

NNT : XXX

THÈSE DE DOCTORAT
DE
L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY
PRÉPARÉE À
L'UNIVERSITÉ PARIS-SUD

LABORATOIRE INTERACTIONS, DYNAMIQUES ET LASERS

ECOLE DOCTORALE N°572 : Ondes et matière
Spécialité : Lasers, molécules, rayonnement atmosphérique

Par

MME LOU BARREAU

ÉTUDE DE DYNAMIQUES DE PHOTOIONISATION
RÉSONANTE À L'AIDE D'IMPULSIONS
ATTOSECONDES

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 18 Décembre 2017 :

Composition du Jury :

M. ÉRIC MÉVEL	Professeur, Université de Bordeaux	Rapporteur
M. MARC SIMON	Directeur de Recherche, CNRS, Université Pierre et Marie Curie	Rapporteur
MME. ANNE LAFOSSE	Professeur, Université Paris-Sud	Examinatrice
M. FRANCK LÉPINE	Chargé de recherche, CNRS, Université Claude Bernard Lyon I	Examineur
M. STÉPHANE SEBBAN	Professeur, CNRS, École Polytechnique, ENSTA	Examineur
M. PASCAL SALIÈRES	Directeur de recherche, CEA	Directeur de thèse

ETUDE DE DYNAMIQUES DE PHOTOIONISATION RÉSONANTE À L'AIDE D'IMPULSIONS
ATTOSECONDES

© 2017 Lou Barreau
All rights reserved
Printed in Paris, 2017

Commissariat à l'Energie Atomique
Direction de la Recherche Fondamentale
Institut Rayonnement Matière Saclay
Laboratoire Interactions, Dynamique et Lasers
Bâtiment 522
F-91191 Gif-sur-Yvette
France

<http://iramis.cea.fr/LIDYL/index.php>

This thesis was typeset with the \LaTeX -system and the memoir class, using a model developed by the smart people of the Atomfysik division at Lund University and modified by the previous students of the Attosecond group at CEA Saclay.



LISTE DE PUBLICATIONS

Les articles suivants ont été publiés au cours de cette thèse. Leur version complète est disponible à la fin de ce manuscrit. On y fera référence dans le texte par leur nombre romain.

TABLE DES MATIÈRES

I	Dynamiques d'autoionisation dans le néon et l'argon	1
1	Mesure de la phase de la transition au voisinage de la résonance $2s2p^63p$ du néon par RABBIT	3
1.1	Section efficace	3
1.2	Mesure de la phase par interférométrie RABBIT	4
1.3	Discussion	6
2	Mesure de la phase de la transition au voisinage de la résonance $3s3p^64p$ de l'argon par RABBIT et Rainbow RABBIT	9
2.1	Section efficace	9
2.2	Mesure de la phase par interférométrie RABBIT	10
2.2.1	Données de la littérature avec la GHOE à 800 nm	10
2.2.2	Résultats expérimentaux avec la GHOE dans l'infrarouge moyen	11
2.2.3	Discussion	15
2.3	Mesure de la phase par Rainbow RABBIT	16
2.3.1	Dispositif expérimental	16
2.3.2	Séparation des deux composantes spin-orbite	16
2.3.3	Résultats	17
	Bibliographie	19

Première partie

**Dynamiques d'autoionisation dans
le néon et l'argon**

MESURE DE LA PHASE DE LA TRANSITION AU VOISINAGE DE LA RÉSONANCE $2s2p^63p$ DU NÉON PAR RABBIT

1.1 Section efficace

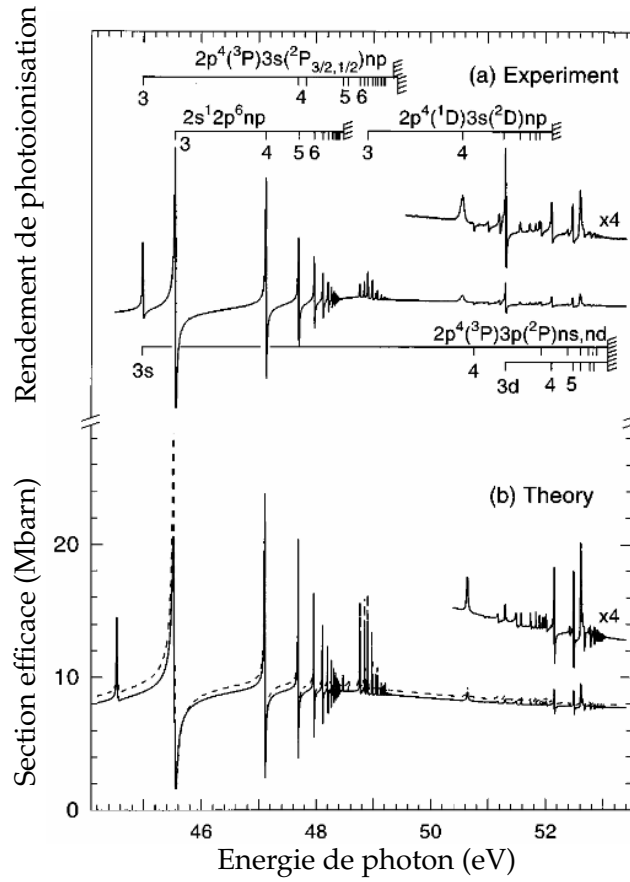


FIGURE 1.1: (a) Rendement de photoionisation mesuré et (b) section efficace de photoionisation du néon calculée par la méthode R-matrix. Extrait de [Schulz et al., 1996].

Le néon est le gaz noble le plus léger pour lequel le cation a un caractère polyélectronique. Les dynamiques de photoionisation sont donc plus riches que dans l'hélium, mais les effets relativistes ne sont pas à prendre en compte pour décrire les états autoionisants simplement excités [Schulz et al., 1996]. La figure 1.1 montre la section efficace de photoionisation du néon pour des énergies de photon de 44 à 53 eV. Cette région spectrale est très riche : on observe une série d'états simplement excités du néon $2s2p^6np$ ainsi que des séries d'états doublement excités $2s^22p^43snp$, $2s^22p^43pns$ et $2s^22p^43pnd$.

Dans la suite nous nous intéressons à l'état simplement excité $2s2p^63p$, pour lequel la section efficace est la plus importante dans cette région spectrale. Cet état est couplé aux continua s et d . Les paramètres de cette résonance de Fano sont données dans le tableau ?? : $E_R = 45.54$ eV ; $q = -1.58$; $\Gamma = 16$ meV ; $\tau = 41$ fs ; $\rho^2 = 0.75$.

1.2 Mesure de la phase par interférométrie RABBIT

Les mesures RABBIT présentées ici ont été effectuées en collaboration avec Antoine Camper, Timothy Gorman et Dietrich Kieseewetter dans le laboratoire de Louis DiMauro et Pierre Agostini à l'université de l'état de l'Ohio. Le spectromètre de photoélectrons à bouteille magnétique utilisé, d'une longueur de 1 m, ne possède pas une résolution suffisante pour le Rainbow RABBIT. Aucune structure dans l'amplitude ou la phase des pics satellites n'a été mesurée. Les mesures de phases ont donc été effectuées en appliquant la technique RABBIT pour différentes longueurs d'onde de génération.

