

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

MA THÈSE

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le XX XX XX :

Composition du Jury :

MME. XX	Professeur, XX	Présidente
M. XX	Professeur, XX	Rapporteur
M. XX	Professeur, XX	Rapporteur
M. XX	Responsable de groupe, XX	Examineur
M. XX	Professeur, XX	Examineur
M. XX	Responsable de groupe, XX	Directeur de thèse
M. XX ^N	Chargé de recherche, XX	Encadrant de thèse

MA THÈSE

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

Commissariat à l'Energie Atomique
Direction Science de la Matière
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	Polarimétrie de l'émission harmonique générée par un champ à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé	1
1	Génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisées elliptiquement	5
1.1	Polarisation de la lumière	5
1.2	Génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir d'un laser polarisé elliptiquement	7
1.3	Autres méthodes de génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisées elliptiquement	10
1.3.1	Génération dans des molécules alignées	10
1.3.2	Génération au voisinage d'une résonance	11
1.4	Génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir d'un champ à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé	14
2	Mesure complète de l'état de polarisation de l'émission harmonique générée par un champ à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé	17
	Bibliographie	19

Première partie

Polarimétrie de l'émission harmonique générée par un champ à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé

La question de la génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisées elliptiquement est un problème actuel de la physique attoseconde. Cette partie est centrée sur le schéma de génération à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé. Pour un traitement plus large, le lecteur pourra se référer par exemple à [Higuët, 2010], [Gruson, 2015] ou [Géneaux, 2016].

GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ POLARISÉES ELLIPTIQUEMENT

Dans ce chapitre, nous définirons d'abord les grandeurs utilisées pour caractériser la polarisation du rayonnement. Ensuite, nous présenterons les différentes méthodes développées pour produire des harmoniques d'ordre élevé polarisées elliptiquement. Nous montrerons d'abord que l'utilisation d'un faisceau fondamental elliptique est peu efficace et ne permet pas d'attendre des ellipticités élevées, puis nous présenterons brièvement les méthodes de GHOE dans les molécules alignées et au voisinage de résonances permettant d'obtenir un rayonnement harmonique elliptique. Enfin nous détaillerons le schéma de GHOE utilisant une impulsion laser à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé qui sera étudié numériquement et expérimentalement dans les chapitres suivants.

1.1 Polarisation de la lumière

Considérons une onde plane monochromatique de pulsation ω_0 $\vec{E}(z,t)$. D'après les équations de Maxwell, le champ électrique est transverse, c'est-à-dire orthogonal à son vecteur d'onde \vec{k} . Dans un repère cartésien (O,x,y,z) tel que le champ se propage selon la direction (Oz) , on a :

$$\vec{E}(z,t) = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_{0x} \cos(\omega_0 t - kz) \\ E_{0y} \cos(\omega_0 t - kz + \phi) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

L'extrémité du vecteur champ électrique est l'ensemble des points tel que [Born et Wolf, 1980] :

$$\left(\frac{E_x}{E_{0x}} \right)^2 + \left(\frac{E_y}{E_{0y}} \right)^2 - 2 \frac{E_x E_y}{E_{0x} E_{0y}} \cos \phi = \sin^2 \phi \quad (1.2)$$

qui est l'équation d'une ellipse (voir figure 1.1). L'ellipse de polarisation est entièrement décrite dans (O,x,y,z) par la donnée des amplitudes du champ selon (Ox) et (Oy) , E_{0x} et E_{0y} , et de la phase relative entre ces deux composantes ϕ . Ces données sont équivalentes aux paramètres géométriques de l'ellipse : son demi grand axe a et demi petit axe b ainsi que l'angle ψ entre le grand axe de l'ellipse et la direction (Ox) . L'ellipticité $\epsilon \in [-1;1]$ est définie telle que

$$\epsilon = \tan \chi = \pm \frac{b}{a} \quad (1.3)$$

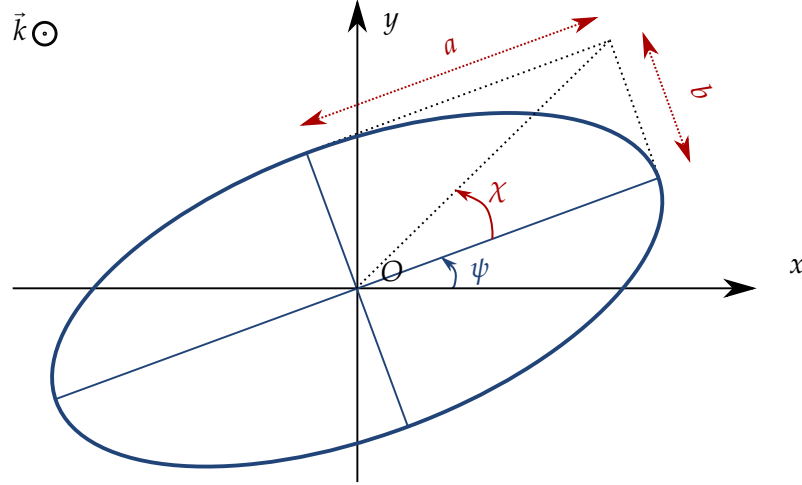


FIGURE 1.1 – Ellipse de polarisation.

Si $\epsilon > 0$ (resp. $\epsilon < 0$), l'ellipse est parcourue dans le sens horaire (resp. trigonométrique) lorsqu'elle est regardée par un observateur dans la direction opposée à la direction de propagation et la polarisation est appelée polarisation elliptique droite (resp. gauche). Si $E_{0x} = E_{0y}$, la polarisation est circulaire et $\epsilon = \pm 1$.

