
**CONTRÔLE DU NOMBRE QUANTIQUE RADIAL PAR LA SÉLECTION
DE TRAJECTOIRES QUANTIQUES**

4.1 Rôle de la phase atomique dans la génération de modes de nombre radial non nul

À la partie 2.3, nous avons effectué des simulations numériques quantiques (SFA). Nous avons déjà vu que les profils obtenus en champ lointain montrent deux contributions distinctes, que nous avons attribué aux deux premières trajectoires quantiques de la GHOE. Pour étudier ce point plus en détail, on peut varier la position z_0 du foyer infrarouge par rapport au jet de gaz, qui contrôle le poids relatif des trajectoires. Pour la figure 2.7, nous avions $z_0 = 0$. La figure 4.1 (a-c) présente le profil obtenu en champ lointain lorsque le laser est focalisé en amont, au milieu, et en aval du jet. Quand $z_0 < 0$, c'est-à-dire que le laser est focalisé avant le jet, l'accord de phase favorise fortement la trajectoire courte. Dans ce cas, le profil en champ lointain ne présente qu'un seul anneau : comme dans l'expérience on génère un mode de Laguerre-Gauss quasiment pur. Au contraire si $z_0 > 0$, on observe plusieurs anneaux sur un profil qui rappelle un mode de LG avec $p \neq 0$. Dans le cas intermédiaire, le profil est beaucoup plus modulé à cause des interférences entre trajectoires quantiques. On vérifie cet effet en sélectionnant numériquement tour à tour une seule trajectoire. Les panneaux 4.1 (d,e) montrent que l'on retrouve bien un anneau presque pur pour la courte, et une série d'anneaux pour la longue.

4.2 Observation de modes de nombre quantique radial élevé

4.2.1 Modification du dispositif expérimental

Cherchons maintenant à observer des profils similaires de manière expérimentale. On s'attend à observer l'apparition d'anneaux supplémentaires plus divergents et moins intenses, il faut adapter notre dispositif en conséquence. En particulier, le réseau cylindrique de diffraction risque de distordre l'image trop fortement, nous avons donc cherché à construire un spectromètre donnant véritablement une image en coordonnées “spatiale-spatiale”. Nous avons repris le schéma proposé par Hart-

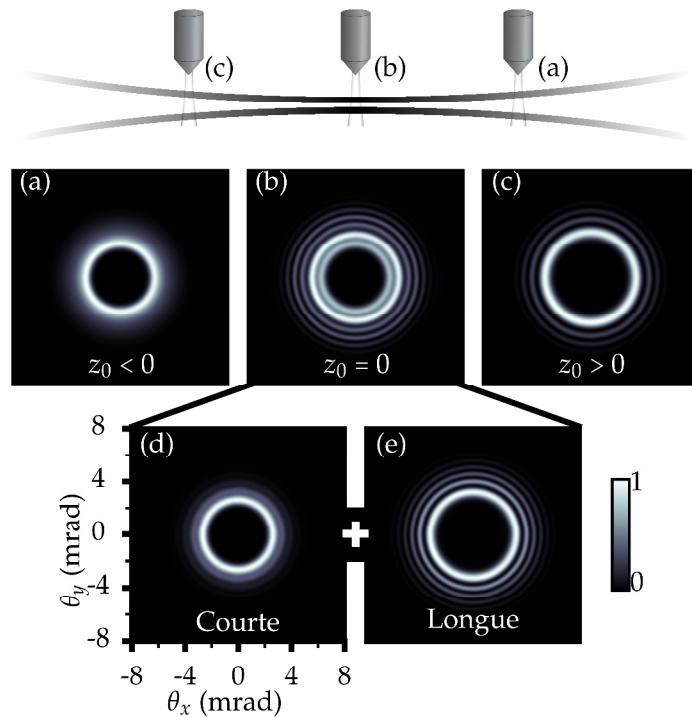


FIGURE 4.1 – Contributions des différentes trajectoires quantiques dans la GHOE par faisceau LG. Le profil d'intensité de l'harmonique 21 est présenté pour (a) $z_0 < 0$, (b) $z_0 = 0$, (c) $z_0 > 0$. La convention de signe est illustrée au-dessus. Les profils (d) et (e) sont calculés avec $z_0 = 0$ en ne prenant en compte que la contribution respectivement de la trajectoire courte ou longue.

mut Ruf dans sa thèse [Ruf, 2012]. L'idée est d'illuminer aussi peu de traits du réseau que possible, de sorte à réduire la dispersion induite par le réseau. De plus, on cherche à utiliser un dispositif le moins astigmate possible, de sorte à éviter les effets de conversion $\mathcal{LG} \rightarrow \mathcal{HG}$. Pour ce faire, on utilise un réseau de diffraction en incidence quasi-normale. Pour réduire le nombre de traits illuminés, le faisceau est d'abord focalisé par un miroir sphérique, lui aussi en incidence quasi-normale. Le réseau est alors positionné juste avant le foyer du miroir de sorte à rester en dessous du seuil de dommage. Bien sûr, l'incidence normale des optiques réduit fortement le flux dans l'UVX. Pour garantir une réflectivité correcte, le miroir sphérique est traité avec un revêtement de B_4C , qui réfléchit à 10-30 % jusqu'à l'ordre harmonique 19 avec un angle d'incidence de 10° (voir figure 4.2).