Le dispositif expérimental est similaire à celui présenté sur la figure ?. La longueur d'onde de génération est modifiée grâce à un amplificateur paramétrique optique (paragraphe ?). Pour échantillonner suffisamment la résonance, de faible largeur spectrale, on choisit une longueur d'onde de génération au voisinage de 1700 nm ($\hbar\omega \approx 0.73$ eV). Dans ces conditions, l'harmonique 63 est résonante avec la transition vers l'état $2s3p$. Les impulsions ont une durée de ≈ 50 fs, soit une largeur spectrale ≈ 36 meV et les effets d'impulsions brèves sont négligeables. L'impulsion de l'idler est séparée en deux avec un miroir troué de diamètre 8 mm. Le faisceau réfléchi est focalisé avec une lentille $f = 50$ cm dans un jet de CO_2 émis par une vanne pulsée Even-Lavie pour la GHOE. Le faisceau de génération restant, annulaire en champ lointain, est bloqué par un iris. L'XUV est refocalisé grâce à un miroir torique en or dans la zone d'interaction d'un spectromètre de photoélectrons à bouteille magnétique d'une longueur de 1 m. Le faisceau transmis par le miroir troué est recombinaison avec l'XUV sur un second miroir troué de diamètre 6 mm. On mesure les spectres de photoionisation à deux photons et deux couleurs du néon en fonction du délai MIR-XUV. L'intensité de chaque pic satellite est sommée spectralement et on extrait la phase des oscillations par transformée de Fourier (équation ?) :

$$\bar{\Theta} = \arg_{2\omega} \left[\int d\tau e^{i\omega\tau} \left(\int_{\text{largeur SB}} S_{\text{SB}}(\tau, E) dE \right) \right] \quad (1.1)$$

De manière similaire à la procédure employée au chapitre ?, on soustrait le chirp atto linéaire (≈ 0.04 rad/eV ou 18 as/eV) pour obtenir la phase due uniquement au processus de photoionisation à deux photons *via* la résonance de Fano. Cette procédure est appliquée pour chaque longueur d'onde de génération afin d'obtenir la variation complète de la phase au voisinage de la résonance. La figure 1.2 montre les résultats obtenus pour les pics satellites SB_{62} et SB_{64} de part et d'autre de l'harmonique résonante. On observe une variation de ≈ 0.2 rad quand l'énergie

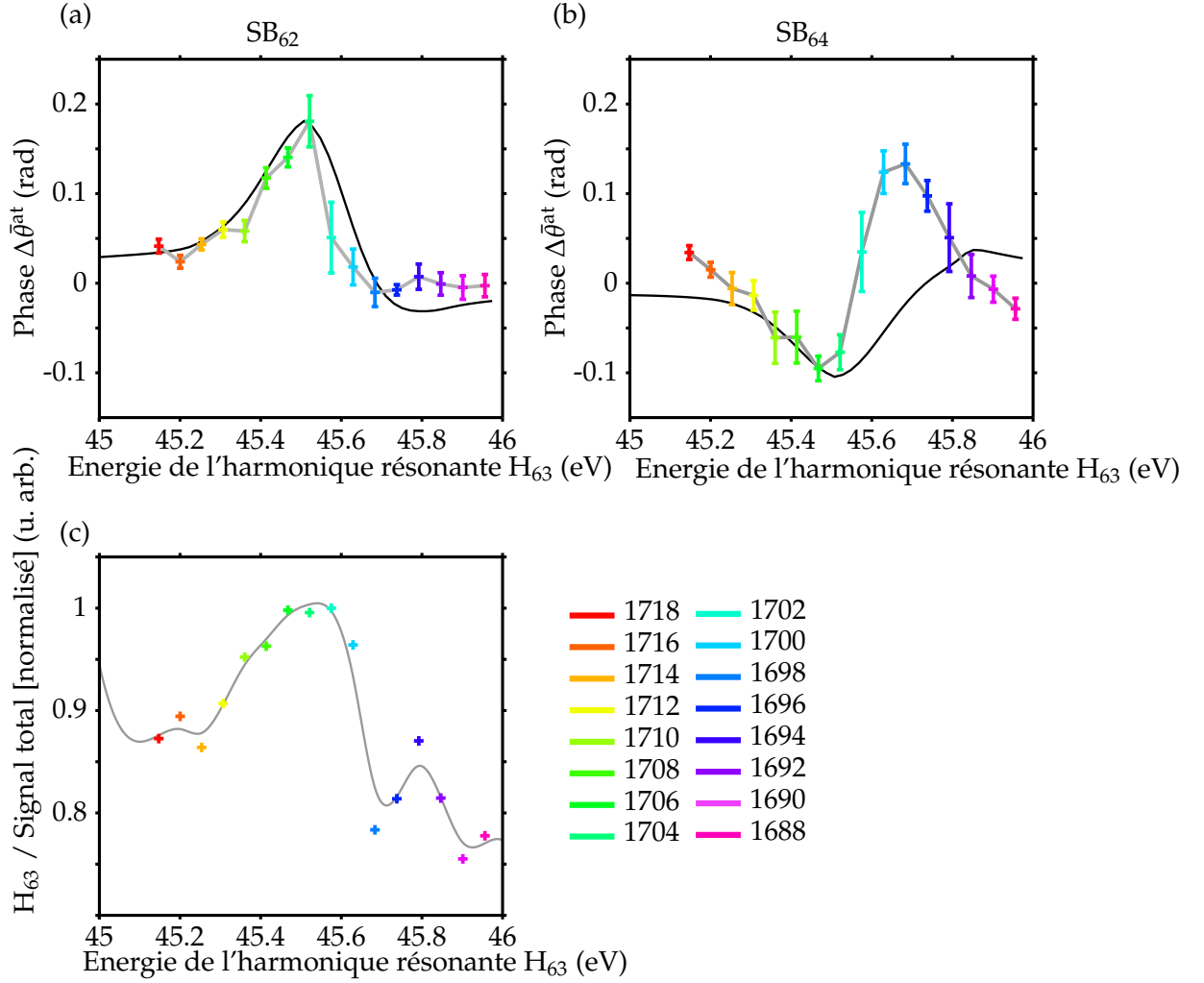


FIGURE 1.2: Différence de phase atomique $\Delta\bar{\theta}^{\text{at}}$ mesurée dans les pics satellites SB_{62} (a) et SB_{64} (b), et rapport de l'intensité de photoélectrons dans l'harmonique résonante et dans le spectre complet (c) pour les longueurs d'onde de génération indiquées dans la légende. Les phases sont comparées avec un calcul effectué par Carlos Marante à l'université autonome de Madrid (en noir). Les barres d'erreur sont calculées à partir du rapport signal sur bruit de la transformée de Fourier des oscillations des pics satellites.

de l'harmonique varie de 0.6 eV autour de la résonance. On remarque que, contrairement au cas de l'hélium, les deux pics satellites n'ont pas une variation de phase opposée. Cette observation est discutée dans le paragraphe suivant. Pour calibrer ces courbes en énergie, on utilise l'intensité de l'harmonique résonante H_{63} (figure 1.2(c)). Pour chaque longueur d'onde, un spectre de photoélectrons sans habillage est mesuré dans les conditions de génération et de détection identiques au RABBIT. Le rapport entre l'intensité de H_{63} et le signal total de photoélectrons est calculé et est tracé en fonction de $63 \times \hbar\omega$. La différence entre la position du maximum de cette courbe et du maximum de la section efficace de photoionisation du néon au voisinage de la résonance (figure 1.1) donne un offset qui est appliqué à tous les points expérimentaux.

1.3 Discussion

Les phases $\bar{\Delta}\theta^{\text{at}}$ mesurées sont comparées au résultat d'un calcul effectué dans le groupe de Fernando Martín à Madrid. Le modèle utilisé est identique à celui développé dans l'hélium (partie ??, [Jiménez-Galán et al., 2014][Jiménez-Galán et al., 2016]). Les éléments de matrice de transition sont calculés avec le code XCHEM [Marante et al., 2017a]. Ce code a été préalablement testé en calculant les sections efficaces de photoionisation et les paramètres d'asymétrie β au voisinage de la résonance de Fano [Marante et al., 2017b]. Les résultats des calculs sont en excellent accord avec les données spectroscopiques. Les amplitudes de transition sont calculées en utilisant les largeurs spectrales de l'XUV et de l'habillage issues de l'expérience. Dans le cas du néon, l'amplitude de transition totale est la somme incohérente des amplitudes de transition impliquant tous les canaux d'ionisation possibles. Enfin, les oscillations des pics satellites sont calculées par interférence des deux chemins à deux photons, convoluées spectralement pour tenir compte de la résolution du spectromètre de photoélectrons (≈ 200 meV), et la phase des oscillations à 2ω est déterminée pour différentes énergies XUV.

