

NNT : XXXXXXXX

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

Ecole doctorale n°572 : Ondes et matières
Spécialité : Lasers, molécules, rayonnement atmosphérique

**LE MOMENT ANGULAIRE DE LA LUMIÈRE EN
GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ**

par

M. ROMAIN GÉNEAUX

Thèse présentée et soutenue à XXXX, le XX mois 201X

Composition du Jury :

Mme.	XXXX XXXX	Professeure, Université Paris-Sud
M.	XXXX XXXX	Directeur de recherche, Laboratoire de XXX
M.	XXXX XXXX	Maître de conférence, Université XXX

Président(e) du jury
Rapporteur
Rapporteur

TABLE DES MATIÈRES

Introduction	1
I. La génération d'harmoniques d'ordre élevé : bases théoriques et expérimentales	7
1 Théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé	9
1.1 Modèle à 3 étapes	9
1.1.1 Ionisation tunnel	9
1.1.2 Propagation dans le continuum et recombinaison radiative	11
1.2 Description quantique de la GHOE : le modèle de Lewenstein	13
1.3 Phases spatiale et spectrale des trajectoires quantiques	14
1.3.1 Phase spectrale des harmoniques d'ordre élevé	15
1.3.2 Phase spatiale des trajectoires quantiques	16
1.3.3 Accord de phase	17
Conclusions et Perspectives	19
I Perspectives d'utilisation de rayonnement XUV portant du MAO	19
I.1 Génération de moment angulaire orbital arbitraire	20
I.2 Impulsions ultra-courtes couplées spatio-temporellement	21
I.3 Spectroscopies utilisant le moment angulaire orbital XUV	25
II Conclusions et perspectives sur le moment angulaire de spin	27
II.1 GHOE proche du seuil de l'argon : l'effet xFID	27
II.2 Mesures de PECD résolue en temps	28
III Le couplage spin-orbite optique	30
Bibliographie	31

INTRODUCTION

En physique, le moment angulaire est une quantité essentielle car elle est conservée. Bien avant le nom et la formulation qu'on lui connaît aujourd'hui, ce concept a été discuté lors de l'étude de la rotation inertielle d'un corps et du mouvement de révolution des planètes. Par exemple, Platon discute dans *La République* du mouvement d'une toupie et de l'apparente contradiction d'un objet restant en un même point tout en étant en mouvement. Le concept de moment angulaire est suggéré par Isaac Newton dans le *Principia* : "A top, whose parts, by their cohesion, are perpetually drawn aside from rectilinear motions, does not cease its rotation otherwise than it is retarded by the air". Il y discute également du cas des planètes, qui semblent garder un mouvement circulaire sur de très longues durées. En 1744, D. Bernoulli utilisa le terme de *momenti motus rotatorii*, "moment de mouvement de rotation", qui est peut-être la première conception du moment angulaire moderne. La notation vectorielle utilisée aujourd'hui est ensuite définie par [Rankine, 1858] pour un objet matériel.

En 1905, J.H. Poynting mis en évidence que, de même que la matière, la lumière porte de l'énergie et une quantité de mouvement. C'est également lui qui en 1909 réalisa qu'une onde électromagnétique polarisée circulairement porte du moment angulaire selon sa direction de propagation. Il prédit qu'une transformation quelconque de l'état de polarisation, e.g. de linéaire à circulaire, doit s'accompagner d'un échange de moment angulaire entre la matière et la lumière. Cette prédiction surprenante fut observée expérimentalement par [Beth, 1936], qui mesura le couple exercé par la lumière sur une lame de verre biréfringente. Il était alors clair que le moment angulaire d'une onde était contrôlé par sa polarisation, une propriété macroscopique.

Plus tard, [Berestetskii et al., 1982] suggéra que la lumière possède une autre composante de moment angulaire selon sa direction de propagation. En 1992, Les Allen et collaborateurs le mettent en évidence dans certains faisceaux lumineux [Allen et al., 1992]. Cette seconde composante est nommée *moment angulaire orbital* (MAO) et est relié à la structure spatiale transverse de la lumière, tandis la composante reliée à la polarisation est nommée *moment angulaire de spin* (MAS). Les faisceaux lumineux utilisés par [Allen et al., 1992] sont les modes de Laguerre-Gauss (LG), qui présentent une phase transverse hélicoïdale, qui induit une singularité de phase et donc un zéro d'intensité en leur centre. Le concept de singularité de phase était présent avant leur travail : il a été introduit par [Dirac, 1931] avant d'être étudié en optique par [Nye et Berry, 1974]. L'exemple peut-être le plus courant est celui de