En pratique, le champ laser (ou harmonique) possède une durée finie, donc une largeur spectrale, et un profil transverse non homogène. En chaque point (x, y) du plan transverse et à l'instant t , le champ électrique est décrit localement par

$$\vec{E}(x, y, t, \omega) = E_x(x, y, t, \omega)\vec{u}_x + E_y(x, y, t, \omega)\vec{u}_y \quad (1.4)$$

Pour décrire globalement un tel champ, Stokes introduit une représentation à quatre paramètres définis par [Born et Wolf, 1980] :

$$S_0 = \langle E_x E_x^* + E_y E_y^* \rangle \quad (1.5)$$

$$S_1 = \langle E_x E_x^* - E_y E_y^* \rangle \quad (1.6)$$

$$S_2 = \langle E_x E_y^* + E_y E_x^* \rangle \quad (1.7)$$

$$S_3 = i \langle E_x E_y^* - E_y E_x^* \rangle \quad (1.8)$$

où la moyenne $\langle \rangle$ est une moyenne temporelle, spatiale, et spectrale. Il est possible que les différentes composantes temporelles et spatiales ne soient pas corrélées. Dans le cas extrême, toutes les orientations de E_x et E_y sont équiprobables et non corrélées durant la durée de l'observation et dans l'espace : la lumière est émise indépendamment par un grand nombre d'émetteurs. L'émission est alors dite non polarisée. C'est le cas de la lumière naturelle émise par rayonnement du corps noir, ou bien de la lumière émise par fluorescence. En général la lumière est partiellement polarisée, et on a la relation suivante entre les paramètres de Stokes :

$$S_0^2 \geq S_1^2 + S_2^2 + S_3^2 \quad (1.9)$$

avec égalité si et seulement si la lumière est complètement polarisée. Il est utile de définir les paramètres de Stokes normalisés par S_0 : $s_1 = S_1/S_0$, $s_2 = S_2/S_0$ et $s_3 = S_3/S_0$. Le degré de polarisation de l'onde, P , est donné par

$$P = \frac{I_{\text{pol}}}{I_{\text{tot}}} = \frac{\sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}}{S_0} = \sqrt{s_1^2 + s_2^2 + s_3^2} \quad (1.10)$$

Les paramètres de Stokes sont reliés aux paramètres géométriques de l'ellipse :

$$\psi = \frac{1}{2} \arctan \frac{s_2}{s_1} \quad (1.11)$$

$$\epsilon = \tan \left[\frac{1}{2} \arcsin \frac{s_3}{\sqrt{s_1^2 + s_2^2 + s_3^2}} \right] \quad (1.12)$$

La donnée des quatre paramètres de Stokes est suffisante pour décrire complètement la polarisation du champ, et est équivalente à la donnée de l'ellipticité ϵ , de l'angle entre le grand axe de l'ellipse et (Ox) ψ et du degré de polarisation P . D'après l'équation 1.12, si la lumière est complètement polarisée, il existe une relation directe entre ϵ et s_3 . Cependant, si la lumière est partiellement polarisée, il est nécessaire de mesurer simultanément s_1 , s_2 et s_3 pour déterminer l'ellipticité.

1.2 Génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir d'un laser polarisé elliptiquement

L'idée la plus simple pour produire un rayonnement harmonique polarisé elliptiquement est de chercher à transférer à l'XUV les propriétés de polarisation du faisceau fondamental.

La première expérience de GHOE à partir d'un laser polarisé elliptiquement a été brillamment effectuée par [Budil et al., 1993]. Un laser à colquiriite dopée au chrome $\text{Cr}:\text{LiSrAlF}_6$ produit des impulsions de 125 fs à 825 nm qui sont focalisées dans un gaz rare pour générer les harmoniques d'ordre élevé. La polarisation du laser est variée de linéaire à circulaire gauche et droite grâce à une lame quart d'onde large bande. Le signal harmonique est mesuré en fonction de l'ellipticité du laser. Les résultats pour les harmoniques 15 à 63 dans le néon sont reportés figure 1.2. On constate que l'efficacité de génération décroît exponentiellement avec l'ellipticité IR. Pour $|\epsilon| = 0.2$, le signal diminue de plus d'un ordre de grandeur par rapport au cas linéaire. La décroissance est plus rapide lorsque l'ordre de l'harmonique est grand.

Quelques années plus tard, [Antoine et al., 1997] ont mesuré optiquement l'ellipticité et l'angle de l'ellipse de polarisation d'harmoniques générées dans plusieurs

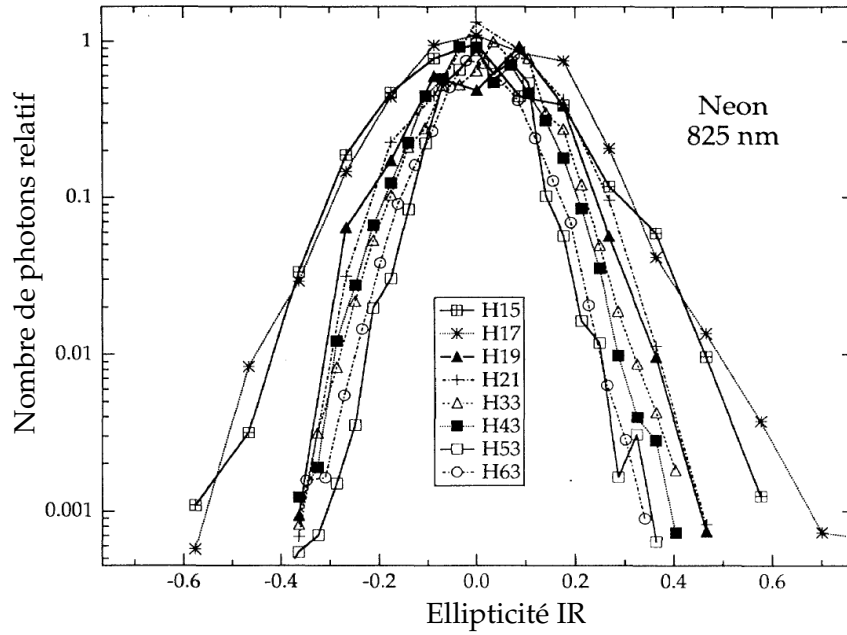


FIGURE 1.2 – Signal harmonique en fonction de l'ellipticité du laser IR, normalisé par rapport à la polarisation linéaire (échelle logarithmique). Extrait de [Budil et al., 1993].

