils temporels harmoniques. Les reconstructions sont évoquées dans la section suivante, avec des essais de reconstruction sur les données de la Section 5.4 dans un premier temps.

5.4.6 Reconstruction d'enveloppes harmoniques à partir de données expérimentales

Dans la Section 5.4.3, un procédé de reconstruction basé sur des méthodes de minimisation et d'inversion de matrice de perturbation a été évoqué. Ce procédé de reconstruction permet de retrouver de manière assez fidèle une zoologie assez étendue de profils temporels XUV simulés, dans des conditions optimales. Les paramètres de minimisation clés sont directement les points d'échantillonnage du profil temporel de l'enveloppe harmonique.

En implémentant cette méthode sur les données expérimentales obtenues à l'ILM, nous avons rencontré plusieurs problèmes, menant à des solutions reconstruites qui n'avaient souvent pas de sens physique : points divergents aléatoires pour des temps au-delà de la durée de l'infrarouge, intensités négatives, zéro d'intensité aléatoire entre deux points consécutifs, inversion de la matrice complexe avec un grand nombre de points.

Ces différents problèmes de reconstruction sur les données expérimentales nous ont amené à simplifier la méthode de reconstruction dans un premier temps. Dans cette partie, nous présentons une simplification de la méthode globale de reconstruction, toujours basée sur la même matrice de perturbation, et adaptée aux données expérimentales.

Comme point de départ, on suppose un type de profil temporel spécifique pour l'harmonique. Par exemple, une Gaussienne asymétrique pour l'enveloppe :

$$I_{XUV}(t, R_0, \tau_0, t_0) = \exp\left(-4 \ln(2) \frac{(t - t_0)^2}{\tau_0^2}\right) \quad \forall t < t_0 \quad (5.18)$$

$$I_{XUV}(t, R_0, \tau_0, t_0) = \exp\left(-4 \ln(2) \frac{(t - t_0)^2}{(R_0 \tau_0)^2}\right) \quad \forall t > t_0 \quad (5.19)$$

avec comme paramètres R_0 le rapport entre les durées des deux branches de la Gaussienne, τ_0 une durée de référence pour une branche, et t_0 le point de jonction entre les deux branches.

À partir de profil temporel supposé pour l'harmonique, le signal XUV perturbé est calculé en multipliant le profil $I_{XUV}(t, R_0, \tau_0, t_0)$ par la matrice de perturbation avec la matrice $M_{i,j}$ définie par :

$$M_{i,j} = \begin{pmatrix} e^{-\gamma \times \epsilon(t_1, \tau_1)^2} & \dots & e^{-\gamma \times \epsilon(t_1, \tau_n)^2} \\ e^{-\gamma \times \epsilon(t_2, \tau_1)^2} & \dots & e^{-\gamma \times \epsilon(t_2, \tau_n)^2} \\ \dots & \dots & \dots \\ e^{-\gamma \times \epsilon(t_n, \tau_1)^2} & \dots & e^{-\gamma \times \epsilon(t_n, \tau_n)^2} \end{pmatrix} \quad (5.20)$$

i l'indice correspondant au délai perturbation/impulsion principale et j l'indice correspondant au temps pour le profil d'intensité. Chacun des coefficients de la matrice $M_{i,j}$ est directement reliée à la forme de la fonction d'efficacité pour un délai τ_i et un temps t_j , et ne dépend que du profil infrarouge et ϵ_{thr} .

Le calcul de la matrice se fait toujours en connaissant le profil temporel de l'impulsion fondamentale, qui permet de calculer l'ellipticité, et donc les éléments de la matrice $M_{i,j}$. Le signal obtenu est noté $S_{XUV,calcul}(\tau, R_0, \tau_0, t_0)$.

L'erreur entre les deux signaux perturbés mesuré expérimentalement et calculé avec les paramètres R_0 , τ_0 et t_0 est calculée par les moindres carrés :

$$Err(R_0, \tau_0, t_0) = \sqrt{\frac{\sum (S_{XUV,mesure} - S_{XUV,calcul})^2}{N}} \quad (5.21)$$

avec N le nombre de points de mesures dans le signal mesuré.

L'idée de l'approche est de trouver, en imposant un type de profil pour l'enveloppe XUV, les paramètres R_0 , τ_0 et t_0 qui minimisent l'erreur $Err(R_0, \tau_0, t_0)$ entre le signal XUV mesuré et le signal XUV obtenu par multiplication de la matrice de perturbation et le profil temporel I_{XUV} . Pour ce faire, on reproduit le comportement d'une boucle de minimisation, en calculant $Err(R_0, \tau_0, t_0)$ pour un ensemble de 3 vecteurs de valeurs :

- Un vecteur de valeurs pour le décalage t_0
- Un vecteur de valeurs pour le ratio R_0
- Un vecteur de valeurs pour la durée τ_0

Ces trois vecteurs définissent l'espace à 3 dimensions des paramètres dans lequel on recherche la solution optimale donnant le signal XUV $S_{XUV,calcul}$ le plus proche du signal mesuré $S_{XUV,mesure}$.

En procédant de cette manière, on contourne artificiellement plusieurs problèmes rencontrés avec la méthode exposée en Section 5.4.3 :

- En utilisant uniquement la matrice $M_{i,j}$ et non pas son inverse, le processus d'inversion de matrice est évité.
- En supposant un profil de départ, les points aberrants possibles sont limités.
- Définir l'espace des solutions dans lequel la minimisation s'effectue permet de chercher uniquement des solutions compatibles, avec une limitation des points de divergence.
- Cette approche globale permet d'éviter les minima locaux, là où les méthodes de minimisation peuvent converger vers un minimum local.

Un exemple de reconstruction par cette procédure est donnée sur la Figure 5.39. Le profil IR utilisé pour la reconstruction est une Gaussienne symétrique de durée $\tau_{IR} = 33$ fs à mi-hauteur. La durée de l'impulsion fondamentale estimée par autocorrélation est de $\tau_{IR} = 32.4$ fs. Les profils XUV associés à ces reconstructions sont aussi donnés sur la même figure. Pour visualiser l'évolution de l'erreur et pour montrer le placement des paramètres, on représente l'évolution de l'erreur sous forme d'une carte 2D en fixant un des trois paramètres au minimum. De cette manière, le minimum d'erreur est bien visible dans les trois coupes de l'espace à 3 dimensions. Un exemple de 3 coupes pour une reconstruction d'un profil temporel d'une harmonique est donnée en Figure 5.40.

Les coupes effectuées dans l'espace à 3 dimensions pour la recherche de l'erreur montrent qu'un minimum pour l'erreur existe, sur les 3 coupes. L'espace des paramètres se situe dans la gamme :

- R_0 : 0.5 à 10 par pas de 0.1
- t_0 : -12 à 12 fs par pas de 0.1 fs
- τ_0 : 3 à 30 fs par pas de 0.5 fs

L'accord entre le signal perturbé et le signal reconstruit est correct, comme le montrent les courbes de la Figure 5.39. En comparant la reconstruction du signal sur la branche droite (délai positif) et sur la branche gauche (délai négatif), l'accord est meilleur sur la branche des délais négatifs. Lors de la minimisation, la reconstruction a tendance à redonner une courbe lissée entre les variations de signal perturbé, comme pour le signal retrouvé sur la branche droite. Avec cette méthode, en se limitant à 3 paramètres et en supposant un type de profil au départ (Gaussienne asymétrique dans notre cas), cela permet de trouver une première estimation et une première reconstruction à partir des signaux perturbés.

En comparant les reconstructions obtenues pour les signaux perturbés et les profils XUV correspondants, on peut observer des similitudes pour H15 et H17, mais un profil XUV différent pour H19. Le profil reconstruit pour H19 est plus long et bien décalé

par rapport aux profils reconstruits pour H15 et H17. Les Gaussiennes pour H15 et H17 sont respectivement centrées à $t = -8$ fs et $t = -8.5$ fs, alors que H19 est centrée à $t = -10$ fs. De plus la durée à mi-hauteur pour H15 et H17 est respectivement $\tau_{XUV} = 20.9$ fs et $\tau_{XUV} = 17.6$ fs, contre $\tau_{XUV} = 34.3$ fs pour H19. La durée retrouvée pour le profil XUV de l'harmonique 19 est au dessus de la durée de l'IR, ce qui est surprenant. Malgré des enveloppes similaires pour les signaux perturbés, les profils reconstruits avec cette approche peuvent donc présenter des différences significatives. La méthode est sensible aux différents paramètres d'entrée, comme ϵ_{thr} , τ_{IR} notamment pour la construction de la matrice d'efficacité. Par exemple, pour une même valeur d'amplitude de perturbation, passer du minimum d'enveloppe de H15 à H17 revient à changer l'ellipticité critique d'à peine 3%, soit en dessous de l'incertitude de mesure des ellipticités critique pour les harmoniques. Cela montre la sensibilité de la technique à ϵ_{thr} , et que la connaissance du profil d'intensité $I_{IR}(t)$ et ϵ_{thr} est cruciale.

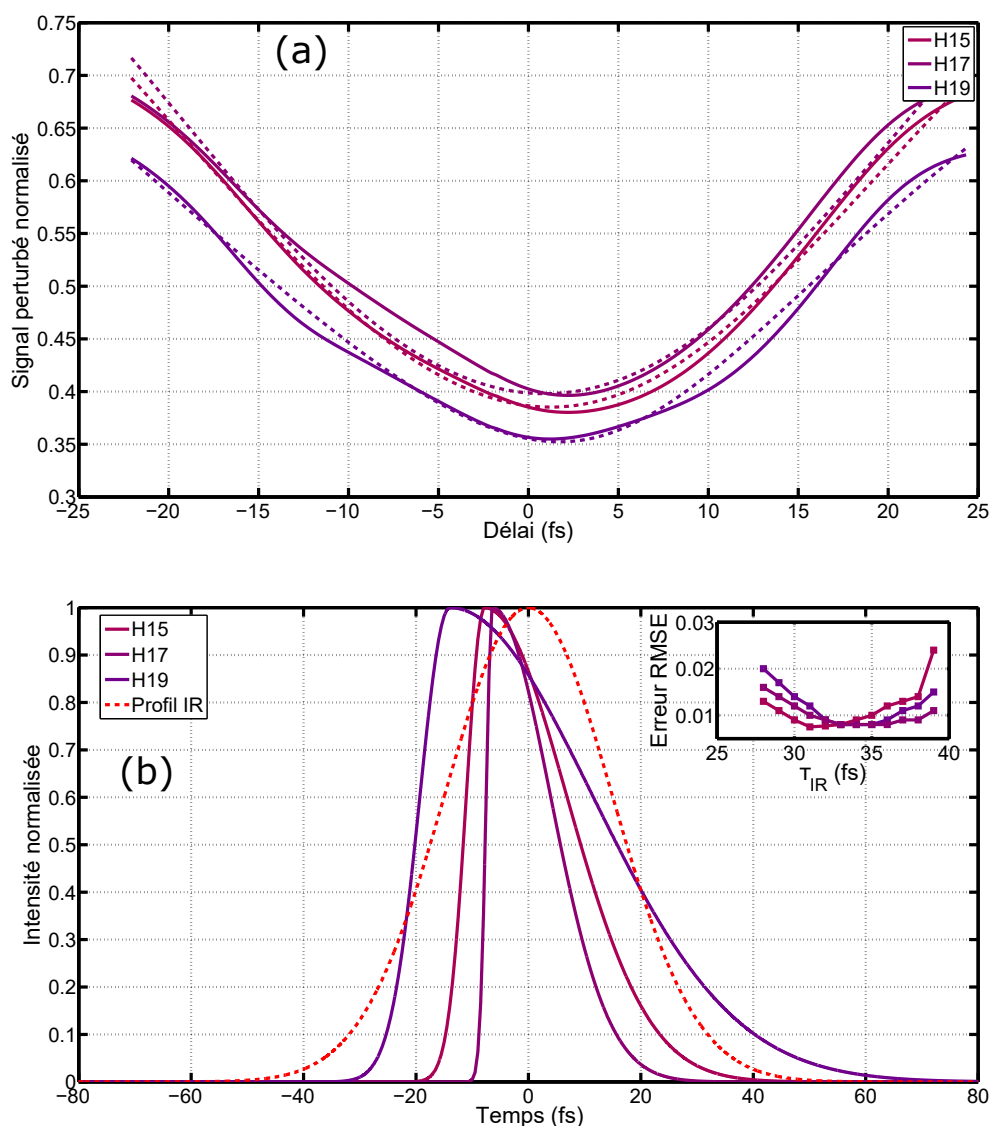


FIGURE 5.39 – (a) signaux perturbés expérimentaux (traits pleins) et retrouvés (traits pointillés) pour les harmoniques 15, 17 et 19. (b) profils XUV pour les harmoniques 15, 17 et 19 en trait plein. Le profil IR utilisé pour construire la matrice d'efficacité est aussi dessiné en pointillés rouges.

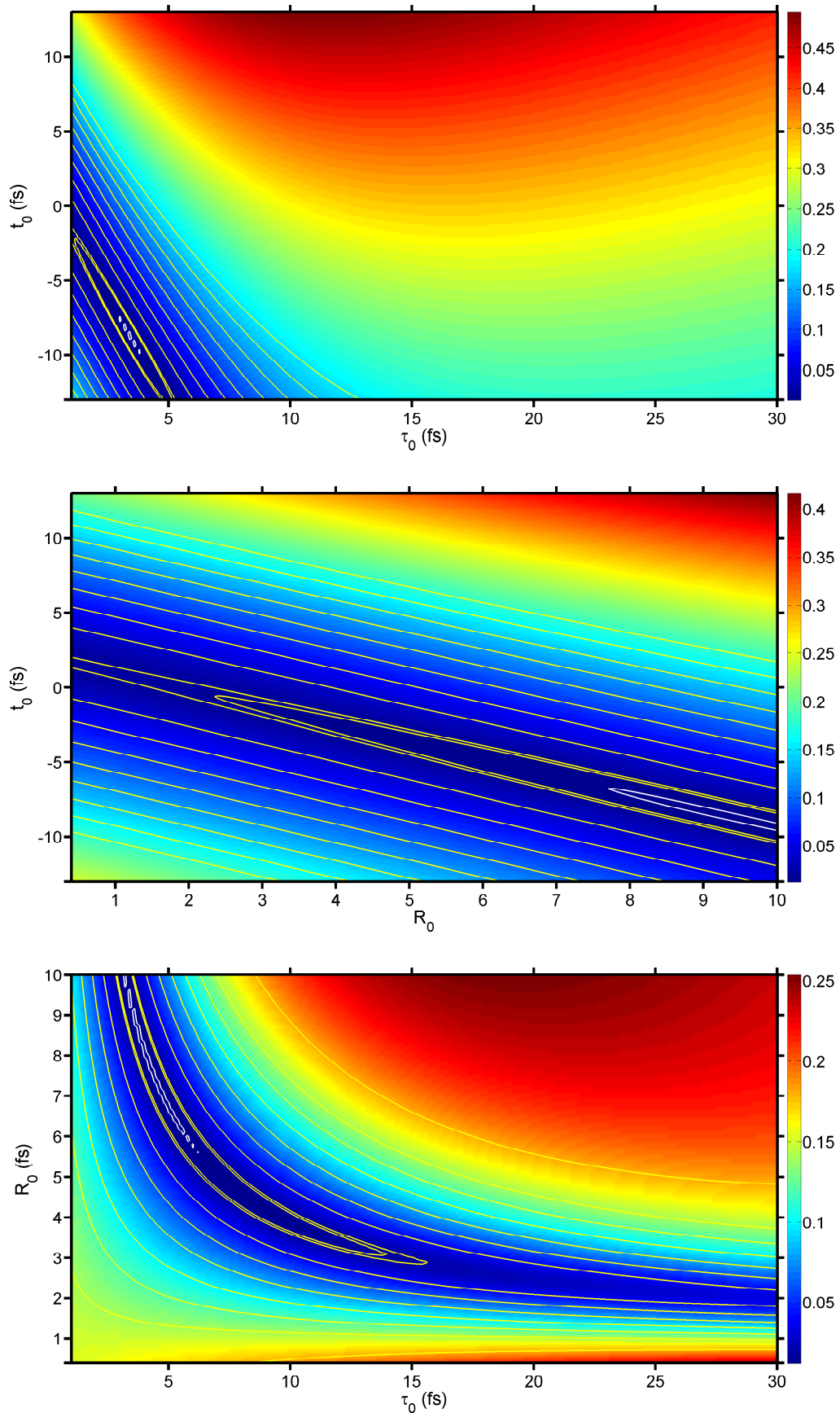


FIGURE 5.40 – Coupes représentant l'évolution de l'erreur pour la reconstruction du profil temporel associé à l'harmonique H17 en fonction de deux paramètres lorsqu'un paramètre est fixe. L'erreur est calculée comme montrée en Équation (5.21), avec $N = 201$. Des contours sont dessinés pour représenter les lignes de niveau d'erreur. Le contour blanc correspond à la zone où l'erreur est inférieure à 1.05 fois l'erreur minimale.

Dans les expériences, il y a toujours une incertitude sur la durée de l'infrarouge. L'évolution de l'erreur minimale obtenue par cette méthode de reconstruction a été testée en fonction de la durée de l'IR, en utilisant les données expérimentales. Pour les harmoniques H15, H17 et H19, l'erreur minimale obtenue sur la reconstruction est dessinée en Figure 5.41, en fonction de la durée de l'infrarouge τ_{IR} . L'évolution de l'erreur présente bien un minimum pour H15, H17 et H19, autour des durées 32 à 35 fs pour l'IR. La durée mesurée à l'autocorrélation était de 32.6 fs. On a donc choisi une durée d'infrarouge proche de la mesure d'autocorrélation, et qui était dans la gamme dans laquelle l'erreur était minimale, soit $\tau_{IR} = 33$ fs. Cette étude confirme le fait que la connaissance du profil infrarouge est cruciale pour cette mesure.

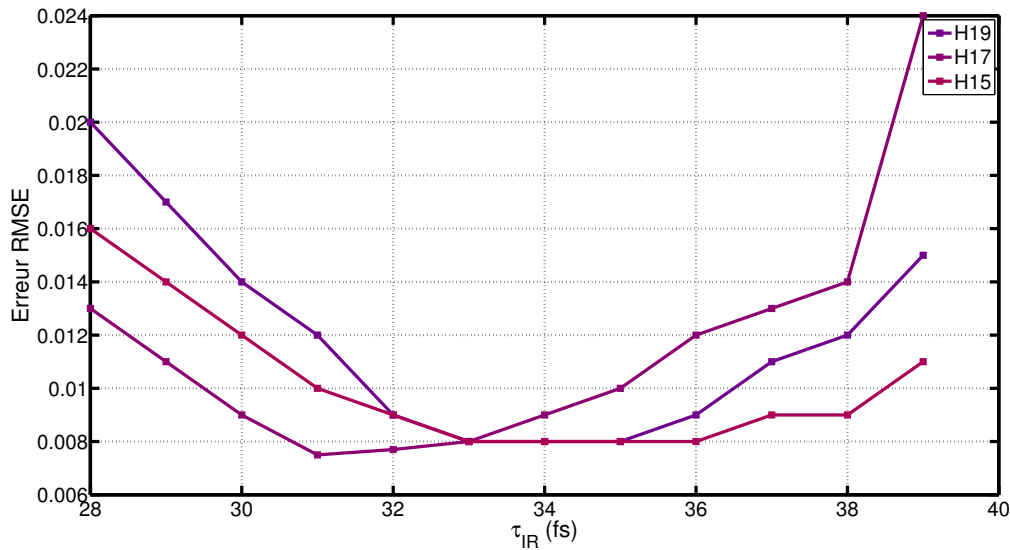


FIGURE 5.41 – Évolution de l'erreur minimale pour la reconstruction des profils XUV, à partir des données expérimentales, pour les harmoniques H15, H17 et H19, en fonction de la durée de l'infrarouge τ_{IR} .

Les reconstructions obtenues pour H15, H17 et H19 donnent une première estimation en durée et en temps moyen d'émission avec la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité. En conclusion sur cette partie :

- La méthode basée sur l'inversion de la matrice ne fonctionne pas aussi simplement avec les données expérimentales qu'avec les données simulées. Les problèmes peuvent venir de la connaissance de l'infrarouge, de la sensibilité aux paramètres comme ϵ_{thr} , ou encore du nombre de points d'échantillonnage.
- Nous avons redéveloppé une approche plus simple du problème, en réduisant au maximum le nombre de paramètres, et en supposant un type de profil au départ (Gaussienne asymétrique). La reconstruction se base toujours sur la construction de la matrice d'efficacité et le signal perturbé (enveloppe minimale).
- Des reconstructions ont pu être extraites à partir des résultats expérimentaux, avec un accord correct sur les signaux perturbés retrouvés pour trois harmoniques H15, H17 et H19. Les profils retrouvés pour H15 et H17 sont assez proches, avec des durées quasi-similaires et un décalage temporel similaire. Le profil H19 est beaucoup plus long, avec une durée proche de celle de l'IR.

Cette première approche permet d'avoir des premières reconstructions, et les perspectives sont multiples :

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

- Revenir à avoir les points d'échantillonnage en tant que paramètres pour l'algorithme de minimisation. Avec cette méthode, l'hypothèse d'avoir un type de profil en particulier : Gaussienne, Lorentzienne etc. n'a plus lieu d'être, ce qui permet d'avoir un algorithme plus généralisé. Ces approches sont sensibles aux conditions initiales. En imposant le type de profil, on part d'une condition initiale correcte.
- Dans toutes ces analyses, on se focalise sur l'enveloppe minimale des oscillations pour retrouver le profil temporel de l'XUV. Pour aller plus loin, reconstruire les oscillations, voir la carte complète de mesure peut être une option. Cela permet d'utiliser beaucoup plus d'informations et de s'affranchir du bruit, en utilisant tous les points de mesures, et non plus les points de mesure qui correspondent aux déphasages $\frac{\lambda}{4}$, avec des algorithmes de type FROG CRAB [35] ou encore de ptychographie [70, 163]. Les interférences entre les différentes harmoniques, lorsque ces dernières sont assez larges spectralement, pourraient permettre de remonter aux déphasages relatifs entre harmoniques consécutives, et non plus reconstruire uniquement le profil femtoseconde des harmoniques, mais aussi le profil attoseconde à partir du spectre et du déphasage. Ces méthodes reposent néanmoins sur la génération d'une carte de spectres harmoniques avec perturbation, donc dépendantes du modèle utilisé pour simuler la génération d'harmoniques d'ordres élevés (dipôle modèle, SFA).

5.5 Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

5.5.1 Introduction à la méthode SWING XUV

Dans la Section 5.4, la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité présentait l'utilisation d'une petite perturbation, décalée temporellement par rapport à l'impulsion principale pour caractériser le profil temporel de l'XUV. On pouvait alors déplacer une porte d'ellipticité par rapport à l'impulsion principale, et ainsi perturber la génération d'harmoniques à différents instants à l'intérieur du profil d'intensité. Cette méthode permet de retrouver le profil femtoseconde des harmoniques XUV à partir de l'évolution du signal perturbé en fonction du délai. L'amplitude de la perturbation était laissée constante, et le paramètre variable était le délai entre la perturbation et l'impulsion principale. Dans cette partie, on s'intéresse à l'effet contrapposé, en regardant l'impact d'une perturbation à délai constant, mais d'amplitude variable. Cette méthode s'inspire de la méthode SWING [66, 67, 173], développée pour la caractérisation d'impulsion femtoseconde. Le phénomène observé pour y retrouver le profil temporel des impulsions femtosecondes IR est la génération de seconde harmonique via un cristal doubleur. Le signal doublé est observé en fonction de l'amplitude de la perturbation elliptique.

Pour la méthode SWING XUV, le phénomène non linéaire est directement la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Le but est de retrouver le profil temporel femtoseconde des harmoniques en perturbant son émission. Pour se faire, on crée une perturbation par modulation d'ellipticité à délai constant, et on fait varier son amplitude par rapport à l'amplitude de l'impulsion principale. Ainsi, faire varier l'ellipticité et la variation induite par cette ellipticité permet de perturber différentes parties de l'impulsion XUV. La biréfringence permet de créer une réplique d'amplitude variable décalée

temporellement sans trop modifier l'impulsion principale. Avec une lame multiordre épaisse, une réplique est créée à un délai relié à l'épaisseur de la lame. L'amplitude de la réplique est définie par l'orientation des axes neutres de la lame par rapport à la polarisation linéaire incidente. Les amplitudes sur les deux axes seront $E_x = E_0 \sin(\theta_{MO})$ et $E_y = E_0 \cos(\theta_{MO})$. L'amplitude relative de la perturbation est définie par $\tan(\theta_{MO})$, et le délai τ donne le décalage temporel perturbation/impulsion principale. La polarisation de la réplique est croisée avec celle de l'impulsion principale. Le profil d'ellipticité est modulé temporellement et son amplitude change avec l'orientation des axes de la lame épaisse par rapport à la polarisation incidente linéaire.

Deux situations sont alors possibles, selon si l'impulsion principale se propage selon l'axe rapide ou l'axe lent :

- La perturbation est située dans le front montant de l'impulsion principale. Ce front est majoritairement perturbé par la perturbation, dès les petites amplitudes de perturbation. Le front descendant est plus légèrement perturbé, uniquement pour de grandes amplitudes de perturbation.
- La perturbation est située dans le front descendant de l'impulsion, et la situation est inversée. Le front descendant est alors perturbé pour des petites amplitudes de perturbation, et le front montant, plus légèrement perturbé, le sera pour de plus grandes amplitudes de perturbation.

En faisant deux mesures pour ces deux positions de la perturbation, le profil temporel de génération XUV dans le front montant et dans le front descendant peut être retrouvé tout en utilisant de faibles perturbations.

La forme de la fonction d'efficacité dépendante de l'ellipticité reste la même, mais elle dépend de θ_{MO} , car τ est fixé :

$$G_{eff}(t, \tau, \theta_{MO}) = \exp\left(-\ln(2) \frac{\epsilon(t, \tau, \theta_{MO})^2}{\epsilon_{thr}^2}\right) \quad (5.22)$$

avec $\tan(\theta_{MO})$ l'amplitude relative de la perturbation par rapport à l'impulsion principale.

L'évolution de la fonction d'efficacité est donnée pour trois orientations θ_{MO} différentes en Figure 5.42. Les calculs sont effectués avec une impulsion fondamentale de 30 fs, un délai δ de 12 fs, et un déphasage introduit par la lame multiordre de $\frac{\lambda}{4}$. L'importance du déphasage sera discuté dans une autre section.

Sur la Figure 5.42, l'évolution de la fonction d'efficacité montre bien que l'on perturbe une partie de l'émission, qui varie avec θ_{MO} . On remarque que le front descendant est aussi légèrement perturbé, mais pour des orientations θ_{MO} qui donnent des perturbations non négligeables.

Pour perturber faiblement les conditions de génération, nous avons choisi de ne pas changer l'intensité de l'impulsion principale de plus de 10% par exemple. Soit $\cos(\theta_{MO})^2 > 0.90$. Donc, la condition pour rester dans le régime perturbatif est $\theta_{MO} > \arccos(\sqrt{0.9})$, soit $\theta_{MO} < 18,55^\circ$.

Le délai entre la perturbation et l'impulsion principale est choisi proche de la moitié de la durée de l'impulsion principale. Pour une impulsion de durée $\tau_{IR} = 30$ fs, le délai δ jugé optimal sera de 15 fs. La perturbation est alors localisée à mi-hauteur dans un front ou dans l'autre dans le cas d'un profil symétrique. L'importance du déphasage correspondant au délai δ introduit sera discuté par la suite.

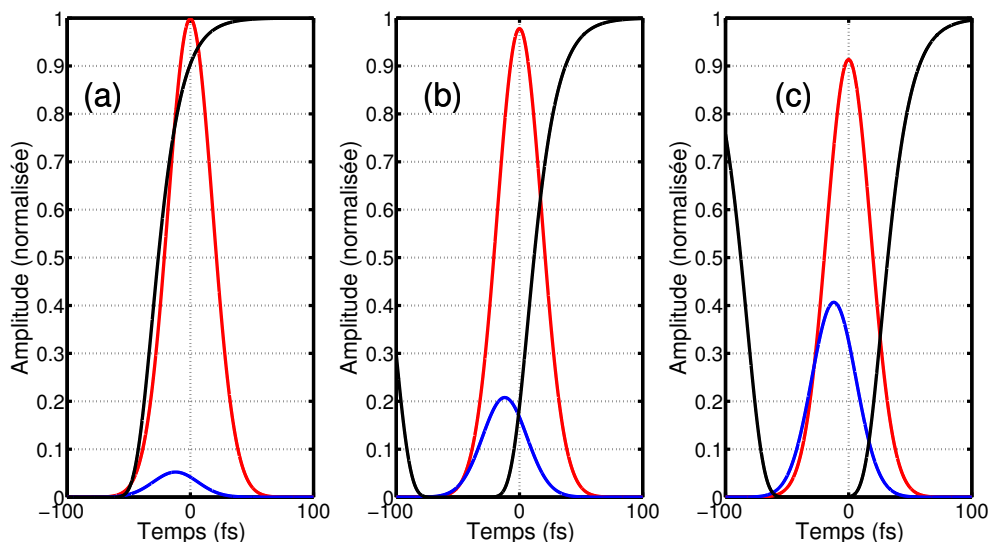


FIGURE 5.42 – Évolution temporelle de la perturbation et de l'impulsion principale pour trois orientations θ_{MO} de la lame multiordre. La perturbation est ici dessinée en trait plein bleu, l'impulsion principale en trait plein rouge et la fonction d'efficacité G_{eff} en trait plein noir. Respectivement, les orientations θ_{MO} sont : 3° (a) , 12° (b) et 24° (c). Le déphasage de la multiordre est de $\frac{\lambda}{4}$. On a $\tau_{IR} = 30$ fs et $\delta = 12$ fs.

5.5.2 Réalisation expérimentale de mesures XUV SWING avec une lame multiordre épaisse

Pour réaliser les mesures et expériences XUV SWING, le montage expérimental utilisé à l'ILM est similaire à celui donné en Figure 3.7. La différence réside dans les lames utilisées avant l'entrée de la chambre de génération d'harmoniques. Pour avoir une polarisation linéaire, l'impulsion incidente est transmise par une lame en calcite ayant ses axes horizontaux et verticaux. Par la suite, une seule lame multiordre épaisse suffit pour l'expérience. L'orientation des axes neutres de cette lame par rapport à la polarisation incidente est nommée θ_{MO} .

La pression de néon dans le capillaire est ajustée à 450 mbar, pour avoir un effet d'élargissement spectral. La durée des impulsions IR est minimisée via un système comprenant des miroirs chirpés et des prismes en silice. La durée typique des impulsions τ_{IR} est ici de $\tau_{IR} = 17.8$ fs. La durée des impulsions est vérifiée par mesure Dscan et par autocorrelation. La lame multiordre épaisse utilisée est une lame d'épaisseur $0.383 \mu\text{m}$, introduisant un délai de 12.3 fs à 800 nm. La génération d'harmoniques se fait dans une cellule de gaz d'argon, de 6 mm de longueur. La pression dans la cellule est de 33 mbar. Le spectre est observé via un spectromètre XUV champ plan en sortie.

Pour une mesure, un demi-tour est effectué : $\theta_{MO} \in [-45 : 135]^\circ$. L'évolution du spectre harmonique en fonction de l'orientation θ_{MO} est donnée en Figure 5.43.

La Figure 5.43 montre une évolution en cadran pour le spectre XUV, avec un premier cadran $[-45 : 45]^\circ$ et un deuxième cadran $[45 : 135]^\circ$. L'énergie centrale des harmoniques change avec θ_{MO} , avec un décalage vers les fréquences rouges dans les zones $\theta_{MO} \in [-45 : 45]^\circ$ et un décalage vers les fréquences bleues dans les zones $[45 : 135]^\circ$. Ce décalage se définit par une forme de "demi-lune" dans le spectrogramme présenté en Figure 5.43. Cette forme est plus visible sur le spectrogramme en échelle logarithmique. Elle est expliquée par le positionnement de la perturbation dans le front

montant ou descendant de l'impulsion principale.

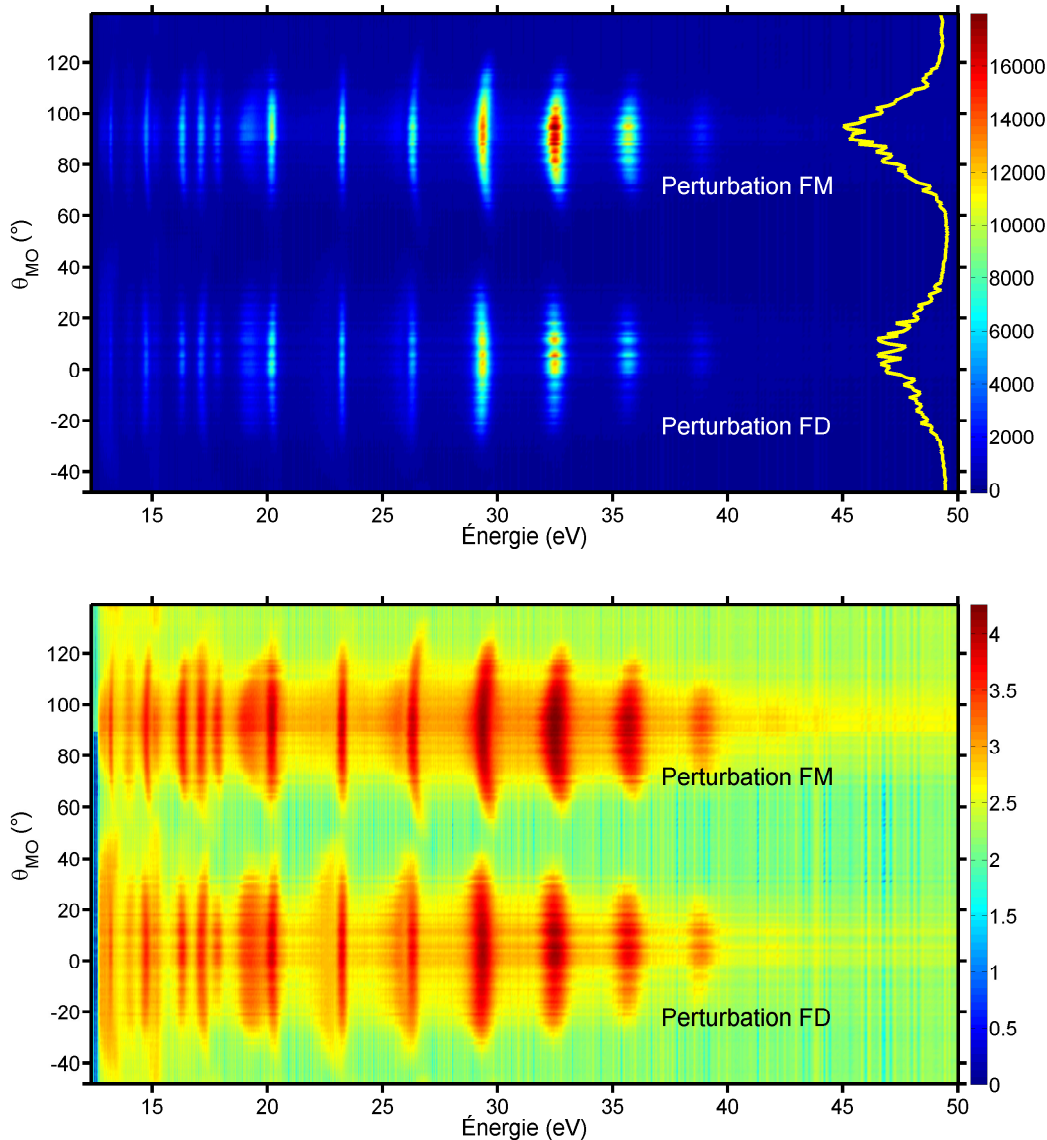


FIGURE 5.43 – Spectrogramme en fonction de l'orientation θ_{MO} de la lame multiordre épaisse. Le signal intégré spatialement est dessiné en jaune. Le premier spectrogramme est l'intégration spatiale directe des images spatio-spectrales obtenues avec le spectromètre champ plan. Le deuxième spectrogramme est l'affichage du premier spectrogramme en échelle log pour faire ressortir les petits signaux. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 17.8$ fs. Le délai introduit, à 800 nm, par la lame multiordre d'épaisseur 0.383 mm est de 12.3 fs.

Pour la zone $\theta_{MO} \in [-45 : 45]^\circ$, l'impulsion principale est polarisée selon l'axe lent de la lame. La perturbation se propage donc selon l'axe rapide et se trouve dans le front montant de l'impulsion. Dans le front montant, les fréquences harmoniques se décalent vers les fréquences rouges. Avoir la perturbation dans le front montant réduit le signal associé à ces composantes (décalées vers le bleu, énergies plus hautes) et favorise comparativement les fréquences plus rouges, d'où le décalage des fréquences vers le rouge dans le cadran $\theta_{MO} \in [-45 : 45]^\circ$.