tavelure (*speckle* en anglais), qui apparaît lorsqu'un faisceau cohérent est diffusé par un objet irrégulier ou traverse un milieu d'indice de réfraction variant fortement, comme l'atmosphère. Chaque point noir alors observé sur l'intensité du faisceau est en fait une singularité de phase [Nye, 1999]. La contribution majeure de [Allen et al., 1992] est de relier ces singularités de phase à la présence de moment angulaire orbital. De plus, les faisceaux de LG utilisés ici constituent une famille de modes du champ électro-magnétique, paramétrée par deux indices couramment notés (ℓ, p) . Leur profil et leur singularité de phase est donc robuste à la propagation, à la différence des multiples singularités d'une figure de tavelure. Le moment angulaire orbital qu'ils portent est le même en tout point, tout au long de la propagation. Cette propriété s'applique à tout faisceau ayant une phase hélicoïdale, mais les faisceaux de LG sont les plus couramment utilisés de par leur production relativement facile en laboratoire.

La mesure du MAS ou du MAO d'un faisceau macroscopique donne un résultat surprenant : le MAS/MAO par photon est toujours multiple de \hbar . Plus précisément, une onde polarisée circulairement a un MAS de $\pm \hbar$ par photon, tandis qu'un mode de LG a un MAO par photon égal à $\ell \hbar$, où ℓ est l'indice azimutal du mode. Il est donc très tentant de penser que ces deux moments angulaires sont des propriétés de chaque unique photon composant le champ, au sens de l'électrodynamique quantique. La séparation du moment angulaire du photon en deux composantes est en fait loin d'être immédiate [Van Enk et Nienhuis, 1994] et fait toujours l'objet de nombreuses discussions [Barnett et al., 2016, Leader et Lorcé, 2014]. La séparation est toutefois possible en se plaçant dans les conditions de l'optique paraxiale, et sa validité est démontrée quotidiennement par les nombreuses utilisations des deux types de moment angulaire.

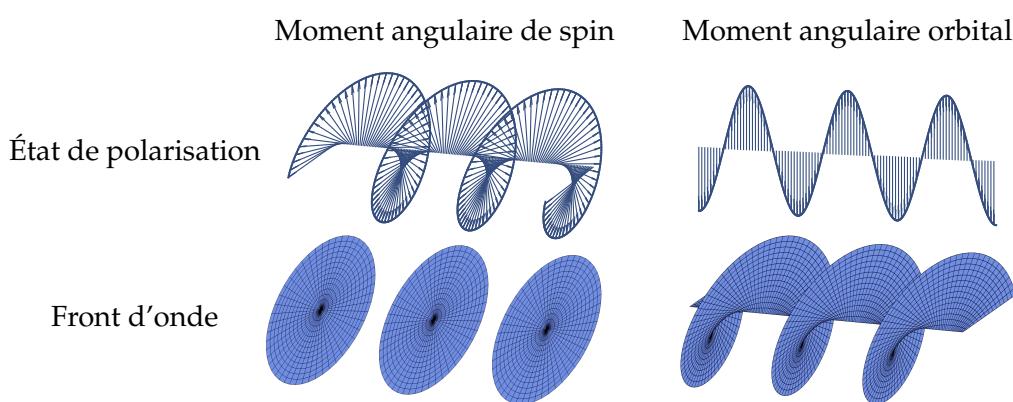


FIGURE 0.1 – La lumière porte deux types de moment angulaire : un moment angulaire de spin, associé à son état de polarisation, et un moment angulaire orbital, associé à un profil de phase transverse hélicoïdal. On représente à droite une onde plane polarisée circulairement et à gauche un faisceau de Laguerre-Gauss polarisé linéairement.

Utilisations du moment angulaire de la lumière

Une des démonstrations les plus convaincante du sens du moment angulaire du photon est donnée par les expériences d'optique quantique. Depuis le début des années 1980, de nombreux états du rayonnement ont été découverts, tels que les états à un photon ou les paires de photons intriqués. La grandeur la plus couramment manipulée dans ces expériences est la polarisation, ou moment angulaire de spin, de photons uniques [Aspect et al., 1982]. En plus de la compréhension de nombreux phénomènes quantiques, la manipulation du MAS a permis l'émergence d'une discipline nouvelle : l'information quantique. Plus récemment, [Mair et al., 2001] démontrent la possibilité d'intriquer des photons grâce à leur moment angulaire orbital, signe que le MAO a un sens au niveau quantique. Ces résultats sont d'importance considérable pour l'information quantique : le MAO donne accès à un nombre infini d'états de ℓ différents, à comparer aux deux états de MAS possibles.