Le réseau de diffraction (Spectrogron) dispose de $\sigma = 600$ grooves/mm, son principal avantage étant son faible coût (600€), à comparer avec le prix des réseaux cy-

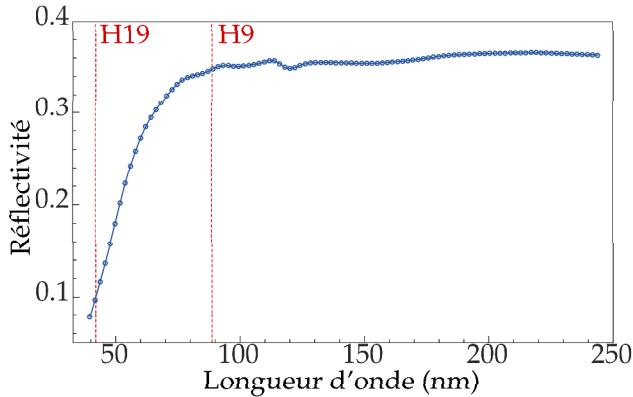


FIGURE 4.2 – Réflectivité mesurée du miroir avec revêtement de B_4C en fonction de la longueur d'onde. L'angle d'incidence est de 10° . Adapté de [Ruf, 2012].

lindriques habituels (de l'ordre de 10000€). Le dispositif complet est présenté sur la figure 4.3. Ce dispositif nous a été prêté par nos collègues du CELIA Bordeaux, Yann Mairesse et Valérie Blanchet. L'utilisation de ce spectromètre, outre sa transmission relativement faible, présente deux difficultés. Tout d'abord, en champ intermédiaire, avec nos sources relativement étendues, nous observons une superposition d'anneaux. Il faut donc placer une fente de sortie au foyer et balayer le spectre avec cette fente, afin de ne sélectionner qu'une harmonique. Le deuxième point délicat est la calibration du spectromètre : il est a priori difficile de distinguer les différents ordres de diffraction entre eux.

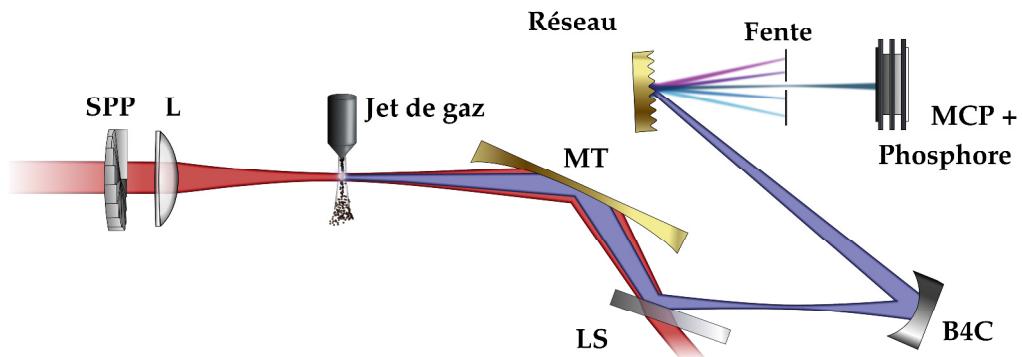


FIGURE 4.3 – Dispositif expérimental avec spectromètre peu dispersif. Le faisceau infrarouge est mis en forme par une lame de phase en spirale (SPP) et focalisé par une lentille (L) de longueur focale $f = 1m$. Les harmoniques du fondamental sont générées dans le jet de gaz d'argon et réimagées par un ensemble miroir torique (MT) + lame de silice (LS). Le spectromètre est constitué d'un miroir sphérique recouvert de B_4C à 10° d'incidence et d'un réseau de diffraction à $\approx 6^\circ$ d'incidence. Au foyer, on place une fente permettant de sélectionner une unique harmonique, qui est ensuite imager par l'ensemble MCP+écran de phosphore.

4.2.2 Calibration du spectromètre

Pour calibrer le spectre, il faut pouvoir reconnaître plusieurs ordres de diffraction correspondant à la même longueur d'onde. Pour ce faire, nous choisissons d'utiliser une technique d'interférométrie à deux faisceaux, similaire à celle proposée par [Bertrand et al., 2011]. À l'aide d'un interféromètre, on rajoute un deuxième faisceau de perturbation à 800nm, non-colinéaire au premier. Au foyer, les deux faisceaux se croisent avec un angle et créent un réseau de diffraction dans la dimension verticale. Ainsi, il est possible d'absorber un photon venant du deuxième faisceau comme schématisé sur la figure 4.4. On observe donc deux pics venant de deux chemins quantiques différents : par exemple pour l'harmonique 11, on peut absorber 11 photons du faisceau principal et créer le pic habituel, ou bien absorber 10 photons du principal et 1 de la perturbation. La conservation des moments nous donne la position de ce nouveau pic, qui est diffracté dans la dimension verticale. Comme sa position dépend de la longueur d'onde de l'harmonique mais pas de l'ordre de diffraction du réseau, la distance entre pic principal et diffracté permet d'identifier les différents ordres de diffraction du réseau de diffraction. Notons qu'en pratique, on a des chemins quantiques d'ordre supérieur, ce qui amène à la génération de pics supplémentaires, éventuellement diffractés de l'autre côté du pic principal.

