

TABLE DES MATIÈRES

Introduction	1
I. La génération d’harmoniques d’ordre élevé : bases théoriques et expérimentales	3
1 Théorie de la génération d’harmoniques d’ordre élevé	5
1.1 Modèle à 3 étapes	5
1.1.1 Ionisation tunnel	5
1.1.2 Propagation dans le continuum et recombinaison radiative	7
1.2 Description quantique de la GHOE : le modèle de Lewenstein	9
1.3 Phases spatiale et spectrale des trajectoires quantiques	10
1.3.1 Phase spectrale des harmoniques d’ordre élevé	11
1.3.2 Phase spatiale des trajectoires quantiques	12
1.3.3 Accord de phase	13
2 Aspects expérimentaux de la génération d’harmoniques d’ordre élevé	15
2.1 Système laser	15
2.2 Génération d’harmoniques d’ordre élevé	15
II. Le moment angulaire de la lumière	21
3 Le moment angulaire en physique classique	23
3.1 Mécanique Lagrangienne	24
3.1.1 L’équation de Lagrange	24
3.1.2 Symétries du Lagrangien et lois de conservation	25
3.2 Les propriétés mécaniques de la lumière	28
3.2.1 L’énergie du champ électromagnétique	28
3.2.2 La quantité de mouvement de la lumière	29
3.2.3 Le moment angulaire de la lumière	30
4 L’équation d’onde et les modes du champ	33
4.1 Ondes planes et polarisation	33
4.1.1 L’équation d’Helmholtz	33
4.1.2 La polarisation des ondes planes	34
4.1.3 Moment angulaire d’une onde plane circulaire	34
4.2 L’approximation paraxiale	35
4.3 Les modes de Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss	37
4.3.1 Modes de Hermite-Gauss	37
4.3.2 Modes de Laguerre-Gauss	39
4.3.3 Moment angulaire d’un faisceau de Laguerre-Gauss	42
5 Le moment angulaire en mécanique quantique	45
5.1 Symétries et lois de conservation	45
5.1.1 Définition d’une symétrie	45
5.1.2 Relation entre symétrie et loi de conservation	47
5.1.3 La parité et l’opérateur inversion	47
5.1.4 Le moment angulaire et l’opérateur rotation	48
5.2 L’opérateur moment angulaire	49
5.3 Moment angulaire de spin et moment angulaire orbital	51
6 Séparation entre moment orbital et moment de spin de la lumière	53

6.1	Moments intrinsèque et extrinsèque d'un champ classique	53
6.2	Le moment angulaire du photon	55
6.2.1	Exemple de quantification : ensemble d'oscillateurs harmoniques matériels	55
6.2.2	La quantification du champ électromagnétique	56
6.2.3	Opérateurs de moment angulaire	58
7	Modes du champ portant du moment angulaire	61
7.1	États propres de moment angulaire	61
7.2	Moment angulaire de spin et polarisation de la lumière	62
7.3	Moment angulaire orbital et modes de Laguerre-Gauss	63
8	Règles de sélection du moment angulaire dans la photoionisation	65
8.1	Transitions multipolaires	65
8.2	Règles de sélection	66
8.3	Rôle du moment angulaire orbital dans une transition multipolaire	67
 III. Le moment angulaire orbital dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé		71
9	Profils spatiaux d'harmoniques d'ordre élevé obtenues à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss	75
9.1	Génération de modes de Laguerre-Gauss dans le visible	75
9.1.1	Techniques de génération de modes de LG	75
9.1.2	Résultats expérimentaux sur la création de modes de Laguerre-Gauss dans l'infrarouge	79
9.2	Génération d'harmoniques d'ordre élevé d'un faisceau de Laguerre-Gauss	83
9.2.1	Dispositif expérimental	83
9.2.2	Résultats	86
10	Analyse des résultats	89
10.1	Limites des méthodes interférométriques de caractérisation du MAO dans l'XUV	89
10.2	La conservation du moment angulaire orbital : simulations numériques et calculs analytiques	90
10.2.1	Simulations numériques de la propagation de modes de Laguerre-Gauss	91
10.2.2	Calculs analytiques : la conservation du MAO	96
10.3	Modèle quantique : une simulation complète de l'expérience réalisée	97
11	Le profil spatio-temporel des impulsions générées : les <i>light springs</i>	101
11.1	Mesure de la phase spectrale de l'impulsion à partir de la technique RABBIT	101
11.2	Reconstruction du profil spatio-temporel de l'émission	105
12	Contrôle du nombre quantique radial par la sélection de trajectoires quantiques	107
12.1	Rôle de la phase atomique dans la génération de modes de nombre radial non nul	107
12.2	Observation de modes de nombre quantique radial élevé	107
12.2.1	Modification du dispositif expérimental	107
12.2.2	Calibration du spectromètre	110
12.2.3	Résultats	112
12.3	Interprétation des résultats : le rôle de l'indice radial des modes de Laguerre-Gauss	114
12.3.1	Sens physique de l'indice radial	114
12.3.2	Étude du contenu modal du champ par un modèle simple de la GHOE	115

IV. Polarisation circulaire, molécules chirales et harmoniques d'ordre élevé	121
13 Génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisées elliptiquement	123
13.1 Formalisme pour la description d'ondes polarisées elliptiquement	123
13.2 GHOE à partir d'un faisceau infrarouge polarisé elliptiquement	126
13.2.1 Résultats de la littérature	126
13.2.2 Description théorique de la GHOE en polarisation elliptique	128
13.3 Méthodes existantes de génération d'harmoniques elliptiques	130
13.3.1 Réflexion sur des surfaces métalliques	131
13.3.2 Génération dans des molécules alignées	131
13.3.3 Manipulation de la trajectoire électronique par un champ bicolore	132
13.4 Une image photonique de la GHOE en polarisation elliptique	133
14 Harmoniques elliptiques produites par GHOE résonante	137
14.1 Génération résonante dans l'argon : cas des résonances sous le seuil	138
14.1.1 Mécanismes résonants autour du seuil	138
14.1.2 Ellipticité du rayonnement près du seuil de l'argon	140
14.2 Génération autour d'une résonance dans le continuum	143
14.3 Application à la molécule de SF ₆	146
15 Polarisation circulaire et chiralité	149
15.1 Définitions de la chiralité	149
15.1.1 Molécules chirales	149
15.1.2 La chiralité de la lumière	150
15.2 Dichroïsme circulaire d'absorption	151
15.3 Dichroïsme circulaire de photoélectron (PECD)	154
16 Mesures de PECD avec une source d'harmoniques d'ordre élevé	157
16.1 Dispositif expérimental	157
16.2 Résultats dans la fenchone	159
17 Le PECD comme outil de caractérisation du rayonnement	165
17.1 Le PECD en polarisation elliptique	165
17.2 Mesures de référence sur synchrotron	168
17.2.1 La ligne DESIRS au synchrotron SOLEIL	168
17.2.2 Comparaison entre PECD en polarisation elliptique ou circulaire	169
17.2.3 Mesures de b_1 aux énergies harmoniques	171
17.3 Comparaison entre mesures synchrotron et harmoniques	172
Conclusions et Perspectives	179
Bibliographie	181