Les propriétés macroscopiques de faisceaux portant du MAO ont également trouvé un grand nombre d'applications. Par exemple, ce moment angulaire peut être transféré à des micro-particules, qui sont alors mises en rotation par la lumière. Ces faisceaux appelés "pinces optiques" ont joué un rôle révolutionnaire dans des domaines allant de la physique atomique, où elles piègent et refroidissent des atomes neutres, à la biologie, où elles manipulent bactéries, chromosomes et virus [Ashkin, 1997]. La singularité et le zéro d'intensité au centre d'un faisceau de LG ont quant à eux permis de développer de nouvelles microscopies sub-longueur d'onde, telles que les techniques de contraste de phase [Fürhapter et al., 2005] ou de déplétion par émission stimulée [Hell et Wichmann, 1994]. Enfin, on note un intérêt pour le MAO de la lumière assez récent en astronomie, où il peut être la signature de trous noirs en rotation [Tamburini et al., 2011].

Quant aux faisceaux portant du MAS, leur signature macroscopique est une polarisation circulaire droite ou gauche. Ces états de polarisations furent mis en évidence par les travaux successifs de Malus, Arago, Biot puis Pasteur. Ils sont historiquement liés au concept de *chiralité* de la matière [Ruchon, 2005]. Dans le cas de molécules chirales, qui existent sous plusieurs formes appelées énantiomères, la lumière polarisée circulairement est une des rares façons de distinguer ces formes entre elles. Les molécules chirales jouant un rôle essentiel en biologie, la lumière circulaire est utilisée en permanence dans les industries alimentaires et pharmaceutiques ainsi qu'en spectroscopie moléculaire. Par exemple, une des expériences les plus communément réalisées est la mesure de dichroïsme circulaire : une onde polarisée circulairement droite ou gauche est absorbée différemment par l'un ou l'autre des énantiomères, ce qui permet de les distinguer.

Vers de plus faibles longueurs d'onde

L'intégralité des références citées jusqu'ici ont un point commun : elles utilisent des faisceaux de longueur d'onde visible ou proche-infrarouge. En général, il s'agit de la lumière fournie par un laser continu ou impulsif si les mesures sont résolues en temps ou si on s'intéresse à des phénomène de champ fort. Pourtant, une très grande partie de ces applications gagneraient à utiliser une longueur d'onde plus faible. Par exemple, en manipulation de particules et en microscopie, elle augmenterait directement la résolution spatiale. En spectroscopie moléculaire, elle permettrait d'accéder au régime d'ionisation à un photon. Un exemple est donné par la spectroscopie de molécules chirales : au début des années 2000, on assista au développement de sources synchrotrons produisant de la lumière polarisée circulairement à de très courtes longueurs d'ondes [Nahon et al., 2001]. Ces avancées permirent d'étudier la photoionisation de molécules chirales par une onde circulaire, mettant en évidence un nouveau phénomène appelé dichroïsme circulaire de photoélectron (PECD) [Garcia et al., 2003]. Ce phénomène présente une sensibilité dépassant celle du dichroïsme circulaire habituel de plusieurs ordres de grandeurs.

Dans cette thèse, nous chercherons à produire un rayonnement de faible longueur d'onde dont le MAS et le MAO sont contrôlés. Comme on l'a mentionné, les sources synchrotrons répondent déjà à une partie du problème, mais présentent l'inconvénient d'être des sources *continues*, empêchant la moindre étude résolue en temps. De plus, ces grands instruments sont souvent coûteux et difficiles d'accès pour le plus grand nombre.

Pour générer des longueurs d'ondes plus faible, il est possible d'utiliser un phénomène *non-linéaire*. Par exemple, on peut générer la seconde harmonique d'un faisceau à 800 nm pour diviser sa longueur d'onde par deux. De manière remarquable, le moment angulaire du fondamental est transféré au faisceau à 400 nm [Courtial et al., 1997]. Suivant cette logique, un candidat de choix pour répondre à nos besoins est la génération d'harmonique d'ordre élevé (GHOE). Il s'agit d'un processus non-linéaire qui permet de produire un grand nombre d'harmoniques du fondamental, qui atteignent rapidement des longueurs d'ondes extrêmement courtes. Le rayonnement émis est de plus prodigieusement court temporellement. Dans ce processus, un laser infrarouge impulsif et énergétique est focalisé dans un jet de gaz atomique ou moléculaire. Si le milieu est centrosymétrique et si l'impulsion présente plusieurs cycles optiques, on assiste à l'émission d'un rayonnement cohérent composé des harmoniques impaires de la fréquence du laser de génération. De manière remarquable, l'intensité de ces harmoniques ne suit pas un comportement perturbatif. Au contraire, leur intensité est quasiment constante sur une large gamme spectrale. Le spectre du rayonnement émis se situe typiquement dans la gamme $\sim 10 - 100$ eV, appelée domaine extrême ultraviolet (XUV). Ce phénomène a été observé pour la première fois par [Ferray et al., 1988] et [McPherson et al., 1987].