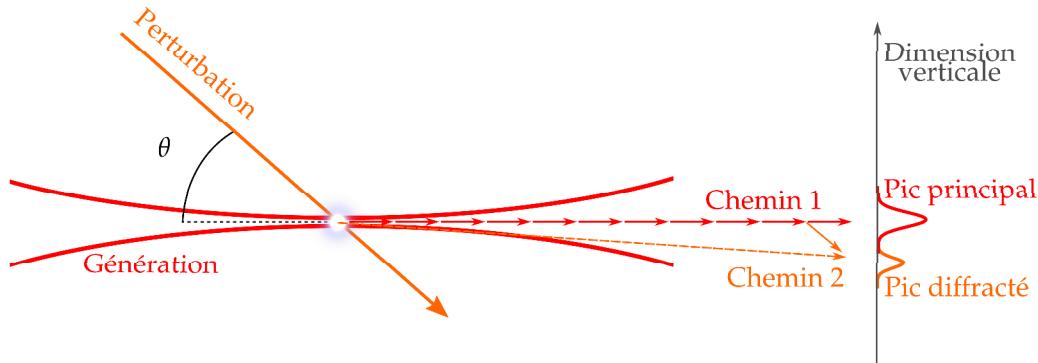


FIGURE 4.4 – Schéma de l'expérience de calibration à deux faisceau pour l'harmonique 11. Le faisceau principal (rouge) est plus intense que le faisceau de perturbation (orange). Ainsi, on a un pic central dominant dans lequel on a absorbé 11 photons de la génération, et un pic diffracté où on a absorbé un photon de la perturbation. La conservation des moments donne directement la direction d'émission de l'harmonique diffractée.

Le réseau de diffraction est monté sur une rotation motorisée de sorte à pouvoir balayer l'angle de réflexion. La figure 4.5 montre les profils obtenus pour différents angles du réseau. On distingue clairement un ou plusieurs ordres de diffraction à côté d'un pic principal. Il reste à mesurer la distance entre les deux pics et à les tracer pour chacune des harmoniques, comme fait en bas de la figure 4.5. On no-

terra que l'axe horizontal n'est pas l'angle de réflexion de chaque harmonique, les harmoniques n'ayant pas été imagées une par une. La mesure n'est pas extrêmement précise du fait des inhomogénéités des profils mais on trouve quand même 6 uniques valeurs d'écart entre les pics, à ± 2 pixel près. On détecte donc 6 harmoniques différentes. Ces valeurs reviennent 2 à 3 fois, ce qui signifie que l'on mesure jusqu'à l'ordre 3 du réseau de diffraction. La distance entre les pics diminue avec l'ordre harmonique, ce qu'on retrouverait en traçant l'image photonique de la figure 4.4 pour chaque harmonique.

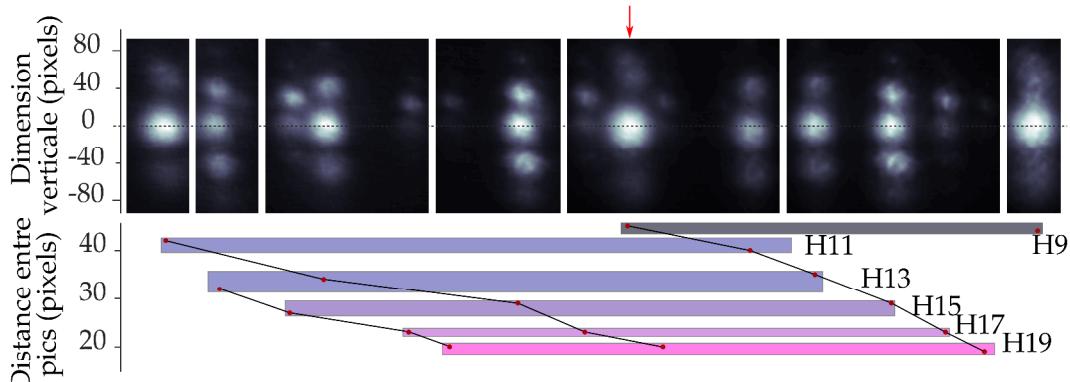


FIGURE 4.5 – Calibration du spectromètre. Un second faisceau infrarouge vient perturber la génération et créer un pic satellite, dont la position dépend de la longueur d'onde. En haut, profil spatial des harmoniques détectées pour différents angles du réseau. En bas, les points rouges représentent la distance entre les deux pics pour les harmoniques correspondantes. À ± 2 pixel près, on retrouve 6 valeurs qui permettent d'identifier 6 harmoniques (rectangles colorés). Les traits noirs relient les ordres de diffraction du réseau. L'identification des ordres harmoniques est expliquée plus bas.