Pour cette résonance et avec cette énergie de photon d'habillage, le paramètre de couplage direct entre la partie liée de la résonance et le continuum final (introduit au chapitre ??) est $\gamma = 0.27$. Dans ces conditions, l'absorption et l'émission du photon MIR dans la transition à deux photons ne sont pas équivalentes (voir figure ??(b)). Ainsi les phases calculées par le modèle et tracées figure 1.2(a-b) ne sont pas opposées l'une de l'autre.

Pour le pic satellite SB_{62} , les résultats expérimentaux sont très bien reproduits par le calcul. En revanche, ce n'est pas le cas pour SB_{64} : l'accord est bon pour la partie à basse énergie, mais l'expérience est significativement différente de la simulation pour $45.5 < 63 \times \hbar\omega < 46$ eV. Dans ce domaine, l'harmonique H_{65} possède une énergie $46.9 < 65 \times \hbar\omega < 47.4$ eV, elle est donc résonante avec l'état autoionisant $2s2p^54p$ situé à $E_R = 47.12$ eV qui introduit un terme supplémentaire dans la phase du pic satellite SB_{64} . La résonance $2s4p$ n'est pas incluse dans la simulation, ce qui explique le désaccord avec les mesures.

Nos mesures de phase fournissent des données expérimentales supplémentaires à comparer aux codes de chimie quantique [Marante et al., 2017b]. L'excellent accord entre l'expérience et le calcul pour SB_{62} montre que la méthode XCHEM décrit les corrélations électroniques pour la résonance d'autoionisation $2s3p$ dans le système polyélectronique du néon de manière satisfaisante. Ces résultats donnent confiance dans la capacité de ce code à simuler la photoionisation résonante dans le cas de molécules.

Par ailleurs, [Schulz et al., 1996] ont montré que la région autour de 50 eV dans le néon est très riche en états simplement et doublement excités. Par exemple, la résonance $2s2p^55p$ ($E_R = 47.69$ eV) est perturbée par les résonances doublement

excitées $2p^43s4p$ (figure 1.1). Les états $2p^43s4p$ ne sont en outre pas décrits par le couplage LS mais par le couplage jj . Les calculs avec la méthode R-matrix de Schulz *et al.* ne reproduisent pas la section efficace expérimentale dans cette région. Une mesure de phase par la méthode Rainbow RABBIT, avec une impulsion d'habillage monochromatique, pourrait donner de nouvelles informations sur ces résonances impliquant des interactions entre de nombreuses configurations.

MESURE DE LA PHASE DE LA TRANSITION AU VOISINAGE DE LA RÉSONANCE $3s3p^64p$ DE L'ARGON PAR RABBIT ET RAINBOW RABBIT

2.1 Section efficace

L'argon est un gaz noble plus lourd que le néon, le couplage spin-orbite y joue donc un rôle plus important. La photoionisation d'un électron de valence p de l'argon produit un ion dans deux états spin-orbite différents $3p^{-1}$ ($^2P_{1/2}$) et $3p^{-1}$ ($^2P_{3/2}$) séparés de $\Delta E_{SO} = 178$ meV [Moore, 1949]. Si la résolution expérimentale est meilleure que cet écart énergétique, l'absorption d'un photon d'énergie $\hbar\Omega > Ip$ produit deux pics de photoélectrons séparés de ΔE_{SO} . Les travaux de [Jordan et al., 2017], publié pendant ma thèse et décrits au chapitre ??, ont montré qu'il existe un délai de photoionisation entre les électrons laissant l'ion dans deux états spin-orbite différents. La phase de la transition à deux photons depuis l'état fondamental vers le continuum n'est donc pas identique pour les deux canaux. La phase de la transition vers une résonance de Fano est elle également différente ? La figure 2.1 montre le rendement de photoélectrons en fonction de l'énergie du photon incident pour les deux composantes spin-orbite de Ar^+ mesuré grâce au rayonnement synchrotron par Zhang *et al.*. On remarque une série de résonances de Fano simplement excitées

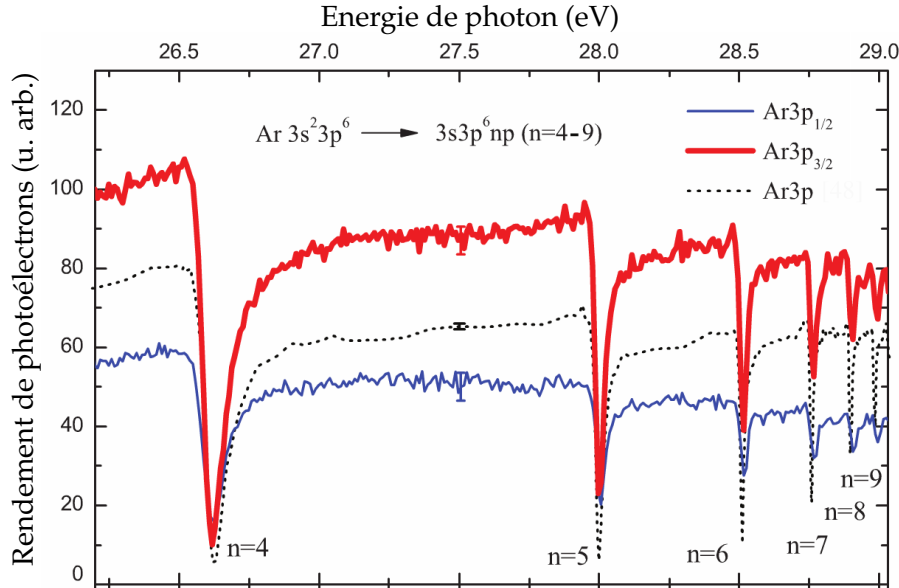


FIGURE 2.1: Rendement de photoélectron résolu en spin-orbite au voisinage des résonances $3s^23p^6 \rightarrow 3s3p^6np$ ($n = 4 - 9$) de l'argon. La ligne pointillée noire est une mesure non résolue en spin-orbite mais avec une meilleure résolution [Berrah et al., 1996]. Extrait de [Zhang et al., 2009].

$3s3p^6np$ entre 26.5 et 29 eV couplées aux deux états de l'ion. De la même manière que pour le néon ces états autoionisants sont couplés aux continua de symétrie s et d . Remarquons ici que la section efficace de photoionisation diminue à l'énergie de la résonance, ce qui est caractéristique d'un paramètre de Fano $|q| < 1$. Ce type de résonance est parfois appelé "résonance fenêtre" ou "anti-résonance".

Dans la suite de ce chapitre nous nous intéresserons à la mesure de la phase de la transition vers la résonance $3s4p$ dont les paramètres sont donnés par le tableau ?? : $E_R = 26.606$ eV ; $q = -0.28$; $\Gamma = 80$ meV ; $\tau = 8$ fs ; $\rho^2 = 0.84$. Deux types d'expériences ont été effectuées :

- (i) des mesures RABBIT à Saclay et à Ohio State en générant les harmoniques à partir d'un laser dans l'infrarouge moyen.
- (ii) des mesures Rainbow RABBIT à Lund en générant les harmoniques à 800 nm et avec un spectromètre de photoélectrons de meilleure résolution. Dans ces conditions les résonances dans les deux états de l'ion ont pu être isolées.