Assez rapidement, [Farkas et Tóth, 1992] proposent d'utiliser ce spectre très large pour synthétiser une impulsion très brève. Ces grandeurs sont en effet reliées par la relation d'Heisenberg : plus le spectre est large, plus l'impulsion sera brève. Il a cependant fallu attendre 2003 pour observer ces impulsions ultracourtes, à cause de la difficulté de mesurer la phase spectrale de l'émission. [Mairesse et al., 2003] parvinrent à mesurer cette phase grâce à la technique RABBIT, démontrant la génération d'impulsions de 130×10^{-18} s = 130 attosecondes.

Pour généraliser le principe du transfert de moment angulaire dans la génération de seconde harmonique (SHG) à la GHOE, il reste un sujet à élucider : la conservation du moment angulaire dans ce processus. À la différence de la SHG, la GHOE est un phénomène non-perturbatif, et est de nature physique très différente. Si la conservation de l'énergie ou de la quantité de mouvement y sont observées de façon routinière, celle du MAO et du MAS le sont beaucoup moins. Il nous faudra d'abord étudier l'efficacité du processus, si le laser de génération porte un des deux moments angulaires. Si des harmoniques sont effectivement générées, nous chercherons à caractériser le moment angulaire porté par chacune. Bien sûr, le moment angulaire doit être conservé de manière globale, mais est-il directement transféré au rayonnement XUV, ou bien en partie absorbé par le milieu gazeux de génération ? La GHOE est souvent décrite comme un processus paramétrique où un photon de l'harmonique d'ordre q est issu de l'absorption de q photons du laser de génération. Nous pouvons tester cette représentation : si le moment angulaire suit cette loi, chaque harmonique devrait porter q fois le moment angulaire du fondamental. Une des questions suivantes est celle de l'impulsion attoseconde résultante : si exemple chaque harmonique porte par un moment angulaire orbital, elle a un profil de phase particulier. Quel est alors le profil spatial et la durée de l'impulsion composée de la totalité des harmoniques émises ?

Objectifs

Dans cette thèse, nous étudierons la GHOE à partir d'un laser impulsif infrarouge dont on contrôle le moment angulaire. On cherchera à démontrer la génération de rayonnement XUV ultra-court de MAS ou de MAO bien contrôlés, qui constituerait une source de lumière unique. Dans la première partie, nous introduisons les bases théoriques et expérimentales de la génération d'harmonique d'ordre élevé dans le cas le plus usuel. Nous présentons un modèle assez simple rendant compte d'une grande partie des caractéristiques du rayonnement. Ensuite, nous décrivons la mise en œuvre expérimentale de la GHOE et montrons les résultats typiquement obtenus.

Au chapitre ??, nous définissons de manière approfondie le moment angulaire de la lumière. Nous commençons par une description classique du moment angulaire

d'un objet, puis de la lumière. Nous étudions ensuite l'équation d'onde, ce qui nous permettra d'obtenir la forme de certaines familles de modes du champ, et en particulier celle des modes de Laguerre-Gauss mentionnés plus haut. Nous adoptons ensuite une description quantique, faisant apparaître naturellement la conservation des différentes propriétés de la lumière, ainsi que la séparation entre MAS et MAO. Enfin, nous empruntons le formalisme de l'électrodynamique quantique pour définir ces deux quantités pour un photon. Nous discutons au passage de la séparabilité des deux composantes de moment angulaire. Ce formalisme est finalement utilisé pour trouver des modes du champ ayant un moment angulaire bien défini, puis pour étudier l'interaction entre une onde portant du moment angulaire avec un atome.

Avec ces outils en main, nous étudions la GHOE à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss au chapitre ???. Après avoir expliqué comment contrôler le MAO dans l'infrarouge, nous démontrons la possibilité de générer un rayonnement harmonique. Nous analysons ensuite ses propriétés spatiales, qui à l'aide de calculs analytiques et de simulations numériques nous renseignent sur la conservation du MAO dans le processus. Nous obtenons ainsi le MAO, ℓ , porté par chaque harmonique émise. Enfin, nous réalisons des mesures de phase spectrale, nous permettant d'étudier la structure spatio-temporelle du train d'impulsions attosecondes généré. Pour terminer nous étudions le rôle du second indice des modes de LG, p , et montrons qu'on peut également agir sur sa valeur.