gaz rares à partir d'un faisceau IR polarisé elliptiquement. Les résultats expérimentaux sont comparés à des calculs dans l'approximation du champ fort (*Strong Field Approximation, SEA*), incluant la propagation, de l'ellipticité et du degré de polarisation de l'XUV. Les résultats pour les harmoniques 17 et 23, correspondant respectivement à la fin du plateau et à la coupure à l'intensité utilisée dans l'argon, sont reproduits figure 1.3. La mesure de l'ellipticité par une méthode optique avec une loi de Malus ne permet pas de déterminer le paramètre de Stokes s_3 , mais seulement s_1 et s_2 [Antoine et al., 1997][Gruson, 2015]. Le calcul de l'ellipticité se fait alors en utilisant les relations 1.10 et 1.12, en supposant le rayonnement complètement polarisé ($P = 1$). Ainsi, la grandeur mesurée est seulement une valeur maximale de l'ellipticité harmonique, ϵ_q^{\max} . Si le rayonnement est seulement partiellement polarisé, l'ellipticité de la partie polarisée de la lumière ("vraie" ellipticité) est inférieure à ϵ_q^{\max} . D'une part, on constate que l'angle de rotation de l'ellipse est faible et augmente de manière quasi-linéaire avec l'ellipticité IR. D'autre part, l'ellipticité des harmoniques est une fonction croissante de l'ellipticité du fondamental, mais lui est inférieure, de manière plus significative pour l'harmonique de la coupure. Pour l'harmonique du plateau, une grande ellipticité mesurée est associée à un plus faible degré de polarisation. L'ellipticité "vraie" calculée est alors deux fois plus faible que l'ellipticité mesurée.

Les différentes observations s'interprètent facilement dans le cadre semi-classique du modèle en trois étapes, voir par exemple [Géneaux, 2016] chap. 13. En particulier, la diminution de l'efficacité de génération avec l'ellipticité du champ est due au fait

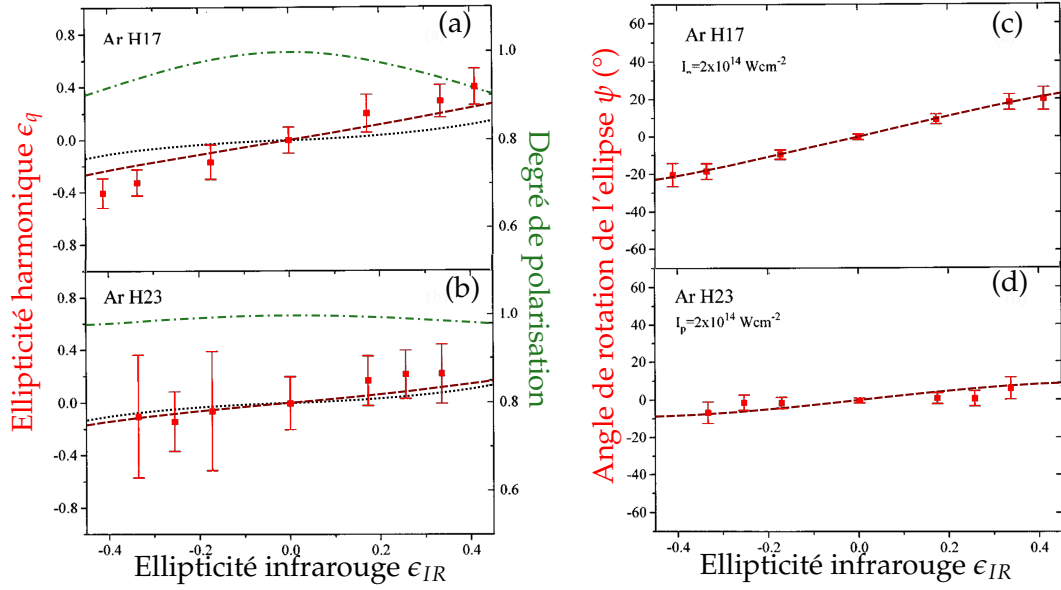


FIGURE 1.3 – (a-b) Ellipticité harmonique mesurée ϵ_q^{\max} par une loi de Malus (points rouges) et calculée (pointillés rouges), "Vraie" ellipticité calculée (pointillés noirs) et degré de polarisation calculé (pointillés verts, échelle de droite) pour les harmoniques 17 (a) et 23 (b) de l'argon. Le signe de l'ellipticité mesurée n'est pas possible à déterminer ici, il est donc choisi identique à celui de l'ellipticité calculée. (c-d) Angle du grand axe de l'ellipse ψ mesuré (points rouges) et calculé (pointillés rouges) pour les harmoniques 17 (c) et 23 (d) de l'argon. Extrait de [Géneaux, 2016], adapté de [Antoine et al., 1997].

que la trajectoire électronique dans le continuum ne recombine pas sur l'ion parent.

Ces deux expériences montrent qu'il est possible de transférer l'ellipticité du fondamental vers l'XUV lors de la génération d'harmoniques. Cependant, le processus est très peu efficace et ne permet pas d'atteindre des ellipticités élevées. Il est donc nécessaire de développer d'autres méthodes de production d'harmoniques et d'impulsions attoseconde polarisées elliptiquement. Par ailleurs, [Antoine et al., 1997] soulignent le fait que les mesures de type loi de Malus sans élément déphaseur sur le champ XUV ne peuvent déterminer ni le signe de l'ellipticité ni le paramètre de Stokes s_3 . Ainsi, pour une caractérisation complète de la polarisation de l'émission harmonique, il est également nécessaire de développer d'autres méthodes polarimétriques. Une telle méthode sera présentée et utilisée au chapitre 2.