Dans le cadran $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$, le phénomène est inversé. L'impulsion principale

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

est polarisée selon l'axe rapide, donc la perturbation se situe dans le front montant de l'impulsion, ce qui favorise cette fois la disparition des fréquences rouges.

Sur le signal intégré spectralement et spatialement dessiné en jaune sur la Figure 5.43, il y a des oscillations rapides d'un point à l'autre. Ces oscillations rapides peuvent être dues à des instabilités du pointé de faisceau ou encore des variations légères de pression dans la zone d'interaction. Les parois de la cellule étant fraîchement percées lors de cette expérience, la pression dans la zone d'interaction a pu mettre un peu plus de temps à se stabiliser. Pour s'affranchir de ces fluctuations rapides, le signal intégré est lissé par lissage Gaussien (voir Figure 5.44). Ce signal intégré est aussi appliqué pour chaque harmonique présente dans le spectre.

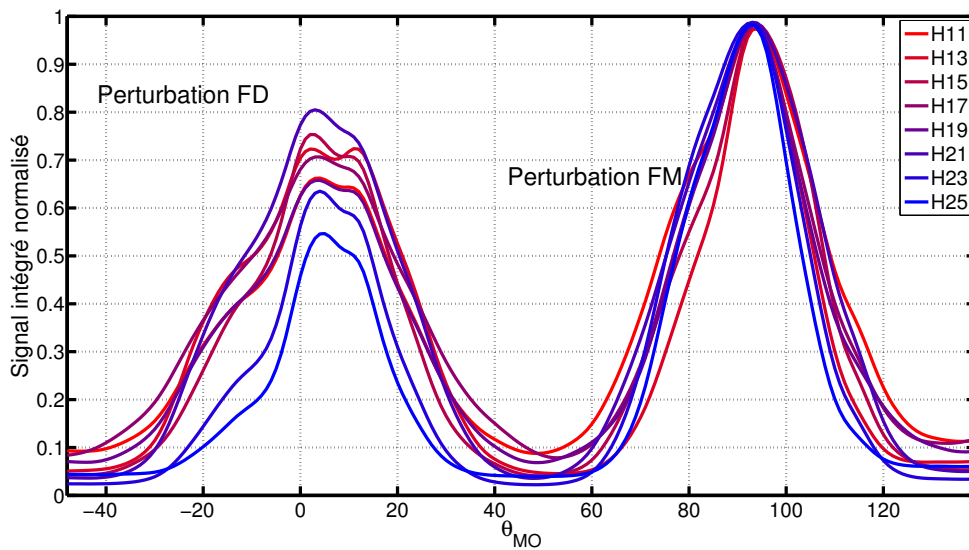


FIGURE 5.44 – Évolution des signaux intégrés harmonique par harmonique en fonction de θ_{MO} . Le signal intégré a été lissé avec un lissage Gaussien sur 3 points pour s'affranchir des fluctuations rapides. L'acquisition s'est faite avec un pas de 1° entre chaque point.

L'évolution des signaux intégrés pour chaque harmonique est donnée en Figure 5.44. Une asymétrie est présente entre les deux pics du signal intégré. Or, le maximum des pics doit correspondre aux situations où l'on a une situation sans perturbation. Pour 0° sur la figure, l'axe lent de la lame est horizontal. Pour 90° , l'axe rapide de la lame est horizontal. Il ne doit donc pas y avoir d'asymétrie entre les deux situations pour les maxima. Cette augmentation du signal/asymétrie peut être due au fait qu'en ayant des parois fraîchement percées, les fluctuations du pointé ont continué à usiner le trou d'entrée et de sortie de la cellule pour atteindre une situation "stable" au cours de l'expérience. Dans cette situation, l'alignement et la pression locale varie, ce qui peut induire des fluctuations lentes de signal. En effet, la durée d'un scan est d'environ 1h30/1h45, avec un pas de 1° entre chaque spectre pour l'orientation θ_{MO} .

Une autre asymétrie est présente entre les deux cadrans $[-45 : 45]^\circ$ et $[45 : 135]^\circ$ sur la Figure 5.44, au niveau de la largeur à mi-hauteur des pics. La largeur à mi-hauteur du pic dans le cadran $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$ diminue quand l'ordre harmonique augmente. Deux facteurs peuvent intervenir ici. Les harmoniques hautes sont perturbées plus rapidement car elles sont générées à des intensités plus hautes que les harmoniques les plus basses. Ces intensités hautes sont rapidement perturbées par l'augmentation de

l'amplitude de la perturbation, alors que les intensités les plus basses le sont moins au départ, donc les harmoniques les plus basses peuvent encore être générées.

Les harmoniques les plus hautes sont aussi plus sensibles à l'ellipticité introduite que les harmoniques basses, comme montré en Section 3.1.2, avec une ellipticité critique de 16% pour les harmoniques les plus basses comme H9, à une ellipticité critique de 10% pour les harmoniques les plus hautes comme H23. De ce fait, pour une même amplitude de perturbation/même ellipticité, une harmonique élevée est plus perturbée qu'une harmonique basse. Cela explique la disparition plus rapide du signal intégré pour les harmoniques de plus haut ordre en Figure 5.44.

L'évolution de l'énergie centrale des harmoniques est caractérisée par une demi-lune, orientée vers les fréquences rouges ou les fréquences bleues lorsque l'on a respectivement la perturbation dans le front montant ou dans le front descendant. Cette évolution change en fonction de l'ordre harmonique, en termes de décalage spectral et aussi de direction. L'évolution de l'énergie centrale pour chaque harmoniques est donnée en Figure 5.45.

Sur la Figure 5.45, l'énergie centrale des harmoniques change bien avec l'orientation θ_{MO} pour les harmoniques H17 à H23. Le décalage en énergie est de 250 meV. Pour certaines harmoniques, notamment les harmoniques H13 et H15, l'énergie centrale est peu affectée par θ_{MO} .

Dans le Chapitre 3, un changement de fréquence centrale XUV se produit lorsque l'on déplace la porte dans un front de l'impulsion. Le sens du changement de fréquence est donné par le front dans lequel la porte se trouve. Lorsque la porte de polarisation se trouve dans un front, l'émission est confinée autour du centre de la porte. Le changement de fréquence est alors expliqué par le changement de phase $\alpha_q I$ dans la phase des harmoniques émises.

La situation avec SWING est similaire à celle de la porte de polarisation. Ici, la perturbation vient confiner l'émission à un des fronts de l'impulsion en annihilant l'émission des harmoniques dans le front opposé. En limitant la génération d'harmoniques à un front, l'explication du décalage lié à un changement de fréquence avec la phase $\alpha_q I$ est encore valable. Le comportement reste effectivement le même, avec un décalage vers des fréquences plus élevées lorsque la perturbation se trouve dans le front descendant (génération avec une phase $\frac{\partial(\alpha_q I)}{\partial t} > 0$), et un décalage vers les fréquences plus basses lorsque la perturbation se trouve dans le front montant (génération avec une phase $\frac{\partial(\alpha_q I)}{\partial t} < 0$).

Le fait d'observer un changement de fréquence centrale quasi-nul se rapproche de la situation observée en Section 3.3, où un changement de signe de α_q permet d'avoir une transition $\alpha_q < 0$ vers $\alpha_q > 0$ quand l'ordre harmonique augmente. Sur la Figure 5.45, la figure zoomée permet de comparer le comportement pour différentes harmoniques et différentes contributions. Pour les harmoniques les plus hautes, représentées par les ordres 2 du réseau, le décalage en fréquence est retrouvé, avec un changement de fréquence de même direction pour les ordres 2 des harmoniques H17, H19, H21 et H23.

Pour l'harmonique 13, les contributions des trajectoires longues et courtes sont bien séparées spatialement et spectralement. Le changement de fréquence centrale est plus grand pour la contribution de la trajectoire longue que pour la contribution de la trajectoire courte. La trajectoire courte de l'harmonique 13 ne montre pas de changement notable de fréquence centrale. Le changement de fréquence centrale pour la trajectoire longue est de 500 meV (sur $\theta_{MO} \in [60, 115]^\circ$), contre 250 meV (sur $\theta_{MO} \in [60 : 115]^\circ$) pour les trajectoires courtes des harmoniques H17 à H23. Cela rejoint l'explication avec la phase $\alpha_q I$ des harmoniques, où le α_q est bien plus grand pour les trajectoires longues

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

que pour les courtes.

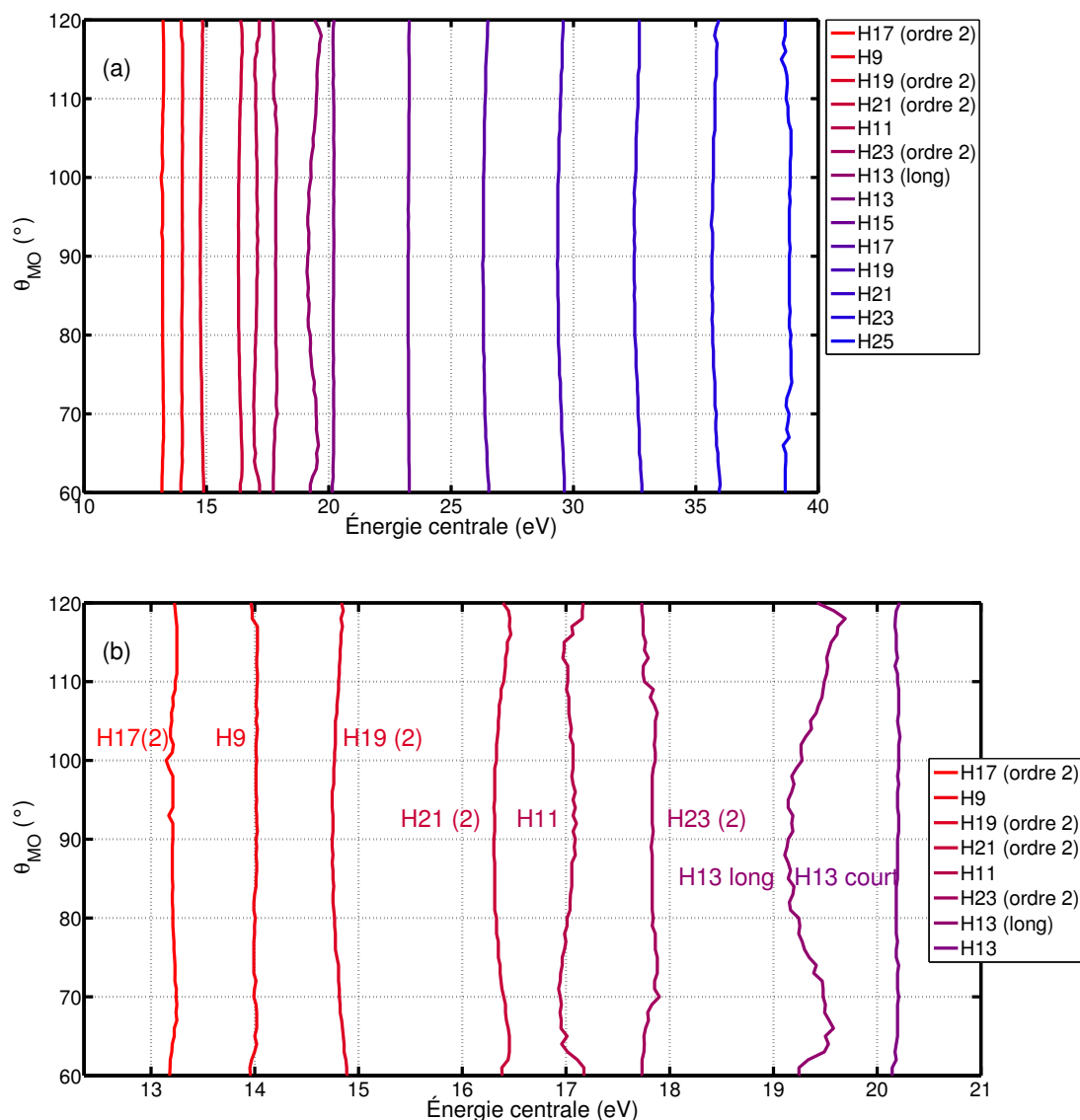


FIGURE 5.45 – (a) Évolution de l'énergie centrale des harmoniques et ordre 2 des harmoniques en fonction de θ_{MO} pour $60^\circ < \theta_{MO} < 120^\circ$. L'énergie centrale est calculée comme l'énergie moyenne du pic harmonique dans le spectre. (b) Zoom sur les harmoniques les plus basses et les ordres 2 des harmoniques de plus hauts ordres. Le chemin long de l'harmonique H13 est aussi indiqué sur la courbe zoomée.

Pour finir, le changement de fréquence n'est pas de même sens pour les harmoniques hautes (ordres 2 sur la figure zoomée en Figure 5.45) et les harmoniques basses, en particulier pour H11. On ne considère pas l'harmonique H9 car elle est en dessous du potentiel d'ionisation dans l'argon ($I_p = 15.75$ eV), donc dans un régime de génération différent. L'harmonique H11 est elle juste au dessus du potentiel d'ionisation ($I_p = 15.75$ eV). Sur la Figure 5.45, le sens de variation d'énergie centrale en fonction de θ_{MO} est inversé entre H11 et H21 & H23. Ici, on a $\frac{\partial I}{\partial t}$ qui en change pas de signe, car la perturbation se trouve pour le même instant d'émission pour toutes les harmoniques. Avoir un changement de sens d'évolution d'énergie centrale via $\alpha_{app} \frac{\partial I}{\partial t}$ signifie donc avoir un changement de signe de α_{app} , ce qui peut être le cas lorsque l'intensité de

génération correspond à un α_{app} négatif pour une harmonique, mais α_{app} positif pour une harmonique de la coupure, comme montré en Figure 3.25. On retrouve donc une situation où l'on pourrait observer des $\alpha_{app} < 0$.

L'expérience est répétée dans les mêmes conditions expérimentales, mais avec une intensité plus faible. L'intensité est diminuée en fermant un iris en amont, réduisant le flux incident sur le miroir de focalisation. L'évolution du spectre harmonique en fonction de θ_{MO} pour une intensité plus faible est donnée en Figure 5.46.

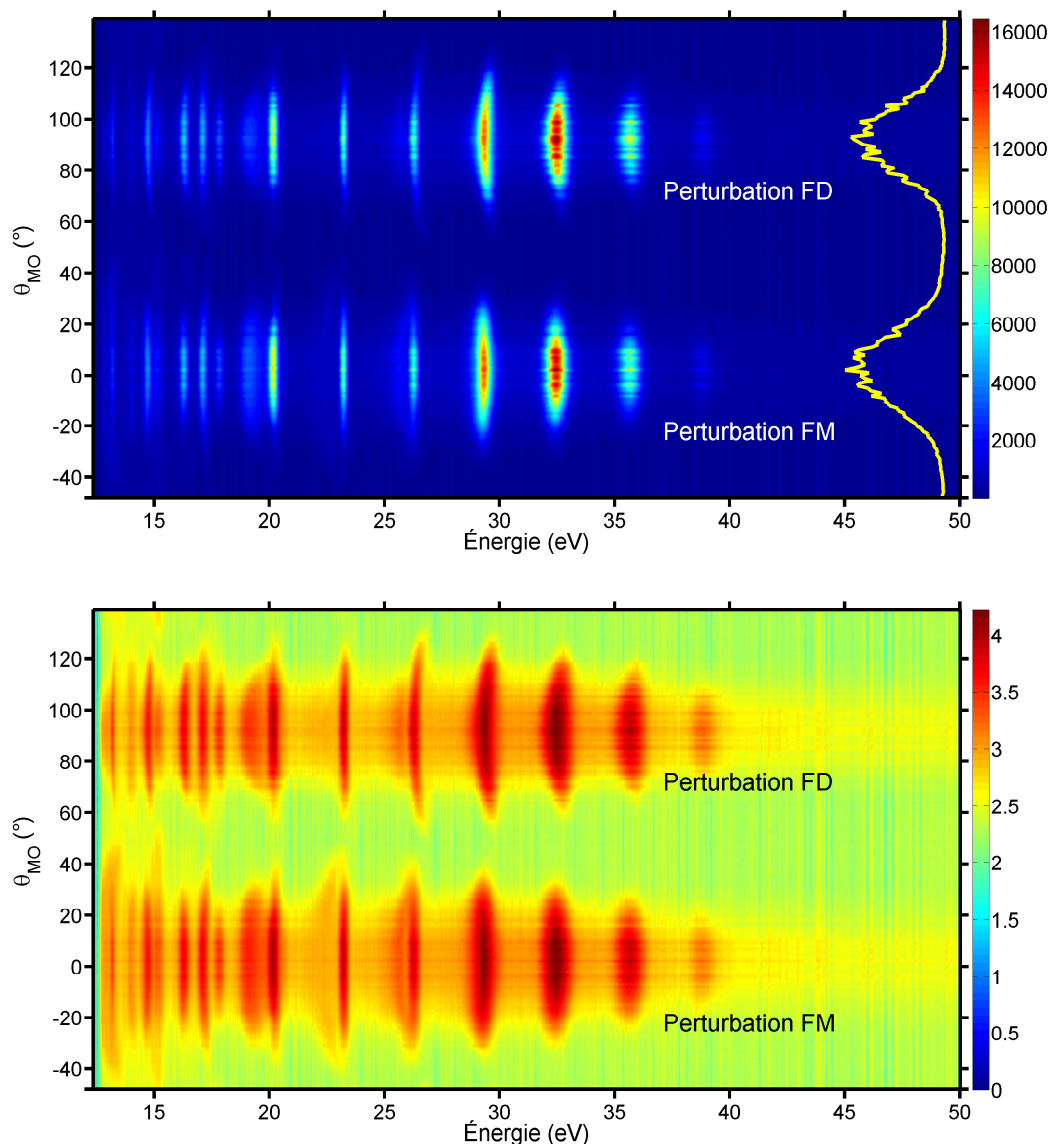


FIGURE 5.46 – Spectrogramme en fonction de l'orientation θ_{MO} de la lame multiordre épaisse. Le signal intégré spatialement est dessiné en jaune. Le premier spectrogramme est l'intégration spatiale directe des images spatio-spectrales obtenues avec le spectromètre champ plan. Le deuxième spectrogramme est l'affichage du premier spectrogramme en échelle log pour faire ressortir les petits signaux. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec des impulsions de durées $\tau_{IR} = 17.8$ fs. Le délai introduit, à 800 nm, par la lame multiordre d'épaisseur 0.383 mm est de 12.3 fs. L'intensité a été réduite en fermant un iris en amont de l'entrée de la chambre de génération.

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

L'évolution du spectre XUV similaire à celle observée en Figure 5.43. Les formes de "demi-lunes" sont toujours présentes, avec le même sens d'évolution de la fréquence centrale avec θ_{MO} . Les fréquences rouges sont bien perturbées avec un signal moins efficace lorsque la perturbation se trouve dans le front montant pour $\theta_{MO} \in [-45 : 45]^\circ$, et inversement pour les fréquences bleues lorsque la perturbation est dans le front descendant, soit $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$.

Le signal intégré dessiné en jaune sur la Figure 5.46 montre une meilleure symétrie entre les deux pics. De la même manière, le signal intégré harmonique par harmonique est observé. L'évolution de ce signal pour chaque harmonique est donnée en Figure 5.47.

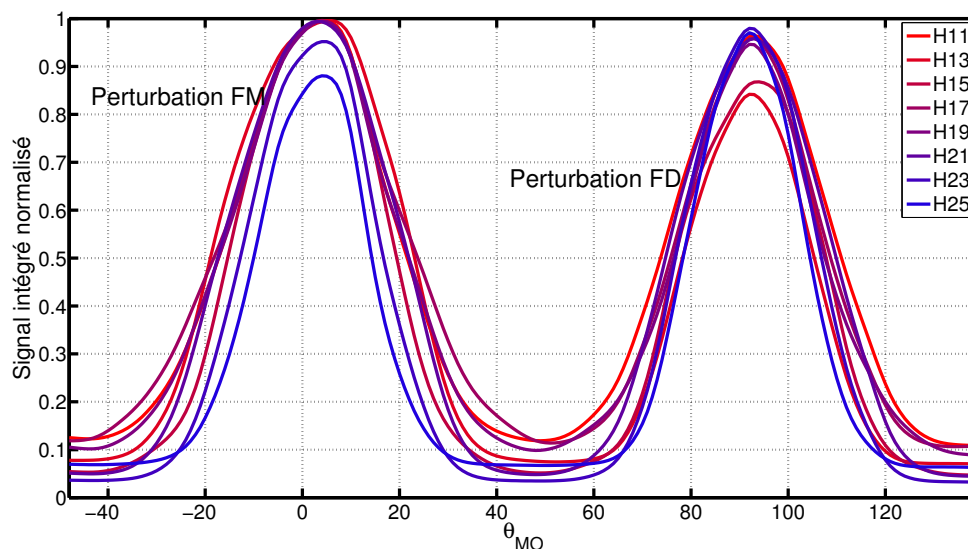


FIGURE 5.47 – Évolution des signaux intégrés harmonique par harmonique en fonction de θ_{MO} . Le signal intégré a été lissé avec un lissage Gaussien sur 3 points pour s'affranchir des fluctuations rapides. L'intensité a été réduite en fermant un iris en amont de l'entrée de la chambre de génération.

Sur la Figure 5.47, avoir une intensité plus basse semble jouer sur l'asymétrie du signal intégré (largeur à mi-hauteur et valeur maximale) front montant/front descendant pour la perturbation. Ici, la symétrie entre les maxima des deux pics est bien meilleure, et le signal est maximal pour chaque harmonique pour un même angle $\theta_{MO} = 0^\circ$ et $\theta_{MO} = 90^\circ$, respectivement pour les deux pics. La largeur à mi-hauteur $\Delta\theta_q$ évolue aussi avec l'ordre harmonique, avec une largeur à mi-hauteur plus faible pour les harmoniques de plus haut ordre. L'évolution de largeur à mi-hauteur pour les deux pics de la Figure 5.47 est donnée en Figure 5.48.

De manière globale, la largeur à mi-hauteur des pics diminue avec l'ordre harmonique. Cette évolution a été expliquée précédemment par l'ellipticité critique et les intensités de génération pour les harmoniques les plus hautes.

Sur la Figure 5.49, le comportement de l'énergie centrale décrit avec la perturbation en début de section est retrouvé sur l'évolution de la fréquence moyenne. Le changement est plus prononcé pour les harmoniques H17 à H23, avec un changement d'énergie centrale de l'ordre de 250 meV pour $\theta_{MO} \in [60 : 115]^\circ$. Pour les harmoniques H13 et H15, l'énergie centrale est quasi constante malgré le changement de θ_{MO} .

Le zoom effectué sur les ordres 2 du réseau et sur les harmoniques basses permet à nouveau de voir les différences dans les évolutions d'énergie centrale entre deux harmoniques. Le comportement est similaire à celui observé pour la série de mesures

précédente, donnée en Figure 5.45. Les changements d'énergie centrale sont significatifs dans $-20^\circ \leq \theta_{MO} \leq 20^\circ$. La Figure 5.49 montre un changement de sens d'évolution de l'énergie centrale entre les harmoniques de plus bas ordre et les harmoniques de la coupure. L'énergie centrale des harmoniques H13 et H15 reste très peu affectée par l'évolution de l'amplitude de la perturbation, pour le chemin court. L'amplitude de changement de fréquence centrale est ici de 200 meV pour les ordres 2 qui représentent les harmoniques de la coupure.

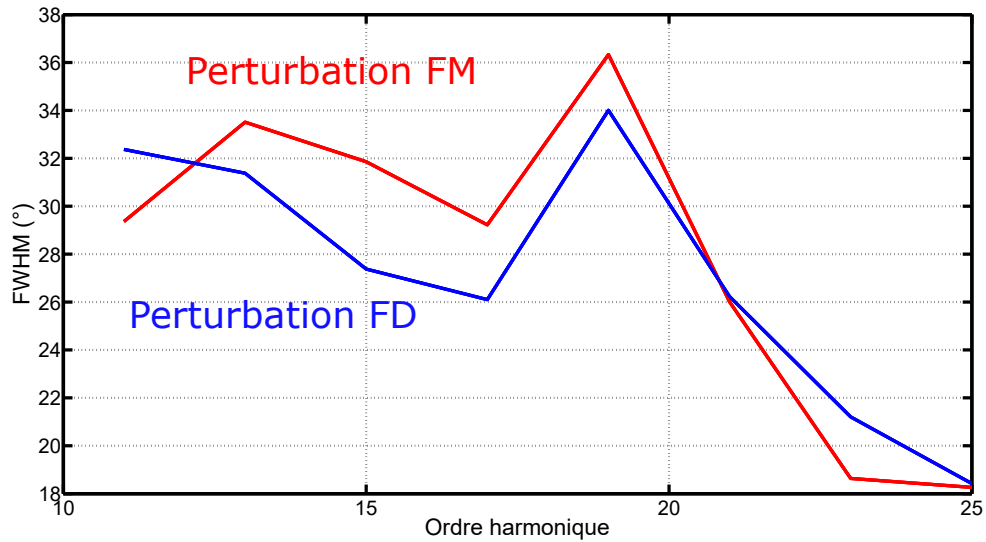


FIGURE 5.48 – Évolution de la largeur $\Delta\Theta_q$ à mi-hauteur du signal intégré pour chaque harmonique en fonction de l'ordre. Les harmoniques prises en compte ici sont les harmoniques H11 à H25. L'évolution pour le premier pic pour $\theta_{MO} \in [-45 : 45]^\circ$ est dessinée en rouge, et celle pour le deuxième pic pour $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$ en bleu.

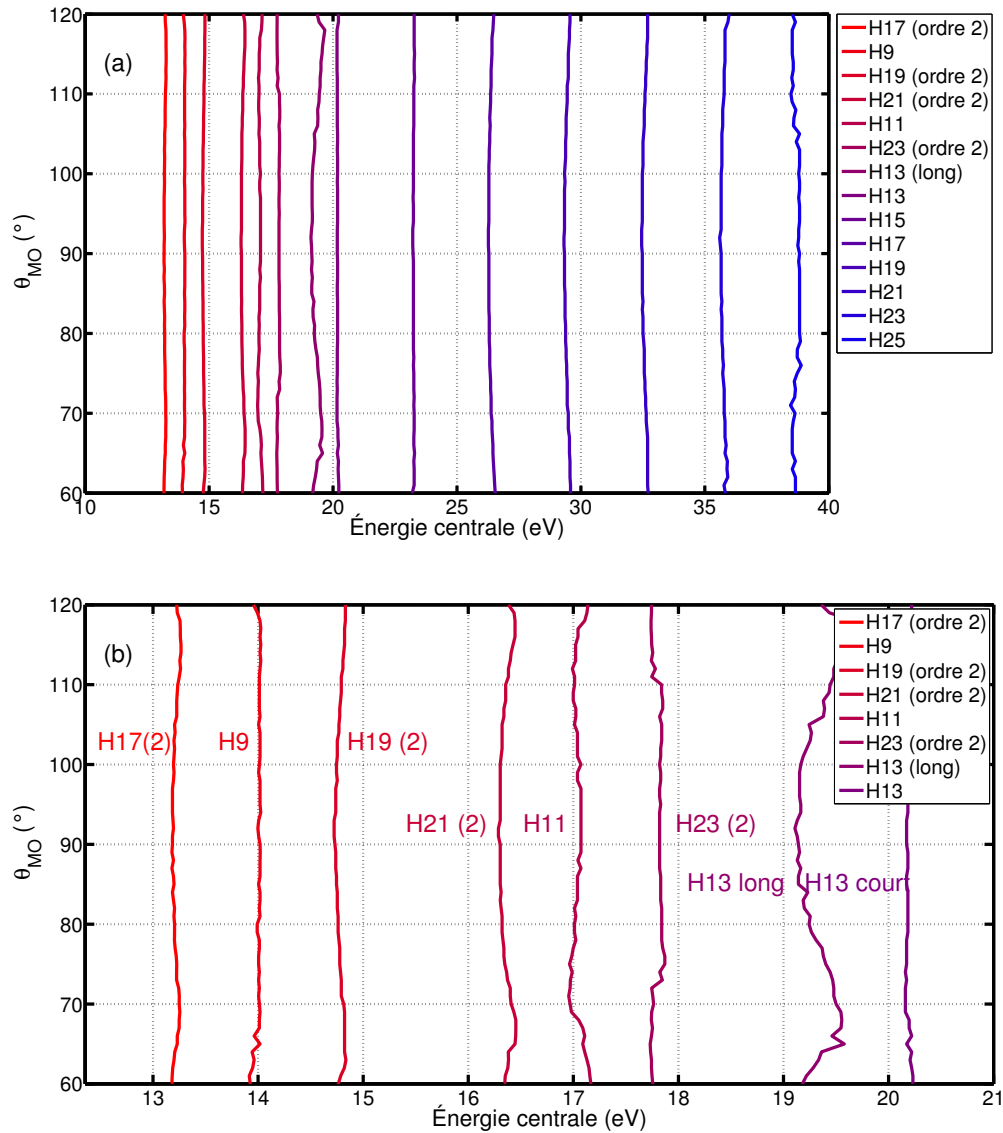


FIGURE 5.49 – (a) Évolution de l'énergie centrale des harmoniques et ordre 2 des harmoniques en fonction de θ_{MO} . L'énergie centrale est calculée comme l'énergie moyenne du pic harmonique dans le spectre. (b) Zoom sur les harmoniques les plus basses et les ordres 2 du réseau, qui correspondent à des harmoniques de plus haut ordre.

5.5.3 Influence du déphasage sur la mesure XUV SWING

Dans la partie Section 5.5.2, la lame épaisse était considérée avec un déphasage $\frac{\lambda}{4}$. Dans les simulations, pour avoir une perturbation maximum, le déphasage $\frac{\lambda}{4}$ est primordial. Néanmoins, ce déphasage change avec la longueur d'onde et la lame utilisée. Pour un même spectre, le déphasage ne sera pas le même pour toutes les longueurs d'onde. Il est important de limiter le chirp pour pouvoir considérer une longueur d'onde moyenne pour tout t , donc un même déphasage moyen pour tout t . En modifiant le déphasage, le comportement de l'ellipticité est lui aussi modifié, donc la mesure XUV SWING doit être modifiée également. L'influence du déphasage doit donc être vérifiée expérimentalement.

L'idée de l'expérience est la suivante. Le déphasage introduit par une lame épaisse

est proportionnel à son épaisseur pour un même matériau. En changeant l'épaisseur de quartz traversée, le déphasage peut être ajusté. Pour changer l'épaisseur de quartz, la lame multiordre épaisse est installée sur une platine de rotation, et on change l'angle d'incidence $\theta_{platine}$. Le montage pour la mesure SWING est ensuite légèrement modifié, avec l'ajout d'une lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro entre la lame de calcite et la lame multiordre épaisse. La mesure se fait en deux temps :

- Une première mesure avec les axes neutres de la lame de calcite et de la lame $\frac{\lambda}{2}$ horizontaux et verticaux. Les axes neutres de la lame multiordre sont tournés de 45° par rapport à l'horizontale. Le signal harmonique est ensuite observé en fonction de l'angle de la platine de rotation. Cela permet de trouver les différentes positions pour lesquelles on obtient un déphasage précis. La position de la platine de rotation est identifiée par l'angle $\theta_{platine}$.
- La lame $\frac{\lambda}{2}$ permet de tourner l'orientation de la polarisation par rapport aux axes de la lame multiordre épaisse. Les axes neutres de la lame multiordre épaisse sont horizontaux et verticaux pour pouvoir effectuer la mesure XUV SWING. Dans ce cas de figure, c'est l'orientation de la polarisation qui tourne par rapport aux axes neutres de la lame multiordre et non l'inverse comme dans la Section 5.5.2.

Le montage expérimental utilisé est toujours celui décrit en Figure 3.7. Le capillaire est pompé à vide. Les impulsions fondamentales ont une durée de $\tau_{IR} = 32$ fs. La lame multiordre épaisse a une épaisseur de $e = 0.383$ mm, pour un délai introduit de 12.3 fs à 800 nm. La focale du miroir est de $f = 60$ cm. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon de 6 mm de longueur, avec une pression de cellule de 30 mbar. Le spectre harmonique est observé à l'aide d'un spectromètre XUV champ plan. L'évolution du spectre harmonique est donnée en Figure 5.50. La gamme dans laquelle le scan est effectué se situe entre -30° et 30° , le faisceau étant coupé au-delà.

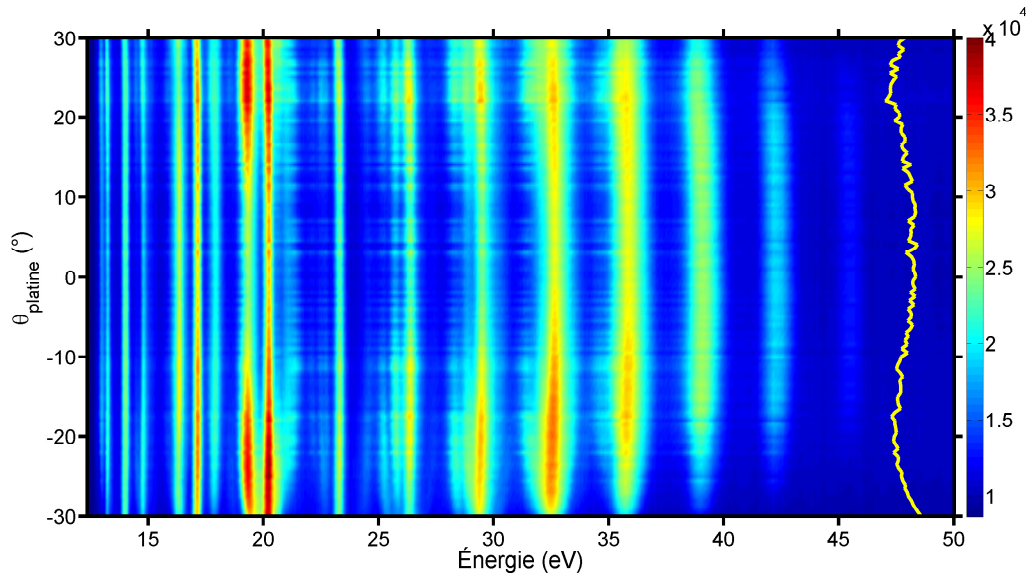


FIGURE 5.50 – Évolution du spectre XUV en fonction de $\theta_{platine}$, donc du déphasage introduit par la lame multiordre épaisse. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en jaune. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec une pression de cellule de 30 mbar. La lame multiordre a une épaisseur de 0.383 mm, pour un délai introduit de 12.3 fs à 800 nm.

Le signal intégré spatialement et spectralement montre une position avec un minimum autour de $\theta_{platine} = 0^\circ$, et deux maxima autour de $\theta_{platine} = \pm 20^\circ$. Dans

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

cette situation, on considère que le déphasage est de $\frac{\lambda}{4}$ pour les positions $\theta_{platine} = 0^\circ$ et $\theta_{platine} = 8^\circ$. L'incidence normale se situe autour de 4° . De manière similaire, le maximum de signal correspond à la perturbation la plus faible, donc là où l'on a un déphasage de $\frac{\lambda}{2}$. Pour identifier ces positions remarquables de manière plus précise, une intégration harmonique par harmonique est faite pour le signal intégré. Le signal intégré spatialement et spectralement pour chaque harmonique du spectre XUV est donnée en Figure 5.51.

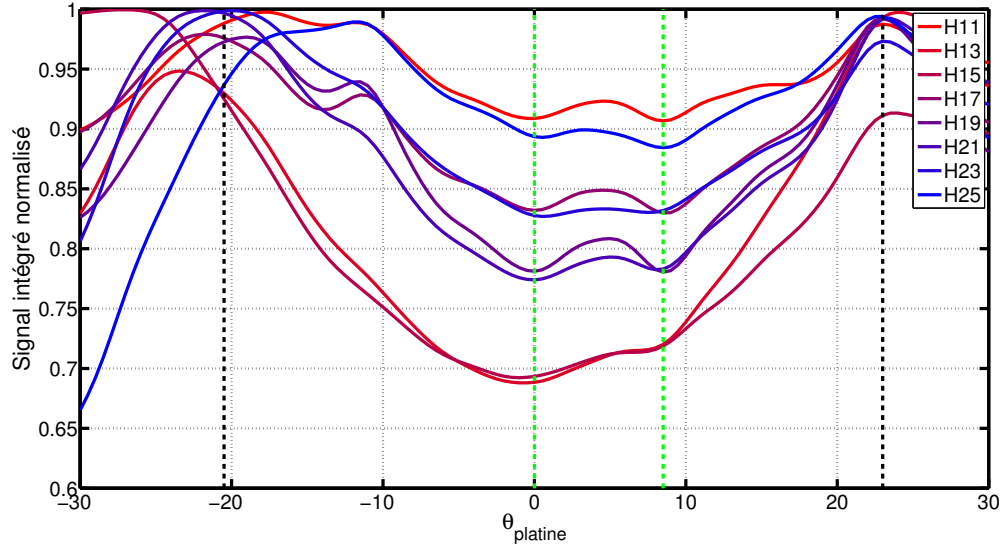


FIGURE 5.51 – Évolution du signal intégré spatialement et spectralement pour chaque harmonique en fonction de $\theta_{platine}$, donc le déphasage introduit par la lame multiorde épaisse. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon, avec une pression de cellule de 30 mbar. La lame multiorde a une épaisseur de 0.383 mm, pour un délai introduit de 12.3 fs à 800 nm. Deux lignes de pointillés noirs représentent les positions $\theta_{platine}$ pour lesquelles le signal est maximum, donc le déphasage est de $\frac{\lambda}{2}$. Deux lignes de pointillés verts représentent les positions pour lesquelles on a un déphasage $\frac{\lambda}{4}$.