2.2 Mesure de la phase par interférométrie RABBIT

2.2.1 Données de la littérature avec la GHOE à 800 nm

Parallèlement aux mesures effectuées à Saclay et présentées au paragraphe suivant, le groupe d'Anne L'Huillier à Lund a publié les résultats d'une expérience similaire [Kotur et al., 2016]. Cette expérience est la première à avoir mesuré la phase de la transition au voisinage d'une résonance de Fano en utilisant l'interférométrie RABBIT avec des harmoniques accordables. La longueur d'onde centrale du laser de génération est modifiée avec des filtres acousto-optiques programmables (paragraphe ??). Les harmoniques sont générées dans l'argon. L'analyse des spectrogrammes RABBIT pour chaque longueur d'onde est identique à la méthode présentée aux chapitres ?? et 1. La variation de phase (que nous notons $\Delta\theta^{\text{at}}$) en fonction de l'énergie de l'harmonique résonante mesurée par Kotur *et al.* est présentée sur la figure 2.2. Les auteurs mesurent une variation de phase de ~ 0.6 rad autour de la résonance, qui n'est pas opposée pour les deux pics satellites de part et d'autre de l'harmonique résonante. Les mesures sont en accord avec les résultats de simulations (lignes rouge et pointillée verte sur la figure 2.2) de manière satisfaisante. Cependant, les variations de phase dans les deux pics satellites ne sont pas opposées. Dans les simulations, basées sur le modèle de [Jiménez-Galán et al., 2016], la largeur spectrale de l'impulsion IR d'habillage (durée ≈ 25 fs ; largeur spectrale ≈ 95 meV) est prise en compte.

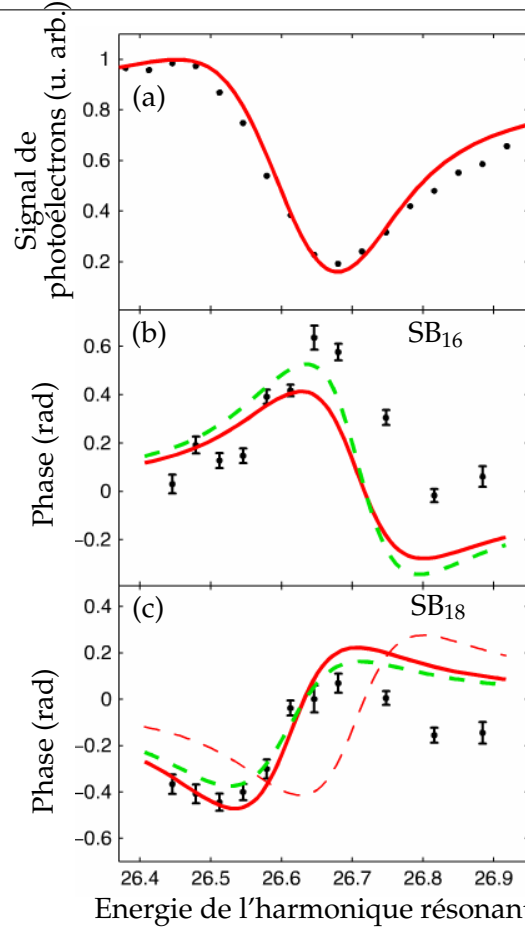


FIGURE 2.2: Signal de photoélectrons de l'harmonique 17 (a), variations de phases mesurées par RABBIT dans les pics satellites 16 (b) et 18 (c) lorsque l'énergie de H_{17} est variée au voisinage de la résonance $3s3p^64p$ de l'argon. Extrait de [Kotur et al., 2016].

2.2.2 Résultats expérimentaux avec la GHOE dans l'infrarouge moyen

Sans avoir eu connaissance des résultats de Kotur *et al.*, nous avons effectué la même expérience à Saclay. Le dispositif expérimental utilisé est similaire à celui présenté sur la figure ?? et décrit au paragraphe ?. Brièvement, la longueur d'onde de génération est modifiée grâce à un amplificateur paramétrique optique afin que l'harmonique 27 soit résonante avec la transition vers l'état $3s4p$ ($\lambda \approx 1260$ nm). L'impulsion MIR est focalisée dans une cellule de krypton pour la GHOE. Nous avons choisi un gaz de génération qui ne possède pas de résonances dans la région spectrale qui nous intéresse. La durée de l'impulsion est ≈ 70 fs, soit une largeur spectrale ≈ 26 meV. Dans ces conditions, les effets d'impulsions brèves sont négligeables. Un spectrogramme RABBIT est mesuré pour chaque longueur d'onde de génération. Les pics satellites sont intégrés sur leur largeur spectrale et la phase des oscillations est extraite par transformée de Fourier (équation 1.1). En dehors des résonances de Fano, la section efficace de photoionisation de l'argon n'est pas "plate" (figure ??,[Chan et al., 1992]). La présence du minimum de Cooper [Cooper, 1962] modifie la phase des transitions vers le continuum, comme le montre le calcul de [Maurits-

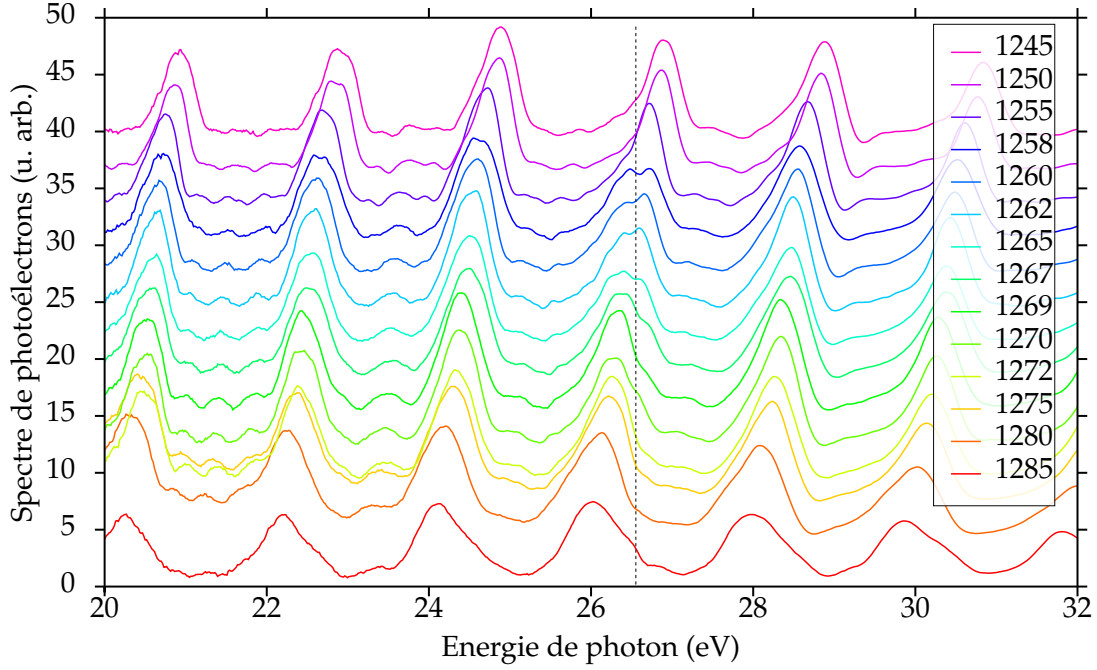


FIGURE 2.3: Spectres de photoélectrons de l'argon ionisé par les harmoniques d'ordre élevé générées dans le krypton pour plusieurs longueurs d'onde de 1245 à 1285 nm. Les spectres sont décalés verticalement pour une meilleure visibilité. Les pointillés noirs matérialisent la position de la résonance. Bien que la résonance fenêtre soit visible dans l'intensité de l'harmonique 27, aucune structure dans l'amplitude ou la phase des pics satellites 26 et 28 n'a été observée. La largeur des pics est due à : la largeur spectrale des harmoniques, la résolution du spectromètre, et les deux composantes spin-orbite qui ne sont pas résolues dans cette expérience.

son et al., 2005]. Ainsi, nous n'utilisons pas la totalité des pics satellites mesurés pour déterminer le chirp atto (figure ??) mais seulement les pics satellites voisins : ici SB_{24} et SB_{30} . La différence entre la phase des oscillations des pics satellites et le chirp atto est la phase atomique moyennée $\bar{\Delta\theta}^{at}$.