Il reste à identifier quelles sont les 6 harmoniques observées. Pour ce faire, on utilise la formule des réseaux :

$$\sin(\theta_r^q) + \sin(\theta_i) = \frac{m\lambda_q}{d},$$

où θ_r^q et θ_i sont les angles de réflexion et d'incidence, m est l'ordre de diffraction et d est le pas du réseau. La valeur de d donnée par le fournisseur est $1/600 \simeq 1.67 \mu\text{m}$. La figure 4.6 trace l'évolution de θ_r^q pour les harmoniques 9 à 19 (celles plus élevées sont absorbées par le B_4C , voir figure 4.2) pour des valeurs de d autour de $1.67 \mu\text{m}$. Les deux premiers ordres de diffraction sont représentés. On cherche une harmonique singulière qui pourrait être identifiée dans l'expérience. On remarque que l'harmonique 9 de l'ordre 1 est située entre les harmoniques 17 et 19 de l'ordre 2. C'est le seul recouvrement entre les deux premiers ordres de diffraction. L'harmonique 9 est donc facilement identifiable sur la figure 4.5, où elle est pointée par une flèche rouge.

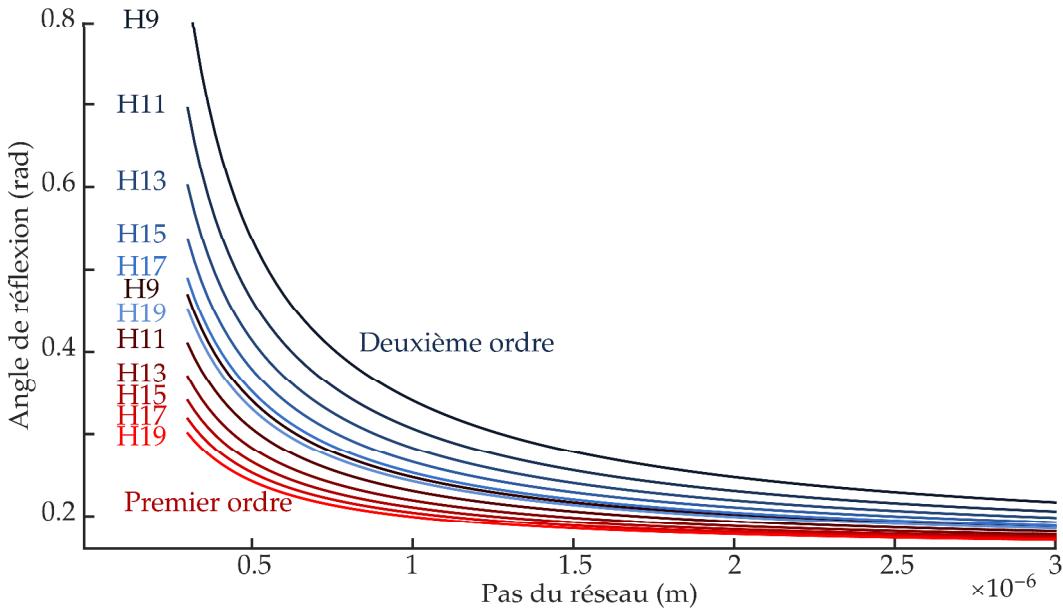


FIGURE 4.6 – Angle de réflexion des harmoniques 9 à 19 en fonction du pas du réseau de diffraction. Les ordres de diffraction 1 et 2 sont représentés.

4.2.3 Résultats

Le spectre étant maintenant calibré, on procède à des mesures de spectres harmoniques. Comme dans les calculs numériques, on varie z_0 pour changer le poids relatif des trajectoires quantiques. La figure 4.7 présente l'évolution du profil des cinq premières harmoniques lorsqu'on balaye z_0 sur 1.2 cm. Notons que la définition de $z_0 = 0$ est ici presque arbitraire : il est très difficile de connaître expérimentalement la véritable valeur de z_0 , on ne peut donc que définir $z_0 = 0$ pour reproduire la simulation (figure 4.1).

On observe des séries d'anneaux très symétriques et assez homogènes, signe que l'on observe bien le profil "spatial-spatial" des harmoniques, et non pas une convolution spatio-spectrale. Pour $z_0 = -0.2$ cm, on observe un unique anneau, mis à part pour l'harmonique 9 où un second anneau est imbriqué. Ce second anneau est probablement dû à une mauvaise sélection par la fente, qui laisse passer une harmonique diffractée au deuxième ordre par le réseau, le deuxième ordre étant particulièrement proche du premier dans cette région (voir figure 4.5). Pour $z_0 = 0$ cm, on voit apparaître un nouvel anneau au centre de l'image. Les calculs théoriques (figure 4.1) montrent un effet similaire à $z_0 = 0$, que nous avons interprété comme une interférence entre les deux trajectoires quantiques. C'est cette particularité nous a amené à définir $z_0 = 0$ à cet endroit. Ensuite, à mesure que z_0 augmente, on voit apparaître un nombre croissant d'anneaux concentriques plus divergents, en accord la théorie. Ces anneaux sont dues à la trajectoire longue de la GHOE. Ils

suggèrent la génération de modes de LG de mode $p \neq 0$. Nous allons vérifier ce point en cherchant où ces modes peuvent être produits dans la GHOE.