La Figure 5.51 montre une évolution similaire du signal intégré spatialement et spectralement pour toutes les harmoniques entre H11 et H25. Les positions pour lesquelles le déphasage de la lame correspond à $\frac{\lambda}{2}$ est la position pour laquelle signal harmonique est maximum. Ces deux positions remarquables sont dessinées en pointillés noirs sur la Figure 5.51, respectivement à $\theta_{calcite} = -20.5^\circ$ et $\theta_{platine} = +23^\circ$. La position pour laquelle le déphasage est considéré comme $\frac{\lambda}{4}$ se situe pour le minimum de signal, soit autour de $\theta_{platine} = 0^\circ$.

Avec les mesures montrées en Figure 5.50 et Figure 5.51, les positions des déphasages $\frac{\lambda}{2}$ et $\frac{\lambda}{4}$ sont connues. On peut maintenant comparer des mesures XUV SWING pour différents déphasages en faisant une mesure à ces positions identifiées pour $\theta_{calcite}$:

- $\theta_{platine} = 0^\circ$, pour un déphasage $\frac{\lambda}{4}$ avec une perturbation qui est maximum
- $\theta_{platine} = 23^\circ$, pour un déphasage $\frac{\lambda}{2}$ avec une perturbation minimum
- $\theta_{platine} = 15^\circ$, pour un déphasage intermédiaire entre $\frac{\lambda}{4}$ et $\frac{\lambda}{2}$.

Le délai sera lui aussi légèrement changé avec le changement d'orientation $\theta_{platine}$, car l'épaisseur traversée ne sera pas la même. Soit e l'épaisseur mesurée à incidence

normale, l'épaisseur réelle après rotation est notée $e_{\theta_{platine}}$, on a alors :

$$e_{\theta_{platine}} = \left| \frac{e}{\cos(i_2)} \right| = \left| \frac{e}{\cos\left(\text{asin}\left(\frac{n_1}{n_2} \sin(\theta_{platine})\right)\right)} \right| \quad (5.23)$$

avec $i_2 = \text{asin}\left(\frac{n_1}{n_2} \sin(\theta_{platine})\right) = 19^\circ$, n_1 l'indice de réfraction de l'air et n_2 l'indice de réfraction du quartz.

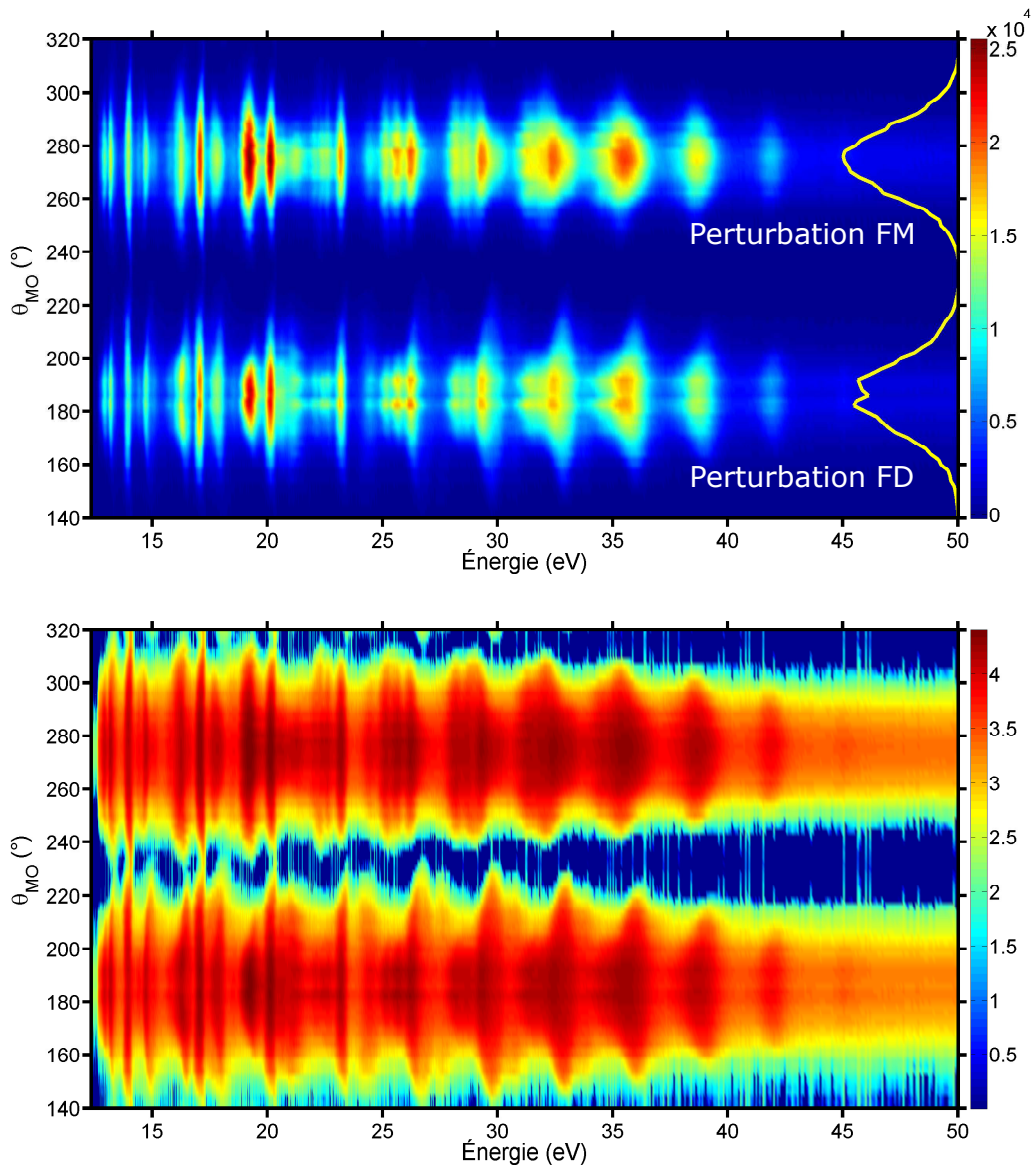


FIGURE 5.52 – Évolution du spectre XUV en fonction de $\theta_{MO} = 2\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en jaune en vertical. Le spectrogramme en échelle log est donné sur la figure du dessous également. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. La platine de rotation est fixe à $\theta_{platine} = 0^\circ$, pour un déphasage $\frac{\lambda}{4}$. Le délai introduit est de 12.3 fs.

Le délai de référence pour une épaisseur e en incidence normale est de 12.3 fs, contre 13 fs pour $\theta_{platine} = \pm 30^\circ$. La durée des impulsions étant de 32 fs, le délai ne change pas drastiquement par rapport à la durée de ces dernières, la perturbation reste proche de la demi-largeur à mi-hauteur du profil d'intensité de l'impulsion fondamentale. Les

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

situations peuvent être considérées comme similaires, avec uniquement le déphasage qui change.

Pour effectuer les mesures XUV SWING, les axes de la lame multiordre épaisse sont verticaux et horizontaux. La position de la platine $\theta_{platine}$ est fixée pour un déphasage. L'orientation des axes neutres de la lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro est changée pour tourner l'orientation de polarisation en entrée de la lame multiordre. Le système de génération est le même, avec une cellule d'argon de 6 mm de longueur, avec une pression de cellule de 30 mbar. La durée des impulsions est la même, avec $\tau_{IR} = 32$ fs. La variable de la mesure n'est donc plus directement θ_{MO} mais $\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$. L'observable reste la même, le spectre XUV.

La première position étudiée est celle pour un déphasage $\frac{\lambda}{4}$, soit $\theta_{platine} = 0^\circ$. L'évolution du spectre XUV en fonction de $\theta_{MO} = 2\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$ est donnée en Figure 5.52. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en jaune. La relation entre θ_{MO} et $\theta_{\frac{\lambda}{2}}$ est directe, avec un facteur 2 entre les deux de par les propriétés d'une lame demi-onde d'ordre zéro. Tourner l'orientation de la polarisation par rapport aux axes neutres de la lame multiordre revient à tourner l'orientation des axes neutres de la lame multiordre pour une orientation de polarisation fixe.

Le comportement du spectre XUV est similaire à celui observé en Figure 5.43 et Figure 5.46. L'évolution de l'énergie centrale des harmoniques est similaire, avec les formes de demi-lunes de sens opposé pour des orientations θ_{MO} espacées de 90° .

L'évolution du signal intégré pour chaque harmonique est donnée en Figure 5.53.

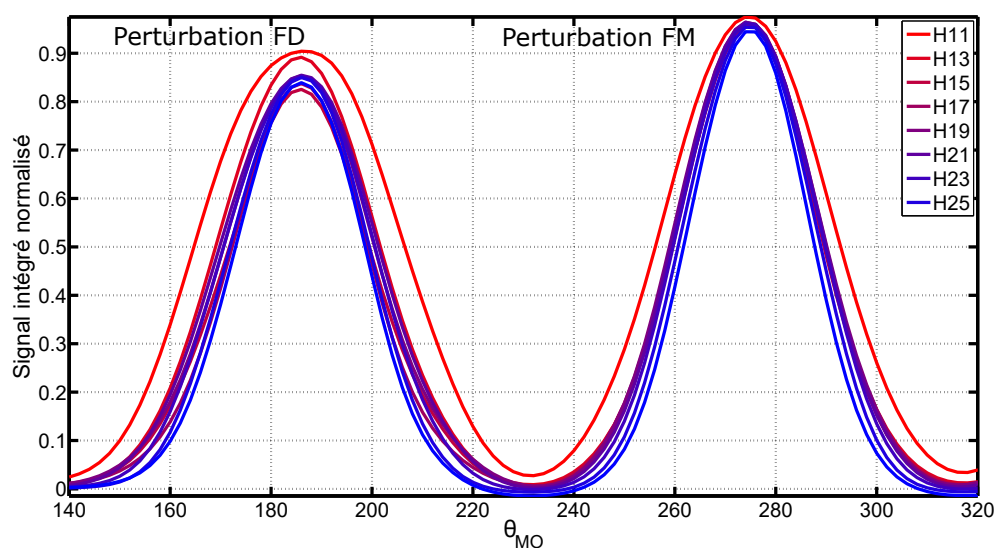


FIGURE 5.53 – Évolution du signal intégré spatialement avec une intégration spectrale harmonique par harmonique. Les harmoniques représentées ici vont de H11 à H25. Le signal est normalisé par le maximum de signal sur la gamme $\theta_{MO} \in [140 : 320]^\circ$.

Le comportement avec un double pic est retrouvé. L'espacement entre les deux pics est bien de 90° . Le maximum de signal pour toutes les harmoniques est le même, soit $\theta_{MO} = 180 \pm 90^\circ$, comme le montre la figure. La largeur à mi-hauteur des pics évolue avec l'ordre harmonique. Les pics correspondant aux harmoniques de la coupure ont une largeur à mi-hauteur plus faible que ceux qui correspondent aux harmoniques d'ordre bas. L'évolution de la largeur à mi-hauteur pour ces pics en fonction de l'ordre harmonique est donnée en Figure 5.54.

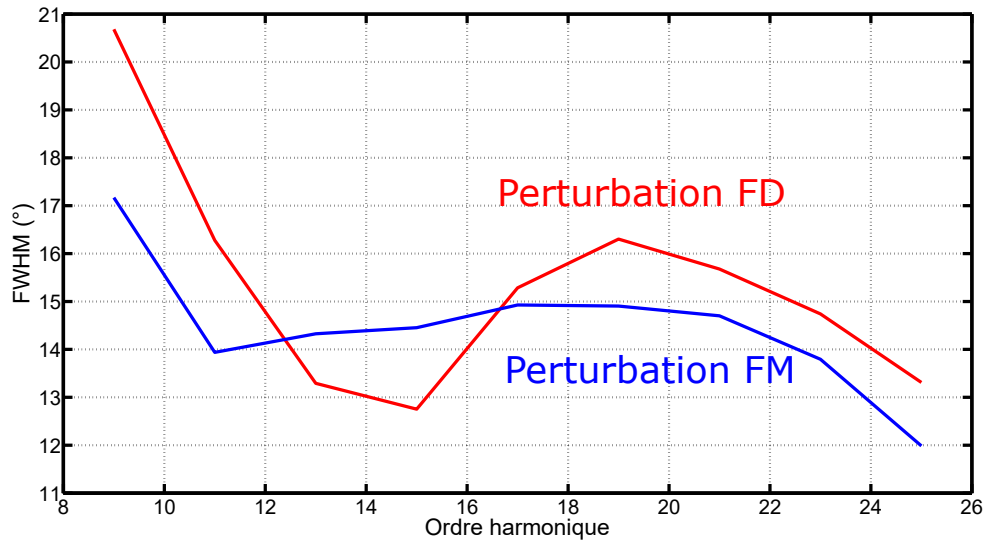


FIGURE 5.54 – Évolution de la largeur à mi-hauteur des pics de signal intégrés montrés en Figure 5.53 en fonction de l'ordre harmonique. La courbe en rouge correspond au pic entre 140° et 230° , et la courbe en bleu correspond au pic entre 230° et 320° .

Il y a un facteur 1.5 entre la largeur à mi-hauteur des pics de signal pour les harmoniques de la coupure et les harmoniques les plus basses. En reliant ça à la sensibilité à l'ellipticité, les harmoniques de la coupure sont donc plus sensibles à l'ellipticité que les harmoniques basses, avec un facteur 1.5. Cela correspond aux valeurs trouvées en Section 3.1.2, où l'on obtenait une ellipticité critique de 0.16 pour les harmoniques 9 et 11, contre une ellipticité critique de 0.10/0.11 pour les harmoniques 25 et 27.

De plus, la Figure 5.54 montre aussi une asymétrie dans les valeurs de largeur à mi-hauteur entre la courbe rouge et la courbe bleue. La courbe rouge correspond à avoir la perturbation dans le front descendant, et la courbe bleue à avoir la perturbation dans le front montant.

Avoir une asymétrie dans les largeurs à mi-hauteur montre que les harmoniques ne sont pas affectées de la même manière quand la perturbation se situe dans un front ou dans l'autre. Dans le cas où l'on suppose un profil XUV symétrique, observer une différence de valeur front montant/front descendant dans l'évolution en Figure 5.54 traduit un décalage des temps d'émission dans un front ou dans l'autre par rapport à une référence. Pour les harmoniques de la coupure, la génération doit se faire autour du maximum d'intensité. Pour un profil XUV symétrique et un profil IR symétrique, les largeurs à mi-hauteur des signaux intégrés doivent donc être les mêmes pour le front montant et le front descendant.

En observant l'évolution des caractéristiques du signal intégré (largeur à mi-hauteur et pic), les informations sur l'enveloppe temporelle de chaque harmonique sont obtenues : évolution temporelle et décalage temporel par rapport au maximum d'intensité. La mesure XUV SWING apporte donc des informations complètes sur l'enveloppe temporelle des harmoniques.

Un décalage dans les valeurs de largeurs à mi-hauteur est remarquable pour les harmoniques H11, H13, H15 et H17 (voir Figure 5.54). Les valeurs de largeur à mi-hauteur sont plus basses pour ces harmoniques lorsque la perturbation est dans le front descendant. Cette asymétrie montre que les temps d'émission pour ces harmoniques sont décalés dans le front descendant pour ces harmoniques.

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

Ces mesures pour un déphasage de $\frac{\lambda}{4}$ sont maintenant comparées avec des mesures pour les deux autres positions $\theta_{platine} = 23^\circ$ et $\theta_{platine} = 15^\circ$, soit un déphasage de $\frac{\lambda}{2}$ et un déphasage intermédiaire respectivement. Les conditions expérimentales restent les mêmes, et la variable reste toujours l'orientation de la lame $\frac{\lambda}{2}$ d'ordre zéro, $\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$. On change seulement la position de la platine de rotation pour ajuster le déphasage.

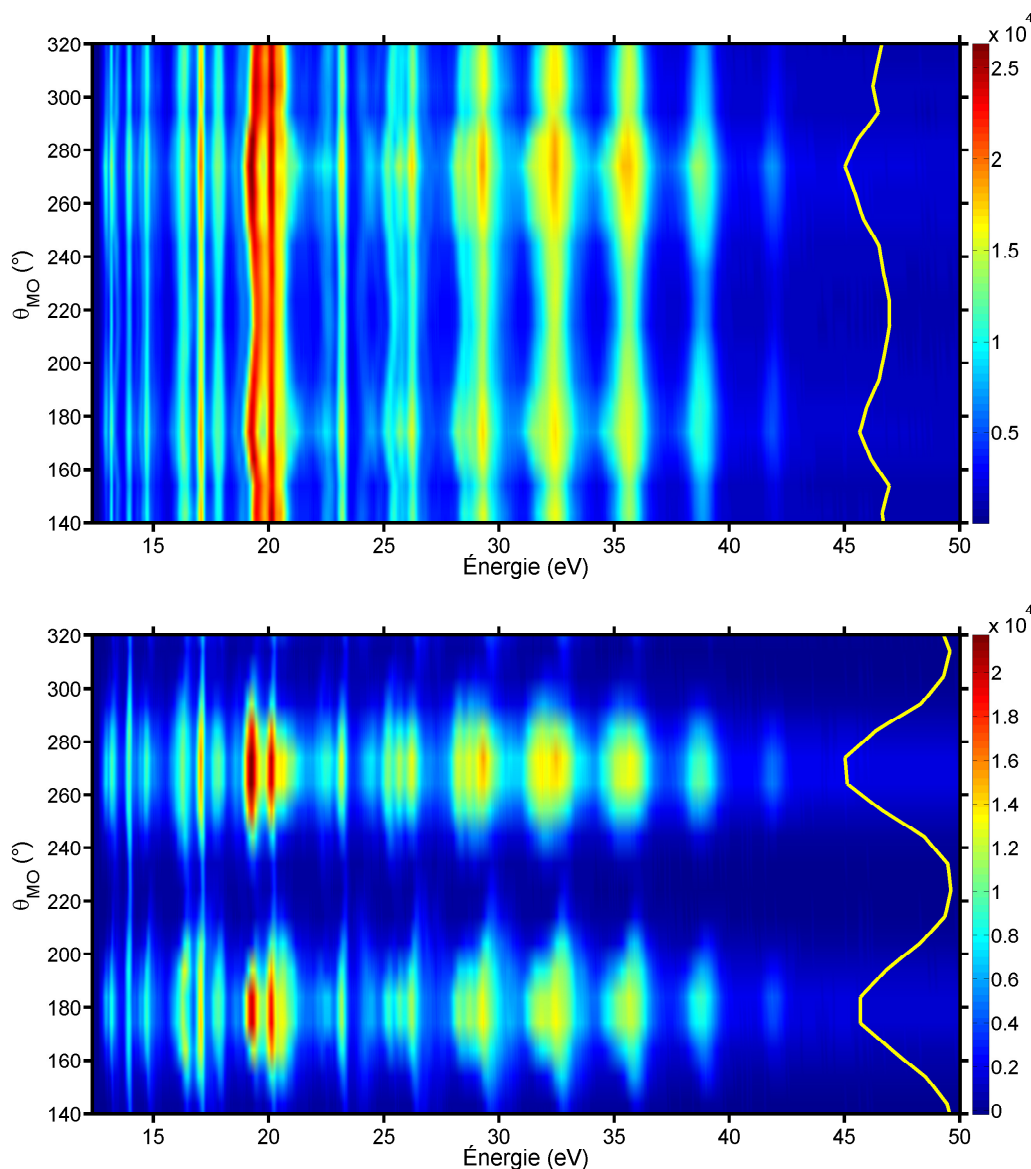


FIGURE 5.55 – Spectrogrammes XUV en fonction de $\theta_{MO} = 2\theta_{\frac{\lambda}{2},ZO}$ pour deux déphasages différents. Le déphasage correspondant à la figure (a) est de $\frac{\lambda}{2}$, et la figure (b) un déphasage intermédiaire. Le signal intégré spatialement et spectralement est dessiné en jaune en vertical. La durée des impulsions est de $\tau_{IR} = 32$ fs. La platine de rotation est fixée à $\theta_{platine} = 23^\circ$, pour un déphasage $\frac{\lambda}{2}$. Le délai introduit est de 12.8 fs à 800 nm pour le déphasage intermédiaire, et 13.3 fs pour le déphasage $\frac{\lambda}{2}$.

Sur les spectrogrammes XUV montrés en Figure 5.55, l'impact du déphasage est visible sur le minimum de signal intégré entre les pics. Plus le déphasage est proche de $\frac{\lambda}{2}$, plus l'angle θ_{MO} doit être grand pour avoir une perturbation significative. Sur le spectrogramme correspond à ce déphasage $\frac{\lambda}{2}$, le signal intégré est très peu modulé avec l'angle θ_{MO} . Au minimum, le signal intégré est de 0.7 à minima pour toutes les

harmoniques. Le signal intégré est très peu affecté.

Pour le déphasage intermédiaire, le comportement à double pics pour l'évolution du signal intégré en fonction de θ_{MO} est retrouvé, mais le signal n'est pas totalement nul de part et d'autre du pic du signal. Cela est possible donc car un plus grand angle θ_{MO} est nécessaire pour avoir une même perturbation quand le déphasage s'éloigne de $\frac{\lambda}{4}$. Le déphasage est donc un paramètre important pour obtenir de bonnes mesures. Dans la situation optimale, le déphasage introduit par la lame multiordre doit être $\frac{\lambda}{4}$. De plus, cela permet de simplifier l'expression de l'ellipticité en sortie de la lame multiordre épaisse lorsque que le déphasage est $\frac{\lambda}{4}$. Avoir un déphasage de $\frac{\lambda}{4}$, qui induit une perturbation maximale, permet aussi de rester dans le régime perturbatif en utilisant une gamme plus faible pour θ_{MO} .

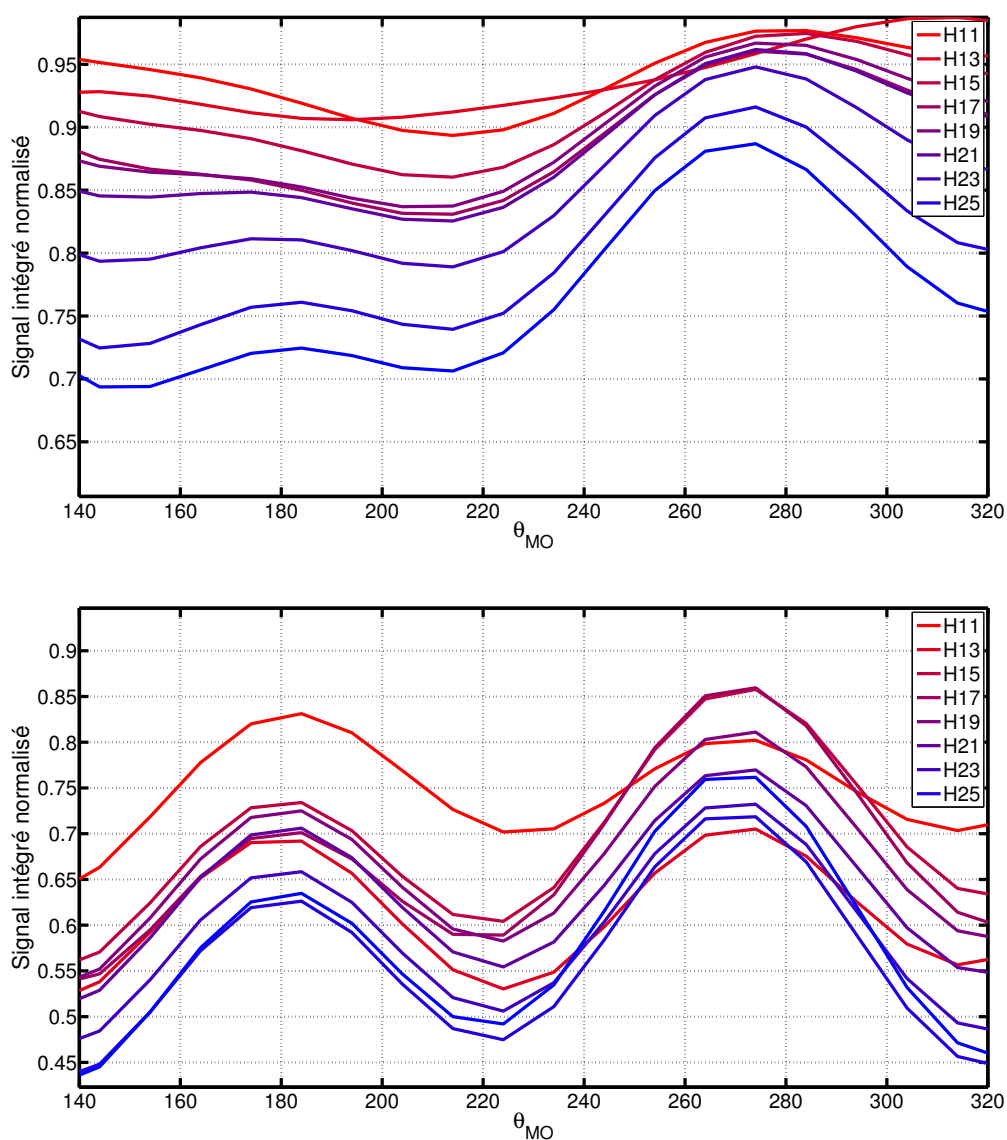


FIGURE 5.56 – Évolution du signal intégré spatialement avec une intégration spectrale harmonique par harmonique. Les harmoniques représentées ici vont de H11 à H25. Le signal est normalisé par le maximum de signal sur la gamme $\theta_{MO} \in [140 : 320]^\circ$. Le déphasage est ici fixé à $\frac{\lambda}{2}$ pour la lame multiordre épaisse pour la figure du dessus, et à une déphasage intermédiaire pour la figure du dessous.

5.5.4 Influence de l'intensité étudiée par la mesure SWING

Dans la Section 5.5.3, une asymétrie dans les largeurs à mi-hauteur $\Delta\theta_q$ des signaux intégrés a été identifiée. Cette asymétrie a été reliée directement aux décalages des temps d'émission dans un front de l'impulsion. Ces temps moyens d'émission sont affectés et contrôlables par plusieurs paramètres : pression dans le milieu générateur, intensité dans le milieu générateur, durée des impulsions etc. Cette partie se focalise sur l'étude des résultats de la mesure SWING pour différentes intensités de génération d'harmoniques. Le but est d'observer des différences dans l'évolution spectrale de la mesure SWING, mais aussi dans l'évolution des asymétries et des largeurs $\Delta\theta_q$ du signal intégré de la mesure XUV SWING.

Le montage expérimental utilisé reste le même (voir Figure 3.7). La pression de néon dans le capillaire est de 400 mbar. La durée des impulsions IR est de $\tau_{IR} = 24.2$ fs, minimisée au niveau de la zone d'interaction (en gardant les axes des lames horizontaux et verticaux selon la polarisation incidente). La pression dans la cellule est de 16 mbar. Les harmoniques sont générées dans l'argon. L'épaisseur de la lame multiordre est de $e = 0.383$ mm, introduisant un délai de 12.3 fs à 800 nm. La puissance en entrée de chambre est modifiée en ajoutant une pellicule fine d'épaisseur $10 \mu\text{m}$ sur le chemin du faisceau, avant la lame de calcite. La puissance est modulée en ajustant l'angle d'incidence sur la pellicule, par phénomène de réflexion en polarisation s. Une partie du faisceau est réfléchi, ce qui diminue la puissance transmise utilisée. Trois mesures sont effectuées, à trois puissances différentes : 1.12 W, 0.82 W et 0.70 W. De la même manière que pour les mesures XUV SWING précédentes, l'évolution du spectre XUV en fonction de θ_{MO} , l'orientation des axes neutres de la lame multiordre épaisse par rapport à la polarisation linéaire incidente, est observée. Les trois spectrogrammes pour les trois puissances sont donnés en Figure 5.57.

Sur la Figure 5.57, la signature de la modulation de l'intensité se retrouve directement dans l'évolution de l'énergie de coupure. Pour une puissance de $P = 0.70$ W, la dernière harmonique visible est l'harmonique H21. Pour une puissance de $P = 1.12$ W, c'est l'harmonique H25. Pour $P = 0.82$ W, c'est l'harmonique H23. La coupure évolue très nettement, avec une augmentation de l'énergie de coupure lorsque l'intensité est augmentée. L'évolution du spectre avec θ_{MO} est globalement similaire aux mesures XUV SWING montrées précédemment, comme en Figure 5.43 par exemple. Les changements de fréquences montrent toujours la même forme de demi-lune, avec une forte modulation de signal intégré avec θ_{MO} . Deux pics de signaux sont bien retrouvés, un pour le cadran $[45 : 135]^\circ$ et un autre pour le cadran $[135 : 225]^\circ$. Pour le cadran $[45 : 135]^\circ$, la perturbation se situe dans le front descendant. Pour le cadran $[135 : 225]^\circ$, la perturbation se situe dans le front montant. Cela correspond à la disparition des fréquences "bleues" (énergies plus hautes que l'énergie centrale) des harmoniques lorsque l'on s'écarte de la position 180° , car on perturbe majoritairement le front montant en augmentant l'amplitude de la perturbation, et à la disparition des fréquences "rouges" (énergies plus basses que l'énergie centrale) lorsque l'on s'écarte de la position 90° quand on perturbe le front descendant.

Au delà du comportement spectral des harmoniques, le signal intégré spatialement et spectralement pour ces spectrogrammes est aussi intéressant. L'évolution des signaux intégrés pour les harmoniques visibles de chaque spectrogramme est donnée en Figure 5.58. La Figure 5.58 montre une structure similaire aux signaux intégrés des précédentes mesures, comme ceux montrés en Figure 5.53. Deux pics de signaux sont bien présents. Ces pics doivent correspondre à la situation où l'on a une perturbation nulle, donc lorsque l'orientation de la polarisation est selon un axe.

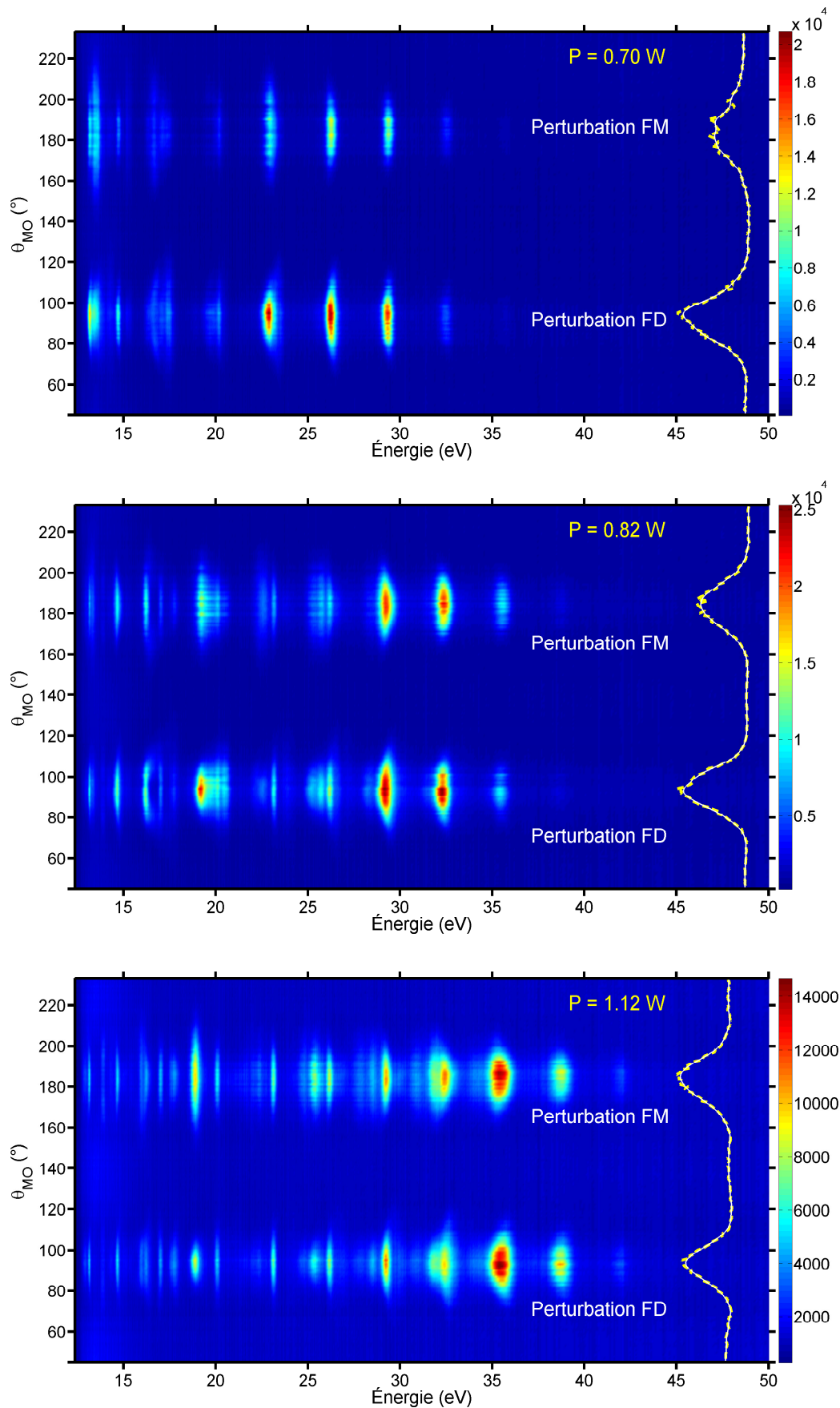


FIGURE 5.57 – Spectrogrammes XUV SWING pour les puissances 0.70 W, 0.82 W et 1.12 W. La durée des impulsions utilisées est de $\tau_{IR} = 24.2$ fs. Le délai introduit par la lame multiordre est de 12.3 fs à 800 nm, pour une épaisseur de 0.383 mm. Les harmoniques sont générées dans une cellule d'argon de 6 mm, avec une pression amont 15 mbar. Le signal intégré spectralement et spatialement est dessiné en pointillés jaunes et avec un lissage Gaussien en trait plein blanc.

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

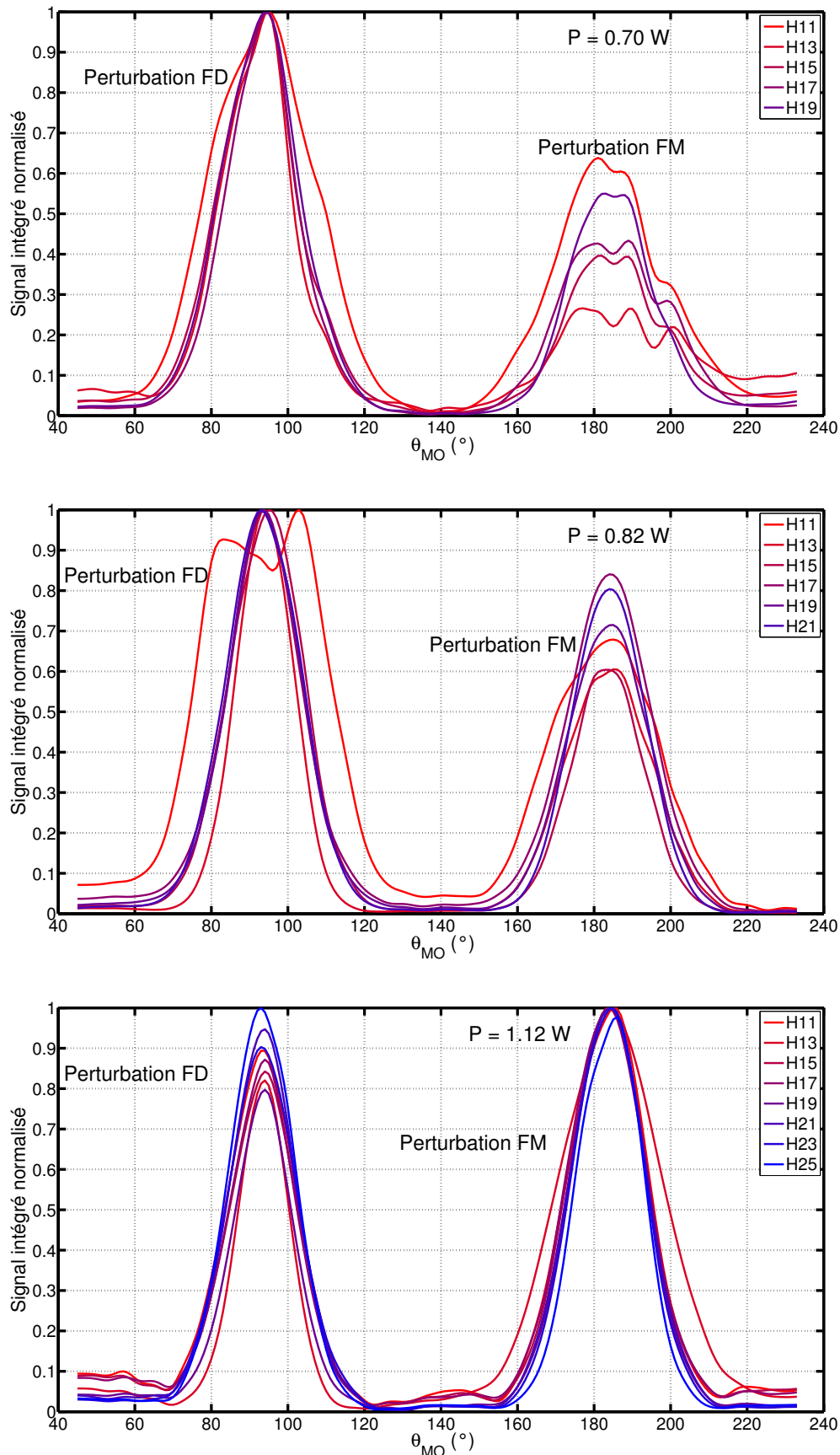


FIGURE 5.58 – Évolution du signal intégré pour les différentes harmoniques. Les signaux intégrés pour les puissances $P = 0.70$ W, $P = 0.82$ W, $P = 1.12$ W sont donnés. Les signaux intégrés ont été lissés avec un lissage Gaussien sur 3 points. Le pas entre chaque point est de 1° . Deux zones sont visibles, chacune contenant un pic. Dans la première zone $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$, la perturbation est dans le front descendant. Pour $\theta_{MO} \in [135 : 225]^\circ$, la perturbation est dans le front montant.