La figure 2.4 montre les résultats obtenus pour les pics satellites SB_{26} et SB_{28} de part et d'autre de l'harmonique résonante. On observe une variation de ≈ 0.5 rad quand l'énergie de l'harmonique varie de 0.4 eV autour de la résonance. Les deux pics satellites ont une variation de phase quasiment opposée, à la différence des résultats de la figure 2.2. Cette observation est discutée dans le paragraphe suivant. Pour calibrer ces courbes en énergie, on utilise l'intensité de l'harmonique résonante H_{27} (figure 2.4(c)). Pour chaque longueur d'onde, un spectre de photoélectrons sans habillage est mesuré dans les conditions de génération et de détection identiques au RABBIT (figure 2.3). Le rapport entre l'intensité de H_{27} et le signal total de photoélectrons est calculé et est tracé en fonction de $27 \times \hbar\omega$. La différence entre la position du minimum de cette courbe et du minimum de la section efficace de photoionisation de l'argon au voisinage de la résonance (figure 2.1) donne un offset qui est appliqué à tous les points expérimentaux.

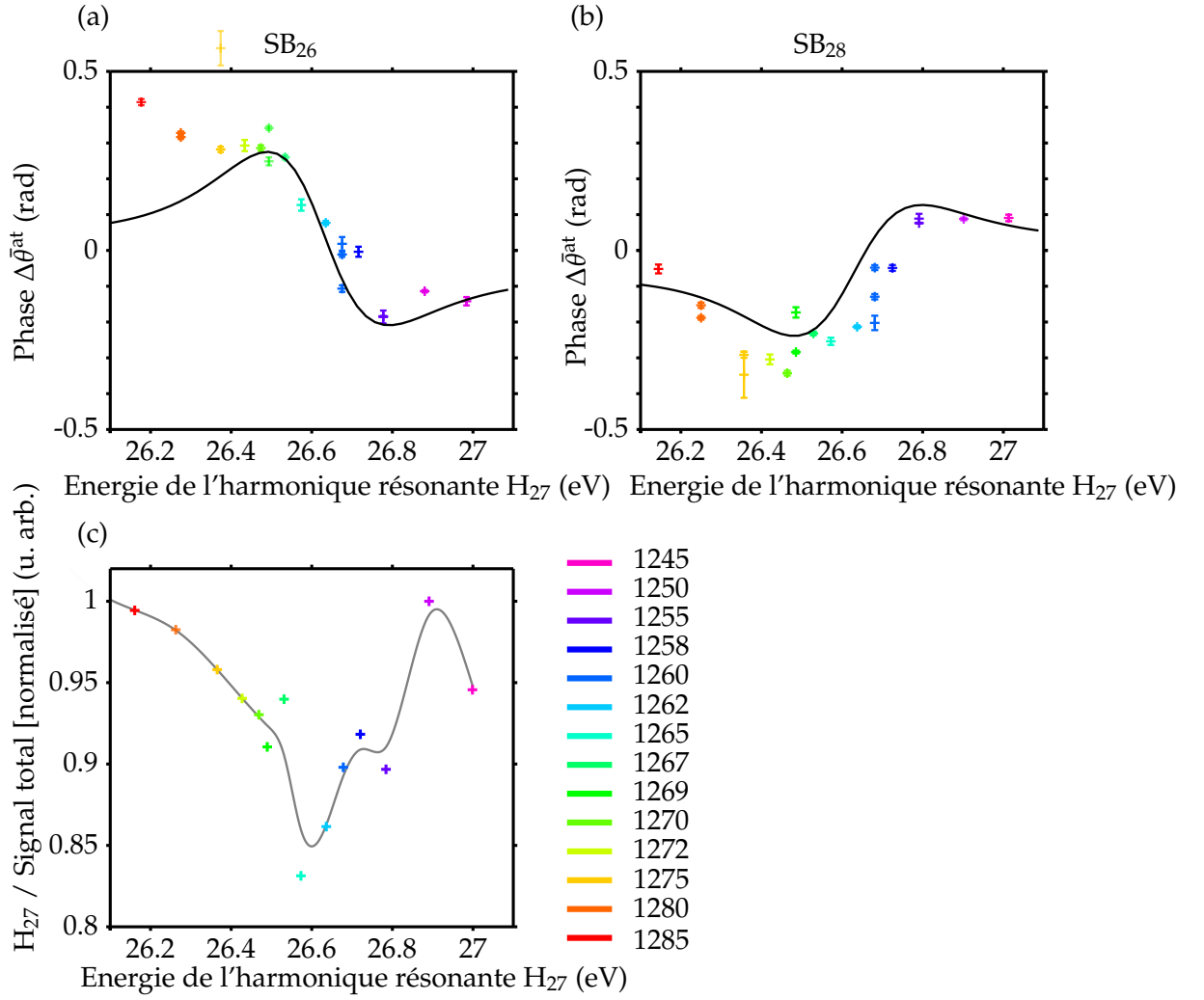


FIGURE 2.4: Différence de phase atomique $\Delta\bar{\theta}^{\text{at}}$ mesurée dans les pics satellites SB₂₆ (a) et SB₂₈ (b), et rapport de l'intensité de photoélectrons dans l'harmonique résonante et dans le spectre complet (c) pour les longueurs d'onde de génération indiquées dans la légende. Les phases sont comparées avec un calcul effectué par Álvaro Jiménez-Galán à l'université autonome de Madrid (en noir). Pour certaines longueurs d'onde, l'expérience a été effectuée plusieurs fois et les différents résultats sont représentés, indiquant la variabilité statistique de nos mesures. Les barres d'erreur sont calculées à partir du rapport signal sur bruit de la transformée de Fourier des oscillations des pics satellites.

La même expérience a été reproduite dans le laboratoire de Louis DiMauro et Pierre Agostini à l'université d'état de l'Ohio, en collaboration avec Antoine Camper, Timothy Gorman et Dietrich Kieseewetter. Les différences avec l'expérience de Saclay sont simplement :

- la longueur d'onde de génération se situe autour de 1700 nm.
- la durée de l'impulsion d'habillage est légèrement inférieure (≈ 50 fs), mais les effets d'impulsions brèves sont toujours négligeables.