Dans la quatrième et dernière partie, nous nous intéressons à la composante de spin du moment angulaire de la lumière. Nous étudions le comportement de la GHOE si le laser de génération est polarisé circulairement et montrons en particulier que l'efficacité du processus est nulle dans ce cas. Nous répondons à cette difficulté en utilisant une résonance du gaz de génération, ce qui nous permet de générer un rayonnement XUV intense et fortement polarisé. Cela nous permet de réaliser des mesures auparavant réservées aux sources synchrotrons mentionnées plus haut. Nous choisissons d'étudier l'interaction du rayonnement harmonique avec des molécules chirales, et plus précisément de mesurer leur dichroïsme circulaire de photoélectron (PECD). Après avoir présenté les résultats de ces expériences, nous les comparons à ceux obtenus sur une source synchrotron dans des conditions similaires. Pour terminer, nous détaillons comment ce dichroïsme peut également être utilisé, non pas pour caractériser la molécule grâce à la lumière, mais pour mesurer l'état de polarisation de la lumière grâce à la molécule.

Enfin, nous présentons une conclusion générale de ce manuscrit, et développons les perspectives ouvertes par ce travail de thèse. Nous discutons des applications envisagées pour ces impulsions XUV au moment angulaire contrôlé, dont certaines sont déjà à l'étude, et du futur des expériences de PECD présentées ici, notamment de la possibilité de leur ajouter une résolution temporelle femto ou attoseconde.

PREMIÈRE PARTIE

LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ : BASES THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTALES

CHAPITRE 1

THÉORIE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ

La génération d'harmonique d'ordre élevé est un phénomène de champ fort observé pour la première fois en 1987 par [McPherson et al., 1987] et [Ferray et al., 1988]. Il apparaît lorsqu'on envoie un champ laser suffisamment intense sur un gaz d'atomes ou de molécules. Dans le bon régime d'intensité et d'accord de phase, on assiste à la génération des harmoniques de la fréquence du laser de génération. De manière remarquable, ce processus est non-perturbatif : l'intensité de la q -ième harmonique n'évolue pas en I_0^q , où I_0 est l'intensité du laser incident. Nous utiliserons ce phénomène dans l'intégralité de cette thèse. Dans cette partie, nous présentons d'abord la théorie le décrivant, avant d'expliquer comment il est mis en œuvre expérimentalement dans le cas le plus simple.

En 1993, [Schafer et al., 1993] et [Corkum, 1993] proposent un modèle semi-classique simple expliquant le processus de génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE). Il permet une compréhension qualitative du phénomène en plus de donner un accord quantitatif remarquable avec l'expérience.

1.1 Modèle à 3 étapes

Le modèle proposé se décompose en trois étapes. On commence par envoyer un champ laser intense, qui abaisse la barrière de potentiel du gaz cible. Un paquet d'onde électronique (POE) peut alors être émis par *ionisation tunnel*. Ensuite, ce POE est accéléré par le champ laser dans le continuum. Quand le champ laser change de signe, il retourne vers son atome parent. Enfin, lorsque le POE passe à proximité de l'atome, il a une certaine probabilité de recomburer sur l'état fondamental. L'énergie acquise lors de la propagation dans le continuum est alors restituée sous forme de photon, qui comme on le verra a une énergie dans l'extrême ultra-violet (XUV).

1.1.1 Ionisation tunnel

Considérons un atome isolé dans son état fondamental. Un électron dans cet état est soumis au potentiel coulombien du noyau, de la forme $V_0 = -1/r$ (figure 1.1.a). L'énergie du niveau fondamental est égale à l'opposée du potentiel d'ionisation de l'atome considéré, par exemple $-I_p = -15.8$ eV pour l'argon, gaz communément

utilisé en GHOE. On ajoute un champ électrique polarisé linéairement, que l'on note $E(t) = E_x \cos(\omega_0 t) e_x$, où e_x et ω_0 sont respectivement l'axe de polarisation et la fréquence angulaire du champ. Le potentiel ressenti par l'électron devient :