1.3 Autres méthodes de génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisées elliptiquement

1.3.1 Génération dans des molécules alignées

Par symétrie, les harmoniques d'ordre élevé générées par un laser polarisé linéairement dans un milieu isotrope sont polarisées linéairement. L'ellipticité ne peut provenir que d'une brisure de symétrie. Dans le paragraphe précédent, la brisure de symétrie provient du champ IR elliptique qui génère les harmoniques dans un milieu isotrope. Les rôles du champ et du milieu peuvent être inversés : les harmoniques peuvent être générées par un laser polarisé linéairement dans un milieu orienté.

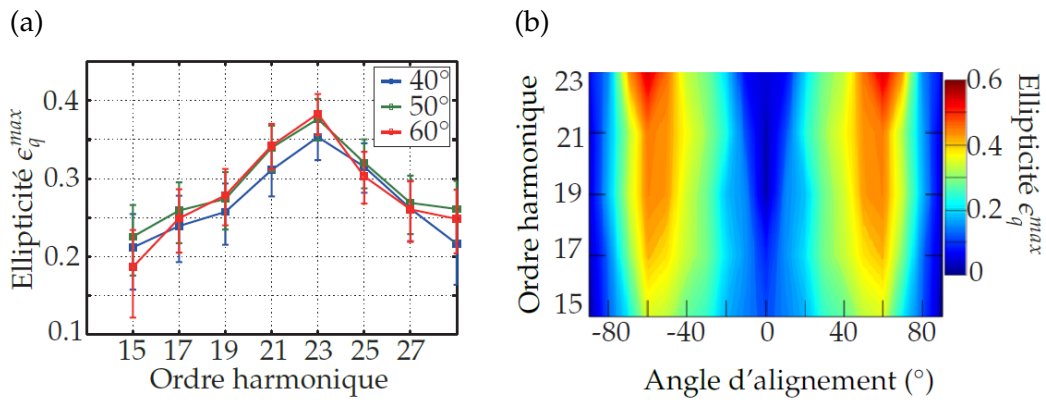


FIGURE 1.4 – (a) Ellipticité ϵ_q^{\max} en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs angles d'alignement de la molécule N_2 par rapport à la polarisation linéaire du laser de génération ($I_{\text{gen}} = 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Adapté de [Zhou et al., 2009]. (b) Ellipticité ϵ_q^{\max} en fonction de l'ordre harmonique pour plusieurs angles d'alignement de la molécule N_2 par rapport à la polarisation linéaire du laser de génération ($I_{\text{gen}} = 8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$). Adapté de [Mairesse et al., 2010].

Plusieurs méthodes d'alignement de molécules ont été développées pour la GHOE, en particulier dans le cadre de la spectroscopie harmonique. Dans le schéma le plus courant d'alignement impulsif, une pré-impulsion laser intense de quelques centaines de femtosecondes est focalisée dans le gaz et crée un paquet d'onde rotationnel dans l'état fondamental de la molécule. Ce paquet d'onde évolue librement après l'interaction, et se rephase périodiquement (toutes les périodes rotationnelles de la molécule) à des instants où les molécules sont alignées parallèlement ou perpendiculairement à la polarisation du laser de pompe [Rosca-Pruna et Vrakking, 2001]. L'impulsion laser de GHOE est retardée de manière à générer les harmoniques à l'instant où les molécules sont alignées. À cet instant, l'impulsion laser de pompe n'est plus présente dans le milieu et ne perturbe pas la GHOE.

En utilisant cette méthode, [Zhou et al., 2009] puis [Mairesse et al., 2010] ont mesuré optiquement l'ellipticité maximale des harmoniques générées dans des molécules de N_2 alignées, pour plusieurs angles d'alignement. Les résultats sont reproduits figure 1.4. Dans ces deux expériences, une ellipticité maximale ϵ_q^{\max} significative (≈ 0.35 et $\approx 0.4 - 0.5$ resp.) a été mesurée pour les harmoniques 21 - 23 d'un laser à 800 nm lorsque les molécules sont alignées à 60° de la polarisation du laser. Soulignons ici que le signe de l'ellipticité ainsi que le degré de polarisation du rayonnement n'est pas mesurable dans ces expériences. En réalité, l'interprétation de ces résultats est plus complexe qu'une simple brisure de symétrie : la même expérience de GHOE dans CO_2 aligné produit des harmoniques polarisées linéairement [Zhou et al., 2009]. L'ellipticité est due à l'interférence entre plusieurs canaux d'ionisation lors de la GHOE dans N_2 , et est donc un résultat important pour la spectroscopie harmonique.

En revanche, la production d'harmoniques elliptiques à partir de molécules alignées s'avère peu pratique. Si le niveau de signal est cette fois-ci suffisant, la technique est complexe à mettre en œuvre. Une ellipticité harmonique élevée requiert un excellent taux d'alignement des molécules qui peut s'obtenir :

- En refroidissant la température rotationnelle du gaz grâce à l'utilisation d'un jet pulsé [Camper, 2014] ; cependant l'utilisation d'un jet pulsé diminue la densité du milieu et donc le flux de photons XUV.
- En utilisant un schéma d'alignement à plusieurs impulsions [Cryan et al., 2009] : une nouvelle impulsion d'alignement interagit avec les molécules à chaque période rotationnelle, ce qui complexifie considérablement le dispositif expérimental et requiert une quantité d'énergie importante pour la pompe.

Par ailleurs, si l'intensité du faisceau d'alignement n'est pas homogène spatialement dans la zone de génération des harmoniques, ou bien s'il existe une gigue spatiale ou temporelle du faisceau d'alignement, des simulations avec le modèle QRS (*Quantitative Rescattering Theory*, [Le et al., 2009]) ont montré que les harmoniques générées dans N_2 aligné n'étaient pas complètement polarisées ($P \approx 0.9$) [Gruson, 2015]. Toutes ces contraintes pour obtenir un rayonnement harmonique d'ellipticité significative mais inférieure à 0.5 ont contribué au développement d'autres méthodes de GHOE polarisées elliptiquement.