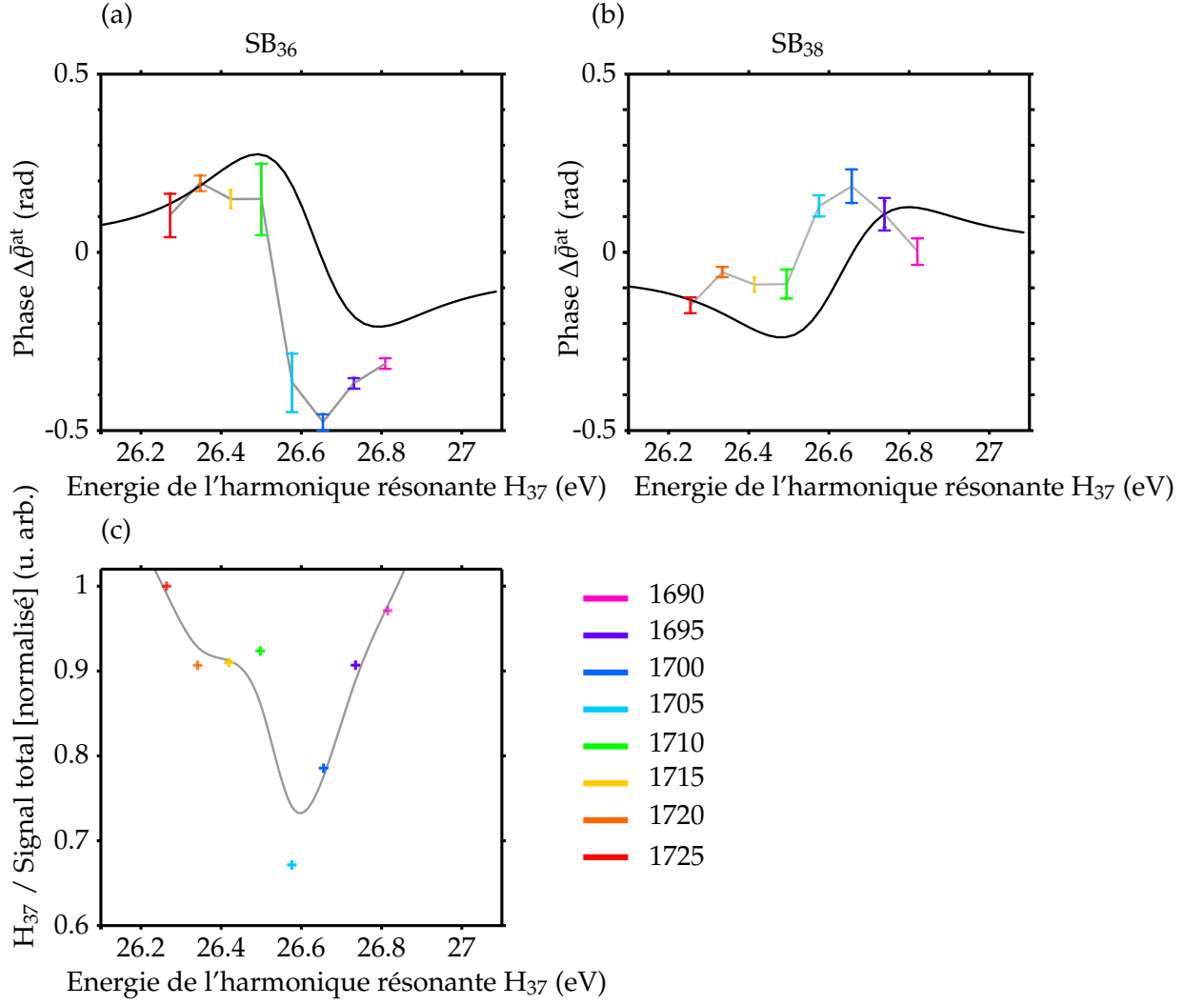


FIGURE 2.5: Différence de phase atomique $\Delta\bar{\theta}^{\text{at}}$ mesurée dans les pics satellites SB₃₆ (a) et SB₃₈ (b), et rapport de l'intensité de photoélectrons dans l'harmonique résonante et dans le spectre complet (c) pour les longueurs d'onde de génération indiquées dans la légende. Les phases sont comparées avec un calcul effectué par Álvaro Jiménez-Galán à l'université autonome de Madrid (en noir). Les barres d'erreur sont calculées à partir du rapport signal sur bruit de la transformée de Fourier des oscillations des pics satellites.

- la GHOE est effectuée dans le CO₂, avec une vanne pulsée Even-Lavie.

Les résultats, représentés sur la figure 2.5, sont qualitativement en accord avec les résultats de Saclay. En générant avec une vanne pulsée, le flux de photons XUV est plus faible qu'en générant dans une cellule. Les barres d'erreur sont donc plus importantes que sur la figure 2.4.

Les phases $\Delta\bar{\theta}^{\text{at}}$ mesurées dans les deux expériences sont comparées à une simulation effectuée par Álvaro Jiménez-Galán dans le groupe de Fernando Martín à l'université autonome de Madrid. Le modèle utilisé est identique à celui utilisé dans

l'hélium et le néon [Jiménez-Galán et al., 2016].

2.2.3 Discussion

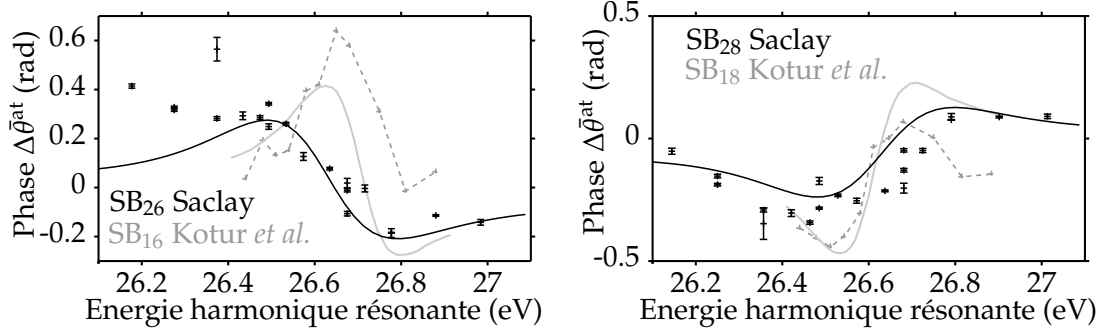


FIGURE 2.6: Comparaison des mesures de $\Delta\bar{\theta}^{\text{at}}$ effectuées à Saclay (points noirs) avec les résultats de Kotur *et al.* (pointillés gris), ainsi que des simulations pour les paramètres expérimentaux correspondants (trait continu noir et gris respectivement).

La comparaison des résultats obtenus à Saclay avec les données de [Kotur et al., 2016] sur la figure 2.6 fait apparaître plusieurs différences, dues principalement aux conditions expérimentales distinctes. Premièrement, dans notre cas la variation de phase a lieu lorsque l'énergie de l'harmonique résonante varie de 26.4 à 26.8 eV, alors que le saut de phase se produit en ≈ 0.2 eV dans les résultats de Kotur *et al.*. Comme nous l'avons vu dans la partie ??, le chirp harmonique est plus important dans l'infrarouge moyen qu'à 800 nm. Nos harmoniques sont alors plus larges spectralement que celles de l'expérience de l'équipe de Lund. L'harmonique recouvre donc partiellement la résonance sur une plus grande gamme spectrale. L'évolution de phase est très bien reproduite par les simulations du groupe de Fernando Martín prenant en compte la largeur spectrale de nos harmoniques (trait continu figures 2.4(a-b) et 2.6).

Deuxièmement, les phases que nous avons mesurées sont quasiment opposées pour les pics satellites de part et d'autre de la résonance, contrairement aux mesures de Kotur *et al.*. D'après le chapitre ??, le paramètre γ est proportionnel à ω c'est-à-dire à l'énergie du photon d'habillage. Les phases des deux pics satellites sont donc plus symétriques lorsque le photon d'habillage se situe dans l'infrarouge moyen. Notons également que les effets d'impulsions brèves sont négligeables dans nos expériences.

Enfin, remarquons que dans l'expérience de Saclay, l'énergie de l'harmonique 29 est suffisante pour exciter les résonances $3s5p$ et $3s6p$ de l'argon entre 28 et 28.5 eV. Ceci devrait donner une contribution supplémentaire à la phase du pic satellite SB₂₈. Ces résonances ne sont pas incluses dans les simulations, qui sont pourtant en accord remarquable avec nos résultats expérimentaux. Ainsi à la différence des mesures effectuées dans le néon et présentées au chapitre précédent, la présence d'une

résonance dans chacun des chemins conduisant au pic satellite SB_{28} ne semble pas être visible dans les phases mesurées.