L'évolution de la largeur à mi-hauteur des pics de signaux intégrés est représentée en Figure 5.59. Les barres d'erreurs indiquées sur la figure sont calculées en prenant en compte les erreurs suivantes :

- Une erreur de lecture de la graduation sur la monture de rotation : la moitié d'une graduation, soit 0.5° .
- Une erreur numérique dans l'estimation de la largeur à mi-hauteur : la moitié d'un pas entre deux points de signal intégré, soit 0.5° .
- Une erreur d'arrondi numérique, 0.2° .

Par calcul, l'incertitude totale est de :

$$\Delta\text{FWHM} = \sqrt{0.5^2 + 0.5^2 + 0.2^2} = 0.73^\circ \quad (5.24)$$

La Figure 5.59 montre une différence dans l'évolution de la largeur à mi-hauteur pour les différentes puissances. En comparant la situation entre $P = 0.82$ W et $P = 1.12$ W, l'asymétrie dans l'évolution de largeur à mi-hauteur pour les situations où l'on a la perturbation dans le front montant et le descendant est plus prononcée dans le second cas. À l'erreur près, la largeur à mi-hauteur est la même quelle que soit la position de la perturbation pour les harmoniques de la coupure. Dans la Section 5.5, cette asymétrie a été reliée aux temps moyens d'émission différents pour chaque harmonique.

Ici, pour chaque harmonique, deux largeurs à mi-hauteur $\Delta\Theta_{q,1}$ et $\Delta\Theta_{q,2}$ sont obtenues pour deux positions remarquables de la perturbation : perturbation dans le front montant et perturbation dans le front descendant. Pour une harmonique, avoir la même largeur à mi-hauteur dans ces deux situations revient à avoir une émission qui est perturbée de la même manière, indépendamment d'avoir la perturbation dans un front ou dans l'autre. En termes de temps d'émission, cela revient à avoir un temps d'émission moyen proche du maximum d'intensité du profil IR, dans le cas d'un profil d'intensité IR parfait et symétrique. En comparant l'évolution de la différence de largeur à mi-hauteur pour chaque harmonique, des temps d'émissions moyens relatifs peuvent être retrouvés deux à deux si l'émission XUV est courte.

Dans un premier temps, on fait l'hypothèse d'avoir une enveloppe harmonique sous forme d'un Dirac $\delta_{XUV}(t - t_0)$ (symbolisant une durée d'émission XUV courte), avec t_0 la position de ce Dirac par rapport au maximum d'intensité du profil temporel IR. Ce temps t_0 représente directement le temps d'émission moyen pour chaque harmonique. Ces largeurs à mi-hauteur ont une signification physique. Pour un angle θ_{MO} égal à la moitié de cette largeur mi-hauteur, le signal XUV est réduit d'un facteur 2. La moitié de cette largeur à mi-hauteur correspond donc à l'orientation pour laquelle l'ellipticité ϵ autour du temps moyen d'émission d'une harmonique est égale à l'ellipticité critique ϵ_{thr} . Pour les deux positions de la perturbation, on a donc deux positions $\Delta\Theta_{q,1}$ et $\Delta\Theta_{q,2}$ pour lesquelles $\epsilon(t_0) = \epsilon_{thr}$. On a donc directement :

$$\epsilon(\theta_{MO,1}, t_0) = \epsilon_{thr} = \sqrt{\tan\left(\frac{\Delta\Theta_{q,1}}{2}\right)^2 \frac{I(t - \delta = t_0)}{I(t = t_0)}} \quad (5.25)$$

$$\epsilon(\theta_{MO,2}, t_0) = \epsilon_{thr} = \sqrt{\tan\left(\frac{\Delta\Theta_{q,2}}{2}\right)^2 \frac{I(t + \delta = t_0)}{I(t = t_0)}} \quad (5.26)$$

avec $I(t)$ le profil d'intensité temporel de l'impulsion IR fondamentale, δ le délai introduit par la lame multiordre, et t_0 le temps d'émission moyen d'une harmonique.

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

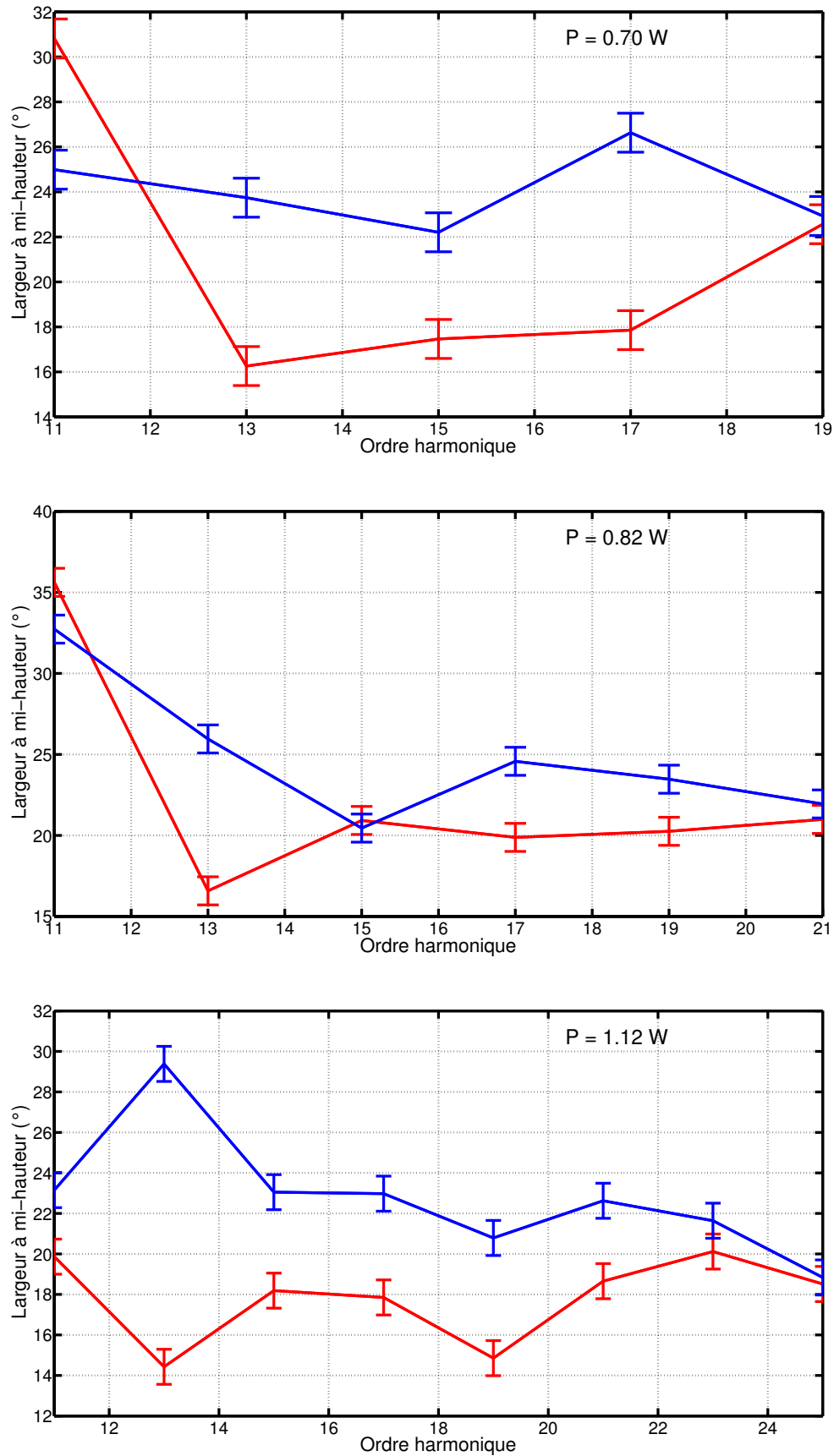


FIGURE 5.59 – Évolution de la largeur à mi-hauteur des signaux intégrés pour les puissances $P=0.70$ W, $P=0.82$ W et $P=1.12$ W. Pour chaque série, la courbe rouge correspond au pic de signal intégré dans la gamme $\theta_{MO} \in [45 : 135]^\circ$ (perturbation dans le front descendant), et la courbe en trait plein bleu correspond au pic dans la gamme $\theta_{MO} \in [135 : 225]^\circ$ (perturbation dans le front montant).

Par égalité entre les deux ellipticités et en passant au carré, on obtient :

$$\frac{\tan\left(\frac{\Delta\Theta_{q,1}}{2}\right)^2}{\tan\left(\frac{\Delta\Theta_{q,2}}{2}\right)^2} = \frac{I(t + \delta = t_0)}{I(t - \delta = t_0)} \quad (5.27)$$

cette équation n'étant vérifiée que pour un seul t_0 .

Les temps d'émission moyens t_0 sont donc retrouvés à partir du profil IR fondamental $I(t)$ et de l'asymétrie entre les largeurs à mi-hauteur du signal intégré $\tan\left(\frac{\Delta\Theta_{q,1}}{2}\right)$ et $\tan\left(\frac{\Delta\Theta_{q,2}}{2}\right)$. Pour chaque harmonique, t_0 est donc le temps qui vérifie l'égalité dans l'Équation (5.27). En appliquant cette méthode, les temps d'émission moyens t_0 sont donnés en Figure 5.60 pour les trois séries de mesures à $P = 0.72$ W, $P = 0.82$ W et $P = 1.12$ W, en supposant un profil d'intensité Gaussien $I(t)$ de durée $\tau_{IR} = 24$ fs pour l'IR dans un premier temps.

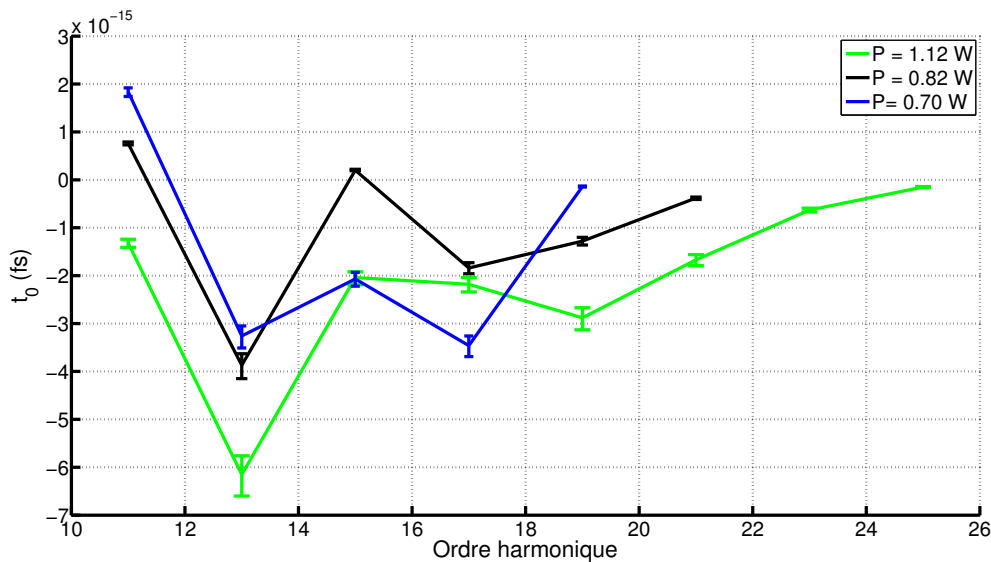


FIGURE 5.60 – Temps d'émission moyens des harmoniques retrouvés à partir des largeurs à mi-hauteur en Figure 5.59 et de l'Équation (5.27). Les trois séries sont montrées sur cette figure, respectivement $P = 0.72$ W (trait plein bleu), $P = 0.82$ W (trait plein bleu) et $P = 1.12$ W (trait plein vert). Les barres d'erreur découlent directement de celles indiquées en Figure 5.59. Le profil $I(t)$ pour effectuer ces calculs est un profil Gaussien de durée $\tau_{IR} = 24$ fs.

Les mêmes calculs sont effectués à partir du profil IR reconstruit par mesure Autoco-Dscan. Le profil reconstruit est proche du profil Fourier Limité du spectre IR mesuré en entrée de chambre. Les temps d'émission moyens calculés avec le profil réel sont donnés en Figure 5.62. Sur ces Figure 5.60 et Figure 5.62, les temps d'émission sont décalés dans le front montant de l'impulsion. L'harmonique de la coupure est la plus proche du délai 0. Les temps d'émission moyens des harmoniques sont de plus en plus rapprochés du délai 0 lorsque l'ordre harmonique augmente, hormis H11. La gamme dans laquelle s'étendent ces temps d'émission moyens est de 6 fs. Les temps d'émission moyens pour les harmoniques sont plus proches de 0 pour une puissance plus basse. Cet effet est visible par exemple en comparant les temps d'émission moyens entre la série à $P = 1.12$ W et $P = 0.82$ W. L'harmonique de la coupure pour la deuxième série est H21, qui

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

se retrouve avec un temps d'émission proche de 0 fs, alors que son temps d'émission moyen retrouvé pour $P = 1.12$ W était de l'ordre de -2 fs. En moyenne l'écart entre les temps d'émission pour ces deux séries est de 1 fs. En première approximation, on peut donc estimer les différents temps moyens d'émission pour chacune des harmoniques.

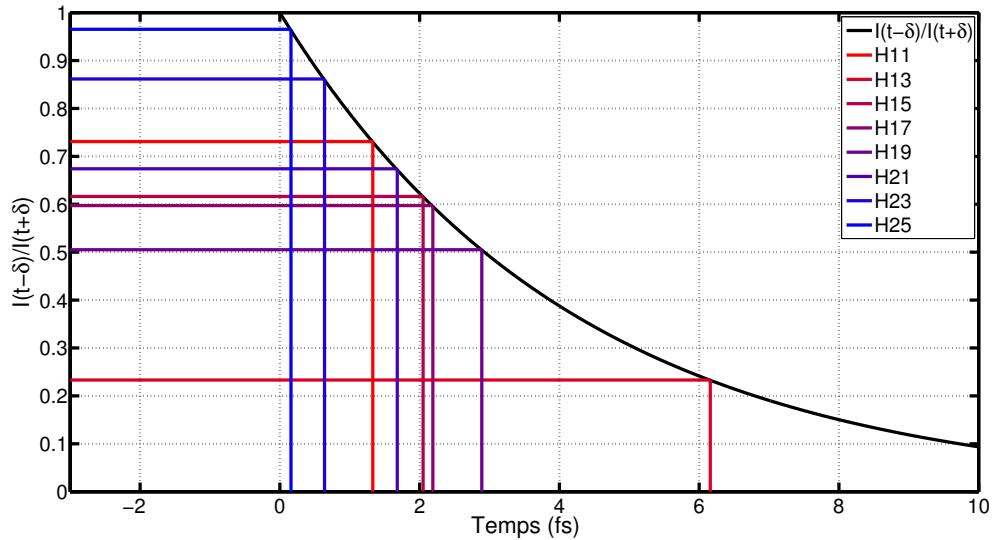


FIGURE 5.61 – Visualisation des temps d'émission moyens harmoniques en fonction du rapport $F(\theta_{MO,1})/F(\theta_{MO,2})$. Les temps calculés dans cette figure correspondent aux rapports trouvés pour la série XUV SWING à $P = 1.12$ W

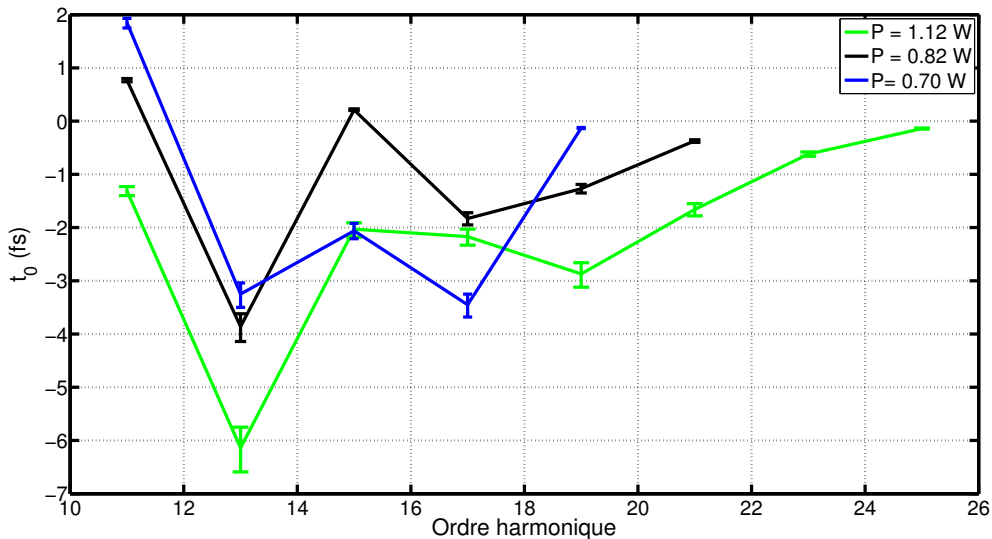


FIGURE 5.62 – Temps d'émission moyens des harmoniques retrouvés à partir des largeurs à mi-hauteur en Figure 5.59 et de l'Équation (5.27). Les trois séries sont montrées sur cette figure, respectivement $P = 0.72$ W (trait plein bleu), $P = 0.82$ W (trait plein noir) et $P = 1.12$ W (trait plein vert). Les barres d'erreur découlent directement de celles indiquées en Figure 5.59. Le profil $I(t)$ utilisé est le profil IR reconstruit par autocorrélation Dscan, qui est de durée $\tau_{IR} = 23.6$ fs pour le pic principal. La durée du profil reconstruit par TF du spectre IR donne est de $\tau_{IR} = 23.5$ fs.

La résolution temporelle avec laquelle on peut estimer ces temps dépend directement du rapport entre le délai introduit par la lame multiordre δ et la durée de l'IR τ_{IR} . La résolution temporelle est reliée à l'endroit où le rapport entre les intensités des deux profils $I(t + \delta)$ et $I(t - \delta)$ est égal à 1. Dans la mi-hauteur, la variation temporelle du rapport $\frac{I(t-\delta)}{I(t+\delta)}$ d'un temps t_0 au temps suivant/précédent $t_0 \pm \delta t_0$ sera plus grande au niveau de la largeur à mi-hauteur, car la dérivée temporelle y est plus grande. Si le délai δ est trop petit par rapport à τ_{IR} , ou bien trop grand par rapport τ_{IR} , le point de jonction (rapport égal à 1) se situe dans une zone où la dérivée temporelle du rapport est faible. L'estimation du temps t_0 est alors moins précise, car pour un rapport donné, à une tolérance près, le temps moyen d'émission t_0 aura une incertitude d'autant plus grande que la dérivée temporelle est petite.

Pour aller plus loin dans cette analyse, on a cherché à observer les signaux intégrés, mais cette-fois ci intra-harmoniques. Le signal spectral est observé pour différentes longueurs d'onde à l'intérieur d'une harmonique. La disposition des longueurs d'onde est faite de manière à couvrir la gamme spectrale de l'harmonique, et à avoir des longueurs d'onde de part et d'autre de la fréquence du pic de l'harmonique. Une illustration des différentes longueurs d'onde que l'on regarde est donnée en Figure 5.63. On regarde pour quatre parties de spectre différentes : la contribution du chemin court de l'harmonique H13, la contribution du chemin long de l'harmonique H13, la contribution du chemin court de H21 et la contribution du chemin court de H23. Les longueurs d'onde regardées à l'intérieur d'une harmonique sont dessinées avec un code couleur qui évolue du rouge pour les fréquences plus basses de la fréquence du pic (partie rouge de l'harmonique), au bleu pour les fréquences plus hautes que la fréquence du pic (partie bleue de l'harmonique). La même analyse est aussi faite sur les harmoniques H25 et H27 (coupure), mais non montrée sur les Figure 5.63, Figure 5.64 et Figure 5.65.

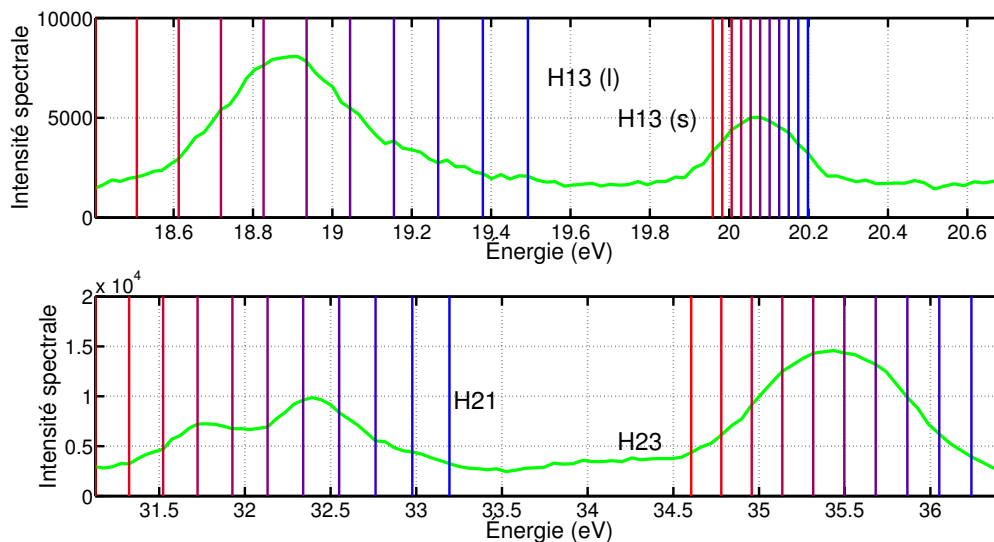


FIGURE 5.63 – Illustration des longueurs d'onde pour lesquelles on observe le signal intégré à l'intérieur d'une harmonique. Les contributions pour lesquelles on fait ces subdivisions sont indiquées sur la figure : H13 chemin court et chemin long, H21 chemin court et H23 chemin court.

Les évolutions des signaux associés aux différentes longueurs d'onde et harmoniques spécifiées dans la Figure 5.63 sont données dans les Figure 5.64 et Figure 5.65.

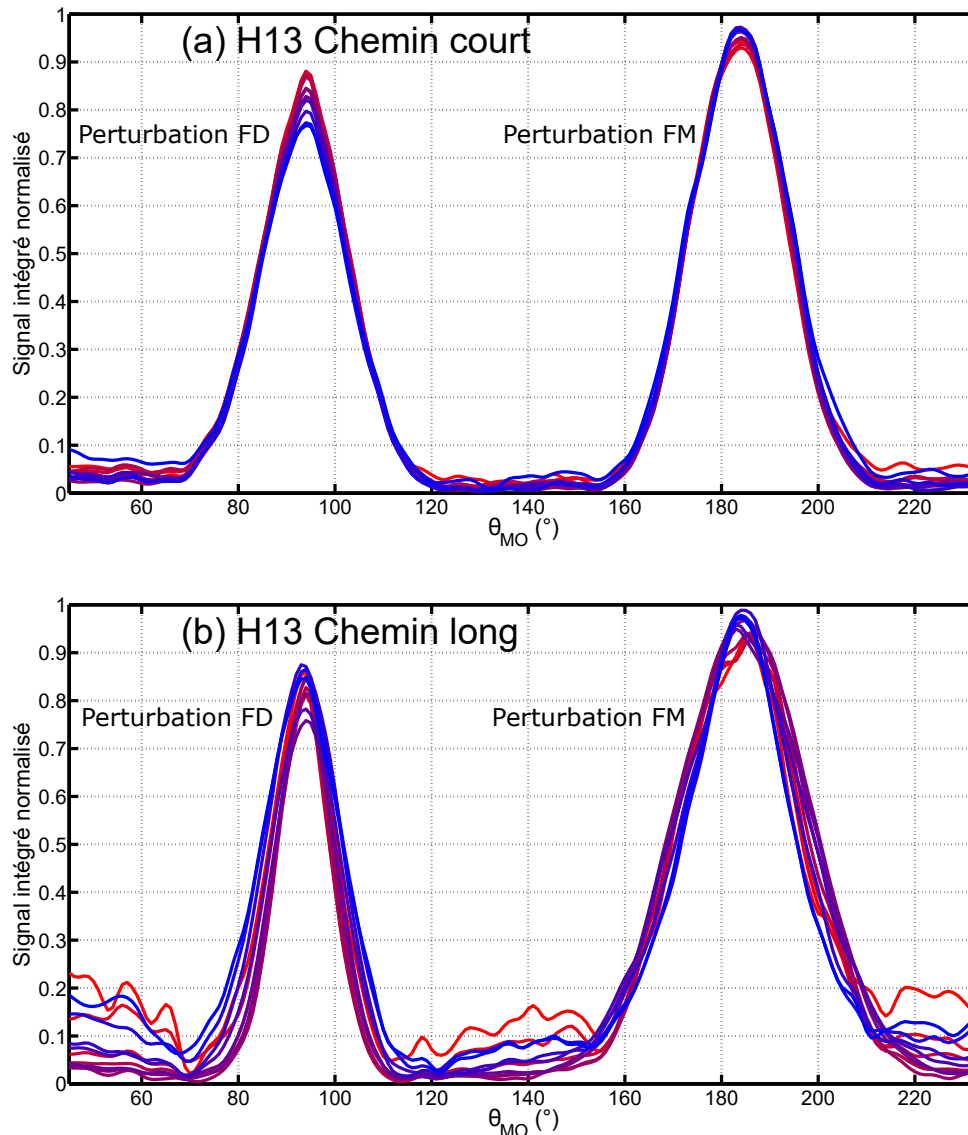


FIGURE 5.64 – Évolution du signal intégré pour les différentes longueurs d'onde intra-harmonique spécifiées en Figure 5.63, qui suivent le même code couleur. Ici, on regarde pour les longueurs d'onde l'harmonique H13, pour la contribution du chemin court (a), et pour la contribution du chemin long (b).

La Figure 5.64 montre à nouveau une asymétrie, à la fois dans les largeurs à mi-hauteur mais aussi dans les maxima, entre la situation où l'on a la perturbation dans le front montant et celle où la perturbation est dans le front descendant. On s'intéresse à la largeur à mi-hauteur. La figure montre aussi que pour la situation où la perturbation est dans le front montant, la largeur à mi-hauteur est plus grande que pour celle dans le front descendant. Cela traduit le fait que l'émission est plus perturbée dans le front descendant. La largeur à mi-hauteur des pics pour le front descendant est très étroite pour la contribution du chemin long comparée à la contribution du chemin court pour l'harmonique H13. Cela traduirait plutôt une émission du chemin long plus perturbée dans le front descendant, et principalement dans le front descendant. Il est à noter que la contribution associée au chemin long de H13 est uniquement la contribution des fréquences rouges du chemin long. En regardant l'asymétrie dans la largeur à mi-hauteur des pics, on aurait donc génération de ces fréquences dans le front descendant,

ce qui est cohérent avec le signe du $\alpha \frac{\partial I}{\partial t}$.

La Figure 5.65 montre elle une évolution inverse. Pour les longueurs d'onde plus énergétique (code couleur vers le bleu), la largeur à mi-hauteur des pics est plus petite lorsque la perturbation est dans le front montant que lorsque la perturbation est dans le front descendant. Pour les longueurs d'onde moins énergétique (code couleur rouge), c'est l'inverse, la largeur à mi-hauteur semble plus petite lorsque la perturbation est dans le front descendant que lorsque la perturbation est dans le front montant. Cette observation se vérifie pour les harmoniques H21 et H23. Ce comportement est cohérent avec le fait que les longueurs d'onde plus énergétiques que la fréquence centrale sont générées dans le front montant (plus petit $\Delta\Theta_q$ dans le front montant que dans le front descendant), et que les longueurs d'onde moins énergétiques que la fréquence centrale de l'harmonique sont générées plutôt dans le front descendant (plus petit $\Delta\Theta_q$ dans le front descendant que dans le front montant). On regarde maintenant l'évolution de $\Delta\Theta_q$ pour les différentes harmoniques en fonction de la longueur d'onde considérée.

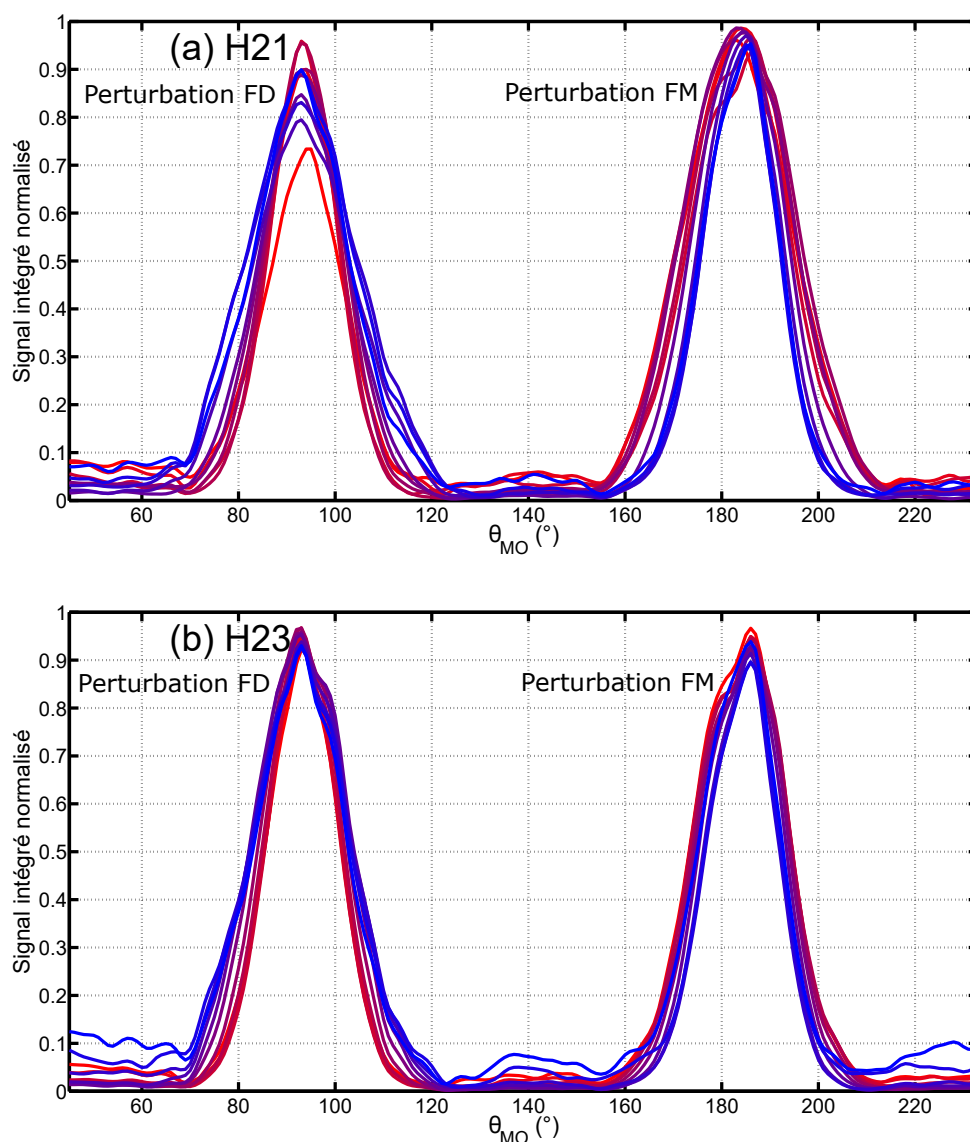


FIGURE 5.65 – Évolution du signal intégré pour les différentes longueurs d'onde intra-harmonique spécifiées en Figure 5.63, qui suivent le même code couleur. Ici, on regarde pour les longueurs d'onde l'harmonique H21 (a) et l'harmonique H23 (b).

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

Pour la suite, on suppose que l'on peut toujours extraire un temps d'émission moyen pour une longueur d'onde unique. De cette manière, on peut aller chercher les différents temps d'émission moyens pour les différentes longueurs d'onde des harmoniques. L'asymétrie dans les $\Delta\Theta_q$ en fonction de la longueur d'onde intraharmonique informe donc sur leurs temps d'émission associés. Les évolutions de ces largeurs à mi-hauteur $\Delta\Theta_q$ sont données en Figure 5.66. On retrouve les observations extraites à partir des Figure 5.64 et Figure 5.65. Pour l'harmonique H13, que ce soit le chemin court ou le chemin long, $\Delta\Theta_q$ est toujours plus petite dans le front descendant que dans le front montant, quelque soit la longueur d'onde considérée. Pour le chemin long, on considère ici uniquement la contribution rouge du chemin long. En observant le comportement de $\Delta\Theta_q$ pour la perturbation dans le front montant et dans le front descendant, on trouve que l'émission est plus perturbée quand la perturbation est dans le front descendant. Il y a quasiment un facteur 2 entre les deux situations pour la contribution du chemin long de H13. Ceci traduit une émission très décalée dans le front descendant, ce qui est cohérent avec ce que l'on attend lorsque que l'on considère la phase des harmoniques $q\omega_0 + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$. Pour le chemin long, α_q est plus grand, donc les fréquences sont plus décalées, ce qui est vrai car les fréquences rouges du chemin long se trouvent à plus basse énergie que les fréquences rouges du chemin court (voir les gammes d'énergie entre les figures (a) et (b) de la Figure 5.66. Le fait d'avoir une génération de fréquences rouges décalée dans le front descendant est aussi cohérent avec le signe de $\frac{\partial I}{\partial t}$ dans le front descendant. Ces deux figures sont donc en accord avec ce que l'on attend en théorie.

Pour les harmoniques H21, H23, H25 et H27, l'évolution de $\Delta\Theta_q$ montre des similarités. Sur les figures (c), (d), (e) et (f) de la Figure 5.66, on observe :

- Pour des longueurs d'onde inférieures à la longueur d'onde du pic de l'harmonique (dessinée en pointillés noirs sur la figure), la largeur à mi-hauteur est plus grande lorsque la perturbation est dans le front montant que dans le front descendant. L'émission est donc décalée vers le front descendant. Ces longueurs d'onde correspondent à des énergies décalées vers le rouge par rapport à la fréquence centrale. On retrouve à nouveau le fait que les fréquences décalées vers le rouge sont émises majoritairement dans le front descendant.
- Pour les longueurs d'onde supérieures à la longueur d'onde du pic de l'harmonique, la conclusion est inverse. La largeur à mi-hauteur est plus grande lorsque la perturbation est dans le front descendant que lorsque la perturbation est dans le front montant. La génération de ces longueurs d'onde, qui correspondent à des énergies plus "bleues", est majoritairement perturbée dans le front montant. Cela s'accorde avec le fait que dans le front montant, on a génération de fréquences plus "bleues" par rapport à la fréquence centrale, à cause du terme $\alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$.
- Le point d'inversion se situe autour de la fréquence centrale du pic. Cela correspond à avoir une inversion du signe $\frac{\partial I}{\partial t}$ pour générer la fréquence $q\omega_0$ lorsque $\frac{\partial I}{\partial t}$ est nul.
- L'asymétrie entre les valeurs de $\Delta\Theta_q$ diminue lorsque l'ordre harmonique augmente. Pour H21, on a un écart de 9° aux extrémités, contre 3° pour l'harmonique H27. En termes de temps d'émission moyens, cela correspond à avoir des temps d'émission moyens pour les fréquences harmoniques de plus en plus proches du maximum d'intensité. Pour les harmoniques de la coupure, on s'attend bien à avoir des instants d'émission proches du maximum d'intensité, ce qui est montré sur les figures (e) et (f) de la Figure 5.66.