1.3.2 Génération au voisinage d'une résonance

La préparation du milieu préalable à la GHOE elliptiques requiert un relativement lourd équipement expérimental. Ainsi, il serait pratique d'utiliser une propriété in-

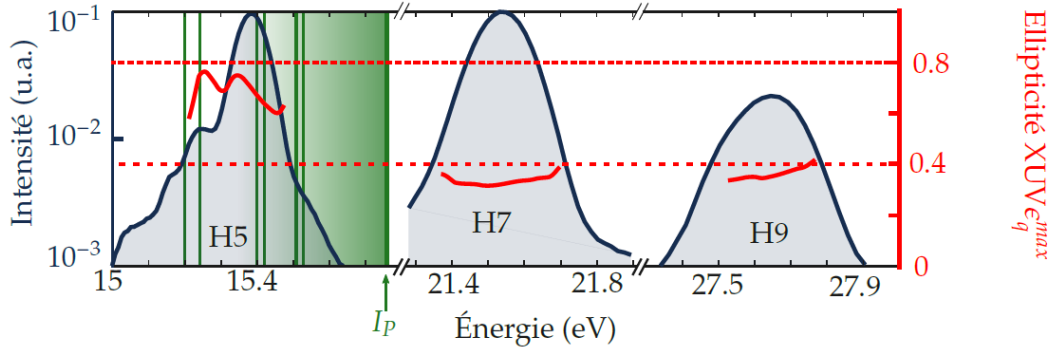


FIGURE 1.5 – Intensité du signal et ellipticité maximale ϵ_q^{\max} mesurée par polarimétrie optique d’harmoniques générées dans l’argon par un laser à 400 nm d’ellipticité $\epsilon_{\text{fond}} = 0.4$. L’énergie de quelques états de Rydberg de l’argon est indiquée en vert. Adapté de [Ferré et al., 2015b].

trinsèque au milieu de génération qui exalte la production de rayonnement elliptique. [Ferré et al., 2015b] ont montré que la GHOE au voisinage de résonances possédait ce type de propriétés. Tout d’abord, les auteurs ont généré les harmoniques d’un laser à 400 nm polarisé elliptiquement ($\epsilon_{\text{fond}} = 0.4$) dans l’argon (figure 1.5). Nous avons vu précédemment que l’ellipticité harmonique est inférieure à l’ellipticité du fondamental [Antoine et al., 1997]. De manière surprenante, Ferré *et al.* ont mesuré par polarimétrie optique $\epsilon_5^{\max} = 0.77$, soit deux fois l’ellipticité du fondamental, pour l’harmonique 5. L’harmonique 5 à 400 nm ($\approx 5 \times 3.1 = 15.5$ eV) se trouve sous le seuil d’ionisation de l’argon, dans une région spectrale riche en états de Rydberg. La présence de ces résonances modifie donc les propriétés de polarisation de l’harmonique, ce qui est confirmé également par des calculs théoriques.

Dans la suite de leur travail, [Ferré et al., 2015b] montrent que cette propriété s’étend aux résonances de forme. L’ellipticité d’harmoniques générées au voisinage de la résonance de forme de SF₆ vers 25 eV [Yang et al., 1998] [Ferré et al., 2015a] atteint $\epsilon_{15}^{\max} \approx 0.8$ pour $\epsilon_{\text{fond}} = 0.2$ (figure 1.6).

Ces mesures de polarimétrie optique ont été confirmées par notre groupe lors de mesures de polarimétrie moléculaire [Veyrinas et al., 2016] [Gruson, 2015]. Cette méthode sera présentée en détail dans le chapitre 2. Elle permet, entre autres, de mesurer tous les paramètres de Stokes du rayonnement, donc de séparer la polarisation circulaire de la partie non polarisée. Les résultats obtenus sont présentés figure 1.7. Nous avons mesuré une ellipticité de $\epsilon_q \approx +0.6$ avec $\epsilon_{\text{fond}} = +0.23$ et $\epsilon_q \approx -0.6$ avec $\epsilon_{\text{fond}} = -0.17$ pour les harmoniques 15 et 17 générées dans SF₆ avec un laser à 800 nm. Les deux autres harmoniques mesurées possèdent une ellipticité modeste. Nous soulignons ici qu’il s’agit de la première mesure du signe de ϵ_q dans ces conditions. Par ailleurs, nous avons pu déterminer le degré de polarisation des harmoniques et mis en évidence l’existence d’une dépolarisation significative dans