2.3 Mesure de la phase par Rainbow RABBIT

2.3.1 Dispositif expérimental

Les résultats présentés dans ce paragraphe ont été obtenus lors de deux campagnes expérimentales menées à Lund en collaboration avec l'équipe du professeur Anne L'Huillier (David Busto, Mathieu Gisselbrecht, Anne Harth, Marcus Isinger, David Kroon, Shiyang Zhong) et en utilisant le spectromètre de photoélectrons prêté par le groupe de Raimund Feifel à l'Université de Gothenburg. Le dispositif expérimental utilisé est identique à celui décrit dans le chapitre ?? . Brièvement, on utilise un laser titane :saphir dont on modifie la longueur d'onde centrale grâce à des filtres acousto-optiques programmables. Les spectrogrammes RABBIT sont mesurés dans un spectromètre de photoélectrons à bouteille magnétique d'une longueur de 2 m, en appliquant un potentiel retardateur aux électrons des pics satellites d'intérêt pour les amener dans la zone de meilleure résolution spectrale. La largeur spectrale des impulsions d'habillage est de l'ordre de 130 à 190 meV.

Comme le montre la figure 2.7(a), ces conditions expérimentales permettent de distinguer les contributions des photoélectrons couplés aux deux états spin-orbite de Ar^+ . Les pics de photoélectrons correspondant aux harmoniques non résonantes 19 et 21 présentent un épaulement, et celui produit par l'harmonique résonante 17 a une forme non triviale avec un minimum local de chaque côté du maximum.

2.3.2 Séparation des deux composantes spin-orbite

Dans l'argon, ΔE_{SO} n'est pas suffisamment important pour séparer complètement les deux "familles" de pics de photoélectrons comme dans [Jordan et al., 2017]. Seul un épaulement est visible. Cependant, il est possible d'extraire le signal provenant d'une état de l'ion en appliquant la procédure suivante [Zürch et al., 2017] : le signal total est considéré comme la somme incohérente des intensités de photoélectrons des deux canaux

$$S_{\text{tot}}(E) = S_{1/2}(E) + S_{3/2}(E) \quad (2.1)$$

On considère que les spectres des deux canaux sont **identiques**, séparés de ΔE_{SO} et que leur intensité relative est égale à la **dégénérescence** des états de Ar^+ $3p^{-1}$ ($^2P_{1/2}$) et $3p^{-1}$ ($^2P_{3/2}$), soit 1 et 2 respectivement. L'équation précédente devient

$$S_{\text{tot}}(E) = S_{1/2}(E) + 2S_{1/2}(E - \Delta E_{SO}) \quad (2.2)$$

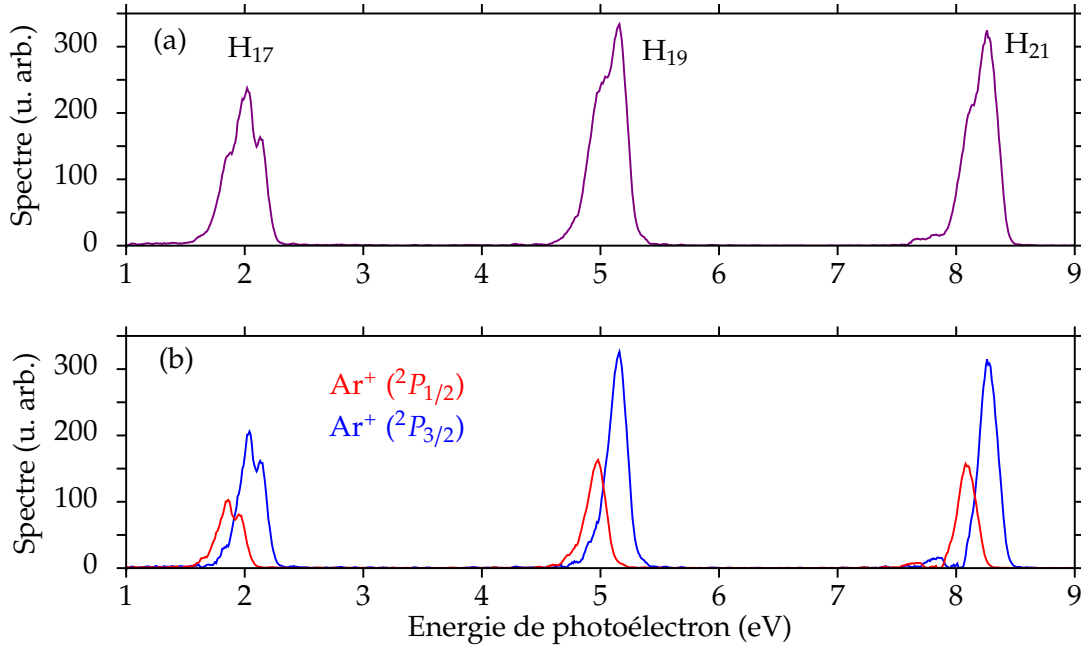


FIGURE 2.7: (a) Spectre de photoélectrons mesuré sans habillage lorsque l'harmonique 17 est résonante avec la transition vers l'état autoionisant $3s4p$. (b) Spectre séparé en deux contributions correspondant aux deux états spin-orbite de Ar^+ selon la procédure décrite dans le texte.

Un décalage en énergie s'exprime simplement dans le domaine de Fourier. Soit ξ la variable conjuguée de E . La transformée de Fourier de l'expression 2.2 s'écrit :

$$\tilde{S}_{\text{tot}}(\xi) = (1 + 2e^{-i\xi\Delta E_{SO}})\tilde{S}_{1/2}(\xi) \quad (2.3)$$

Ainsi, en divisant la transformée de Fourier du signal total par le facteur de phase $(1 + 2e^{-i\xi\Delta E_{SO}})$, on obtient la transformée de Fourier de la contribution d'un seul canal. Par transformée de Fourier inverse on obtient le spectre de photoélectrons pour un seul canal. Le spectre de l'autre canal s'obtient simplement en multipliant le résultat par la dégénérescence et en appliquant le décalage en énergie. La calibration en énergie du spectre de photoélectrons pouvant être imparfaite, la valeur de ΔE_{SO} est optimisée par un algorithme minimisant la différence entre le spectre expérimental et le spectre calculé à partir de $S_{1/2}(E) = TF^{-1}[\tilde{S}_{1/2}(\xi)]$. La valeur trouvée, $\Delta E_{SO,\text{opt}} = 180$ meV, est très proche de la valeur de la littérature. Le résultat de cette procédure appliquée au spectre de la figure 2.7(a) est visible sur la figure 2.7(b). Dans les spectres rouge et bleu de la figure 2.7, les intensités correspondant aux harmoniques non résonantes n'ont plus d'épaule, et on distingue bien la résonance fenêtre dans le signal de l'harmonique résonante 17.