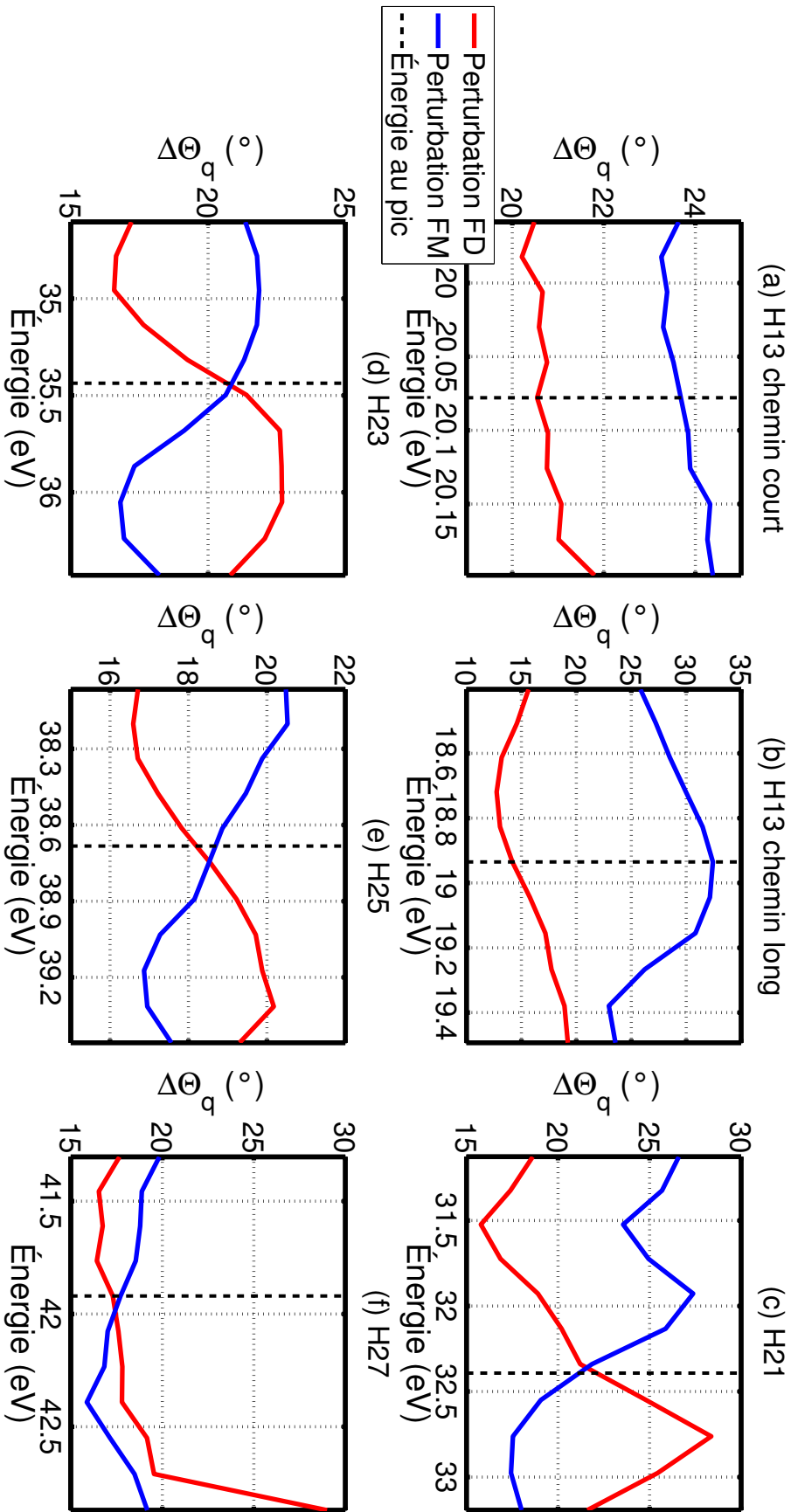


FIGURE 5.66 – Évolution des largeurs à mi-hauteur $\Delta\Theta_\sigma$ en fonction des énergies intraharmoniques, pour les harmoniques H13 (chemin court et chemin long), H21, H23, H25 et H27. L'énergie du pic pour chaque harmonique est dessinée en pointillés noirs. La largeur correspondant au pic pour la perturbation dans le front descendant est dessinée en rouge, et en bleu pour la perturbation dans le front montant.

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

Avec cette analyse, on retrouve plusieurs évolutions qui sont compatibles avec le comportement théorique attendu pour la génération d'harmoniques : génération de fréquences front montant/front descendant avec $q\omega_0 + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$, génération des harmoniques de la coupure proche du maximum d'intensité. Les temps d'émission sont calculés à partir de ces largeurs à mi-hauteur, de la même manière qu'avec l'analyse précédente.

Pour un temps d'émission t_0 , on a une valeur de ratio $\frac{\tan\left(\frac{\Delta\theta_q}{1}\right)^2}{\tan\left(\frac{\Delta\theta_q}{2}\right)^2}$ qui correspond à une valeur de ratio des profils d'intensités $I(t + \delta)$ et $I(t - \delta)$, comme expliqué avec l'Équation (5.27). Ces temps d'émission sont calculés pour les différentes longueurs d'onde des harmoniques H21, H23 et H25, et donnés en Figure 5.67.

À partir de l'évolution de ces temps d'émission, il est possible d'extraire une valeur de α_q pour les harmoniques. En effet, on part de :

$$\omega = q\omega_0 + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t} \Rightarrow \omega - q\omega_0 = \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t} \quad (5.28)$$

Ici, ω correspond à la fréquence observée à l'intérieur d'une harmonique. $q\omega_0$ peut être mesurée à partir de la fréquence des pics harmoniques. Pour les harmoniques H21, H23 et H25, on estime $q\omega_0$ respectivement à $5.18 \times 10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$, $5.67 \times 10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$ et $6.19 \times 10^{16} \text{ rad.s}^{-1}$. Au passage, cela permet de réestimer la longueur d'onde moyenne du spectre IR. Avec ces trois valeurs, on a trois estimations, respectivement 761 nm, 763 nm et 760 nm. Les valeurs sont similaires avec les différentes estimations. On revient maintenant au calcul de l'évolution de ω . La dérivée $\frac{\partial I}{\partial t}$ est calculée à partir du profil IR normalisé et de I_{max} l'intensité pic. Pour le profil IR, on a pris un profil Gaussien de durée $\tau_{IR} = 24 \text{ fs}$. Pour évaluer l'intensité maximum, on utilise la loi de la coupure :

$$E(\text{eV}) = I_p + 3.17U_p = I_p + 3.17 \times 5.4 \times I_{max} \quad (5.29)$$

avec I_{max} l'intensité en $10^{-14} \text{ W.cm}^{-2}$. Cette relation est valide pour une harmonique de la coupure, avec une longueur d'onde centrale de 760 nm, donc 5.4 au lieu de 6 devant l'intensité, car U_p évolue en λ^2 .

Avec cette loi de coupure, et une énergie de coupure autour de 42 eV, l'intensité I_{max} est calculée à $1.5 \times 10^{14} \text{ W.cm}^{-2}$. Avec ceci, on obtient que :

$$\omega(t) = q\omega_0 + \alpha_q I_{max} \frac{\partial I_{norm}}{\partial t} \quad (5.30)$$

En regardant l'évolution de $\omega(t) - q\omega_0$ en fonction de la valeur de α_q et en comparant avec les évolutions de la Figure 5.67, on peut estimer α_q pour les différentes harmoniques. Pour chaque harmonique, l'évolution $\omega(t) - q\omega_0$ simulée qui correspond au mieux avec les données expérimentales est dessinée en trait plein noir. Les valeurs estimées de α_q pour H21, H23 et H25 sont respectivement $\alpha_{21} = 12 \text{ cm}^2.W^{-1}$ (H21), $\alpha_{23} = 17 \text{ cm}^2.W^{-1}$ (H23) et $\alpha_{25} = 30 \text{ cm}^2.W^{-1}$ (H25). En ayant ces valeurs, l'accord entre le modèle et l'évolution retrouvée pour les temps moyen d'émission est bon. En considérant que les contributions majoritaires sont le chemin court pour ces harmoniques, on retrouve bien une situation avec une augmentation de α_q avec l'ordre harmonique. Malgré tout, ces valeurs sont hautes par rapport aux valeurs habituelles de la littérature, avec un α_q de $13 \text{ cm}^2.W^{-1}$ pour les harmoniques de la coupure, et une évolution en diapason avec $\alpha_q = 3 \text{ cm}^2.W^{-1}$ pour le chemin court en ordre de grandeur, et $\alpha_q = 23 \text{ cm}^2.W^{-1}$ pour le chemin long pour les harmoniques du plateau profond. D'autant

plus que la longueur d'onde centrale de l'IR est ici d'environ 760 nm d'après les estimations. Le facteur α_q évolue comme une fonction de λ^3 [106]. On s'attendrait plutôt donc à un α_q plus petit lorsque la longueur d'onde centrale est plus faible.

Néanmoins, par cette méthode, il est possible d'avoir une estimation qualitative de α_q pour les harmoniques. Les incertitudes sur $\omega(t) - q\omega_0$ viennent directement de la résolution du spectromètre que l'on utilise. La résolution pour les harmoniques H21, H23 et H25 est donnée en énergie dans l'annexe 2, dans le Tableau 2.

5.5. Mesure SWING pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés : SWING XUV

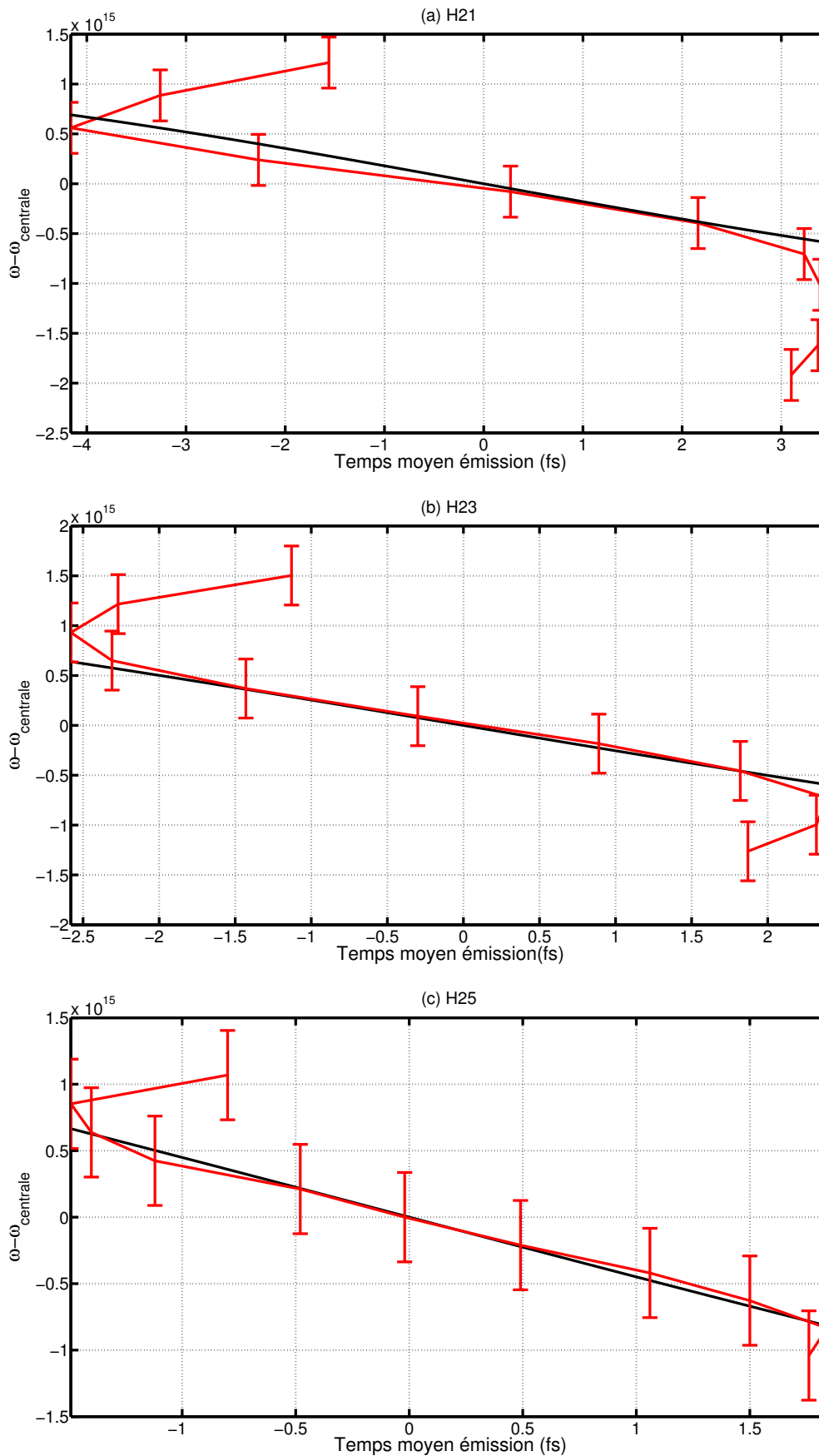


FIGURE 5.67 – Évolution de la longueur d'onde intraharmonique en fonction des différents temps d'émission moyens (trait plein rouge) pour les harmoniques H21 (a), H23 (b) et H25 (c). Les calculs de ω via l'Équation (5.30) sont dessinés en trait plein noir. Les valeurs de α_q utilisées sont $\alpha_q = 12 \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ (a), $\alpha_q = 17 \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ (b) et $\alpha_q = 30 \text{ cm}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ (c).

En conclusion sur cette sous-partie, on a pu voir qu'au delà de l'aspect de reconstruction, la mesure XUV SWING permettait d'avoir accès à des informations sur les temps d'émission moyens des harmoniques. Nous avons observé des évolutions régulières des temps moyens d'émission. La précision avec laquelle les temps d'émission sont estimés est à mettre en perspective avec plusieurs choses :

- La résolution temporelle est directement dépendant du profil IR de l'impulsion fondamentale et du rapport $\frac{\delta}{\tau_{IR}}$ entre la durée de l'impulsion fondamentale τ_{IR} et le délai δ introduit par la lame multiordre. La situation où le rapport $\frac{\delta}{\tau_{IR}}$ est de 0.5 semble être la situation optimale pour la résolution temporelle.
- La précision avec laquelle l'amplitude de la perturbation est contrôlée. Plus l'angle θ_{MO} sera modulé finement, plus l'estimation des temps d'émission sera précise, avec une évolution du signal intégré pour chaque harmonique décrite de manière plus précise.
- L'hypothèse faite dans les calculs pour les temps moyens d'émission est d'avoir une émission XUV sous forme d'un Dirac, ou d'une émission courte temporellement. Cela reste une hypothèse forte, qui omet la notion d'enveloppe temporelle de l'émission harmonique, pour avoir uniquement un temps d'émission moyen pour chaque harmonique.
- Cette analyse a été faite en observant le signal global pour une harmonique donnée, mais aussi pour différentes longueurs d'onde à l'intérieur d'une harmonique. Les deux résultats ont permis d'avoir des temps moyens d'émission globaux pour les différentes harmoniques, mais aussi une estimation des valeurs de α_q en analysant les différentes longueurs d'onde intraharmoniques.
- L'estimation des temps d'émission repose sur des hypothèses fortes. Pour pouvoir aller plus loin, et retrouver les profils temporels des enveloppes harmoniques, une collaboration est en cours avec l'université de Salamanque.
- En comparant la compacité et la simplicité de mise en oeuvre entre la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité et la méthode SWING XUV, la méthode SWING XUV est beaucoup plus simple à mettre en place.
- Reconstruire les spectrogrammes XUV SWING est aussi une option. Dans la collaboration avec Salamanque, l'analyse porte sur l'évolution du signal intégré uniquement, et non pas la simulation d'un spectrogramme pour retrouver le spectrogramme expérimental. Travailler sur le spectrogramme permettrait de retrouver le profil XUV mais aussi possiblement le profil IR, à la manière de FROG CRAB [35]. Cette méthode reste néanmoins dépendante du modèle utilisé pour générer le spectrogramme XUV SWING.

Après ce chapitre sur la caractérisation des impulsions XUV et ce que l'on peut en extraire, on a vu différentes méthodes de caractérisation :

- La méthode RABBITT, qui est une méthode répandue dans différents laboratoires, et qui permet d'effectuer une reconstruction des impulsions attosecondes en supposant une émission avec un train infini. Des impulsions XUV de durées de quelques centaines d'attosecondes ont pu être caractérisées.
- La méthode utilisée à Lund, basée sur le signal de photoélectrons. Elle permet de reconstruire directement le profil temporel de l'impulsion attoseconde à partir d'algorithmes de projection. Avec cette méthode, on a pu caractériser l'émission d'une impulsion attoseconde quasi isolée, avec un contraste de moins de 10 % en intensité entre l'impulsion principale et les post/pré impulsions.
- Deux méthodes de reconstruction basées sur la polarisation et l'observation des spectres XUV, ont été présentées : méthode de perturbation par modulation

de polarisation, avec une impulsion principale et une perturbation, et méthode XUV SWING, avec contrôle de l'amplitude de la perturbation à délai fixe. Ces méthodes ont montré des résultats prometteurs, avec des mesures de bonne qualité et une implémentation expérimentale fiable. L'amélioration des algorithmes de reconstruction reste un point de travail important. Ce travail sur les algorithmes de reconstruction a amené à collaborer avec plusieurs laboratoires, comme l'université de Salamanque pour la méthode XUV SWING. L'acquisition de séries de mesures à CEP stabilisée a aussi amené à une collaboration avec le Lund Laser Center, pour la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité.

- Les deux nouvelles méthodes restent en cours de développement. Des premières reconstructions sont sorties pour quelques signaux, et certaines informations sur les temps d'émission, les durées d'émission des harmoniques peuvent être extraites en faisant des analyses avec des modèles simplifiés. Dans cette approche, seule l'enveloppe minimale est utilisée pour la reconstruction. D'autres approches utilisant toute la carte de spectres doivent permettre de pousser plus loin ces analyses.

Chapitre 6

Conclusion générale

Au travers des résultats présentés dans cette thèse, nous avons pu étudier les impulsions attosecondes, avec une partie sur la génération d'impulsions attosecondes, ainsi qu'une autre partie sur la caractérisation de ces impulsions attosecondes. En particulier, nous avons cherché d'une part à mettre en place un confinement temporel de l'émission XUV afin d'obtenir des trains d'impulsions attosecondes de plus en plus court, en poussant vers la génération d'impulsions attosecondes isolées et du continuum dans le spectre XUV. Ces méthodes de confinement temporel ont été implémentées, et poussées à d'autres horizons et configurations, afin de trouver des conditions optimales de génération. D'autre part, nous avons travaillé sur les méthodes de caractérisation des impulsions XUV, et nous avons proposé deux méthodes tout optique basées sur la modulation de la polarisation de l'impulsion fondamentale comme nouvelle approche de caractérisation des impulsions attosecondes XUV. Des applications secondaires, découlant notamment de la mise en forme temporelle et spectrale de l'impulsion fondamentale, ont pu être mises en valeur, pour l'accordabilité des harmoniques XUV.

Dans le Chapitre 2, on a mis en place un système stable pour effectuer de l'élargissement spectral pour l'impulsion infrarouge fondamentale, permettant de passer de durées d'impulsions $\tau_{IR} = 30$ fs à des impulsions IR plus courtes, de durées de quelques cycles optiques à 800 nm, soit 7-8 fs. Ces impulsions ont nécessité de trouver des méthodes de caractérisation comme celles que l'on a évoquées dans le Chapitre 2 : Dscan pour caractérisation d'impulsions femtosecondes et autocorrélation couplée à un contrôle de la dispersion. La méthode d'autocorrélation a été améliorée en étudiant l'évolution de l'autocorrélation en fonction de la dispersion. Tracer cette évolution permet de trouver la position pour laquelle on a le minimum de durée pour l'autocorrélation, et donc retrouver, à un facteur près, la durée de l'impulsion. Le fait d'avoir rajouté l'évolution avec la dispersion nous a permis de reconstruire le profil temporel de l'impulsion. Les résultats des reconstructions ont été testés sur des profils simulés variés, ainsi que sur des données expérimentales pour différentes phase ajoutées. Les reconstructions des profils sont cohérentes avec les reconstructions obtenues avec le dispersion scan, en termes de durées, ainsi qu'avec l'estimation à partir de la largeur à mi-hauteur de l'autocorrélation au minimum de durée. La combinaison de ces deux méthodes nous permet donc de mesurer la durée de l'impulsion à une erreur de 10% près environ.

Travailler sur la mise en forme spectrale de l'impulsion a amené deux aspects et expériences reliées à la mise en forme spectrale du spectre XUV : Dscan XUV et accordabilité par interférences de deux répliques jumelles décalées temporellement. Ces deux procédés permettent d'obtenir des accordabilités allant de plusieurs centaines de meV pour les interférences à deux répliques (avec des impulsions de 40 fs et génération

d'harmoniques dans de l'argon), jusqu'à une accordabilité d'une harmonique à l'autre, soit environ 3 eV, pour certaines harmoniques d'ordres élevés avec la méthode de Dscan XUV. Ces accordabilités apportent un outil pour générer des fréquences XUV autour d'une fréquence particulière, utile pour des expériences de spectroscopie ou de résonance. Le contrôle fin de cette accordabilité du spectre XUV repose néanmoins sur un contrôle fin de la durée des impulsions XUV ainsi que de certaines paramètres : dispersion ajoutée pour l'impulsion fondamentale (Dscan XUV) ou un interféromètre de résolution sub-femtoseconde comme celui développé lors de l'expérience au CELIA en collaboration avec le King's College. La connaissance de l'impulsion fondamentale, de son profil temporel, au point de génération d'harmonique, reste une information cruciale et critique.

D'autres pistes d'améliorations peuvent aussi être évoquées pour le système de post-compression. Pour la fibre creuse, plusieurs capillaires ont été testés. La transmission par les différents capillaires n'a jamais excédé les 50%, ce qui reste correct mais améliorable. La difficulté de trouver un capillaire étiré de bonne qualité reste une étape à franchir dans l'amélioration du système. Par ailleurs, le système utilisé pour compenser la dérive de fréquence de l'automodulation de phase se compose d'une dizaine de miroirs chirpés. 8 miroirs chirpés sont aussi ajoutés pour précompenser l'ajout d'optiques supplémentaires, comme pour la porte de polarisation etc. Le fait d'avoir autant de miroirs sur une propagation qui dépasse plusieurs mètres peut jouer sur la stabilité du pointé de faisceau après propagation. Une solution d'amélioration peut être d'avoir, à la manière de la stabilisation du pointé en entrée de capillaire de postcompression, une stabilisation du pointé avec une caméra qui image à un endroit correspondant au point focal de génération des harmoniques. Une alternative serait de limiter le nombre de montants, donc de miroirs. Pour garder la même compensation de dérive de fréquence, des miroirs chirpés larges ont été achetés. Au lieu d'avoir 8 miroirs chirpés avec 8 montants comme la situation actuelle, on aurait uniquement deux miroirs, avec un nombre de rebonds intermédiaires entre les deux. Chaque rebond agit comme une paire de miroirs supplémentaires. Cela demande aussi à ne pas avoir une taille de faisceau trop grande par rapport au miroir.

La question de la pertinence du système de postcompression via un capillaire fin peut aussi se poser. D'autres systèmes ont été mis en place afin de produire des impulsions de quelques cycles optiques, permettant de travailler avec des efficacités de plus en plus grandes et des systèmes lasers de plus en plus variés. Une alternative à la postcompression dans un capillaire peut être l'utilisation d'une cellule multipassage [174, 175], basée sur un système de cellule d'Herriot par exemple. Dans ce système, l'impulsion est focalisée dans un milieu gazeux ou dans un morceau de verre, et effectue plusieurs passages à l'intérieur de ce milieu. Ces passages multiples sont assurés par les rebonds successifs du faisceau entre deux miroirs de focalisation. Ce système assure un élargissement progressif du spectre de l'impulsion fondamentale. La transmission des cellules est aussi plus grande qu'avec des capillaires : au dessus de 90% pour les cellules [176, 177], contre 70% pour les capillaires [178]. Des durées de quelques cycles optiques ont été atteintes pour des impulsions issues de laser Ti :Saphir [179, 180], ou encore avec des lasers Ytterbium [175, 181, 182, 183]. Ces cellules présentent une meilleure qualité de faisceau en sortie, avec une sensibilité aux imperfections moindre que celle que l'on peut avoir avec une propagation guidée dans un capillaire, mais demandent aussi un alignement plus fin et plus précis. La postcompression via capillaire [184, 84] ou fibre creuse [87, 65] reste néanmoins un domaine actif scientifiquement, et continue à voir croître différentes améliorations, que ce soit en termes de transmission, durées

d'impulsions ou encore énergies.

Dans le Chapitre 3, à partir d'impulsions non postcomprimées, nous avons pu implémenter une méthode établie de confinement temporel de l'émission XUV, le confinement par porte de polarisation. En partant de la configuration usuelle de la porte de polarisation, qui est une configuration où la porte de polarisation est centrée sur l'impulsion fondamentale, nous avons pu décliner différentes configurations. Ces configurations consistent principalement à pouvoir déplacer la porte de polarisation à l'intérieur du profil de l'impulsion fondamentale. Les signatures spectrales obtenues vérifient les évolutions obtenues par différentes simulations. Cela a notamment amené des situations où l'on a pu déplacer la porte de polarisation à l'intérieur du profil d'intensité de l'impulsion, sans changer la forme de la porte, ni le confinement temporel de l'émission XUV. Nous avons vu que cette méthode permettait de trouver des optima de signaux décalés par rapport à la position centrée dans certaines conditions expérimentales. Cela semble aussi ouvrir sur des aspects de dynamiques de population, où l'on pourrait venir sonder certaines dynamiques de peuplement/dépeuplement d'états, comme ce que l'on observe avec les états de Rydberg dans les mesures en Chapitre 3. Cela a aussi amené des situations d'accordabilité du spectre harmonique. Avec les mesures de la Section 3.2.2, une accordabilité du spectre harmonique, conséquence du déplacement de la porte dans le profil temporel de l'impulsion, a été observée. Cette accordabilité allait de 250 meV à 700 meV pour les contributions des chemins courts de l'harmonique H11 à H19, à 1.1 eV pour la contribution du chemin long de l'harmonique H11. Ces accordabilités ont été reliées à la phase d'émission des harmoniques $\phi_q = q\phi_0 + \alpha_q \frac{\partial I}{\partial t}$. En considérant que l'accordabilité observée dépend de $\frac{\partial I}{\partial t}$, reproduire une expérience avec des impulsions plus courtes de même énergie permettrait d'observer des accordabilités plus grandes, car $\frac{\partial I}{\partial t}$ serait plus grand. Ce travail a aussi permis d'introduire le concept de α_{eff} et de montrer certaines situations où l'on pouvait observer des α_{eff} négatifs.

Ce chapitre a aussi permis de se familiariser avec l'utilisation de la porte de polarisation avec une utilisation standard, nous permettant d'observer des effets d'élargissement spectraux. Dans ce chapitre, les expériences étaient principalement faites avec des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes (20-30 fs). La mise en place de ce système avec des impulsions longues a permis d'ouvrir à la combinaison des méthodes exposées dans le Chapitre 3 et dans le Chapitre 4. Cette combinaison d'impulsions courtes de quelques cycles optiques et de confinement d'émission XUV par porte de polarisation a eu pour but de générer un continuum dans le spectre XUV. C'est le sujet qui est abordé dans le Chapitre 4.

Dans ce Chapitre 4, nous avons obtenu plusieurs situations où l'on a pu observer un continuum dans le spectre XUV. Dans un premier temps, un continuum dans le spectre XUV a été observé pour les harmoniques les plus élevés à l'institut Lumière Matière. Les largeurs typiques de ce continuum sont de 5 eV à mi-hauteur, avec quelques structures harmoniques rémanentes. Ces largeurs sont compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées, mais ceci ne le justifie pas. Le rapport minimum/maximum dans ces structures est à 50%, ce qui nous permettait de qualifier le spectre obtenu entre 35 eV et 50 eV de continuum XUV. Ce continuum a été observé en fonction de l'ouverture de la porte de polarisation, donc en fonction de la teneur du confinement temporel de l'émission XUV. La mesure a montré que les structures harmoniques réapparaissaient lorsque la porte passait d'une configuration porte étroite où le confinement temporel est maximum, à une configuration porte large, où il n'y a plus de confinement temporel. Cela nous a permis de justifier l'impact du confinement temporel sur la génération de ce continuum XUV. Ces expériences sont néanmoins à mettre en perspective avec le

fait que la CEP n'était pas stabilisée. On a donc observé une moyenne de spectres sur les CEP. Une perspective peut être de reproduire l'expérience afin de réobtenir le continuum, et d'effectuer des scans en CEP avec la CEP stabilisée, pour observer si il y a des effets de CEP sur la génération de continuum ou non. Un système de stabilisation de la CEP avec un nouvel oscillateur laser a été installé courant 2023 à l'Institut Lumière Matière.

Nous avons aussi observé une génération de continuum en combinant impulsions courtes et porte de polarisation lors d'une collaboration avec le Lund Laser Center. Dans ces expériences, le continuum généré a pu être testé avec des effets de CEP, et aussi isolé avec un filtre métallique. Les différentes mesures spectrales effectuées ont montré des continuum XUV compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées. Avoir implémenté la porte de polarisation sur un système existant avec de multiples réflexions à 45° a aussi amené quelques surprises et observations, comme l'importance de prendre en compte des différences de propagation entre les différentes polarisations après réflexions sur des miroirs à un angle d'incidence non nul. Cet effet a pu être mesuré, quantifié et retrouvé avec un autre système et des simulations. Au delà de ça, une mesure de photoélectrons pour un spectre XUV généré avec des impulsions courtes a montré une reconstruction de profil temporel d'impulsion attoseconde isolée. Le profil temporel reconstruit présente un rapport de moins de 10% en intensité entre le pic principal et les post et pré impulsions. Néanmoins, le spectre XUV qui correspond à la génération de cette impulsion présente encore des structures harmoniques claires, surtout sur les harmoniques les plus basses. Il semble donc y avoir des situations où l'on puisse avoir une génération d'une impulsion attoseconde isolée avec un spectre XUV qui ne présente pas de continuum clair. Nous avons tenté de l'expliquer via des simulations qui collent correctement avec les différentes observations expérimentales.

Dans le Chapitre 5, nous nous sommes concentrés sur la caractérisation des impulsions attosecondes XUV. Dans un premier temps, le focus s'est porté sur deux méthodes basées sur l'observation de signal de photoélectrons. Ces deux méthodes ont permis de travailler et prendre en main des méthodes de caractérisation d'impulsions robustes et rodées. La reconstruction RABBIT effectuée à l'ILM montre des durées XUV de l'ordre de quelques centaines d'as. Une trace FROG CRAB a pu être enregistrée, mais la reconstruction associée n'a pas été effectuée. La reconstruction avec les photoélectrons effectuée en collaboration avec le Lund Laser Center montre un profil temporel d'une impulsion attoseconde isolée, avec une durée de 160 as. En croisant l'utilisation de la polarisation dans les deux chapitres précédents et cet aspect de caractérisation d'impulsions attosecondes, nous avons ensuite proposé deux méthodes, basées sur l'observation de photons XUV et sur la polarisation de l'impulsion fondamentale, pour caractériser les profils femtosecondes des enveloppes harmoniques. Ces deux méthodes sont respectivement la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité et la méthode SWING XUV. Des reconstructions ont été effectuées pour des profils XUV simulés de différentes formes. Une première reconstruction à partir de données expérimentales a été également donnée. Au-delà de la reconstruction, des informations sur l'émission XUV ont été extraites des évolutions de signaux (temps moyen d'émission, décalage de l'émission dans le front montant ou dans le front descendant de l'impulsion..). La mesure SWING XUV a amené une collaboration avec l'université de Salamanque, qui est toujours en cours, pour trouver une méthode de reconstruction robuste. Des pistes d'amélioration pour les mesures ont été évoquées en conclusion de ce Chapitre 5, ainsi que des perspectives pour l'utilisation des mesures. L'extension de cette approche pour l'obtention du profil attoseconde et non plus du profil femtoseconde uniquement est

aussi l'objet des discussions de cette collaboration.

Au global, les travaux présentés dans cette thèse montrent que l'on a pu construire une source XUV avec laquelle on arrive à générer des spectres XUV quasi-continus, ce qui est une première dans l'équipe. L'installation récente du nouveau système CEP stable permettra d'effectuer des tests en fonction de la CEP pour ces spectres XUV continus, afin de vérifier que les signatures spectrales observées correspondent à la génération d'une impulsion attoseconde isolée.

Le système présente aussi la possibilité d'obtenir des spectres XUV harmoniques accordable en fréquence dans des situations spécifiques (Dscan XUV, porte de polarisation asymétrique). Avec la porte de polarisation décalée, cette accordabilité s'étend de quelques centaines de meV (≈ 200 meV) pour les harmoniques les plus basses à 700 meV avec les harmoniques les plus hautes, jusqu'à l'eV en prenant en compte les contributions des chemins longs de la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Avec la méthode de Dscan harmoniques, une accordabilité de l'ordre de 1.5 eV pour les harmoniques de la coupure a été observée à deux énergies/puissances d'entrée différentes. Cette accordabilité, en poussant avec des impulsions encore plus courtes, atteint même 3 eV pour les harmoniques de la coupure, avec des conditions expérimentales différentes. Ces accordabilités trouvées sont de l'ordre de grandeur de l'accordabilité des autres méthodes, comme les interférences à deux impulsions [117, 118, 119] aussi illustrées dans ce manuscrit. D'autres méthodes [185, 186, 63, 187] (comme par exemple TOPAS ou OPCPA) permettent d'obtenir des accordabilités supérieures.

La porte de polarisation a permis de générer des spectres continus signatures de la génération d'impulsions attosecondes isolées avec deux systèmes différents :

- À l'institut Lumière Matière, avec un continuum de 7 eV de largeur à mi-hauteur, autour de 40 eV. La génération d'harmoniques se faisait dans une cellule de gaz d'argon de 6 mm.
- Au Lund Laser Center, en Suède, avec un continuum qui présente une largeur de 7 eV également, autour de 55 eV. La génération d'harmoniques se faisait dans un jet de gaz d'argon.

On a donc obtenu des situations de génération d'impulsions attosecondes isolées avec des spectres continus entre 40 eV et 55 eV. En comparant avec d'autres méthodes de génération d'impulsions attosecondes isolées, les spectres continus obtenus se situent à plus basse énergie que ceux obtenus dans la méthode par porte d'ionisation [33, 38, 59].

La porte de polarisation ne nécessite pas non plus un travail supplémentaire sur le front d'onde de l'impulsion fondamentale, comme on peut le faire avec la méthode du phare attoseconde [60, 61, 62, 63] pour obtenir une impulsion attoseconde isolée. Le système utilisé dans ce manuscrit est particulièrement compact et simple, avec beaucoup de degrés de liberté sur la manière de confiner temporellement l'émission XUV.

Un des avantages de la porte de polarisation consiste dans le fait d'obtenir un confinement temporel sur toutes les harmoniques, plateau et coupure. Dans la méthode de confinement par ionisation, les spectres continus sont aussi générés dans la coupure, et le confinement temporel n'est effectif que pour les harmoniques de la coupure. Le désavantage premier se situe dans l'énergie des impulsions attosecondes XUV. En implémentant la porte de polarisation, on perd un facteur non négligeable en énergie dû au confinement temporel (facteur 4/5 environ). Cette perte est moins significative en travaillant avec des impulsions courtes, car on peut obtenir un confinement temporel inférieur au demi-cycle optique pour des délais δ plus petits (facteur inférieur à 2).

En comparant les différents milieux générateurs décrits dans ce manuscrit, la géné-

ration en cellule était très efficace pour obtenir des spectres harmoniques, mais amenait plus facilement d'autres questions (accord de phase, réabsorption). La génération en cellule a aussi l'avantage d'être adaptable en terme de longueur d'interaction. Il serait intéressant de regarder l'effet sur le continuum spectral de ce changement de longueur d'interaction. Avec une cellule plus courte, les effets de réabsorption seraient par exemple diminués, permettant de réobserver plus facilement les harmoniques basses dans les situations où l'on obtenait les spectres continus à l'iLM.