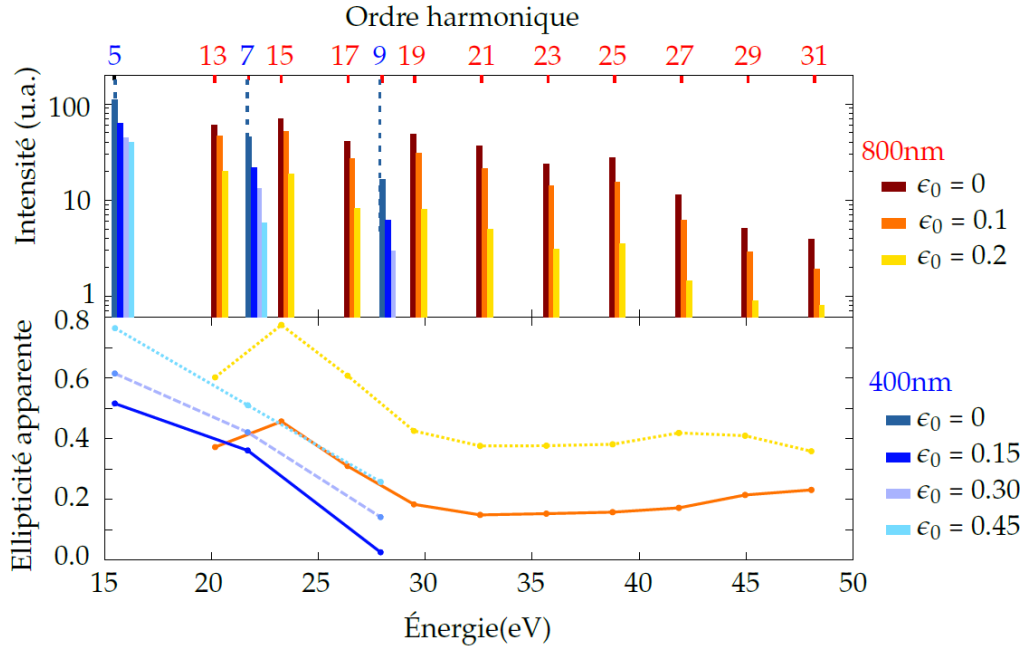


FIGURE 1.6 – Intensité du signal (haut) et ellipticité maximale ϵ_q^{\max} (bas) mesurée par polarimétrie optique d'harmoniques générées dans SF_6 par un laser à 400 nm ou 800 nm d'ellipticité variable. Adapté de [Ferré et al., 2015b].

le rayonnement harmonique produit au voisinage de la résonance de forme de SF_6 .

Les harmoniques de SF_6 ont été utilisées dans une expérience de dichroïsme circulaire de photoélectrons [Ferré et al., 2015b], démontrant ainsi que ce schéma permet la génération d'un flux suffisant de photons XUV de polarisation quasi-circulaire. Cependant, les résonances sous le seuil comme les résonances de forme sont généralement situées au voisinage des potentiels d'ionisation atomiques ou moléculaires, soit à des énergies de l'ordre de quelques dizaines d'électron-volts. Les résonances de forme sont moins étroites spectralement que les résonances atomiques, mais restent localisées spectralement. Ce schéma de génération apparaît donc comme un bon outil de production de rayonnement XUV elliptique pour l'étude de dichroïsmes circulaires dans les molécules, mais ne permet pas d'atteindre les énergies et les largeurs spectrales nécessaires, par exemple, pour l'étude de matériaux magnétiques [Stöhr, 1995].

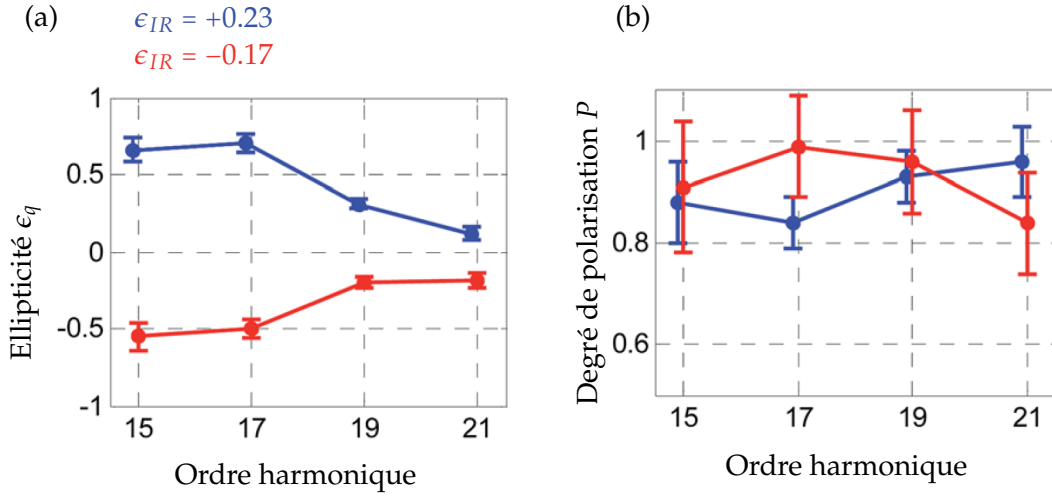


FIGURE 1.7 – Ellipticité "vraie" ϵ_q (a) et degré de polarisation P (b) d'harmoniques générées dans SF₆ par un laser à 800 nm polarisé elliptiquement avec $\epsilon_{IR} = +0.23$ (bleu) et -0.17 (rouge) mesurés par polarimétrie moléculaire. Adapté de [Veyrinas et al., 2016].

1.4 Génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir d'un champ à deux couleurs polarisées circulairement en sens opposé

Le schéma de GHOE à partir d'un mélange de deux impulsions à la fréquence fondamentale et sa seconde harmonique (généralement 800 nm et 400 nm) polarisées circulairement en sens opposé a été proposé expérimentalement par [Eichmann et al., 1995]. De manière surprenante, cette configuration à deux couleurs produit efficacement un spectre très étendu, composé de toutes les harmoniques exceptées les multiples de 3. En effet, dans une approche multiphotonique de la GHOE, le système absorbe un nombre m de photons de fréquence ω et un nombre n de photons de fréquence 2ω :

$$\Omega_{n,m} = n \times \omega + m \times 2\omega \quad (1.13)$$

L'émission du photon harmonique de fréquence $\Omega_{n,m}$ correspond à une variation de moment angulaire orbital du système $\Delta\ell = \pm 1$. Ainsi le système doit absorber un photon supplémentaire d'une couleur pour conserver le moment angulaire :

$$n = m \pm 1 \quad (1.14)$$

Les fréquences harmoniques autorisées sont donc

$$\Omega_{m\pm 1,m} = (3m \pm 1)\omega \quad (1.15)$$

Par ailleurs, les deux impulsions sont polarisées circulairement en sens opposé. Donc l'un des faisceaux porte un moment angulaire de spin de +1 tandis que l'autre

porte un moment angulaire de spin de -1. Par conservation du moment angulaire de spin, l'harmonique émise porte le moment angulaire du photon supplémentaire absorbé. Donc les harmoniques $3m + 1$ (resp. $3m - 1$) sont polarisées circulairement dans le même sens que le faisceau à la fréquence ω (resp. 2ω).

Ces conclusions des lois de conservations ont été remarquées dès les travaux pionniers de [Eichmann et al., 1995], mais sans que la mesure de l'état de polarisation des harmoniques ne soit effectuée. Ce schéma permet donc en principe la production d'harmoniques polarisées circulairement sur tout le spectre, dont l'hélicité alterne et est contrôlée par l'hélicité respective des champs à ω et 2ω .