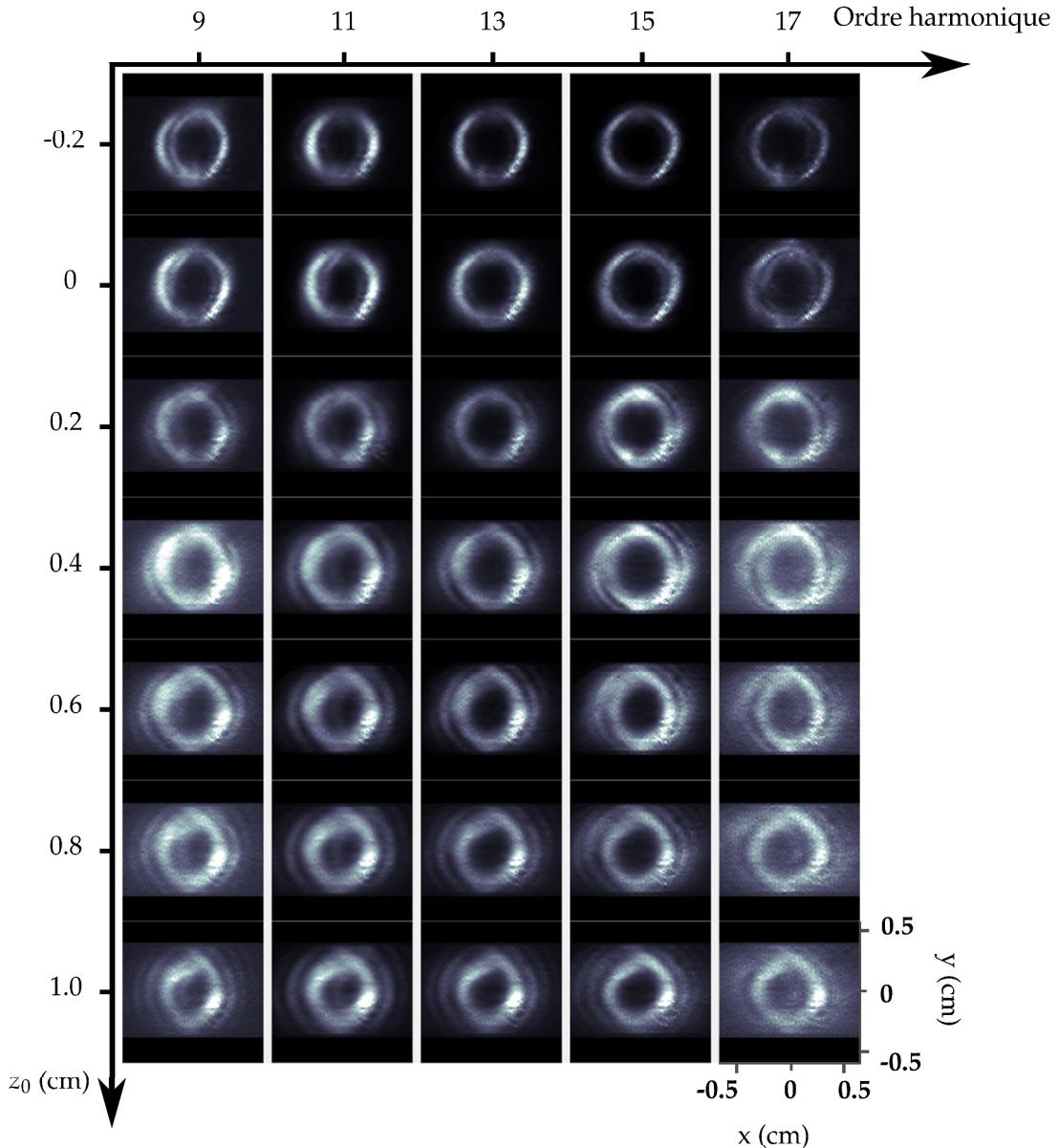


FIGURE 4.7 – Profil d'intensité des harmoniques 9 à 17 (axe horizontal) lorsque la lentille de génération est déplacée sur 1.2 cm (axe vertical). Chaque harmonique est normalisé à 1.

4.3 Interprétation des résultats : le rôle de l'indice radial des modes de Laguerre-Gauss

Rappelons l'expression du champ d'un mode de Laguerre-Gauss d'incice (ℓ,p) :

$$E_{\ell,p}(r,\theta,z) = \frac{C_{\ell,p}}{w(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{|\ell|} \exp \left(-\frac{r^2}{w^2(z)} \right) L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) \times \exp(i\ell\theta) \exp \left(-ik\frac{r^2}{2R(z)} \right) \exp(-ikz) \exp(i(2p + |\ell| + 1)\chi(z)), \quad (4.1)$$

4.3.1 Sens physique de l'indice radial

Comme mentionné plus haut, le profil obtenu quand la trajectoire longue domine ressemble à un mode de Laguerre-Gauss de $p \neq 0$. Il est a priori impossible de connaître le contenu modal exact à partir d'une mesure d'intensité : le mode peut être une superposition d'un grand nombre de modes de p différents, ayant chacun une phase et une amplitude inconnues. On peut toutefois chercher d'où ces modes p proviennent dans l'expérience réalisée.