Les mesures de streaking a Lund ont montré que l'on pouvait obtenir une impulsion attoseconde isolée avec un contraste faible en intensité sans la porte de polarisation, avec un spectre harmonique qui présente des structures harmoniques. Néanmoins, la porte de polarisation est un moyen efficace et robuste d'obtenir des spectres continus, et les situations mises en évidence dans ce manuscrit démontrent que ces spectres continus sont associés à la génération d'impulsions attosecondes isolées.

Durant cette thèse, le choix du gaz s'est porté sur l'argon pour plusieurs arguments :

- L'argon est un gaz qui permet d'avoir un spectre harmonique avec une coupure assez haute en énergie (jusqu'à l'harmonique H33 dans nos conditions de génération) avec un flux de photons raisonnable. Pour les gaz nobles le flux de photons augmente lorsque l'on prend un gaz comme le krypton ou xénon (de plus bas I_p), mais l'énergie de coupure est plus faible, car le potentiel d'ionisation pour ces gaz est plus faible [188]. Au contraire, pour le néon ou l'hélium, dont le potentiel d'ionisation est plus grand, l'énergie de coupure est plus haute, avec plus d'harmoniques dans le spectre, mais le flux de photons est plus faible. De ce fait, l'argon était un bon compromis entre flux de photons et énergie de coupure élevée.
- La conclusion est similaire pour la dépendance en ellipticité. ϵ_{thr} sera d'autant plus bas que le potentiel d'ionisation du gaz est haut. Le confinement temporel sera donc plus efficace pour l'hélium ou le néon, et moins efficace pour le krypton ou le xénon. L'argon est là aussi un bon compromis.
- Le coût. Le prix du néon ou du krypton par rapport à l'argon nous a incité à se tourner vers ce gaz, avec l'achat d'une bouteille d'un volume suffisant.

En choisissant donc un autre gaz, comme le néon, on pourrait obtenir un confinement temporel plus fort, avec une énergie de coupure plus élevée [189]. Malgré la baisse de flux de photons en utilisant du néon par rapport à l'argon, l'émission XUV reste possible à détecter. Les tensions sur les MCP utilisées pour la détection des spectres continus restent assez basses par rapport à la limite de 2000 V de travail pour ces galettes (1200 V pour la tension de travail dans la majorité des cas d'obtention de spectres continus). En ordre de grandeur, l'intensité du signal observé sur les galettes est doublée pour 50 V supplémentaires. Cela permettrait donc d'aller voir des effets de confinement temporel et potentiellement des spectres continus avec une énergie de coupure plus haute. Les applications des impulsions attosecondes obtenues en générant dans le néon seraient aussi différentes, de par l'énergie par impulsion attoseconde qui serait elle aussi différente, ainsi que la gamme spectrale dans laquelle le continuum est obtenu.

L'installation de la stabilisation de la CEP à l'iLM est un ajout récent qui permettra d'aller plus loin lors des prochaines expériences, notamment dans les situations d'obtention de spectres continus.

Les prochains projets porteront sur les propriétés spatiales des harmoniques [190, 191, 192], notamment sur la refocalisation des harmoniques [193, 194]. Un SLM (Spatial Light Modulator) a été commandé et sera au centre des prochains travaux. Les

travaux sur les méthodes de caractérisation d'impulsions XUV présentées dans le quatrième chapitre seront aussi continués, notamment avec la méthode de perturbation par modulation d'ellipticité. Cela amènera des améliorations et de nouveaux développements sur la ligne de lumière actuelle.

Annexe 1 : Caractérisation des lames biréfringentes : positions des axes et épaisseurs/retards

Les mesures impliquant les lames multiordre comme élément biréfringent introduisant un retard ou un déphasage requièrent une bonne connaissance de leurs caractéristiques, plus spécifiquement de l'orientation de leurs axes neutres et leurs épaisseurs. Chaque lame est montée dans une monture de rotation, permettant de tourner l'orientation des axes neutres de la lame. L'installation étant manuelle, la graduation 0 de la monture de rotation ne correspond pas forcément à la position où l'on a les axes neutres horizontaux et verticaux. Pour les lames multiordres, connaître les épaisseurs, et donc les retards introduits, de manière précise permet de calibrer et comprendre les phénomènes dépendants du déphasage et du retard. C'est le cas notamment pour les différentes configurations de la porte de polarisation, expliquées dans le Chapitre 3, ou encore pour les mesures où les prismes biréfringents sont utilisés comme un interféromètre à séparation de polarisation, comme dans le Chapitre 5.

Pour cette caractérisation, le montage est illustré en Figure 1.

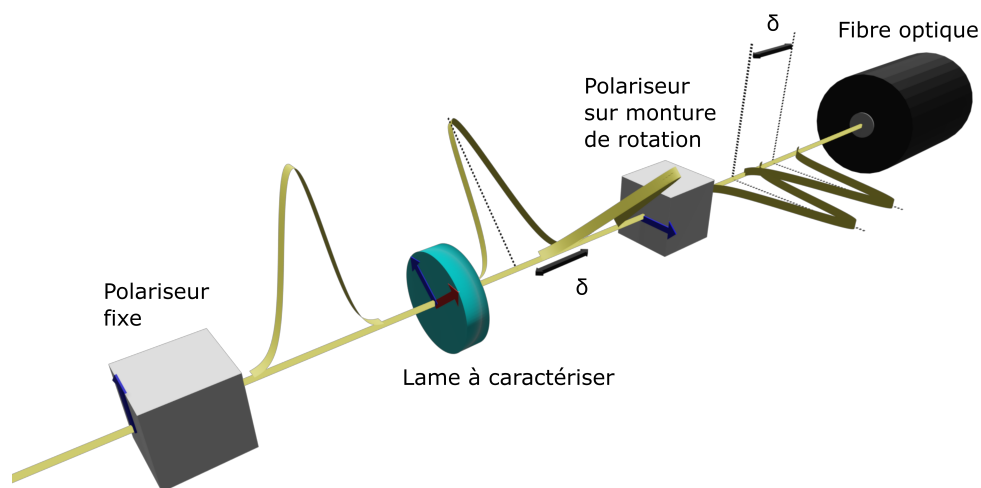


FIGURE 1 – Montage expérimental utilisé pour caractériser les différentes lames d'onde. Deux polariseurs travaillant entre 600 et 900 nm sont installés avec des orientations croisées, permettant d'obtenir une extinction parfaite. La lame à caractériser est ensuite insérée entre les polariseurs. La lame est dans une monture de rotation également.

On effectue une mesure spectrale avec une lampe blanche, délivrant un spectre large entre 700 et 900 nm (gamme de travail des optiques). La lumière est transmise via un

premier polariseur, afin d'obtenir un état de polarisation linéaire. Elle est ensuite transmise à travers un deuxième polariseur, dont l'orientation est croisée avec l'orientation du premier polariseur. La lumière transmise après ces deux polariseurs est collectée par une fibre optique reliée à un spectromètre commercial. Le second polariseur est placée sur une monture de rotation, ce qui permet de trouver finement l'orientation pour laquelle les deux polariseurs sont bien croisés. Lorsque l'on a extinction, donc un signal nul en sortie des polariseurs, les orientations des polariseurs sont bien croisées.

Pour trouver l'extinction, on a enregistré le signal intégré spectralement en fonction de l'orientation du deuxième polariseur. L'extinction est obtenue ainsi de manière précise.

La lame à caractériser est ensuite placée entre les deux polariseurs croisés. On vérifie que l'on est bien en incidence normale avec le faisceau. Pour définir la position des axes, on enregistre l'évolution du signal intégré en fonction de l'orientation des axes de la lame. Le signal $I(\theta_{lame})$ doit évoluer comme une loi de Malus avec $I(\theta_{lame}) = I_0 \cos(\theta_{lame})^2$, avec θ_{lame} l'orientation des axes de la lame multiordre par rapport à la polarisation linéaire incidente. Un exemple d'évolution est donné pour une lame multiordre en quartz, annoncée d'épaisseur 1.032 mm, en Figure 2. On fait un ajustement de cette évolution par une fonction de type loi de Malus :

$$I(\theta_{lame}) = I_0 \sin(\theta_{lame} + \phi)^2 \quad (1)$$

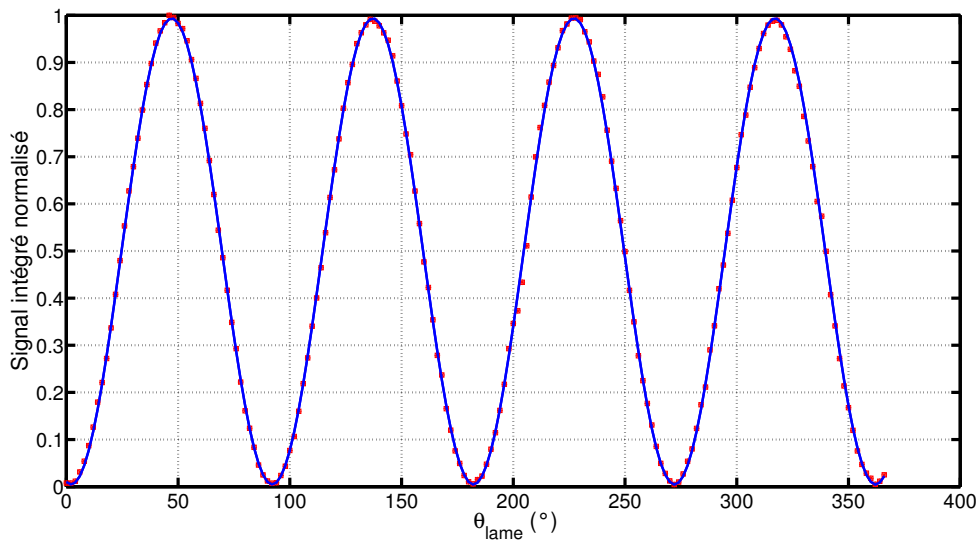


FIGURE 2 – Évolution du signal intégré normalisé en fonction de la graduation de la platine de rotation en carrés et étoiles rouge. L'ajustement par une fonction de type $a \sin(2 * (x - c))^2 + d$ (voir Équation (1)) est dessiné en trait plein bleu.

On obtient un bon accord entre l'ajustement par Équation (1) et les données expérimentales. La graduation pour laquelle on obtient les axes neutres de la lame est celle où l'on obtient le minimum de signal à nouveau. Ici, on trouve une graduation à $\theta_{lame} = 2^{\circ}$. On connaît donc la position des axes neutres pour cette lame. On répète la même opération pour toutes les lames d'onde dont on dispose. Les positions respectives des axes sont résumées dans le tableau Tableau 1.

L'épaisseur des lames biréfringentes se détermine en observant les cannelures spectrales lorsque l'orientation de lame est à 45° de l'orientation des deux polariseurs. Dans

cette situation, on crée des interférences en lumière blanche, avec des cannelures spectrales qui vont directement dépendre de l'indice du matériau ainsi que de l'épaisseur de la lame. Un exemple de cannelures spectrales est donné pour la lame multiordre annoncée à 1.032 mm en Figure 3. Pour déterminer l'épaisseur, on passe par le calcul des indices ordinaires et extraordinaires pour le matériau, ici c'est une lame en quartz. Les indices pour le quartz sont tabulés [148]. Les cannelures spectrales peuvent être ajustées avec une fonction :

$$I(\lambda) = I_0 \sin\left(\frac{2\pi(n_o - n_e)e}{\lambda}\right)^2 \quad (2)$$

Les ajustement pour trois épaisseurs $e = 1.020$ mm, $e = 1.029$ mm et $e = 1.039$ mm sont donnés en Figure 3. Le meilleur ajustement est pour $e = 1.029$ mm. L'accord est bon pour l'épaisseur $e = 1.029$ mm ± 0.003 mm. Ainsi, on connaît l'épaisseur de cette lame à l'aide de la mesure des cannelures spectrales. La même mesure est effectuée pour toutes les lames biréfringentes, et les différents retards et épaisseurs sont resumés dans le tableau Tableau 1.

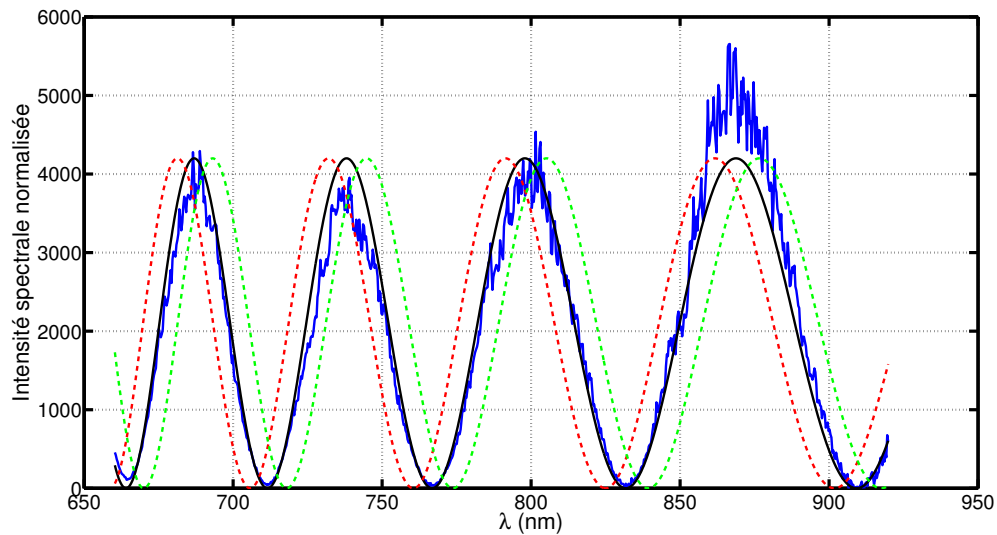


FIGURE 3 – Cannelures spectrales obtenues pour $\theta_{lame} = 45^\circ$ avec la lame de quartz biréfringente annoncée à 1.032 mm d'épaisseur. Trois ajustements par la fonction de type Équation (2) pour trois épaisseurs différentes sont aussi donnés, respectivement $e = 1.020$ mm en pointillés rouge, $e = 1.029$ mm en trait plein noir et $e = 1.039$ mm en pointillés vert.

Un dernier paramètre pour la caractérisation des lames biréfringentes est de trouver l'axe lent et l'axe rapide pour chaque lame, comme indiqué dans le Tableau 1. Pour faire ceci, on procède en plusieurs étapes. Pour la première étape, les axes rapide et lent d'une lame de référence sont repérés. Dans notre cas, nous avons choisi la lame d'épaisseur $e = 1.029$ mm. La position des axes rapide et lent est ensuite repérée à l'aide de l'interféromètre IR/IR (bras XUV sans gaz) développé à l'ILM. La lame est placée sur le bras de génération XUV, et la cellule est laissée pompé à vide. Les cannelures spectrales obtenues par le recouvrement entre les deux bras de l'interféromètre sont observées pour deux positions de la monture : 92° et 182° . On utilise ensuite ces cannelures pour déterminer un délai, qui doit évoluer selon l'orientation de la lame.

Lame	Position axes neutres	Axe rapide horizontal	Axe lent horizontal	Épaisseur (mm)
$\frac{\lambda}{4}$ MO 1.032 mm (quartz)	$2^\circ_{[90^\circ]}$	$2^\circ_{[180^\circ]}$	$92^\circ_{[90^\circ]}$	1.029
$\frac{\lambda}{4}$ MO 0.850 mm (quartz)	$4^\circ_{[90^\circ]}$	$94^\circ_{[180^\circ]}$	$4^\circ_{[180^\circ]}$	0.843
$\frac{\lambda}{4}$ MO 0.513 mm (quartz)	$10^\circ_{[90^\circ]}$	$10^\circ_{[180^\circ]}$	$100^\circ_{[180^\circ]}$	0.513
$\frac{\lambda}{4}$ MO 0.383 mm (quartz)	$153^\circ_{[90^\circ]}$	$153^\circ_{[180^\circ]}$	$63^\circ_{[90^\circ]}$	0.381
$\frac{\lambda}{2}$ MO 0.328 mm (quartz)				
$\frac{\lambda}{4}$ ZO achromatique	$4^\circ_{[90^\circ]}$	n.d	n.d	n.d
$\frac{\lambda}{4}$ ZO true zero order	$27^\circ_{[90^\circ]}$	n.d	n.d	n.d
$\frac{\lambda}{2}$ ZO	$-4^\circ_{[90^\circ]}$	n.d	n.d	n.d
Lame de calcite n1	$59^\circ_{[90^\circ]}$			
Lame de calcite n2	$6^\circ_{[90^\circ]}$			

TABLE 1 – Résumé de la position des axes et épaisseur pour chaque lame d’onde.

Pour la graduation 182° , le délai est de 455 fs. Pour la graduation 92° , le délai est de 1450 fs. La polarisation est verticale dans l’expérience. Avoir un délai plus grand ici correspond à une diminution de l’épaisseur optique. L’épaisseur optique est donc plus petite pour la graduation 92° que pour la graduation 182° . Cette lame est utilisée comme référence.

Ensuite, pour repérer les axes rapide et lent des autres lames, on réutilise le montage interférométrique à la lampe blanche pour observer des cannelures spectrales. L’idée est d’observer les cannelures spectrales avec une combinaison de deux lames : la lame de référence et la lame pour laquelle on veut trouver les axes rapide et lent. L’orientation des axes neutres de la lame de référence est fixée à 45° de la polarisation linéaire incidente. Cela crée des cannelures spectrales dues au délai introduit par cette lame de référence. En ajoutant la seconde lame dont les axes neutres sont aussi orientés à 45° de la polarisation linéaire incidente, on trouve deux situations :

- Le nombre de cannelures spectrales augmente, donc le délai total est augmenté. L’axe rapide de la seconde lame est alors aligné avec l’axe rapide de la lame de référence.
- Le nombre de cannelures spectrales diminue, le délai total est diminué. L’axe rapide de la seconde lame est alors aligné avec l’axe lent de la lame de référence.

Avec cette mesure et la connaissance de la position de l’axe rapide et l’axe lent pour la lame de référence, on détermine les positions des axes rapide et lent de la seconde lame. Un exemple de mesure de cannelures spectrales est donné en Figure 4 (a), avec deux situations où les délais se compensent et les délais s’ajoutent. Quand les délais s’ajoutent, le nombre de cannelures spectrales est bien plus grand que lorsque les délais se compensent. La figure (b) montre deux spectres cannelés pour les deux positions où les délais s’ajoutent. La reproductibilité du spectre est assez bonne, car les cannelures sont semblables pour deux orientations espacées de 180° l’une de l’autre sur la monture de rotation. Avec cette méthode, on identifie la position des axes rapide et lent de chaque lame du Tableau 1. Les graduations associées aux axes lent et rapide sont consignées dans ce tableau.

En conclusion, nous avons pu caractériser entièrement les lames : épaisseurs, positions des axes, position des axes lent et rapide. Cette étude permet d’avoir une bonne connaissance des différentes optiques utilisées pour la porte de polarisation (voir Cha-

pitre 3 et Chapitre 4), mais aussi de justifier de la position d'une perturbation ou d'une réplique, notamment lorsque l'on utilise une séparation de polarisation par biréfringence, comme dans les méthodes XUV SWING ou perturbation par modulation d'ellipticité. En connaissant bien la position des axes rapide et lent ainsi que l'orientation de la polarisation incidente, on peut dire si la perturbation se trouve dans le front montant ou dans le front descendant (voir Chapitre 5).

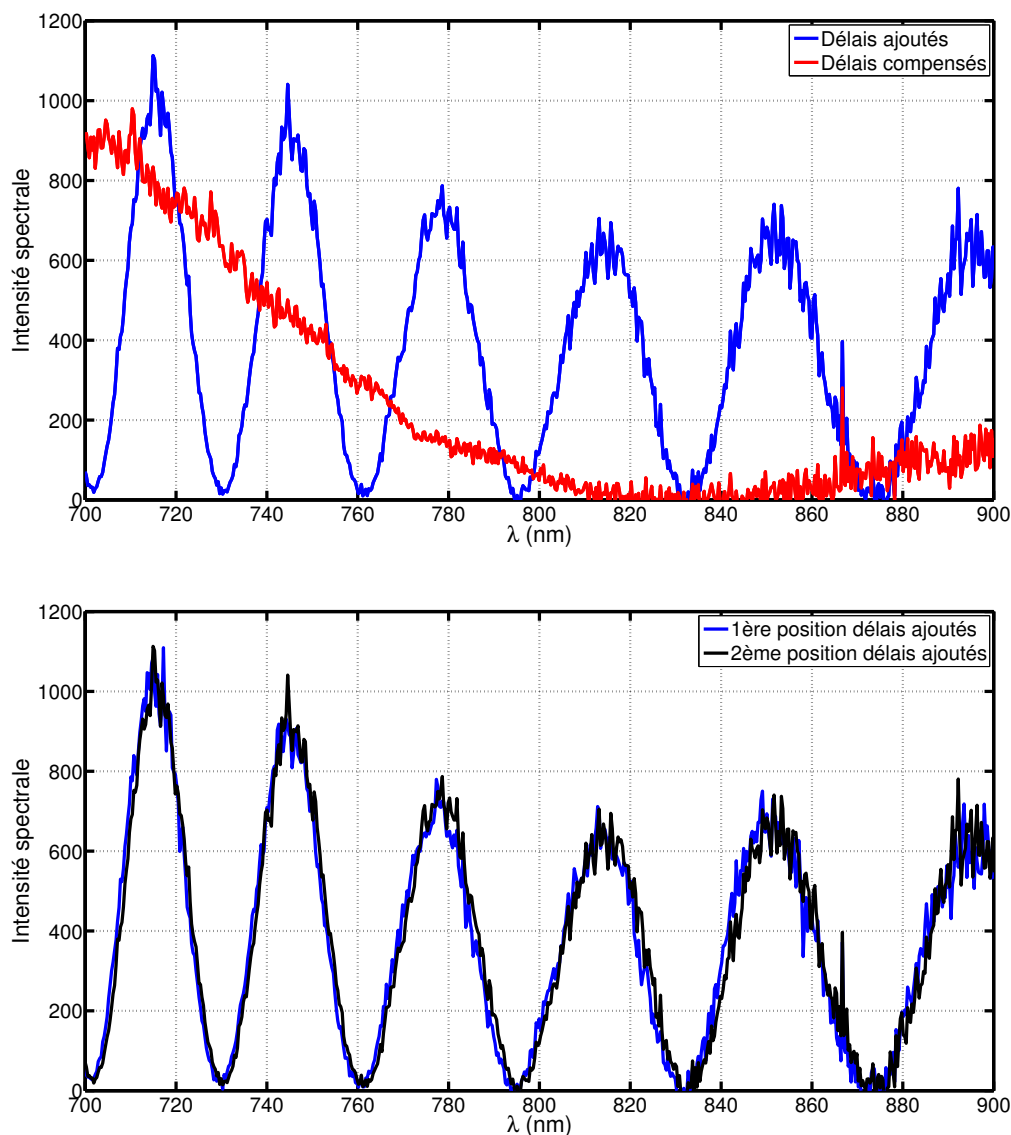


FIGURE 4 – (a) Évolution des cannelures spectrales pour deux orientations de la seconde lame, qui correspondent à un ajout des délais ou à une compensation des délais. Le nombre de cannelures est bien plus grand dans la position où les délais s'ajoutent. (b) Cannelures spectrales pour les positions où les délais s'ajoutent, espacées de 180° sur la monture de rotation de la lame. Les cannelures sont semblables.

Annexe 2 : Caractéristiques du spectromètre XUV champ plan

Pour l'observation des spectres XUV dans les expériences présentées dans ce manuscrit, nous avons utilisé un spectromètre XUV champ plan, permettant à la fois d'observer le profil spatial et le profil spectral des harmoniques générées. L'aspect spatial permet notamment de faire des séparations spatiales des différentes contributions et trajectoires de la générations d'harmoniques, où d'isoler certaines parties du spectres.

Cette annexe vise à décrire les éléments qui composent ce spectromètre XUV ainsi qu'à montrer sa calibration.

Le spectromètre se compose d'une fente d'entrée de largeur $150 \mu\text{m}$, située à une distance de 60 cm de la cellule de génération d'harmoniques. Cette fente permet, observée par une caméra, de réaligner jour à jour le spectromètre XUV et avoir une bonne reproductibilité sur l'observation du spectre XUV. La position de cette fente d'entrée est réglée en bougeant physiquement le spectromètre. Pour les deux dimensions du plan horizontal parallèle au sol, le spectromètre est installé sur une platine de translation avec deux vis sans fin à chaque extrémité de la platine, comme montré en Figure 5..

En ajustant les deux positions des deux vis, l'orientation du spectromètre dans ce plan 2D peut être ajustée. Pour la troisième dimension, en hauteur, l'ensemble spectromètre et platine est placé sur 4 pieds réglables en hauteur par un système vis écrou.

Afin de permettre l'observation du spectre harmonique après la fente d'entrée, le faisceau est ensuite envoyé vers un réseau de diffraction. Le pas du réseau est de 300 traits par mm au centre de ce dernier, avec une dimension de 50 mm par 30 mm. Le coating du réseau est en or.

Une fois diffracté, le faisceau XUV est envoyé vers un système d'imagerie pour photons XUV. Le premier élément de ce système sont deux galettes de microcanaux, tête bêche. Le photon XUV arrive sur la galette, et provoque l'émission d'électrons à l'intérieur des microcanaux. Ces électrons, de par les tensions appliqués sur les galettes de microcanaux, sont multipliés par effet d'avalanche et accélérés vers un écran de phosphore. Le signal des électrons arrivant sur le phosphore est converti en signal lumineux par effet photoélectrique. Le signal émis par l'excitation de l'écran phosphore est ensuite observé par une caméra CCD. L'image de la caméra donne directement le profil spatiospectral de l'émission XUV, avec une dimension résolue spatialement (verticale) et une dimension résolue spectralement (horizontale).

Ce système d'imagerie compte de deux hautes tensions, avec une haute tension (négative, entre -1000 V et -2000 V) pour les galettes de microcanaux, et une haute tension (positive, entre 2800 V et 3000 V) pour l'écran phosphore.

Pour le réseau de diffraction, l'observation du spectre se base uniquement sur l'ordre 1 de ce dernier (et ordre 2 pour les harmoniques les plus hautes). Néanmoins, l'ordre 0, regroupant le fondamental ainsi que toutes les longueurs d'onde, existe. Envoyer cet

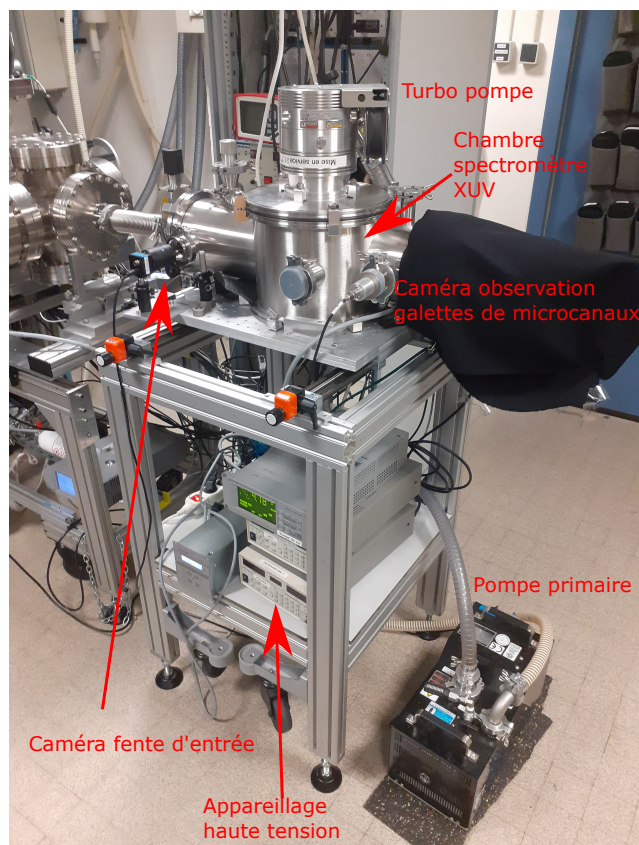


FIGURE 5 – Photo d’illustration du spectromètre XUV champ plan depuis l’extérieur.

ordre 0 directement sur le détecteur peut potentiellement induire un endommagement des galettes de microcanaux. Un bloqueur de faisceau est donc installé de manière à bloquer cet ordre 0, qui est séparé angulairement des ordres 1. Cet ordre 0 est ensuite envoyé vers un point de repère à l’extérieur du spectromètre XUV, donnant un second repère d’alignement.

Pour la calibration spectrale de ce spectromètre XUV, nous sommes partis d’un spectre harmonique à basse énergie et à basse pression de cellule pour limiter les effets d’ionisation, de décalage de fréquence, et avoir une longueur d’onde centrale du spectre à 800 nm, et des fréquences harmoniques multiples de cette fréquence centrale. La fréquence centrale des harmoniques doit alors correspondre à un multiple direct de la fréquence fondamentale du spectre, ici 800 nm. Le spectre de référence est donné en Figure 6. Une fois les positions des différentes harmoniques repérées, une interpolation sur la dimension spectrale est faite, afin d’associer chaque pixel à une longueur d’onde précise. À partir d’ici, la calibration du spectromètre ne doit pas changer, sauf modification de l’angle d’incidence du réseau.

La position des harmoniques est alors repérée, en pixels. Chaque position des harmoniques en pixel est associée à un ordre harmonique, correspondant à l’énergie de photon avec une longueur d’onde centrale à 800 nm, multipliée par l’ordre harmonique. Les positions repérées pour les différentes harmoniques sont dessinées en rond rouge sur la Figure 7. L’interpolation pour trouver l’énergie sur l’entièreté de la dimension spectrale est dessinée en bleu sur la Figure 7. La courbe bleue donne, à partir de l’image de calibration en Figure 6, l’évolution de l’énergie sur la dimension spectrale.

Pour la calibration spatiale, la référence est une image directe vue par la caméra, où les galettes de microcanaux sont directement visibles. La taille de ces galettes étant

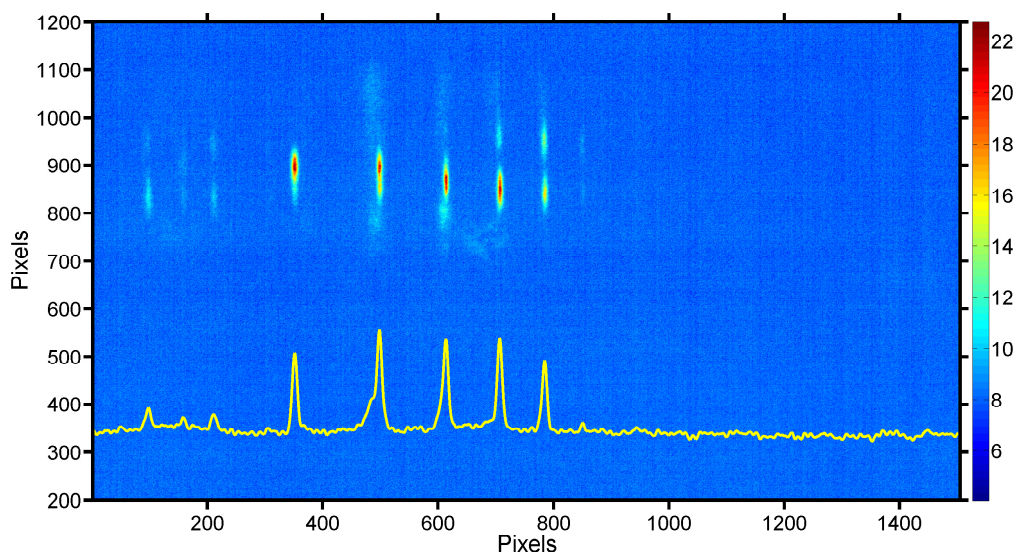


FIGURE 6 – Image spatio-spectrale d’un spectre XUV observé avec une basse pression de cellule (10 mbar) et une basse intensité (iris fermé). Les harmoniques sont générées dans l’argon. Les harmoniques visibles sont H9, H11, H13, H15, H17, H19 et H21. Les ordres 2 des harmoniques H17 et H19 sont également visibles autour de l’harmonique H9. Le spectre issu de l’intégration spatiale est dessiné en jaune.

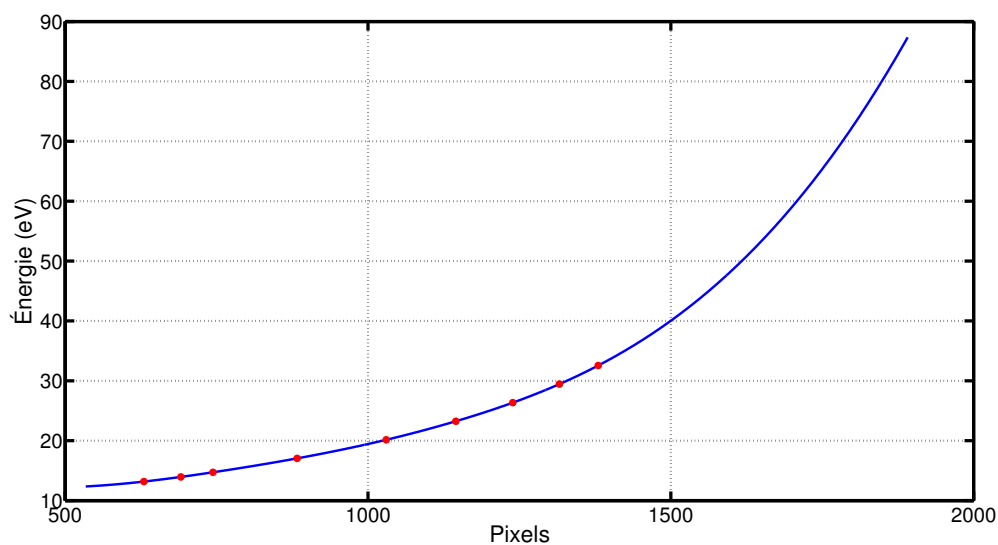


FIGURE 7 – Position des harmoniques en pixels repérées depuis le spectre en Figure 6 en ronds rouge. L’interpolation de l’évolution sur l’entièreté de la dimension spectrale dessinée en trait plein bleu. Cette courbe donne directement la calibration en énergie pour le spectromètre XUV champ plan. L’énergie associée aux harmoniques est donnée pour une longueur centrale de 800 nm.

connue, observer les galettes sur l’image permet d’avoir une calibration directe de l’échelle spatiale. L’image de référence est donnée en Figure 8. Les galettes de micro-canaux sont un cercle de diamètre 42 mm. En regardant l’image en Figure 8, on a directement l’équivalence pixels vs mm.

Par intégration de l’image sur l’abscisse ou l’ordonnée, on obtient un signal qui

évolue avec les pixels de la caméra. Les pixels pour lesquels le signal augmente donnent les limites des galettes. La moitié du diamètre des galettes de microcanaux correspond à 994-301 pixels. On a donc la calibration spatiale suivante

$$\text{calib}_{\text{spatiale}} = \frac{42}{2 \times (994 - 301)} = 0.03 \text{ mm.pixel}^{-1} \quad (3)$$

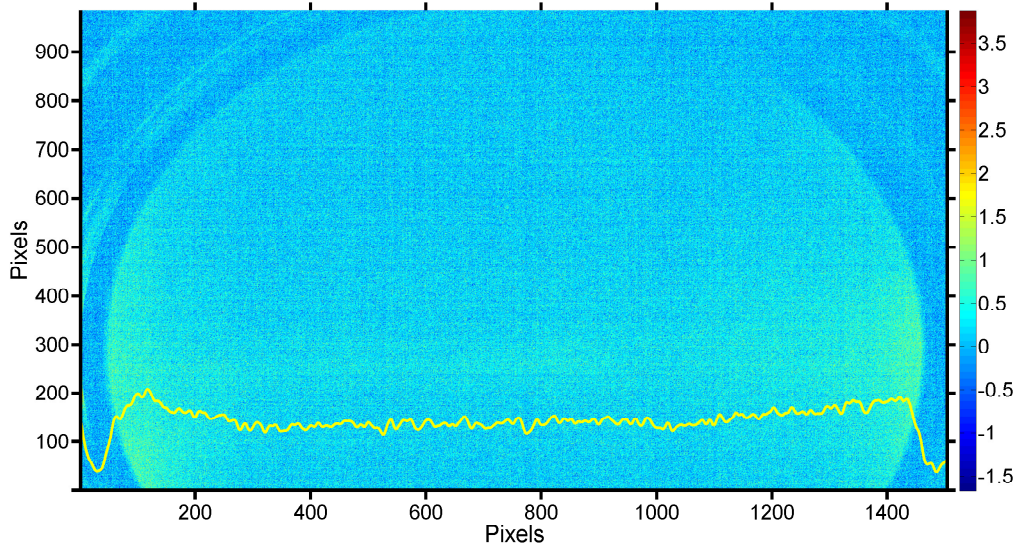


FIGURE 8 – Image de calibration de l'échelle spatiale pour le spectromètre XUV champ plan. Les galettes de microcanaux sont bien visibles sur l'image, apparaissant en forme d'ellipse en signal bleuté. L'intégration sur l'ordonnée donne la calibration spatiale. L'intégration de l'image sur l'ordonnée est dessinée en jaune. Le diamètre des galettes est de 42 mm. Les limites des galettes sont données pour un signal intégré nul.