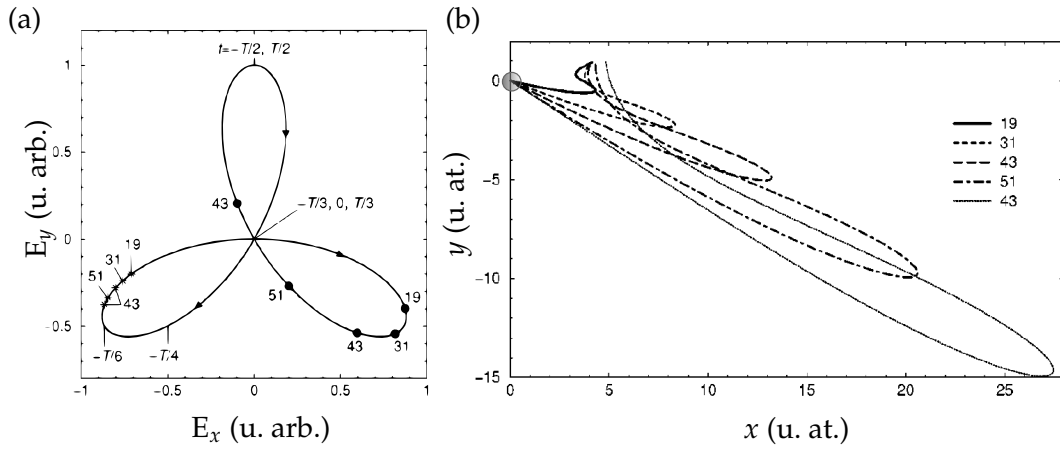


FIGURE 1.8 – (a) Courbe décrite par le champ électrique à deux couleurs pendant une période du champ à ω , avec $\hbar\omega = 1.6$ eV et $I_\omega = I_{2\omega} = 4 \times 10^{14}$ W/cm². (b) Trajectoires électroniques correspondant aux harmoniques 19 à 51. Les instants d'émission et de recombinaison pour les différentes trajectoires sont indiquées par des étoiles et des cercles respectivement en (a). La position du cœur ionique est matérialisée par un cercle. Extrait de [Milošević et al., 2000]

Bien qu'utilisant des champs polarisés circulairement ($\epsilon_{\omega,2\omega} = \pm 1$), la GHOE avec ce schéma est très efficace. En réalité, le champ électrique total ressenti par l'électron ne décrit pas un cercle (figure 1.1) mais un trèfle à trois feuilles (figure 1.8(a)). Dans ce champ, [Milošević et al., 2000] ont calculé les trajectoires électroniques dans l'approximation du champ fort. Tout comme il existe des trajectoires "courtes" et "longues" dans la GHOE à une couleur polarisée linéairement (voir partie ref), plusieurs trajectoires électroniques sont susceptibles d'émettre des harmoniques. Cependant, les auteurs montrent qu'une famille de trajectoires domine l'émission; elles sont représentées figure 1.8(b) et correspondent à des instants d'ionisation et de recombinaison indiquées sur la figure 1.8(a). Les trajectoires commencent à ≈ 4 u.a. du cœur (ce qui correspond à la "sortie du tunnel" lors de l'ionisation) et recombinaison sur le cœur en suivant une trajectoire très semblable au cas de la GHOE à une couleur linéaire, ce qui explique l'importante efficacité de ce dispositif de

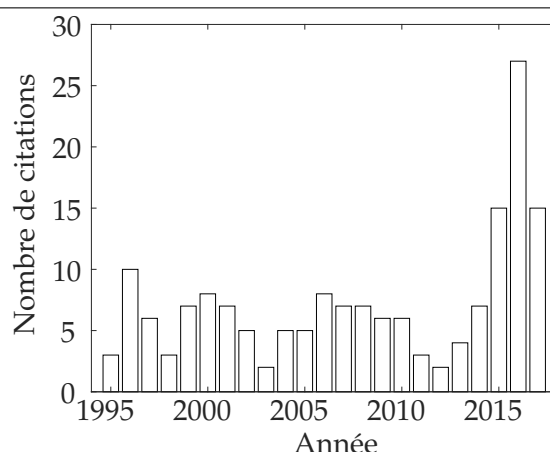


FIGURE 1.9 – Nombre de citations par année de [Eichmann et al., 1995] analysé par Web of Knowledge en août 2017.

génération.

Par ailleurs, l'émission harmonique correspondante est alors polarisée linéairement. Ce processus se répète trois fois pendant une période T du champ à ω en tournant de 120° , c'est-à-dire à chaque "feuille" du trèfle. La combinaison des trois émissions attoseconde linéaires dont la polarisation tourne de 120° tous les $T/3$ est responsable de la circularité des harmoniques. Le rayonnement XUV possède donc des propriétés de polarisation inhabituelles : une harmonique donnée possède une polarisation circulaire, mais l'émission est constituée d'un train d'impulsion attoseconde émises tous les $T/3$ de polarisation linéaire tournant de 120° d'une impulsion à l'autre dans le train [Milošević et Becker, 2000].