2.3.3 Résultats

On mesure un spectrogramme RABBIT lorsque H_{17} est résonante avec la transition vers l'état autoionisant $3s4p$ et on analyse l'amplitude et la phase à l'intérieur des

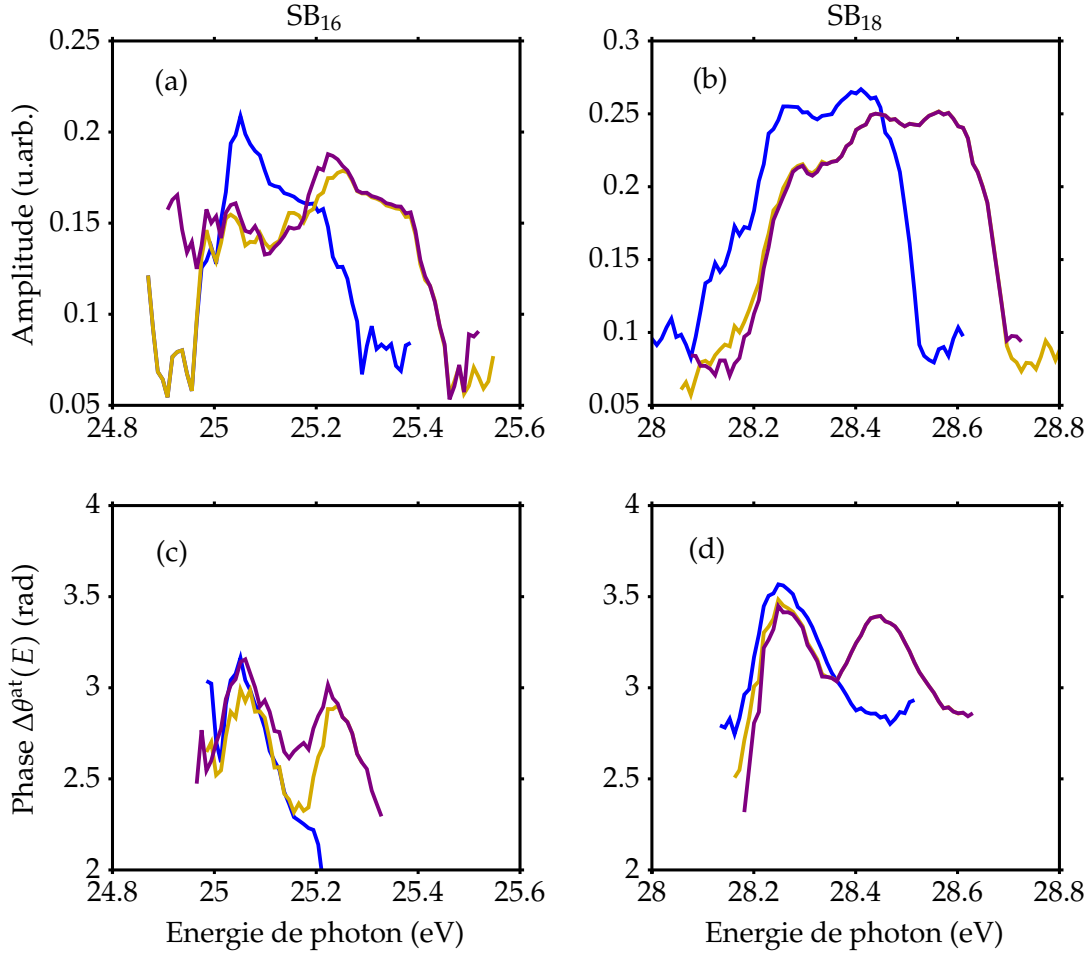


FIGURE 2.8: vdsvd.

pics satellites par la méthode Rainbow RABBIT décrite au chapitre ?? . Chaque pic satellite est la somme incohérente de pics satellites produits par l'habillage de photoélectrons issus de $\text{Ar}^+ 3p^{-1}$ ($^2P_{1/2}$) et $3p^{-1}$ ($^2P_{3/2}$). Ainsi dans l'analyse Rainbow RABBIT des pics satellites on retrouve l'amplitude "à trois bosses" de H_{17} figure 2.7(a), et on distingue deux contributions à la phase. Ces résultats sont visibles en violet sur la figure 2.8.

Afin d'isoler la contribution d'un seul canal, la procédure décrite au paragraphe ?? est appliquée à chaque spectre composant le spectrogramme RABBIT. On reconstruit ensuite le spectrogramme RABBIT correspondant à un seul canal. L'amplitude et la phase des pics satellites sont analysées par la méthode Rainbow RABBIT. Comme le montrent les courbes bleues de la figure 2.8, l'amplitude présente désormais la résonance fenêtre et un unique saut de phase est mesuré. On observe un saut de phase de ≈ 0.75 rad au voisinage du minimum d'amplitude, autour de 25.1 et 28.3 eV dans les pics satellites 16 et 18 respectivement. De manière surprenante, les variations de phase sont très similaires (et non symétriques) dans les deux pics satellites.

BIBLIOGRAPHIE

- Berrah N, Langer B, Bozek J, Gorczyca TW, Hemmers O, Lindle DW, et Toader O. *Angular-distribution parameters and r -matrix calculations of ar resonances*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **29**, 5351 (1996). [Cité page 9.]
- Chan WF, Cooper G, Guo X, Burton GR, et Brion CE. *Absolute optical oscillator strengths for the electronic excitation of atoms at high resolution. iii. the photoabsorption of argon, krypton, and xenon*. Phys. Rev. A **46**, 149–171 (1992). [Cité page 11.]
- Cooper JW. *Photoionization from outer atomic subshells. a model study*. Phys. Rev. **128**, 681–693 (1962). [Cité page 11.]
- Jiménez-Galán A, Argenti L, et Martín F. *Modulation of attosecond beating in resonant two-photon ionization*. Phys. Rev. Lett. **113**, 263001 (2014). [Cité page 6.]
- Jiménez-Galán Á, Martín F, et Argenti L. *Two-photon finite-pulse model for resonant transitions in attosecond experiments*. Phys. Rev. A **93** (2016). [Cité pages 6, 10, et 15.]
- Jordan I, Huppert M, Pabst S, Kheifets A, Baykusheva D, et Wörner H. *Spin-orbit delays in photoemission*. Phys. Rev. A **95** (2017). [Cité pages 9 et 16.]
- Kotur M, Guénot D, Jiménez-Galán Á, Kroon D, Larsen E, Louisy M, Bengtsson S, Miranda M, Mauritsson J, Arnold C, Canton S, Gisselbrecht M, Carette T, Dahlström J, Lindroth E, Maquet A, Argenti L, Martín F, et L’Huillier A. *Spectral phase measurement of a fano resonance using tunable attosecond pulses*. Nat. Commun. **7**, 10566 (2016). [Cité pages 10, 11, et 15.]
- Marante C, Klinker M, Corral I, Gonzalez-Vazquez J, Argenti L, et Martín F. *Hybrid-basis close-coupling interface to quantum chemistry packages for the treatment of ionization problems*. Journal of chemical theory and computation **13**, 499–514 (2017)a. [Cité page 6.]
- Marante C, Klinker M, Kjellsson T, Lindroth E, González-Vázquez J, Argenti L, et Martín F. *Photoionization using the xchem approach : Total and partial cross sections of ne and resonance parameters above the $2s^2 2p^5$ threshold*. Phys. Rev. A **96**, 022507 (2017)b. [Cité page 6.]
- Mauritsson J, Gaarde MB, et Schafer KJ. *Accessing properties of electron wave packets generated by attosecond pulse trains through time-dependent calculations*. Phys. Rev. A **72**, 013401 (2005). [Cité page 11.]
- Moore CE. *Ce moore atomic energy levels, 1* (1949). Atomic energy levels **1**, 212 (1949). [Cité page 9.]
- Schulz, Domke, Püttner, Gutiérrez, Kaindl, Miecznik, et Greene C. *High-resolution experimental and theoretical study of singly and doubly excited resonances in ground-state photoionization of neon*. Phys. Rev. A **54**, 3095–3112 (1996). [Cité pages 3 et 6.]
- Zhang H, Rolles D, Bozek J, et Berrah N. *Photoionization of argon clusters in the ar $3s$ np rydberg resonance region*. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys **42**, 105103 (2009). [Cité page 9.]
- Zürch M, Chang HT, Borja LJ, Kraus PM, Cushing SK, Gandman A, Kaplan CJ, Oh MH, Prell JS, Prendergast D, D P, Neumark DM, et Leone SR. *Direct and simultaneous observation of ultrafast electron and hole dynamics in germanium*. Nature Communications **8** (2017). [Cité page 16.]