N'étant pas relié à la grandeur physique du MAO, le sujet de l'indice radial des modes de Laguerre-Gauss a longtemps été délaissé. En général, la présence de modes $p \neq 0$ est indésirable et considérée comme du bruit dans la génération d'un mode $(\ell,p=0)$ pur. C'est seulement assez récemment que des équipes se sont intéressées à ce paramètre, le nommant par exemple *the forgotten quantum number* [Plick et Krenn, 2015]. [Karimi et al., 2014b] ont réalisés des interférences de Hong-Ou-Mandel, montrant que p était un nombre quantique valable. L'indice p a été utilisé par [Salakhutdinov et al., 2012] et [Krenn et al., 2014] pour produire des états intriqués de dimensions impressionnantes, et ses propriétés physiques sont étudiées en détail dans [Plick et Krenn, 2015] et [Karimi et al., 2014a]. Enfin, [Mendoza-Hernández et al., 2015] ont montré que les modes de p élevés avaient des propriétés d'auto-régénération similaires à celles d'un faisceau de Bessel. L'auto-régénération signifie que si même si une partie du faisceau est obstruée, le mode se reconstitue au cours de sa propagation, propriété très intéressante pour le transmission d'information.

Il est donc intéressant de chercher à produire et à contrôler les modes p dans l'extrême ultra-violet, au lieu de les voir comme un effet parasite. Pour créer des modes $p \neq 0$, on pourrait modifier directement le mode infrarouge. Cependant, dû à la forte non-linéarité de la GHOE, il est probable que les anneaux extérieurs ne contribuent pas à la génération. Une autre approche est de chercher dans le processus

de GHOE lui-même, une variable permettant d'augmenter le mode radial. Comme dit plus haut, p est un nombre quantique, valeur propre d'un opérateur qui vérifie $\hat{N}|\mathcal{LG}_{(\ell,p)}(r,\theta,z)\rangle = p|\mathcal{LG}_{(\ell,p)}(r,\theta,z)\rangle$. L'expression de cet opérateur est donnée par [Plick et Krenn, 2015] et [Karimi et Santamato, 2012]. On sait que le moment linéaire est relié à la translation, le moment angulaire à la rotation, et ces travaux démontrent que p est lui relié à la *dilatation* selon la coordonnée radiale. Tout effet créant une forme de dilatation radiale du faisceau modifiera donc le contenu en mode p du champ.

Nous avons déjà vu qu'au foyer le faisceau infrarouge est bien décrit par un mode $\mathcal{LG}_{(\ell,p=0)}$ (voir section 1.1.2). Dans la GHOE, on identifie deux effets menant à une modification radiale du champ :

- (i) La non-linéarité de la GHOE : si un processus a une non-linéarité d'ordre n , alors le champ obtenu sera $E_{out} = E_{in}^n$. Un profil Laguerre-Gaussien sera donc modifié en profil plus piqué autour de ses maxima.
- (ii) La phase du moment dipolaire atomique : dans le modèle à trois étapes, l'électron acquiert une phase au cours de sa propagation qui dépend de l'intensité infrarouge locale. Le rayonnement émis présente donc une phase non uniforme spatialement. Dans le plateau, cette phase est approximativement linéaire avec l'intensité [Salieres et al., 1995]. Elle s'écrit $\phi^{at}(r,\theta) = \alpha_{traj} I_{IR}(r,\theta)$, où α_{traj} est un coefficient de proportionnalité dépendant de la trajectoire quantique en question. Ici, $I_{IR}(r,\theta)$ est un mode de Laguerre-Gauss. Cette phase spatiale peut donc modifier le mode et créer une forme de dilatation.

Nous allons étudier ces deux effets en effectuant des simulations numériques.

4.3.2 Étude du contenu modal du champ par un modèle simple de la GHOE

Pour étudier ces effets, une description simple du processus est suffisante. On ne prendra pas en compte les effets liés à la propagation du champ ni les effets de dispersion et de déplétion dans le milieu. On considère donc un plan d'atomes infiniment fin placé en $z = 0$. On se place dans les conditions expérimentales pour calculer la propagation du champ infrarouge jusqu'au foyer, et on obtient le champ déjà présenté en figure 1.9. On utilise ensuite la formule ADK [Ammosov et al., 1986] et le modèle SFA [Lewenstein et al., 1994] pour calculer le dipôle harmonique qui donne directement le champ émis. Les deux effets mentionnés plus haut sont alors simples à identifier : la non-linéarité est contrôlée par l'intensité du champ infrarouge, tandis que la phase atomique varie à la fois avec l'intensité et avec la valeur de α_{traj} , qui dépend de la trajectoire considérée.

Trajectoire courte Commençons par sélectionner uniquement la trajectoire courte de la GHOE, ce qui est réalisé expérimentalement en choisissant la position du foyer en amont du jet. Pour cette trajectoire, α_{courte} est de l'ordre de $-1 \times 10^{-14} \text{ cm/W}$. Pour des intensités crêtes de l'ordre $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, on aura un déphasage de l'ordre du radian entre le centre et le bord de l'anneau. C'est une courbure relativement faible. La figure 4.8 (a) présente le champ harmonique obtenu en $z = 0$ pour l'harmonique 19.