$$V(x,t) = V_0(x) + E(t)x. \quad (1.1)$$

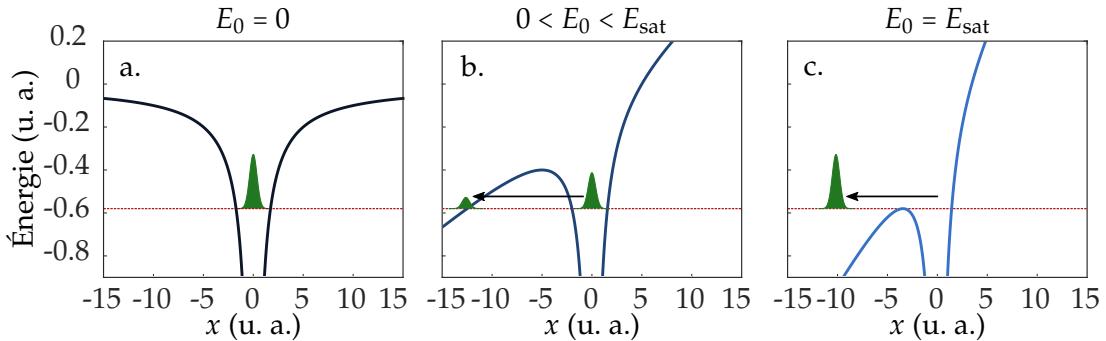


FIGURE 1.1 – Potentiels ressentis par l'électron dans le cas de l'argon ($I_p = 15.8$ eV = 0.58 u.a., représenté par la ligne pointillée). (a) En l'absence de champ électrique, (b) En présence d'un champ $E = 0.04$ u.a., (c) En présence d'un champ $E = E_{\text{sat}} = 0.084$ u.a.

Comme illustré sur la figure 1.1.b, la barrière de potentiel est abaissée d'un côté. Si le champ est assez fort, une partie du POE peut la traverser par effet tunnel, selon une probabilité qui dépend de la hauteur et de l'épaisseur de la barrière. Dans le cas extrême, la barrière peut être totalement supprimée (figure 1.1c) et la probabilité d'ionisation est égale à 1. Ce cas est réalisé pour une intensité que l'on note I_{sat} . Considérons que le champ soit maximum à l'instant considéré : $E = E_0 > 0$. La barrière est donc abaissée pour $x < 0$. À l'intensité de saturation, le maximum de la barrière de potentiel est égal à $-I_p$, obtenu en x_0 tel que $V'(x_0) = 0$, c'est-à-dire $x_0 = -1/\sqrt{E_0}$. On a alors $-I_p = -2\sqrt{E_0}$, soit $I_{\text{sat}} = I_p^4/16$. Dans des unités plus habituelles, on a $I_{\text{sat}}(\text{W/cm}^2) = 4 \times 10^9 I_p(\text{eV})^4$. Le tableau 1.1, tiré de [Gruson, 2015], donne les valeurs obtenues pour les gaz rares, couramment utilisés en GHOE.

Gaz	$I_p(\text{eV})$	$I_{\text{sat}} (10^{14} \text{ W/cm}^2)$
He	24.58	14.62
Ne	21.56	8.65
Ar	15.76	2.47
Kr	14.00	1.54
Xe	12.13	0.87

TABLE 1.1 – Potentiel d'ionisation et éclairement de saturation de différents gaz rares. Tiré de [Gruson, 2015].

Pour que l'ionisation tunnel ait lieu, il faut que l'intensité utilisée soit plus faible que l'intensité de saturation, de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 . De plus, la barrière tunnel doit

être abaissée pendant une durée suffisante. Cette durée est caractérisée par le paramètre de Keldysh [Keldysh, 1964], défini par $\gamma = \sqrt{I_p/U_p}$, où $U_p = I_0 e^2 / 2\omega_0^2 \epsilon_0 mc$ est l'énergie pondéromotrice du champ. Pour que l'ionisation tunnel domine, γ doit être très petit devant 1. L'application numérique pour un laser ayant une longueur d'onde de 800 nm montre que l'intensité nécessaire est de l'ordre de 10^{13} W/cm^2 . La gamme d'intensité où la GHOE est possible est donc assez réduite. Pour atteindre ce régime d'intensité, on utilisera des lasers de haute énergie délivrant des impulsions courtes temporellement, de l'ordre de $10^{-15} \text{ s} = 1 \text{ fs}$.

1.1.2 Propagation dans le continuum et recombinaison radiative

On considère ensuite le paquet d'onde électronique sorti du puits de potentiel coulombien. On suppose alors que sa dynamique n'est gouvernée que par le champ laser, suffisamment fort pour négliger les effets à longue portée du potentiel atomique. Le champ étant assez fort, on peut utiliser une description classique de la dynamique du POE. La seule force agissant sur l'électron est la force de Lorentz, on a donc :

$$m\ddot{x} = -eE_0 \cos(\omega_0 t). \quad (1.2)$$

Pour les conditions initiales, on note t_i l'instant où le POE est ionisé, et on suppose $x(t_i) = 0$ et $\dot{x}(t_i) = 0$, c'est-à-dire que l'on néglige le mouvement à travers la barrière tunnel et que l'on suppose qu'il perd toute son énergie cinétique en la traversant. On intègre 1.2 pour obtenir :

$$\dot{x} = -\frac{eE_0}{m\omega_0} [\sin(w_0 t) - \sin(w_0 t_i)] \quad (1.3)$$

$$x = \frac{eE_0}{m\omega_0^2} [\cos(w_0 t) - \cos(w_0 t_i)] + \frac{eE_0}{m\omega_0} \sin(w_0 t_i)(t - t_i) \quad (1.4)$$