CHAPITRE 2

MESURE COMPLÈTE DE L'ÉTAT DE POLARISATION DE L'ÉMISSION HARMONIQUE GÉNÉRÉE PAR UN CHAMP À DEUX COULEURS POLARISÉES CIRCULAIREMENT EN SENS OPPOSÉ

1	$\epsilon_{IR} = -1 ; \epsilon_{UV} = +1$		$\epsilon_{IR} = -1 ; \epsilon_{UV} = +1$	
Harmonique	H ₁₆	H ₁₇	H ₁₆	H ₁₇
s_1	0.27 (0.04)	0.32 (0.05)	0.24 (0.04)	0.07 (0.07)
s_2	0.05 (0.04)	0.03 (0.05)	-0.12 (0.04)	-0.20 (0.07)
s_3	-0.80 (0.04)	0.53 (0.04)	0.77 (0.04)	-0.53 (0.04)
P	0.85 (0.03)	0.62 (0.04)	0.81 (0.04)	0.57 (0.05)
ψ	5 (4.5)	2.5 (4.5)	167 (5)	144.5 (9.5)
ϵ	-0.72 (0.04)	0.56 (0.05)	0.71 (0.04)	-0.68 (0.08)

BIBLIOGRAPHIE

- Antoine P, Carré B, L’Huillier A, et Lewenstein M. *Polarization of high-order harmonics*. Phys. Rev. A **55**, 1314–1324 (1997). [Cité pages 7, 8, 9, et 12.]
- Born M et Wolf E. *Principles of Optics (Sixth Edition)*. Cambridge University Press (1980). [Cité pages 5 et 6.]
- Budil K, Salières P, Anne L, Ditmire T, et Perry M. *Influence of ellipticity on harmonic generation*. Physical Review A **48**, R3437 (1993). [Cité pages 7 et 8.]
- Camper A. *Multidimensionnal Phase Spectroscopy of the Attosecond Molecular Emission*. Theses, Université Paris Sud - Paris XI, (2014). URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01100464>. [Cité page 11.]
- Cryan JP, Bucksbaum PH, et Coffee RN. *Field-free alignment in repetitively kicked nitrogen gas*. Phys. Rev. A **80**, 063412 (2009). [Cité page 11.]
- Eichmann H, Egbert A, Nolte S, et Momma C. *Polarization-dependent high-order two-color mixing*. Physical Review A (1995). [Cité pages 14 et 15.]
- Ferré A, Boguslavskiy A, Dagan M, Blanchet V, Bruner B, Burgy F, Camper A, Descamps D, Fabre B, Fedorov N, Gaudin J, Geoffroy J, Mikosch J, Patchkovskii S, Petit S, Ruchon T, Soifer H, Staedter D, Wilkinson I, Stolow A, Dudovich N, et Mairesse Y. *Multi-channel electronic and vibrational dynamics in polyatomic resonant high-order harmonic generation*. Nature communications **6**, ncomms6952 (2015)a. [Cité page 12.]
- Ferré A, Handschin C, Dumergue M, Burgy F, Comby A, Descamps D, Fabre B, Garcia G, Généaux R, Merceron L, Mével E, Nahon L, Petit S, Pons B, Staedter D, Weber S, Ruchon R, Blanchet V, et Mairesse Y. *A table-top ultrashort light source in the extreme ultraviolet for circular dichroism experiments*. Nature Photonics **9**, 93–98 (2015)b. [Cité pages 12 et 13.]
- Généaux R. *Le moment angulaire de la lumière en génération d’harmoniques d’ordre élevé*. Theses, Université Paris-Saclay, (2016). URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01469506>. Thèse de doctorat dirigée par Carré, Bertrand et Ruchon, Thierry. Spécialité Lasers, molécules, rayonnement atmosphérique. [Cité pages 3, 8, et 9.]
- Gruson V. *Polarimétrie Harmonique et Spectroscopie de Photoionisation Attoseconde*. PhD thesis, Université Paris Saclay, (2015). URL <http://www.theses.fr/2015SACL5227>. Thèse de doctorat dirigée par Salières, Pascal. Spécialité Lasers, molécules, rayonnement atmosphérique. [Cité pages 3, 8, 11, et 12.]
- Higuét J. *Etudes structurales et dynamiques de systèmes atomiques ou moléculaires par génération d’harmoniques d’ordre élevé*. PhD thesis, Université de Bordeaux, (2010). URL <http://www.theses.fr/2010BOR14078>. Thèse de doctorat dirigée par Mével, Eric. Spécialité Lasers, matière et nanosciences. [Cité page 3.]
- Le AT, Lucchese RR, Tonzani S, Morishita T, et Lin CD. *Quantitative rescattering theory for high-order harmonic generation from molecules*. Phys. Rev. A **80**, 013401 (2009). [Cité page 11.]
- Mairesse Y, Higuét J, Dudovich N, Shafir D, Fabre B, Mével E, Constant E, Patchkovskii S, Walters Z, Ivanov MY, et Smirnova O. *High harmonic spectroscopy of multichannel dynamics in strong-field ionization*. Phys. Rev. Lett. **104**, 213601 (2010). [Cité pages 10 et 11.]
- Milošević D et Becker W. *Attosecond pulse trains with unusual nonlinear polarization*. Physical Review A (2000). [Cité page 16.]
- Milošević D, Becker W, et Kopold R. *Generation of circularly polarized high-order harmonics by two-color coplanar field mixing*. Physical Review A (2000). [Cité page 15.]

- Rosca-Pruna F et Vrakking MJJ. *Experimental observation of revival structures in picosecond laser-induced alignment of I_2* . Phys. Rev. Lett. **87**, 153902 (2001). [Cité page 10.]
- Stöhr J. *X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy of transition metal thin films*. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **75**, 253–272 (1995). [Cité page 13.]
- Veyrinas K, Gruson V, Weber S, Barreau L, Ruchon T, Hergott JF, Houver JC, Lucchese R, Salières P, et Dowek D. *Molecular frame photoemission by a comb of elliptical high-order harmonics : a sensitive probe of both photodynamics and harmonic complete polarization state*. Faraday discussions **194**, 161–183 (2016). [Cité pages 12 et 14.]
- Yang L, Ågren H, Carravetta V, Vahtras O, Karlsson L, Wannberg B, Holland D, et MacDonald M. *Energy-dependent valence photoelectron spectra of sf_6 . ab initio calculations and measurements*. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **94**, 163 – 179 (1998). [Cité page 12.]
- Zhou X, Lock R, Wagner N, Li W, Kapteyn HC, et Murnane MM. *Elliptically polarized high-order harmonic emission from molecules in linearly polarized laser fields*. Phys. Rev. Lett. **102**, 073902 (2009). [Cité pages 10 et 11.]