On voit bien l'effet de ϕ^{at} sur la phase spatiale, avec une légère courbure le long de l'anneau. On effectue ensuite une décomposition en modes de Laguerre-Gauss de ce champ, grâce à la formule 1.1, en choisissant $w_0 = r_{max} \sqrt{2/|\ell_q|}$ (équation ??). Les résultats sont présentés sur le panneau (b) de la figure 4.8. Le champ est composé à 98,9% du mode $(\ell, p) = (0, 0)$. De manière surprenante, ce mode est encore plus pur que le champ infrarouge utilisé pour le générer. C'est un effet de la non-linéarité du processus, qui ne fait contribuer que les parties les plus intenses du faisceau infrarouge et gomme les reliquats dus au vignetage et aux imperfections de la lame de phase. En conclusion, on voit que l'effet (i) et l'effet (ii) avec une valeur faible de α_{traj} ne perturbent aucunement le contenu du mode et ne sont pas responsables des anneaux observés en champ lointain. On peut illustrer ce point en propageant numériquement ce champ jusqu'au détecteur, ce qui est montré sur la figure 4.8 (c). On observe bien un anneau unique.

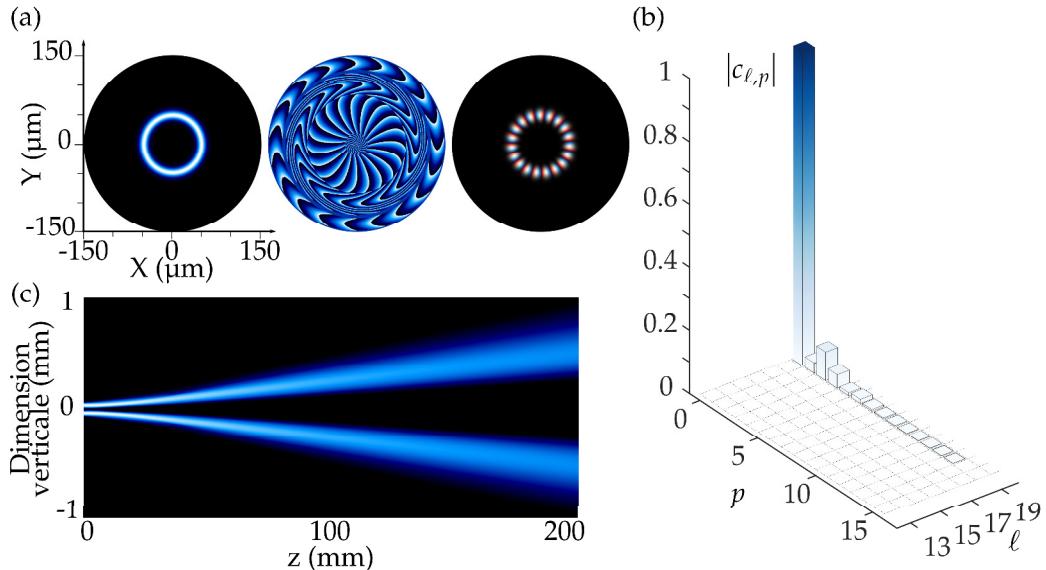


FIGURE 4.8 – Profil de l'harmonique 19 généré par la trajectoire courte. (a) Champ au foyer. De gauche à droite, intensité spatiale, phase spatiale, et représentation mixte où la couleur donne la phase et la luminosité l'intensité. (b) Module des coefficients de la décomposition du champ sur la base de Laguerre-Gauss. Les coefficients de module inférieur à 1×10^{-4} sont ignorés. (c) Intensité en fonction de z obtenue par propagation du champ présenté en (a).

Trajectoire longue Effectuons maintenant le même calcul dans le cas de la trajectoire longue. La figure 4.9 présente les résultats obtenus. Dans ce cas, $\alpha_{longue} \approx -20 \times 10^{-14} \text{ cm/W}$, valeur 20 fois plus élevée que pour la trajectoire courte. Comme on le voit sur la phase spatiale, la courbure de phase est ici beaucoup plus importante. Quand on effectue la décomposition sur la base de Laguerre-Gauss, on obtient une superposition d'un assez grand nombre de modes ayant $\ell_{19} = 19$ et p allant de 0 à ≈ 30 . Le mode $(0,0)$ domine toujours, mais ne compte que pour 52% de l'émission¹.