À partir de ces deux mesures et analyse, la calibration spatiale et spectrale du spectromètre XUV est complète. La divergence des faisceaux harmoniques peut être caractérisée grâce à l'échelle spatiale et les caractéristiques spectrales des harmoniques grâce à l'échelle des énergies.

La résolution spectrale peut aussi être estimée, calculée à partir des données sur les éléments composant le spectromètre, ainsi que les deux calibrations effectuées précédemment. Ici, le spectromètre XUV champ plan fait l'image de la fente d'entrée sur les galettes de microcanaux. Ainsi, la plus petite taille que l'on puisse imager sera la taille de la fente d'entrée. En connaissant la taille de cette fente, la plus petite gamme d'énergie mesurable au niveau des galettes de microcanaux est calculée. Cela donne directement la résolution spectrale.

Soit e_{fente} la taille de la fente d'entrée. On peut convertir, à l'aide de la calibration spatiale en Équation (3) cette taille e_{fente} en pixels, $e_{fente,pixels}$. Une fois la conversion effectuée, cette taille en pixels correspond à une gamme d'énergie dans l'échelle spectrale. Cette gamme d'énergie va changer avec l'ordre harmonique, ou l'énergie, car l'évolution de l'énergie par rapport aux pixels n'est pas linéaire, comme montré en Figure 7.

La résolution en énergie est calculée pour chaque position/pixel de la manière suivante. Soit p_o le pixel où l'on veut calculer la résolution spectrale. Soit $\text{calib}_{\text{spec}}(p)$ la calibration spectrale dessinée en Figure 7, avec p les pixels. La résolution spectrale pour

le pixel p_o sera donnée par :

$$\Delta E_{\text{spectro}} = \text{calib}_{\text{spec}}\left(p_o + \frac{e_{\text{fente,pixels}}}{2}\right) - \text{calib}_{\text{spec}}\left(p_o - \frac{e_{\text{fente,pixels}}}{2}\right) \quad (4)$$

La quantité $e_{\text{fente,pixels}}/2$ est arrondie au pixel supérieur dans les calculs. En reprenant la position en pixels des harmoniques, la résolution spectrale pour chaque harmonique est calculée via l'Équation (4). Les valeurs sont résumées dans la Tableau 2.

Harmonique	H9	H11	H13	H15	H17	H19	H21	H23	H25	H27	H29	H31
Résolution (meV)	85	110	145	180	220	270	320	370	420	470	515	560

TABLE 2 – Résolution spectrale calculée pour les harmoniques H9 à H31, avec une fente d'entrée de $150 \mu\text{m}$, et les calibrations spectrales et spatiales calculées en Figure 7 et Équation (3).

Plus globalement, l'évolution de la résolution spectrale est donnée en Figure 9. Les résolutions spectrales autour des harmoniques H9 à H31 sont dessinées en traits pleins de couleur.

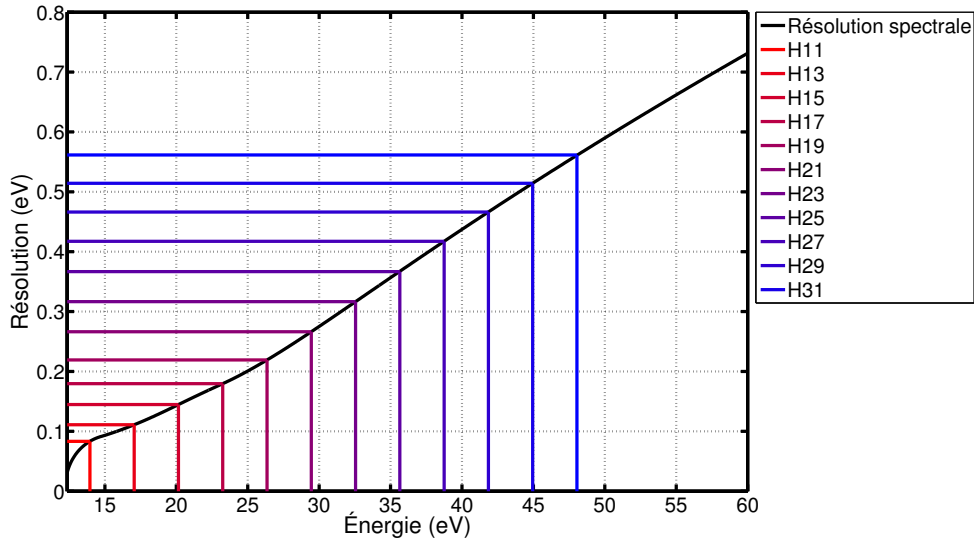


FIGURE 9 – Évolution de la résolution spectrale en fonction de l'énergie. Les résolutions autour des harmoniques H9 à H31 pour une longueur d'onde de 800 nm sont dessinées en pointillés de couleur.

Des photos de l'intérieur du spectromètre XUV champ plan sont données également en Figure 10.

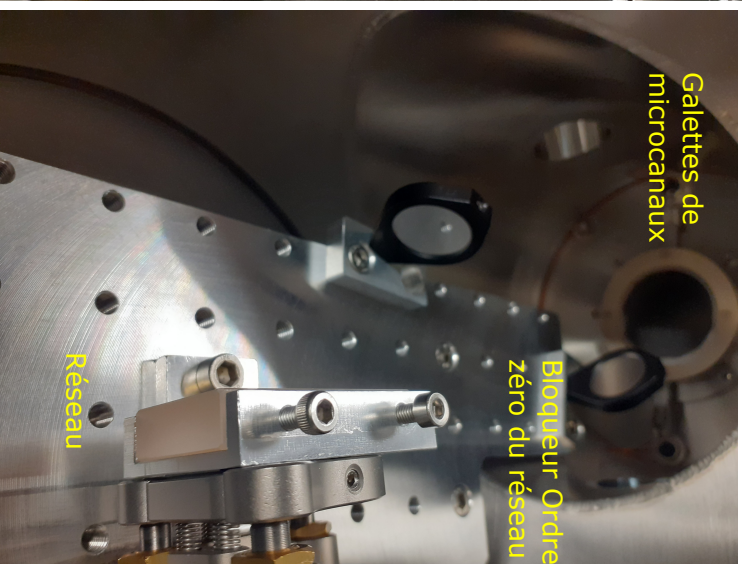
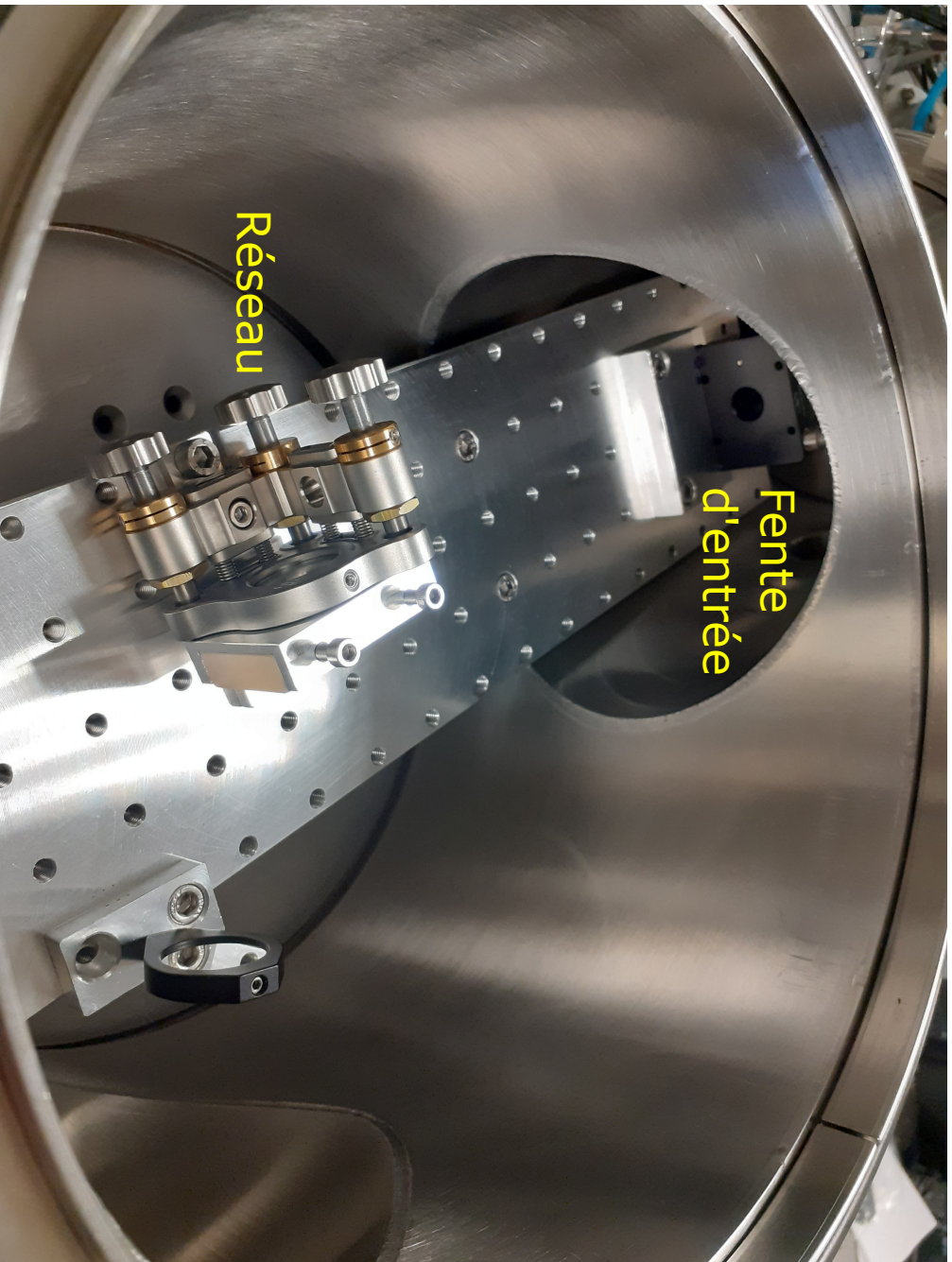


FIGURE 10 – Photographies du spectromètre XUV champ plan (intérieur). Le réseau diffractant est visible, ainsi que la fente d'entrée (repère d'alignement). Les gallettes de microcanaux sont visibles sur la photo (b) au fond, avec le bloqueur pour l'ordre zéro renvoyant vers l'extérieur du spectromètre XUV.

Annexe 3 : Probabilités et taux d'ionisation dans les gaz rares

Dans cette annexe, nous discutons des probabilités d'ionisation et taux d'ionisation dans les gaz rares : hélium, néon, argon, krypton et xénon. Cette discussion appuie notamment le choix du néon dans le système de postcompression exposé dans le Chapitre 2 par rapport à d'autres gaz. Pour calculer ces taux d'ionisation, on utilise le modèle ADK [195, 196], Ammosov, Delone et Krainov. D'autres modèles permettent d'estimer ces taux d'ionisation, comme PPT [197] ou des modèles améliorés d'ADK et PPT [198, 199]. Par ce modèle ADK, la probabilité d'ionisation s'écrit :

$$W_{m,l} = \sqrt{\left(\frac{3En^{*3}}{\pi Z^3}\right) \frac{Z^2}{2n^{*2}} \left(\frac{2e}{n^*}\right)^{2n^*} \frac{1}{2\pi n^*} \frac{2^{-|m|}(2l+1)(l+|m|)!}{|m|!(l-|m|)!} \left(\frac{2Z^3}{\hat{E}n^{*3}}\right)^{2n^*-|m|-1} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^{*3}E}\right)} \quad (5)$$

pour un éclaircissement E , Z la charge finale de l'ion, $n^* = Z\sqrt{\frac{I_p^H}{I_p}}$ le nombre quantique principal effectif, l^* nombre quantique azimutal effectif, I_p le potentiel d'ionisation du gaz considéré, I_p^H le potentiel d'ionisation de l'hydrogène, e la charge de l'électron.

Ici, on se limite aux transitions $n = 1$, $l = 1$ et $m = 0$. La charge finale de l'ion est $Z = 1$, car on regarde uniquement l'ionisation simple du gaz rare. En redéfinissant les quantités suivantes [195, 200] :

- $\omega_s = \frac{I_p}{\hbar}$
- $\omega_t = \frac{qE}{\sqrt{2m_e I_p}}$
- $G_{l,m} = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{|m|!(l-|m|)!} 2^{-|m|}$
- $C_{n^*,l^*} = \frac{\left(\frac{2e}{n^*}\right)^{n^*}}{\sqrt{2\pi n^*}}$

On arrive à l'Équation (6) simplifiée, dans le cas d'une impulsion polarisée linéairement, pour la probabilité d'ionisation :

$$W_{\text{lineaire}} = \sqrt{\frac{(3\omega_t)}{2\pi\omega_s} \omega_s |C_{n^*,l^*}|^2 G_{l,m} \left(\frac{4\omega_s}{\omega_t}\right)^{2n^*-m-l} \exp\left(-\frac{4\omega_s}{3\omega_t}\right)} \quad (6)$$

avec W_{lineaire} la probabilité d'ionisation pour à un éclaircissement I_0 pour une polarisation linéaire, et $W_{\text{circulaire}}$ cette même probabilité pour une polarisation circulaire.

Les potentiels d'ionisation I_p pour les gaz considérés sont donnés en Tableau 1.1. L'évolution de W_{lineaire} et $W_{\text{circulaire}}$ en fonction de l'éclaircissement I_0 est donnée en Figure 11. Ici, cette probabilité d'ionisation est donnée en s^{-1} . Pour calculer le pourcentage d'ionisation après passage d'une impulsion, on repart du champ $E(t)$ correspondant à cette impulsion :

$$E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t) \exp\left(-2 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_{IR}^2}\right) \quad (7)$$

avec E_0 l'amplitude du champ correspondant à I_0 l'éclairement, avec $E_0 = \sqrt{2Z_0 I_0} = \sqrt{2 \times 377 \times I_0}$, ω_0 la fréquence centrale du spectre fondamental et τ_{IR} la durée de l'impulsion.

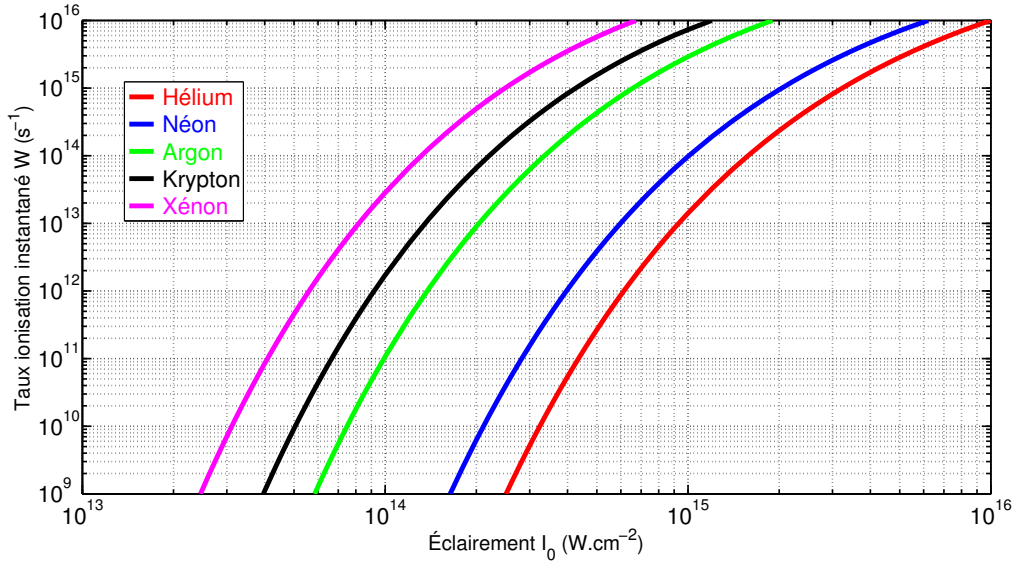


FIGURE 11 – Évolution des taux d'ionisation instantanés $W_{lineaire}$ en fonction de l'éclairement I_0 pour les gaz rares considérés.

Comme $E(t)$ varie dans le temps, l'éclairement à un instant t va lui aussi varier. De ce fait, la quantité ω_t , qui dépend de l'éclairement, va aussi dépendre de l'instant t regardé. On a :

$$\omega_t(t) = \frac{qE(t)}{\sqrt{2m_e I_p}} \quad (8)$$

Cela va donc donner un taux d'ionisation $W_{lineaire}(t)$ instantané dépendant de t . Pour calculer la probabilité d'ionisation du milieu à la fin de l'impulsion, il faut cumuler les contributions de chaque instant t pour la probabilité d'ionisation $W_{lineaire}(t)$. La probabilité d'ionisation à l'instant t $N(t)$ se calcule alors de manière successive :

$$N(t) = N(t-1) + (1 - N(t-1))W_{lineaire}(t)dt = N_0 + \sum_1^t (1 - N(t-1))W_{lineaire}(t)dt \quad (9)$$

avec N_0 le pourcentage d'ionisation au départ, ici fixé à 0, et $(1 - N(t-1))$ représentant la partie non ionisée du milieu.

L'évolution de $N(t)$ en fonction de I_0 pour les gaz considérés et une impulsion de 30 fs avec un spectre centré à 800 nm est donnée en Figure 12.

À partir de la Figure 12, on peut définir des intensités pour lesquelles on atteint respectivement 1%, 10% ou 99% d'ionisation avec une impulsion de 30 fs, avec un spectre centré à 800 nm. Ces intensités sont résumées dans la Tableau 3.

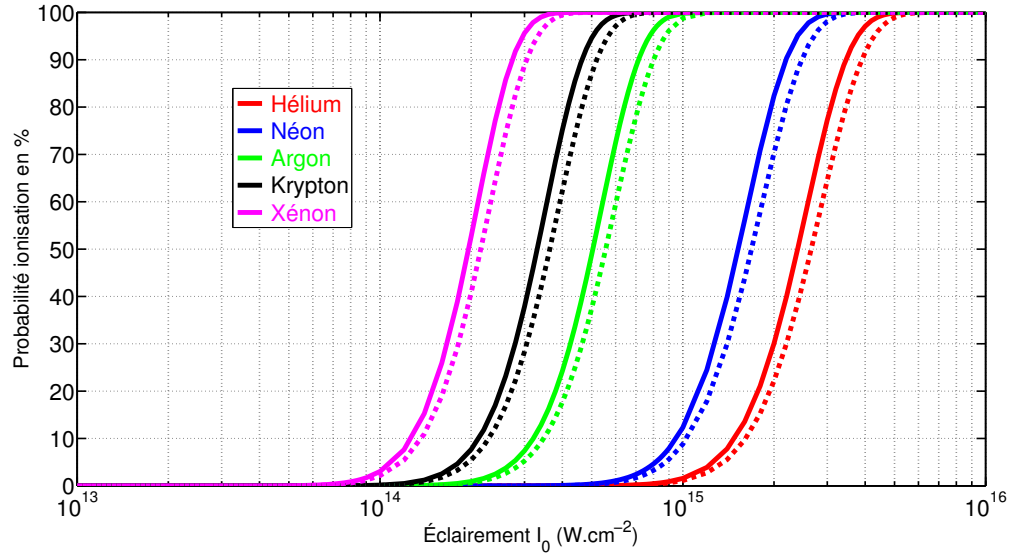


FIGURE 12 – Évolution de la probabilité d'ionisation P_i en fonction de l'éclairement I_0 pour les gaz rares, une polarisation linéaire, une impulsion de durée $\tau_{IR} = 30$ fs (traits pleins) et une impulsion de durée $\tau_{IR} = 7$ fs (traits pointillés), de spectre centré à $\lambda_0 = 800$ nm.

Gaz	Xenon	Krypton	Argon	Néon	Helium
I_p (eV)	12.13	13.99	15.75	21.56	24.58
$I_{1\%}$ (W.cm^{-2})	6.2×10^{13}	1×10^{14}	1.7×10^{14}	4.1×10^{14}	7.1×10^{15}
$I_{10\%}$ (W.cm^{-2})	1×10^{14}	1.7×10^{14}	2.6×10^{14}	7.5×10^{14}	1.2×10^{15}
$I_{99\%}$ (W.cm^{-2})	2.7×10^{14}	4.3×10^{14}	7.4×10^{14}	2.2×10^{15}	3.1×10^{15}

TABLE 3 – Potentiel d'ionisation I_p et intensités d'ionisation $I_{\%}$ pour les gaz rares, avec une impulsion de durée $\tau_{IR} = 30$ fs, avec une longueur d'onde centrale de 800 nm.

Bibliographie

- [1] Sara Mikaelsson, Jan Vogelsang, Chen Guo, Ivan Sytceвич, Anne-Lise Viotti, Fabian Langer, Yu-Chen Cheng, Saikat Nandi, Wenjie Jin, Anna Olofsson, et al. A high-repetition rate attosecond light source for time-resolved coincidence spectroscopy. *Nanophotonics*, 10(1) :117–128, 2020.
- [2] V Strelkov, Amelle Zaïr, O Tcherbakoff, R López-Martens, E Cormier, E Mével, and E Constant. Single attosecond pulse production with an ellipticity-modulated driving ir pulse. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 38(10) :L161, 2005.
- [3] Theodore H Maiman et al. Stimulated optical radiation in ruby. 1960.
- [4] RL Fork, BI Greene, and Charles V Shank. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Applied Physics Letters*, 38(9) :671–672, 1981.
- [5] Werner Heisenberg. Über den anschaulichen inhalt der quantentheoretischen kinematik und mechanik. *Zeitschrift für Physik*, 43(3) :172–198, 1927.
- [6] Donna Strickland and Gerard Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics communications*, 55(6) :447–449, 1985.
- [7] Ahmed H Zewail. Femtochemistry : Atomic-scale dynamics of the chemical bond. *The Journal of Physical Chemistry A*, 104(24) :5660–5694, 2000.
- [8] Rafal Zgadzaj, Erhard W Gaul, Nicholas H Matlis, Gennady Shvets, and Michael C Downer. Femtosecond pump-probe study of preformed plasma channels. *JOSA B*, 21(8) :1559–1567, 2004.
- [9] See Leang Chin. *Femtosecond laser filamentation*, volume 55. Springer, 2010.
- [10] M Ferray, Anne L’Huillier, XF Li, LA Lompre, G Mainfray, and C Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3) :L31, 1988.
- [11] A McPherson, G Gibson, H Jara, U Johann, Ting S Luk, IA McIntyre, Keith Boyer, and Charles K Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. *JOSA B*, 4(4) :595–601, 1987.
- [12] eg PA Franken, Alan E Hill, CW el Peters, and Gabriel Weinreich. Generation of optical harmonics. *Physical review letters*, 7(4) :118, 1961.
- [13] GHC New and JF Ward. Optical third-harmonic generation in gases. *Physical Review Letters*, 19(10) :556, 1967.
- [14] Anne l’Huillier, LA Lompre, G Mainfray, and C Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53 μm . *Physical Review A*, 27(5) :2503, 1983.
- [15] Pierre Agostini, F Fabre, Gérard Mainfray, Guillaume Petite, and N Ko Rahman. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Physical Review Letters*, 42(17) :1127, 1979.

-
- [16] Shambhu Ghimire, Anthony D DiChiara, Emily Sistrunk, Pierre Agostini, Louis F DiMauro, and David A Reis. Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal. *Nature physics*, 7(2) :138–141, 2011.
- [17] Tran Trung Luu, M Garg, S Yu Kruchinin, Antoine Moulet, M Th Hassan, and Eleftherios Goulielmakis. Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids. *Nature*, 521(7553) :498–502, 2015.
- [18] Yong Sing You, Yanchun Yin, Yi Wu, Andrew Chew, Xiaoming Ren, Fengjiang Zhuang, Shima Gholam-Mirzaei, Michael Chini, Zenghu Chang, and Shambhu Ghimire. High-harmonic generation in amorphous solids. *Nature communications*, 8(1) :724, 2017.
- [19] Shambhu Ghimire and David A Reis. High-harmonic generation from solids. *Nature physics*, 15(1) :10–16, 2019.
- [20] Tran Trung Luu, Zhong Yin, Arohi Jain, Thomas Gaumnitz, Yoann Pertot, Jun Ma, and Hans Jakob Wörner. Extreme-ultraviolet high-harmonic generation in liquids. *Nature communications*, 9(1) :3723, 2018.
- [21] Zhong Yin, Tran Trung Luu, and Hans Jakob Wörner. Few-cycle high-harmonic generation in liquids : in-operando thickness measurement of flat microjets. *Journal of Physics : Photonics*, 2(4) :044007, 2020.
- [22] Vít Svoboda, Zhong Yin, Tran Trung Luu, and Hans Jakob Wörner. Polarization measurements of deep-to extreme-ultraviolet high harmonics generated in liquid flat sheets. *Optics Express*, 29(19) :30799–30808, 2021.
- [23] Angana Mondal, Benedikt Waser, Tadas Balciunas, Ofer Neufeld, Zhong Yin, Nicolas Tancogne-Dejean, Angel Rubio, and Hans Jakob Wörner. High-harmonic generation in liquids with few-cycle pulses : effect of laser-pulse duration on the cut-off energy. *Optics Express*, 31(21) :34348–34361, 2023.
- [24] XF Li, A l’Huillier, M Ferray, LA Lompré, and G Mainfray. Multiple-harmonic generation in rare gases at high laser intensity. *Physical Review A*, 39(11) :5751, 1989.
- [25] Pascal Salieres, Anne L’Huillier, and Maciej Lewenstein. Coherence control of high-order harmonics. *Physical Review Letters*, 74(19) :3776, 1995.
- [26] Pascal Salieres, Anne L’huillier, Philippe Antoine, and Maciej Lewenstein. Study of the spatial and temporal coherence of high-order harmonics. In *Advances in atomic, molecular, and optical physics*, volume 41, pages 83–142. Elsevier, 1999.
- [27] J_J Macklin, JD Kmetec, and CL Gordon III. High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses. *Physical review letters*, 70(6) :766, 1993.
- [28] Emily A Gibson, Ariel Paul, Nick Wagner, Ra’anan Tobey, Sterling Backus, Ivan P Christov, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. High-order harmonic generation up to 250 ev from highly ionized argon. *Physical Review Letters*, 92(3) :033001, 2004.
- [29] Zenghu Chang, Andy Rundquist, Haiwen Wang, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. Generation of coherent soft x rays at 2.7 nm using high harmonics. *Physical Review Letters*, 79(16) :2967, 1997.
- [30] Matthias Schnürer, Ch Spielmann, Peter Wobrauschek, Christina Strelt, Neil H Burnett, Clarence Kan, Karapat Ferencz, R Koppitsch, Zhao Cheng, Thomas Brabec, et al. Coherent 0.5-keV x-ray emission from helium driven by a sub-10-fs laser. *Physical review letters*, 80(15) :3236, 1998.

- [31] Jozsef Seres, Enikő Seres, Aart J Verhoef, Gabriel Tempea, Christina Streli, Peter Wobrauschek, Vladislav Yakovlev, Armin Scrinzi, Christian Spielmann, and Ferenc Krausz. Source of coherent kiloelectronvolt x-rays. *Nature*, 433(7026) :596–596, 2005.
- [32] Gy Farkas and Cs Tóth. Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases. *Physics Letters A*, 168(5-6) :447–450, 1992.
- [33] Michael Hentschel, Reinhard Kienberger, Ch Spielmann, Georg A Reider, Nenad Milosevic, Thomas Brabec, Paul Corkum, Ulrich Heinzmann, Markus Drescher, and Ferenc Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414(6863) :509–513, 2001.
- [34] Pierre-Marie Paul, Elena S Toma, Pierre Breger, Genevive Mullot, Frédérique Augé, Ph Balcou, Harm Geert Muller, and Pierre Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(5522) :1689–1692, 2001.
- [35] Yann Mairesse and F Quéré. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Physical Review A*, 71(1) :011401, 2005.
- [36] Eric Constant, Vladimir D Taranukhin, Albert Stolow, and PB Corkum. Methods for the measurement of the duration of high-harmonic pulses. *Physical Review A*, 56(5) :3870, 1997.
- [37] J Itatani, F Quéré, Gennady L Yudin, M Yu Ivanov, Ferenc Krausz, and Paul B Corkum. Attosecond streak camera. *Physical review letters*, 88(17) :173903, 2002.
- [38] Ferenc Krausz and Misha Ivanov. Attosecond physics. *Reviews of modern physics*, 81(1) :163, 2009.
- [39] Thomas Gaumnitz, Arohi Jain, Yoann Pertot, Martin Huppert, Inga Jordan, Fernando Ardana-Lamas, and Hans Jakob Wörner. Streaking of 43-attosecond soft-x-ray pulses generated by a passively cep-stable mid-infrared driver. *Optics express*, 25(22) :27506–27518, 2017.
- [40] Ludovic Quintard. *Caractérisation et contrôle des profils spatiaux, spectraux et temporels de faisceaux XUV obtenus par génération d’harmoniques d’ordres élevés dans des gaz*. PhD thesis, Université de Bordeaux, 2017.
- [41] G Kolliopoulos, P Tzallas, Boris Bergues, PA Carpeggiani, Patrick Heissler, Hartmut Schröder, László Veisz, D Charalambidis, and George D Tsakiris. Single-shot autocorrelator for extreme-ultraviolet radiation. *JOSA B*, 31(5) :926–938, 2014.
- [42] Eiji J Takahashi, Pengfei Lan, Oliver D Mücke, Yasuo Nabekawa, and Katsumi Midorikawa. Attosecond nonlinear optics using gigawatt-scale isolated attosecond pulses. *Nature communications*, 4(1) :2691, 2013.
- [43] Paul B Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical review letters*, 71(13) :1994, 1993.
- [44] KJ Schafer, Baorui Yang, LF DiMauro, and KC Kulander. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Physical review letters*, 70(11) :1599, 1993.
- [45] KC Kulander, KJ Schafer, and JL Krause. Dynamics of short-pulse excitation, ionization and harmonic conversion. *Super-intense laser-atom physics*, pages 95–110, 1993.
- [46] Maciej Lewenstein, Ph Balcou, M Yu Ivanov, Anne L’huillier, and Paul B Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3) :2117, 1994.

-
- [47] Francesca Calegari, Giuseppe Sansone, Salvatore Stagira, Caterina Vozzi, and Mauro Nisoli. Advances in attosecond science. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 49(6) :062001, 2016.
- [48] Katsumi Midorikawa. Progress on table-top isolated attosecond light sources. *Nature Photonics*, 16(4) :267–278, 2022.
- [49] PB Corkum, NH Burnett, and M Yu Ivanov. Subfemtosecond pulses. *Optics letters*, 19(22) :1870–1872, 1994.
- [50] Misha Ivanov, PB Corkum, T Zuo, and A Bandrauk. Routes to control of intense-field atomic polarizability. *Physical review letters*, 74(15) :2933, 1995.
- [51] Philippe Antoine, Bertrand Carré, Anne L’Huillier, and Maciej Lewenstein. Polarization of high-order harmonics. *Physical Review A*, 55(2) :1314, 1997.
- [52] IJ Sola, E Mével, L Elouga, E Constant, V Strelkov, L Poletto, P Villoresi, Enrico Benedetti, J-P Caumes, Salvatore Stagira, et al. Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating. *Nature physics*, 2(5) :319–322, 2006.
- [53] Olivier Tcherbakoff, E Mével, D Descamps, J Plumridge, and E Constant. Time-gated high-order harmonic generation. *Physical Review A*, 68(4) :043804, 2003.
- [54] KS Budil, P Salières, Anne L’Huillier, T Ditmire, and MD Perry. Influence of ellipticity on harmonic generation. *Physical Review A*, 48(5) :R3437, 1993.
- [55] Peter Dietrich, Neil H Burnett, M Ivanov, and Paul B Corkum. High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light. *Physical Review A*, 50(5) :R3585, 1994.
- [56] Giuseppe Sansone, Enrico Benedetti, Francesca Calegari, Caterina Vozzi, Lorenzo Avaldi, Roberto Flammini, Luca Poletto, Paolo Villoresi, Carlo Altucci, Raffaele Velotta, et al. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314(5798) :443–446, 2006.
- [57] Kenneth J Schafer and Kenneth C Kulander. High harmonic generation from ultrafast pump lasers. *Physical Review Letters*, 78(4) :638, 1997.
- [58] C Kan, NH Burnett, CE Capjack, and R Rankin. Coherent xuv generation from gases ionized by several cycle optical pulses. *Physical review letters*, 79(16) :2971, 1997.
- [59] Mark J Abel, Thomas Pfeifer, Phillip M Nagel, Willem Boutu, M Justine Bell, Colby P Steiner, Daniel M Neumark, and Stephen R Leone. Isolated attosecond pulses from ionization gating of high-harmonic emission. *Chemical Physics*, 366(1-3) :9–14, 2009.
- [60] H Vincenti and F Quéré. Attosecond lighthouses : how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses. *Physical review letters*, 108(11) :113904, 2012.
- [61] Jonathan A Wheeler, Antonin Borot, Sylvain Monchocé, Henri Vincenti, Aurélien Ricci, Arnaud Malvache, Rodrigo Lopez-Martens, and Fabien Quéré. Attosecond lighthouses from plasma mirrors. *Nature Photonics*, 6(12) :829–833, 2012.
- [62] Kyung Taec Kim, Chunmei Zhang, Thierry Ruchon, Jean-François Hergott, Thierry Auguste, DM Villeneuve, PB Corkum, and F Quéré. Photonic streaking of attosecond pulse trains. *Nature Photonics*, 7(8) :651–656, 2013.