L'électron oscille donc dans le champ selon la direction e_x et retourne périodiquement en $x = 0$, c'est-à-dire sur son atome parent. Au voisinage de l'atome, l'électron peut recombiner et émettre un photon. En notant E_c l'énergie acquise par l'électron dans le continuum, la conservation de l'énergie à l'instant de recombinaison s'écrit :

$$\hbar\omega = I_p + E_c \quad (1.5)$$

où ω est la fréquence angulaire du photon émis. L'équation 1.4 suggère que des photons peuvent être émis à chaque oscillation de l'électron autour de son atome. Toutefois, si la dynamique du POE dans la direction x est bien décrite classiquement, elle l'est beaucoup moins dans la direction transverse à sa trajectoire. En pratique, le POE s'étale dans la dimension transverse au cours de sa propagation. La probabilité de recombinaison en $x = 0$ diminue donc à chaque période, à tel point que seul le premier retour en $x = 0$ est significatif. Ainsi, pour une intensité laser et

un instant d'ionisation donnés, on a un unique instant de recombinaison t_r obtenu en résolvant 1.4 pour $x = 0$. On calcule alors l'énergie $E(t_r) = E_c$. Sur la figure 1.2 est tracée E_c en fonction du temps pour une intensité laser de $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

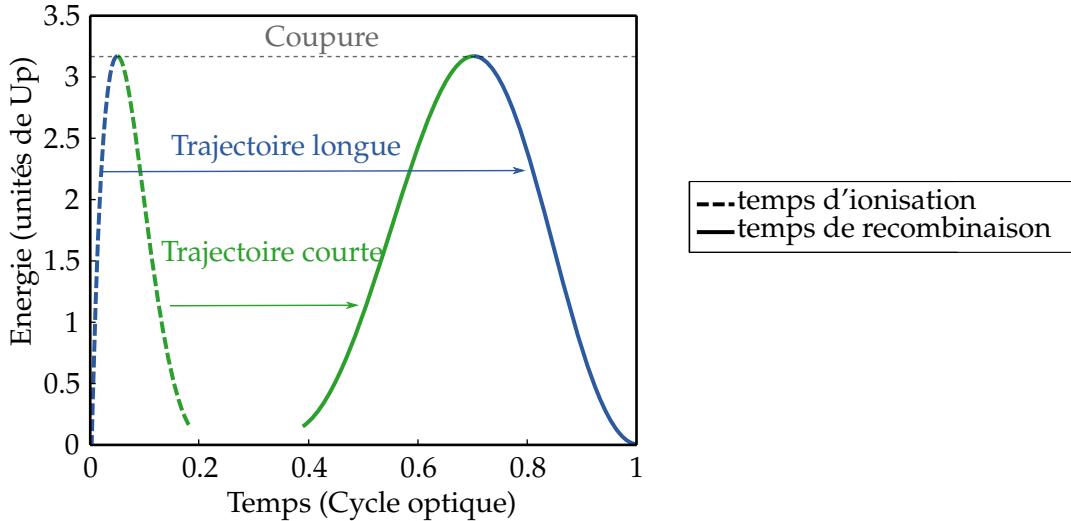


FIGURE 1.2 – Énergie à la recombinaison et instants d'ionisation et de recombinaison dans l'argon pour une intensité de $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Les instants d'ionisations sont en pointillés et les instants de recombinaison sont en traits pleins. La ligne pointillée horizontale indique l'énergie maximale, appelée énergie de coupure.

On observe que l'énergie acquise par l'électron dans le continuum présente un maximum qui vaut $E_c^{\max} = 3.17U_p$. C'est l'énergie maximale qui pourra être convertie en énergie de photon, appelée *énergie de coupure*. Classiquement, on voit qu'elle correspond à la dynamique de l'électron dans le continuum. L'énergie de photon maximale sera donc $\hbar\omega = I_p + 3.17U_p$. De plus, on voit que pour chaque valeur d'énergie on a deux solutions possibles. L'électron peut donc avoir deux trajectoires différentes amenant à la même énergie à la recombinaison. On les appelle trajectoires courtes et longues, de part la longueur d'excursion de l'électron dans le continuum. Pour la trajectoire courte (resp. longue), l'énergie diminue (resp. augmente) avec l'instant d'ionisation. Les deux trajectoires convergent pour devenir indistinguables à l'énergie de coupure.