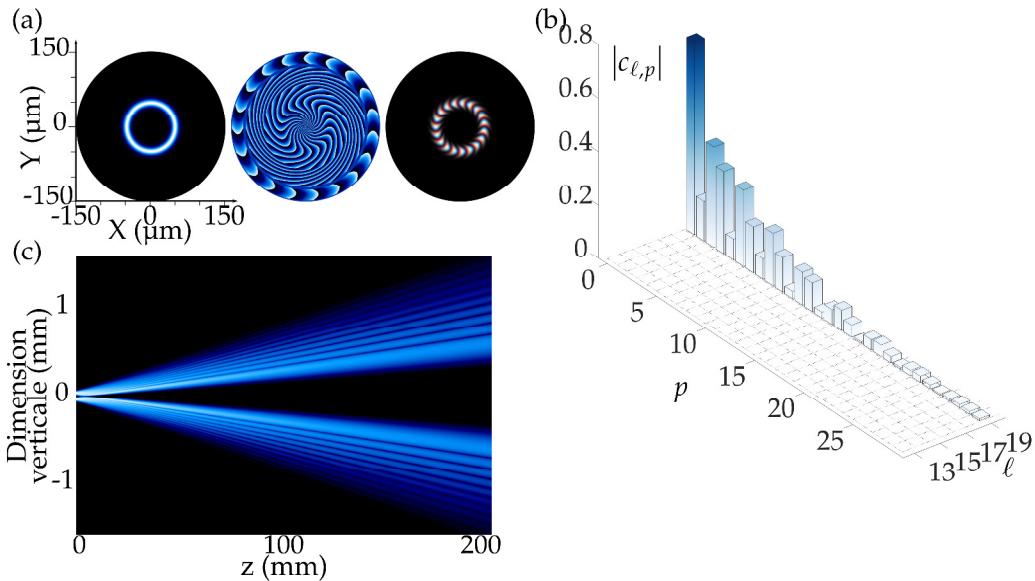


FIGURE 4.9 – Profil de l'harmonique 19 généré par la trajectoire longue. (a) Champ au foyer. De gauche à droite, intensité spatiale, phase spatiale, et représentation mixte où la couleur donne la phase et la luminosité l'intensité. (b) Module des coefficients de la décomposition du champ sur la base de Laguerre-Gauss. Les coefficients de module inférieur à 1×10^{-4} sont ignorés. (c) Intensité en fonction de z obtenue par propagation du champ présenté en (a).

Comme le montre le calcul de propagation, en champ lointain ces modes interfèrent et créent une série d'anneaux concentriques similaires à ceux observés expérimentalement. Au foyer, les coefficients des différents modes sont tels que l'intensité ne présente qu'un seul anneau. Puisqu'on a des modes, les coefficients de la décomposition ne changent pas au cours de la propagation, mais l'intensité est modifiée. Cela signifie que la phase relative entre les différents modes de Laguerre-Gauss évolue au cours de la propagation. En regardant l'expression des modes de Laguerre-Gauss (équation ??), on voit que le seul terme responsable est la phase de Gouy, qui s'écrit :

$$\psi_{\ell,p}(z) = (2p + |\ell| + 1) \arctan \frac{z}{z_R}.$$

1. La figure 4.9 (b) donne les coefficients $|c_{\ell,p}|$. La normalisation du champ s'écrit $\sum_{\ell,p} |c_{\ell,p}|^2 = 1$, c'est donc $|c_{\ell,p}|^2$ qui donne la contribution du mode (ℓ,p) en pourcentage.

4.3.2 Étude du contenu modal du champ par un modèle simple de la GHOE

Pour $z \gg z_R$, le mode (ℓ, p) a donc acquis une phase $(2p + |\ell| + 1)\frac{\pi}{2}$, soit une différence de π avec les modes $p - 1$ et $p + 1$.

En conclusion, nous avons relié la présence de modes p dans la GHOE à la phase $\phi^{at} = \alpha_{traj} I_{IR}$. Cette phase dépend à la fois de la trajectoire considérée et de l'intensité infrarouge. L'intensité fournit donc un paramètre d'ajustement supplémentaire. La figure 4.10 présente l'évolution du contenu modal pour chaque trajectoire, lorsque l'intensité infrarouge varie entre 1 et $2.4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

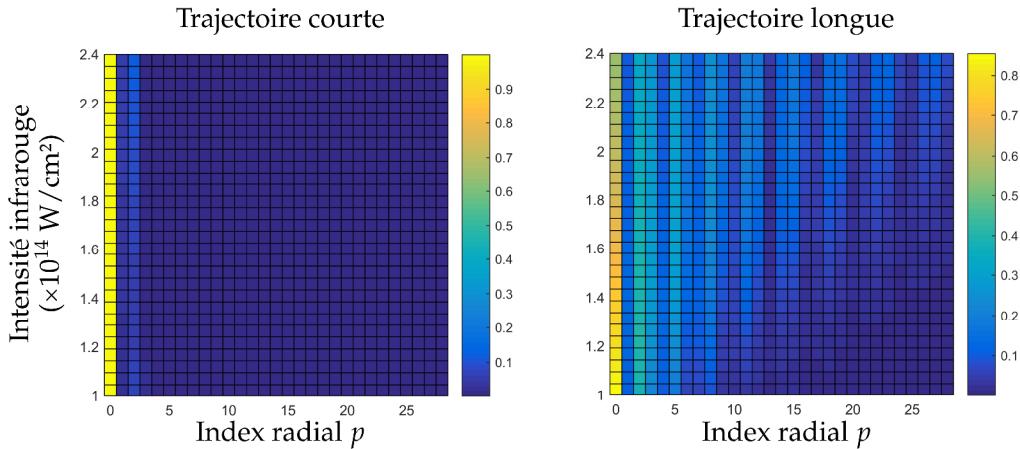


FIGURE 4.10 – Évolution du contenu modal avec l'intensité infrarouge pour les deux premières trajectoires quantiques.

Pour la trajectoire courte, l'intensité n'a aucune influence sur le contenu modal, à cause de la faible valeur de α_{traj} . Au contraire, le nombre de modes constituant le champ émis par la trajectoire longue passe de $\simeq 8$ à plus de 30 sur cette gamme d'intensité.