- [63] Francisco Silva, Stephan M Teichmann, Seth L Cousin, Michael Hemmer, and Jens Biegert. Spatiotemporal isolation of attosecond soft x-ray pulses in the water window. *Nature communications*, 6(1) :6611, 2015.
- [64] Mauro Nisoli, Sandro De Silvestri, Orazio Svelto, R Szipöcs, K Ferencz, Ch Spielmann, S Sartania, and Ferenc Krausz. Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. *Optics letters*, 22(8) :522–524, 1997.
- [65] Marina Fernández Galán, Javier Serrano, Enrique Conejero Jarque, Rocío Borrego-Varillas, Matteo Lucchini, Maurizio Reduzzi, Mauro Nisoli, Christian Brahms, John C Travers, Carlos Hernández-García, et al. Robust isolated attosecond pulse generation with self-compressed subcycle drivers from hollow capillary fibers. *ACS photonics*, 11(4) :1673–1683, 2024.
- [66] Benjamín Alonso, Warein Holgado, and Íñigo J Sola. Compact in-line temporal measurement of laser pulses with amplitude swing. *Optics Express*, 28(10) :15625–15640, 2020.
- [67] Íñigo J Sola and Benjamín Alonso. Robustness and capabilities of ultrashort laser pulses characterization with amplitude swing. *Scientific Reports*, 10(1) :18364, 2020.
- [68] Rick Trebino and Daniel J Kane. Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses : frequency-resolved optical gating. *JOSA A*, 10(5) :1101–1111, 1993.
- [69] Rick Trebino, Kenneth W DeLong, David N Fittinghoff, John N Sweetser, Marco A Krumbügel, Bruce A Richman, and Daniel J Kane. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Review of Scientific Instruments*, 68(9) :3277–3295, 1997.
- [70] Pavel Sidorenko, Oren Lahav, Zohar Avnat, and Oren Cohen. Ptychographic reconstruction algorithm for frequency-resolved optical gating : super-resolution and supreme robustness. *Optica*, 3(12) :1320–1330, 2016.
- [71] Chris Iaconis and Ian A Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Optics letters*, 23(10) :792–794, 1998.
- [72] Peng Wang, Zhao-Hua Wang, Zhi-Yi Wei, Jia-An Zheng, Jing-Hua Sun, and Jie Zhang. Measurement of spectral phase of femtosecond laser pulse using spider technique. 2004.
- [73] Miguel Miranda, Cord L Arnold, Thomas Fordell, Francisco Silva, Benjamín Alonso, Rosa Weigand, Anne L’Huillier, and Helder Crespo. Characterization of broadband few-cycle laser pulses with the d-scan technique. *Optics express*, 20(17) :18732–18743, 2012.
- [74] Miguel Miranda, Thomas Fordell, Cord Arnold, Anne L’Huillier, and Helder Crespo. Simultaneous compression and characterization of ultrashort laser pulses using chirped mirrors and glass wedges. *Optics express*, 20(1) :688–697, 2012.
- [75] Vincent Loriot, Gregory Gitzinger, and Nicolas Forget. Self-referenced characterization of femtosecond laser pulses by chirp scan. *Optics express*, 21(21) :24879–24893, 2013.
- [76] Vincent Loriot, Alexandre Marciniak, L Quintard, V Despré, Baptiste Schindler, Isabelle Compagnon, Bruno Concina, G Celep, C Bordas, F Catoire, et al. Resolving xuv induced femtosecond and attosecond dynamics in polyatomic molecules

-
- with a compact attosecond beamline. In *Journal of Physics : Conference Series*, volume 635, page 012006. IOP Publishing, 2015.
- [77] Miguel Miranda, Piotr Rudawski, Chen Guo, Francisco Silva, Cord L Arnold, Thomas Binhammer, Helder Crespo, and Anne L’Huillier. Ultrashort laser pulse characterization from dispersion scans : a comparison with spider. In *CLEO : QELS_Fundamental Science*, pages JTh2A–31. Optica Publishing Group, 2013.
- [78] François Salin, Patrick Georges, Gilles Le Saux, Gérard Roger, and Alain Brun. Autocorrélation interférométrique monocoup d’impulsions femtosecondes. *Revue de Physique Appliquée*, 22(12) :1613–1618, 1987.
- [79] Alain Brun, Patrick Georges, Gilles Le Saux, and François Salin. Single-shot characterization of ultrashort light pulses. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 24(8) :1225, 1991.
- [80] Nariyuki Saito, Nobuhisa Ishii, Teruto Kanai, and Jiro Itatani. All-optical characterization of the two-dimensional waveform and the gouy phase of an infrared pulse based on plasma fluorescence of gas. *Optics Express*, 26(19) :24591–24601, 2018.
- [81] Seung Beom Park, Kyungseung Kim, Wosik Cho, Sung In Hwang, Igor Ivanov, Chang Hee Nam, and Kyung Taec Kim. Direct sampling of a light wave in air. *Optica*, 5(4) :402–408, 2018.
- [82] Ursula Keller and R Paschotta. *Ultrafast lasers*. Springer, 2021.
- [83] Mauro Nisoli, Sandro De Silvestri, and Orazio Svelto. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Applied Physics Letters*, 68(20) :2793–2795, 1996.
- [84] Tamas Nagy, Peter Simon, and Laszlo Veisz. High-energy few-cycle pulses : post-compression techniques. *Advances in Physics : X*, 6(1) :1845795, 2021.
- [85] Thierry Auguste, Oliver Gobert, Coralie Fourcade Dutin, Antoine Dubrouil, Eric Mével, Stéphane Petit, Eric Constant, and Dominique Descamps. Application of optical-field-ionization-induced spectral broadening in helium gas to the post-compression of high-energy femtosecond laser pulses. *JOSA B*, 29(6) :1277–1286, 2012.
- [86] Ondřej Hort, Antoine Dubrouil, Amélie Cabasse, Stéphane Petit, Eric Mével, Dominique Descamps, and Eric Constant. Postcompression of high-energy terawatt-level femtosecond pulses and application to high-order harmonic generation. *JOSA B*, 32(6) :1055–1062, 2015.
- [87] John C Travers, Teodora F Grigorova, Christian Brahms, and Federico Belli. High-energy pulse self-compression and ultraviolet generation through soliton dynamics in hollow capillary fibres. *Nature Photonics*, 13(8) :547–554, 2019.
- [88] Xinhua Xie, Adrian L Cavalieri, and Steven L Johnson. Self-compression of femtosecond laser pulses in ambient air through conical radiation. *Optics Letters*, 48(19) :5101–5104, 2023.
- [89] Audrius Dubietis, Gintaras Tamošauskas, Rosvaldas Šuminas, Vytautas Jukna, and Arnaud Couairon. Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media (invited review). *arXiv preprint arXiv :1706.04356*, 2017.
- [90] Vincent Lorient, Edouard Hertz, Olivier Faucher, and Bruno Lavorel. Measurement of high order kerr refractive index of major air components. *Optics express*, 17(16) :13429–13434, 2009.

- [91] Á Börzsönyi, Z Heiner, AP Kovács, MP Kalashnikov, and K Osvay. Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases. *Optics Express*, 18(25) :25847–25854, 2010.
- [92] Arnaud Couairon, Himadri S Chakraborty, and Mette B Gaarde. From single-cycle self-compressed filaments to isolated attosecond pulses in noble gases. *Physical Review A*, 77(5) :053814, 2008.
- [93] Carsten Bree, Ayhan Demircan, and Günter Steinmeyer. Method for computing the nonlinear refractive index via keldysh theory. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 46(4) :433–437, 2010.
- [94] Enrique AJ Marcatili and Robert A Schmelzter. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. *Bell System Technical Journal*, 43(4) :1783–1809, 1964.
- [95] Donald W Marquardt. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the society for Industrial and Applied Mathematics*, 11(2) :431–441, 1963.
- [96] Z Chang, A Rundquist, H Wang, I Christov, HC Kapteyn, and MM Murnane. Temporal phase control of soft-x-ray harmonic emission. *Physical Review A*, 58(1) :R30, 1998.
- [97] Dong Gun Lee, Jung-Hoon Kim, Kyung-Han Hong, and Chang Hee Nam. Coherent control of high-order harmonics with chirped femtosecond laser pulses. *Physical Review Letters*, 87(24) :243902, 2001.
- [98] Hyung Taek Kim, I Jong Kim, Kyung-Han Hong, Dong Gun Lee, Jung-Hoon Kim, and Chang Hee Nam. Chirp analysis of high-order harmonics from atoms driven by intense femtosecond laser pulses. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 37(5) :1141, 2004.
- [99] Pascal Salieres, Philippe Antoine, Armelle de Bohan, and Maciej Lewenstein. Temporal and spectral tailoring of high-order harmonics. *Physical review letters*, 81(25) :5544, 1998.
- [100] David H Reitze, Sophie Kazamias, Frederick Weihe, Geneviève Mullot, Denis Douillet, Frederika Augé, Olivier Albert, Vidya Ramanathan, Jean Paul Chambaret, Danièle Hulin, et al. Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control. *Optics letters*, 29(1) :86–88, 2004.
- [101] Mette Borg Gaarde, F Salin, E Constant, Ph Balcou, KJ Schafer, KC Kulander, and Anne L’Huillier. Spatiotemporal separation of high harmonic radiation into two quantum path components. *Physical Review A*, 59(2) :1367, 1999.
- [102] Mette B Gaarde and Kenneth J Schafer. Quantum path distributions for high-order harmonics in rare gas atoms. *Physical Review A*, 65(3) :031406, 2002.
- [103] Chen Guo, Anne Harth, Stefanos Carlström, Yu-Chen Cheng, Sara Mikaelsson, Erik Marsell, Christoph Heyl, Miguel Miranda, Mathieu Gisselbrecht, Mette B Gaarde, et al. Phase control of attosecond pulses in a train. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 51(3) :034006, 2018.
- [104] Stefanos Carlström, Jana Preclíková, Eleonora Lorek, Esben Witting Larsen, Christoph M Heyl, David Paleček, Donatas Zigmantas, Kenneth J Schafer, Mette B Gaarde, and Johan Mauritsson. Spatially and spectrally resolved quantum path interference with chirped driving pulses. *New Journal of Physics*, 18(12) :123032, 2016.

-
- [105] Lixin He, Pengfei Lan, Qingbin Zhang, Chunyang Zhai, Feng Wang, Wenjing Shi, and Peixiang Lu. Spectrally resolved spatiotemporal features of quantum paths in high-order-harmonic generation. *Physical Review A*, 92(4) :043403, 2015.
- [106] MA Khokhlova and VV Strelkov. Phase properties of the cutoff high-order harmonics. *Physical Review A*, 93(4) :043416, 2016.
- [107] F Catoire, A Ferré, O Hort, A Dubrouil, L Quintard, D Descamps, S Petit, F Burgy, E Mével, Y Mairesse, et al. Complex structure of spatially resolved high-order-harmonic spectra. *Physical Review A*, 94(6) :063401, 2016.
- [108] Andy Rundquist, Charles G Durfee III, Zenghu Chang, Catherine Herne, Sterling Backus, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. Phase-matched generation of coherent soft x-rays. *Science*, 280(5368) :1412–1415, 1998.
- [109] E Constant, D Garzella, P Breger, E Mével, Ch Dorrer, C Le Blanc, F Salin, and P Agostini. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases : Model and experiment. *Physical Review Letters*, 82(8) :1668, 1999.
- [110] Sophie Kazamias, Frederick Weihe, D Douillet, Constance Valentin, T Planchon, Stéphane Sebban, G Grillon, F Augé, D Hulin, and Ph Balcou. High order harmonic generation optimization with an apertured laser beam. *The European Physical Journal D-Atomic, Molecular, Optical and Plasma Physics*, 21 :353–359, 2002.
- [111] Sophie Kazamias, D Douillet, Frederick Weihe, C Valentin, Antoine Rouse, Stéphane Sebban, G Grillon, F Augé, D Hulin, and Ph Balcou. Global optimization of high harmonic generation. *Physical review letters*, 90(19) :193901, 2003.
- [112] Markus Drescher, Michael Hentschel, Reinhard Kienberger, Matthias Uiberacker, Vladislav Yakovlev, Armin Scrinzi, Th Westerwalbesloh, Ulf Kleineberg, Ulrich Heinzmann, and Ferenc Krausz. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 419(6909) :803–807, 2002.
- [113] Maurizio Reduzzi, Paolo Carpeggiani, Sergei Kühn, Francesca Calegari, Mauro Nisoli, Salvatore Stagira, Caterina Vozzi, Peter Dombi, Subhendu Kahaly, Paris Tzallas, et al. Advances in high-order harmonic generation sources for time-resolved investigations. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 204 :257–268, 2015.
- [114] Ji Wang, Famin Chen, Mojun Pan, Siyuan Xu, Renchong Lv, Junde Liu, Yuanfeng Li, Shaobo Fang, Yunlin Chen, Jiangfeng Zhu, et al. High-flux wavelength tunable xuv source in the 12–40.8 ev photon energy range with adjustable energy and time resolution for tr-arpes applications. *Optics Express*, 31(6) :9854–9871, 2023.
- [115] David Attwood. Extreme ultraviolet light sources for semiconductor manufacturing, 2004.
- [116] Harun H Solak. Nanolithography with coherent extreme ultraviolet light. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 39(10) :R171, 2006.
- [117] Vittoria Schuster, Vinzenz Hilbert, Robert Klas, Chang Liu, Maxim Tschernajew, Birgitta Bernhardt, Jan Rothhardt, and Jens Limpert. Agile spectral tuning of high order harmonics by interference of two driving pulses. *Optics Express*, 29(14) :22117–22126, 2021.
- [118] Lénárd Gulyás Oldal, Tamás Csizmadia, Peng Ye, Nandiga Gopalakrishna Harshitha, Amelle Zair, Subhendu Kahaly, Katalin Varjú, Miklós Füle, and Balázs

- Major. Generation of high-order harmonics with tunable photon energy and spectral width using double pulses. *Physical Review A*, 102(1) :013504, 2020.
- [119] Lénárd Gulyás Oldal, Peng Ye, Zoltán Filus, Tamás Csizmadia, Tímea Grósz, Massimo De Marco, Zsolt Bengery, Imre Seres, Barnabás Gilicze, Péter Jójárt, et al. All-optical experimental control of high-harmonic photon energy. *Physical Review Applied*, 16(1) :L011001, 2021.
- [120] Bing Shan, Shambhu Ghimire, and Zenghu Chang. Generation of the attosecond extreme ultraviolet supercontinuum by a polarization gating. *Journal of modern optics*, 52(2-3) :277–283, 2005.
- [121] VT Platonenko and VV Strelkov. Single attosecond soft-x-ray pulse generated with a limited laser beam. *JOSA B*, 16(3) :435–440, 1999.
- [122] Claude Marceau, Guillaume Gingras, and Bernd Witzel. Continuously adjustable gate width setup for attosecond polarization gating : theory and experiment. *Optics Express*, 19(4) :3576–3591, 2011.
- [123] A Zaïr, O Tcherbakoff, E Mével, E Constant, R López-Martens, Johan Mauritsson, Per Johnsson, and Anne L’Huillier. Time-resolved measurements of high order harmonics confined by polarization gating. *Applied Physics B*, 78 :869–872, 2004.
- [124] Dan Oron, Yaron Silberberg, Nirit Dudovich, and David M Villeneuve. Efficient polarization gating of high-order harmonic generation by polarization-shaped ultrashort pulses. *Physical Review A*, 72(6) :063816, 2005.
- [125] G Kolliopoulos, PA Carpeggiani, D Rompotis, D Charalambidis, and P Tzallas. A compact collinear polarization gating scheme for many cycle laser pulses. *Review of Scientific Instruments*, 83(6), 2012.
- [126] Eric Cunningham and Zenghu Chang. Optical gating with asymmetric field ratios for isolated attosecond pulse generation. *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, 21(5) :1–6, 2015.
- [127] Jie Li, Xiaoming Ren, Yanchun Yin, Yan Cheng, Eric Cunningham, Yi Wu, and Zenghu Chang. Polarization gating of high harmonic generation in the water window. *Applied Physics Letters*, 108(23), 2016.
- [128] Zenghu Chang. Controlling attosecond pulse generation with a double optical gating. *Physical Review A*, 76(5) :051403, 2007.
- [129] Zenghu Chang. Chirp of the single attosecond pulse generated by a polarization gating. *Physical Review A*, 71(2) :023813, 2005.
- [130] Eleftherios Goulielmakis, Martin Schultze, Michael Hofstetter, Vladislav S Yakovlev, Justin Gagnon, M Uiberacker, Andrew L Aquila, EM Gullikson, David T Attwood, Reinhard Kienberger, et al. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 320(5883) :1614–1617, 2008.
- [131] Michael Chini, Kun Zhao, and Zenghu Chang. The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses. *Nature Photonics*, 8(3) :178–186, 2014.
- [132] Gao Chen and Fengdong Zhang. Effect of symmetric and asymmetric field ratios for polarization gating on high-order harmonic generation. *The European Physical Journal D*, 71 :1–7, 2017.
- [133] R Clark Jones. A new calculus for the treatment of optical systems. iv. *Josa*, 32(8) :486–493, 1942.

-
- [134] HG Jerrard. Modern description of polarized light : matrix methods. *Optics & Laser Technology*, 14(6) :309–319, 1982.
- [135] Pericles S Theocaris and Emmanuel E Gdoutos. *Matrix theory of photoelasticity*, volume 11. Springer, 2013.
- [136] Philippe Antoine, Anne L’huillier, and Maciej Lewenstein. Attosecond pulse trains using high-order harmonics. *Physical Review Letters*, 77(7) :1234, 1996.
- [137] Chiara Corsi, Angela Pirri, Emiliano Sali, Alessandra Tortora, and Marco Bellini. Direct interferometric measurement of the atomic dipole phase in high-order harmonic generation. *Physical review letters*, 97(2) :023901, 2006.
- [138] J Peatross and DD Meyerhofer. Intensity-dependent atomic-phase effects in high-order harmonic generation. *Physical Review A*, 52(5) :3976, 1995.
- [139] Howard R Reiss. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. *Physical Review A*, 22(5) :1786, 1980.
- [140] LV184662 Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. In *SELECTED PAPERS OF LEONID V KELDYSH*, pages 56–63. World Scientific, 2024.
- [141] Zenghu Chang. Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau. *Physical Review A*, 70(4) :043802, 2004.
- [142] Andrius Baltuška, Th Udem, Matthias Uiberacker, Michael Hentschel, Eleftherios Goulielmakis, Ch Gohle, Ronald Holzwarth, Vladislav S Yakovlev, Armin Scrinzi, Th W Hänsch, et al. Attosecond control of electronic processes by intense light fields. *Nature*, 421(6923) :611–615, 2003.
- [143] Dominik Hoff, Sara Mikaelsson, Chen Guo, Ann-Kathrin Raab, Anne L’Huillier, Cord Arnold, and Mathieu Gisselbrecht. Direct cep stabilization of a high-repetition rate, few-cycle opcpa chain with a single feedback loop, employing a stereo-ati. In *2022 Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)*, pages 1–2. IEEE, 2022.
- [144] Warein Holgado, Carlos Hernández-García, B Alonso, Miguel Miranda, Francisco Silva, L Plaja, Helder Crespo, and IJ Sola. Continuous spectra in high-harmonic generation driven by multicycle laser pulses. *Physical Review A*, 93(1) :013816, 2016.
- [145] Tibor Wittmann, Balint Horvath, Wolfram Helml, Michael G Schätzel, Xun Gu, Adrian L Cavalieri, GG Paulus, and Reinhard Kienberger. Single-shot carrier-envelope phase measurement of few-cycle laser pulses. *Nature Physics*, 5(5) :357–362, 2009.
- [146] T Rathje, Nora G Johnson, M Möller, Frederik Süßmann, D Adolph, Matthias Kübel, Reinhard Kienberger, Matthias F Kling, GG Paulus, and AM Sayler. Review of attosecond resolved measurement and control via carrier-envelope phase tagging with above-threshold ionization. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 45(7) :074003, 2012.
- [147] Dominik Hoff, Federico J Furch, Tobias Witting, Klaus Rühle, Daniel Adolph, A Max Sayler, Marc JJ Vrakking, Gerhard G Paulus, and Claus Peter Schulz. Continuous every-single-shot carrier-envelope phase measurement and control at 100 khz. *Optics letters*, 43(16) :3850–3853, 2018.
- [148] Mikhail N Polyanskiy. Refractiveindex. info database of optical constants. *Scientific Data*, 11(1) :94, 2024.

- [149] Piotr Rudawski, Anne Harth, Chen Guo, Eleonora Lorek, Miguel Miranda, Christoph M Heyl, Esben W Larsen, Jan Ahrens, Oliver Prochnow, Thomas Binhammer, et al. Carrier-envelope phase dependent high-order harmonic generation with a high-repetition rate opcpa-system. *The European Physical Journal D*, 69 :1–6, 2015.
- [150] J Higuët, H Ruf, Nicolas Thiré, Raluca Cireasa, E Constant, E Cormier, D Descamps, E Mével, S Petit, B Pons, et al. High-order harmonic spectroscopy of the cooper minimum in argon : Experimental and theoretical study. *Physical Review A*, 83(5) :053401, 2011.
- [151] O Hassouneh, NB Tyndall, J Wragg, HW Van Der Hart, and AC Brown. Cooper minimum in singly ionized and neutral argon. *Physical Review A*, 98(4) :043419, 2018.
- [152] Fritz Goos and Hilda Hänchen. Ein neuer und fundamentaler versuch zur total-reflexion. *Annalen der Physik*, 436(7-8) :333–346, 1947.
- [153] K Yasumoto and Y Ōishi. A new evaluation of the goos–hänchen shift and associated time delay. *Journal of Applied Physics*, 54(5) :2170–2176, 1983.
- [154] Michele Merano, A Aiello, MP Van Exter, ER Eliel, JP Woerdman, et al. Observation of goos–hänchen shifts in metallic reflection. *Optics express*, 15(24) :15928–15934, 2007.
- [155] Kevin J Resch, Jeff S Lundeen, and Aephraim M Steinberg. Total reflection cannot occur with a negative delay time. *IEEE journal of quantum electronics*, 37(6) :794–799, 2001.
- [156] Xiangmin Liu, Qingfen Yang, Pengfei Zhu, Zhi Qiao, and Tongkai Li. The influence of goos–hänchen shift on total reflection of ultrashort light pulses. *Journal of Optics*, 12(3) :035214, 2010.
- [157] Aleksandar D Rakić. Algorithm for the determination of intrinsic optical constants of metal films : application to aluminum. *Applied optics*, 34(22) :4755–4767, 1995.
- [158] Valérie Véniard, Richard Taïeb, and Alfred Maquet. Phase dependence of $(n+1)$ -color ($n > 1$) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics. *Physical Review A*, 54(1) :721, 1996.
- [159] Jean-Claude M Diels, Joel J Fontaine, Ian C McMichael, and Francesco Simoni. Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy. *Applied Optics*, 24(9) :1270–1282, 1985.
- [160] Zhen Yang, Wei Cao, Xi Chen, Jie Zhang, Yunlong Mo, Huiyao Xu, Kang Mi, Qingbin Zhang, Pengfei Lan, and Peixiang Lu. All-optical frequency-resolved optical gating for isolated attosecond pulse reconstruction. *Optics Letters*, 45(2) :567–570, 2020.
- [161] Daniel J Kane and Rick Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 29(2) :571–579, 1993.
- [162] Daniel J Kane. Principal components generalized projections : a review. *JOSA B*, 25(6) :A120–A132, 2008.
- [163] Matteo Lucchini, MH Brügmann, André Ludwig, Lukas Gallmann, Ursula Keller, and Thomas Feurer. Ptychographic reconstruction of attosecond pulses. *Optics express*, 23(23) :29502–29513, 2015.

-
- [164] André TJB Eppink and David H Parker. Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses : Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen. *Review of Scientific Instruments*, 68(9) :3477–3484, 1997.
- [165] O Ghafur, W Siu, Per Johnsson, Matthias F Kling, M Drescher, and MJJ Vrakking. A velocity map imaging detector with an integrated gas injection system. *Review of Scientific Instruments*, 80(3) :033110, 2009.
- [166] M Gisselbrecht, A Huetz, M Lavollée, TJ Reddish, and DP Seccombe. Optimization of momentum imaging systems using electric and magnetic fields. *Review of scientific instruments*, 76(1), 2005.
- [167] Yu-Chen Cheng. Ultrafast photoionization dynamics studied with coincidence momentum imaging spectrometers. 2019.
- [168] Phillip Donald Keathley, Siddharth Bhardwaj, J Moses, G Laurent, and Franz X Kaertner. Volkov transform generalized projection algorithm for attosecond pulse characterization. *New Journal of Physics*, 18(7) :073009, 2016.
- [169] Lixin He, Jianchang Hu, Siqi Sun, Yanqing He, Yu Deng, Pengfei Lan, and Peixiang Lu. All-optical spatio-temporal metrology for isolated attosecond pulses. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 55(20) :205601, 2022.
- [170] Kan Wang, Yong Fu, Baochang Li, Xiangyu Tang, Bincheng Wang, Zhong Guan, Chii Dong Lin, and Cheng Jin. Direct reconstruction of isolated xuv or soft x-ray attosecond pulses from high-harmonic generation streaking spectra. *New Journal of Physics*, 2023.
- [171] N Dudovich, Olga Smirnova, J Levesque, Yu Mairesse, M Yu Ivanov, DM Villeneuve, and Paul B Corkum. Measuring and controlling the birth of attosecond xuv pulses. *Nature physics*, 2(11) :781–786, 2006.
- [172] N Dudovich, J Levesque, Olga Smirnova, D Zeidler, D Comtois, M Yu Ivanov, DM Villeneuve, and PB Corkum. Attosecond temporal gating with elliptically polarized light. *Physical review letters*, 97(25) :253903, 2006.
- [173] Miguel López-Ripa, Íñigo J Sola, and Benjamín Alonso. Amplitude swing ultrashort pulse characterization across visible to near-infrared. *Optics & Laser Technology*, 164 :109492, 2023.
- [174] Nenad Milosevic, Gabriel Tempea, and Thomas Brabec. Optical pulse compression : bulk media versus hollow waveguides. *Optics letters*, 25(9) :672–674, 2000.
- [175] Felix Köttig, Daniel Schade, JR Koehler, P St J Russell, and Francesco Tani. Efficient single-cycle pulse compression of an ytterbium fiber laser at 10 mhz repetition rate. *Optics Express*, 28(7) :9099–9110, 2020.
- [176] Jan Schulte, Thomas Sartorius, Johannes Weitenberg, Andreas Vernaleken, and Peter Russbueltd. Nonlinear pulse compression in a multi-pass cell. *Optics letters*, 41(19) :4511–4514, 2016.
- [177] Christian Grebing, Michael Muller, Joachim Buldt, Henning Stark, and Jens Limpert. Kilowatt-average-power compression of millijoule pulses in a gas-filled multi-pass cell. *Optics letters*, 45(22) :6250–6253, 2020.
- [178] Young-Gyun Jeong, Riccardo Piccoli, Denis Ferachou, Vincent Cardin, Michael Chini, Steffen Hädrich, Jens Limpert, Roberto Morandotti, François Légaré, Bruno E Schmidt, et al. Direct compression of 170-fs 50-cycle pulses down to 1.5 cycles with 70% transmission. *Scientific reports*, 8(1) :1–6, 2018.

- [179] P Rueda, F Videla, T Witting, GA Torchia, and FJ Furch. 8 fs laser pulses from a compact gas-filled multi-pass cell. *Optics express*, 29(17) :27004–27013, 2021.
- [180] Louis Daniault, Zhao Cheng, Jaismeen Kaur, Jean-François Hergott, Fabrice Réau, Olivier Tcherbakoff, Nour Daher, Xavier Délen, Marc Hanna, and Rodrigo Lopez-Martens. Single-stage few-cycle nonlinear compression of millijoule energy Ti : Sa femtosecond pulses in a multipass cell. *Optics Letters*, 46(20) :5264–5267, 2021.
- [181] Loic Lavenu, M Natile, F Guichard, Y Zaouter, Xavier Delen, Marc Hanna, E Mottay, and Patrick Georges. Nonlinear pulse compression based on a gas-filled multipass cell. *Optics letters*, 43(10) :2252–2255, 2018.
- [182] Michael Müller, Joachim Buldt, Henning Stark, Christian Grebing, and Jens Limpert. Multipass cell for high-power few-cycle compression. *Optics letters*, 46(11) :2678–2681, 2021.
- [183] Anne-Lise Viotti, Marcus Seidel, Esmerando Escoto, Supriya Rajhans, Wim P Leemans, Ingmar Hartl, and Christoph M Heyl. Multi-pass cells for post-compression of ultrashort laser pulses. *Optica*, 9(2) :197–216, 2022.
- [184] C Fourcade Dutin, A Dubrouil, S Petit, E Mével, E Constant, and D Descamps. Post-compression of high-energy femtosecond pulses using gas ionization. *Optics letters*, 35(2) :253–255, 2010.
- [185] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, Alon Bahabad, Michael Gerrity, Pavel Sidorenko, Oren Cohen, Ivan P Christov, Margaret M Murnane, and Henry C Kapteyn. Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard x-ray regions of the spectrum. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 106(26) :10516–10521, 2009.
- [186] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, Dimitar Popmintchev, Paul Arpin, Susannah Brown, Skirmantas Ališauskas, Giedrius Andriukaitis, Tadas Balčiunas, Oliver D Mücke, Audrius Pugzlys, et al. Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *science*, 336(6086) :1287–1291, 2012.
- [187] Francesco Tani, Michael H Frosz, John C Travers, and Philip St. J. Russell. Continuously wavelength-tunable high harmonic generation via soliton dynamics. *Optics Letters*, 42(9) :1768–1771, 2017.
- [188] C-G Wahlström, Jörgen Larsson, Anders Persson, T Starczewski, Sune Svanberg, P Salieres, Ph Balcou, and Anne L’Huillier. High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser. *Physical Review A*, 48(6) :4709, 1993.
- [189] Giuseppe Sansone, ENRICO Benedetti, JP Caumes, Salvatore Stagira, Caterina Vozzi, MAURO Nisoli, L Poletto, Paolo Villoresi, V Strelkov, I Sola, et al. Shaping of attosecond pulses by phase-stabilized polarization gating. *Physical Review A—Atomic, Molecular, and Optical Physics*, 80(6) :063837, 2009.
- [190] Maciej Lewenstein, Pascal Salieres, and Anne L’huillier. Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation. *Physical Review A*, 52(6) :4747, 1995.
- [191] K Veyrinas, J Vábek, C Valentin, D Descamps, C Péjot, F Burgy, Eric Constant, E Mével, and F Catoire. Spectral filtering of high-order harmonics via optics-free focusing. *Optics Express*, 29(19) :29813–29827, 2021.

-
- [192] Marius Plach, Federico Vismarra, Elisa Appi, Vénus Poulain, Jasper Peschel, Peter Smorenburg, David P O’Dwyer, Stephen Edward, Yin Tao, Rocío Borrego-Varillas, et al. Spatial aberrations in high-order harmonic generation. *Ultrafast Science*, 4 :0054, 2024.
- [193] Maria Hoflund, Jasper Peschel, Marius Plach, Hugo Dacasa, Kévin Veyrinas, Eric Constant, Peter Smorenburg, Hampus Wikmark, Sylvain Maclot, Chen Guo, et al. Focusing properties of high-order harmonics. *Ultrafast Science*, 2021.
- [194] K Veyrinas, M Plach, J Peschel, M Hoflund, F Catoire, C Valentin, P Smorenburg, H Dacasa, S Maclot, C Guo, et al. Chromatic aberrations correction of attosecond high-order harmonic beams by flat-top spatial shaping of the fundamental beam. *New Journal of Physics*, 25(2) :023017, 2023.
- [195] Maxim V Ammosov, Nikolai B Delone, and Vladimir P Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions in electromagnetic field. In *High intensity laser processes*, volume 664, pages 138–141. SPIE, 1986.
- [196] Xiao-Min Tong, ZX Zhao, and Chii-Dong Lin. Theory of molecular tunneling ionization. *Physical Review A*, 66(3) :033402, 2002.
- [197] AM Perelomov, VS Popov, and MV Terent’Ev. Ionization of atoms in an alternating electric field. *Sov. Phys. JETP*, 23(5) :924–934, 1966.
- [198] XM Tong and CD Lin. Empirical formula for static field ionization rates of atoms and molecules by lasers in the barrier-suppression regime. *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, 38(15) :2593, 2005.
- [199] Song-Feng Zhao, Lu Liu, and Xiao-Xin Zhou. Multiphoton and tunneling ionization probability of atoms and molecules in an intense laser field. *Optics Communications*, 313 :74–79, 2014.
- [200] Éric Constant. *Champs laser intenses ultracourts : application a la mesure et creation d’impulsions attosecondes et a l’imagerie de paquets d’ondes moléculaires par explosion coulombienne*. PhD thesis, 2000.

Articles

Articles acceptés :

- K Veyrinas, M Plach, J Pesche, M Hoflund, F Catoire, C Valentin, P Smorenburg, H Dacasa, S Maclot, C Guo, H Wikmark, A Zaïr, V Strelkov, C Picot, C Arnold, P Eng-Johnsson, A L'Huillier, E Mével and E Constant, "*Chromatic aberrations correction of attosecond high-order harmonic beams by flat-top spatial shaping of the fundamental beam*". *New Journal of Physics* **25.2** (2023) : 023017.

Articles soumis :

- C. Picot, J. Vábek, T. Nemeč, S. Skupin, E. Constant and F. Catoire, "*Asymmetric polarization gating for spectral tuning and temporal confinement of high order harmonics*", PRA.
- E. Constant, S. Nandi, C. Picot, E. Prost, S. Palakkal, F. Lépine and V. Loriot, "*High order Harmonic Generation-based attosecond light sources and applications to quantum phenomena*", APL Photonics.

Articles en préparation :

- C. Picot, F. Catoire, S. Skupin, E. Constant "*HORNET : High order Harmonic envelop Optical ReconstructioN by delayed Ellipticity perturbaTion*".

Conférences et présentations

- GdR UP 2021, Novembre 2021, Paris (France) : Présentation d'un poster "*High order harmonic generation with short IR pulses*".
- Conférence Ultrafast Phenomena "International Conference on Ultrafast Phenomena", Montréal (Canada), Juillet 2022 : Participation à la conférence à distance. Pas de présentation.
- École d'été "International School on Ultrafast X-Ray Science" Octobre 2022, Paris-Saclay (France) : Présentation d'un poster "*High order harmonic generation with short IR pulses*".
- Conférence CLEO, Juillet 2023, Munich (Allemagne) : Présentation orale "*Adjustable polarisation gate for gated High order Harmonic Generation*".
- Journée d'axe optique "Optique et dynamique ultrarapide", Novembre 2023, Lyon (France) : Présentation orale "*Tunability of XUV high order harmonic sources*".
- Conférence Optique Normandie, Juillet 2024, Rouen (France) : Présentation d'un poster "*Revisiting polarization gate for time dependent control of High order Harmonic Generation*".

Abstract

The generation of high-order harmonics is a nonlinear physical phenomenon that occurs when a femtosecond pulse ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) is focused into a rare gas. It enables the production of spectra in the UV/XUV range, appearing as a frequency comb. The growing interest in high-order harmonic generation stands from the fact that the generated XUV spectra are compatible, in the temporal domain, with the production of attosecond pulses ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). These pulses are of great interest in the study of complex electronic dynamics, photoemission times in atoms or molecules, and industrial applications such as real time observation of lithography. Dynamics at the heart of atoms occur on the atomic time scale, with one atomic time unit equaling 24 as. Therefore, the production of these attosecond pulses is relevant for studying these phenomena at the very core of atoms. More specifically, we are interested in the generation of short train of attosecond pulses and isolated attosecond pulses. High-order harmonic generation allows for the production of attosecond pulse trains, and we aim to isolate a single pulse within the train. This translates spectrally into the search for a continuous XUV spectrum. In this thesis, we focus on the generation of these continuous XUV spectra, as well as the characterization of the attosecond pulses. The key objective is the temporal confinement of XUV emission. In the first part, we demonstrate a robust method to reduce the duration of fundamental pulses to just a few optical cycles. This spectral shaping brings several ancillary applications for harmonic spectrum shaping. In the second part, we present a second method to confine XUV emission by temporally modulating the polarization of the fundamental pulse, using the so-called "polarization gating" method. The various configurations of the polarization gate and the spectral effects associated with temporal confinement are described. In the third part, we combine the two methods discussed in the first two parts to obtain continuous XUV spectra compatible with the generation of isolated attosecond pulses. These continuous spectra were obtained in two laboratories, using two different experimental systems. In the final part, we focus on the characterization of attosecond pulses. In particular, we present a classical characterization based on a photoelectron signal, allowing us to characterize pulses of a few hundred attoseconds, down to an isolated attosecond pulse. We also propose two new methods based on the observation of the XUV photon signal and the modulation of the fundamental pulse polarization. Through these methods, we aim to reconstruct the temporal envelopes of the harmonics.

Keywords : High order Harmonic Generation, Femtosecond lasers, polarization gating, postcompression, femtosecond pulses, attosecond pulses, isolated attosecond pulses, XUV continuous spectra



iLM : Institut Lumière Matière - UMR 5306

Résumé

La génération d'harmoniques d'ordres élevés est un phénomène physique non linéaire qui se produit en focalisant une impulsion de durée femtoseconde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) dans un gaz rare. Elle permet de produire des spectres dans le domaine UV/XUV, se présentant sous forme d'un peigne de fréquences. L'intérêt croissant pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés vient du fait que les spectres XUV générés sont compatibles, dans le domaine temporel, avec la production d'impulsions attosecondes ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$). Ces impulsions sont d'un grand intérêt dans l'étude de dynamiques électroniques complexes, de temps de photoémissions dans des atomes ou molécules, ou encore dans des applications industrielles telles que l'étude de la lithographie. Les dynamiques au cœur des atomes se déroulent sur des échelles de l'unité atomique de temps, avec une unité atomique de temps équivalant à 24 as. La production de ces impulsions attosecondes est donc pertinente pour étudier ces phénomènes au cœur même des atomes. Plus particulièrement, nous nous intéressons ici à la génération de trains d'impulsions attosecondes courts et d'impulsions attosecondes isolées. La génération d'harmoniques d'ordres élevés permet d'obtenir des trains d'impulsions attosecondes, et nous cherchons à isoler une impulsion dans le train d'impulsions. Cela se traduit spectralement par la recherche d'un spectre XUV continu. Dans cette thèse, nous nous intéressons à la génération de ces spectres XUV continus, ainsi qu'à la caractérisation temporelle des impulsions femtosecondes et attosecondes. Le point d'action se trouve dans le confinement temporel de l'émission XUV. Dans une première partie, nous montrons une méthode robuste afin de diminuer la durée des impulsions fondamentales jusqu'à une durée de quelques cycles optiques. Cette mise en forme spectrale amène plusieurs applications subsidiaires pour la mise en forme spectrale du spectre harmonique. Dans une seconde partie, nous présentons une deuxième méthode pour confiner l'émission XUV, en modulant temporellement la polarisation de l'impulsion fondamentale, avec la méthode dite de "porte de polarisation". De nouvelles configurations de la porte de polarisation et les effets spectraux associés au confinement temporel y sont décrits. Dans une troisième partie, nous présentons la combinaison des deux méthodes évoquées dans les deux premières parties, afin d'obtenir des spectres XUV continus compatibles avec la génération d'impulsions attosecondes isolées. Ces spectres continus ont été obtenus dans deux laboratoires, avec deux systèmes expérimentaux différents. Dans une dernière partie, nous nous intéressons à la caractérisation des impulsions XUV femtosecondes et attosecondes. En particulier, nous présentons une caractérisation classique basée sur un signal de photoélectrons, permettant de caractériser des impulsions de quelques centaines d'attosecondes, jusqu'à une impulsion attoseconde isolée. Nous proposons également deux nouvelles méthodes, basées sur l'observation du signal de photons XUV et sur la modulation de polarisation de l'impulsion fondamentale. Par ces méthodes, nous cherchons à reconstruire les enveloppes temporelles des harmoniques.

Mots clés : Génération d'harmoniques d'ordre élevé, lasers femtosecondes, porte de polarisation, postcompression, impulsions femtosecondes, impulsions attosecondes, impulsions attosecondes isolées, spectres XUV continus