Le processus décrit ici se produit à chaque fois que le champ électrique est assez fort pour abaisser le potentiel d'un côté ou de l'autre de l'atome, c'est-à-dire à chaque maximum et minimum du champ. Il a donc une périodicité de $T/2$, où $T = 2\pi/\omega_0$ est la période du laser de génération. Cette périodicité temporelle se traduit par une périodicité de $2\omega_0$ dans le domaine fréquentiel. Pour une impulsion de génération assez longue, le spectre du rayonnement émis est donc un peigne d'harmoniques séparées de $2\omega_0$. De plus, le milieu de génération étant centro-symétrique, seules les harmoniques impaires sont émises.

Le modèle présenté ici est semi-classique : l'étape d'ionisation tunnel est décrite

quantiquement, tandis que la propagation de l'électron est considérée classiquement. Il donne une image simple du processus et donne accès à des valeurs importantes telles que l'énergie de coupure et les instants d'ionisation et de recombinaison. Pour en étudier la validité, il est nécessaire de la comparer à une approche plus rigoureuse en effectuant un traitement quantique.

1.2 Description quantique de la GHOE : le modèle de Lewenstein

En 1994, Maciej Lewenstein a développé un traitement complètement quantique de la GHOE [Lewenstein et al., 1994]. Nous décrivons ici succinctement les bases de ce modèle. On considère un seul électron actif soumis au champ électrique $E(t)$. L'équation de Schrödinger s'écrit :

$$i \frac{\partial |\psi(t)\rangle}{\partial t} = \left(-\frac{\nabla_r^2}{2} + V_0(x) + E \cdot x \right) |\psi(t)\rangle. \quad (1.6)$$

On fait alors les approximations suivantes :

- Seul l'état fondamental de l'atome est considéré. Ceci est valable dans le régime d'ionisation tunnel ($\gamma \ll 1$), dans lequel le laser n'induit pas de transfert de population significatif vers les états excités.
- Dans le continuum, l'électron est insensible au potentiel coulombien. C'est l'approximation de champ fort (SFA, *Strong Field Approximation*).
- On néglige la déplétion de l'état fondamental. Ceci est valable si l'intensité laser est inférieure à l'intensité de saturation déterminée plus haut.

Avec ces approximations, on calcule le moment dipolaire $x(t) = \langle \psi(t) | x | \psi(t) \rangle$, qui s'écrit [Lewenstein et al., 1994] :

$$x(t) = -i \int_0^t dt_i \int d\mathbf{p} d_{p+A(t)}^* e^{iS(p,t_i,t)} E(t_i) d_{p+A(t_i)}, \quad (1.7)$$

où p est le moment canonique, d est un dipôle de transition, A est le potentiel vecteur du champ électromagnétique et S est appelée *intégrale d'action*. Le modèle à trois étapes se retrouve en lisant cette expression de droite à gauche :

- À l'instant d'ionisation t_i , une partie du POE passe d'un état lié à un état du continuum à travers une transition dipolaire. p étant le moment canonique, l'impulsion vaut à cet instant $p + A(t_i)$. L'amplitude de la transition dipolaire s'écrit donc $E(t_i) d_{p+A(t_i)}$.
- Entre l'instant t_i et t_r , le POE se propage dans le continuum et acquiert une phase notée $S(p, t_i, t_r)$. Cette phase vaut :

$$S(p, t_i, t_r) = - \int_{t_i}^{t_r} \left(\frac{(p + A(t'))^2}{2} + I_p \right) dt'. \quad (1.8)$$

- Si la recombinaison à lieu à un instant t_r , le POE a une impulsion de $\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r)$. La recombinaison est une transition dipolaire électrique, dont la probabilité vaut $d_{\mathbf{p} + \mathbf{A}(t_r)}^*$. Le dipôle de recombinaison est en effet le conjugué du dipôle de photoionisation.

Dans l'équation 1.7, on somme sur tous les instants d'ionisation et les moments canoniques possibles, c'est-à-dire sur toutes les trajectoires électroniques possibles. Pour obtenir le spectre harmonique, on calcule la transformée de Fourier du moment dipolaire :

$$x(\omega_q) = \int_{-\infty}^{\infty} x(t_r) e^{i\omega_q t_r} dt_r = \int_{-\infty}^{\infty} dt_r \int_0^{t_r} dt_i \int d\mathbf{p} b(t_r, t_i, \mathbf{p}) e^{i\phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p})}, \quad (1.9)$$

où on a noté ω_q la fréquence angulaire de l'harmonique d'ordre q . Cette expression peut s'interpréter comme une intégrale sur les chemins quantiques possibles [Salières et al., 2001], où l'amplitude de chaque chemin est $b(t, t_i, \mathbf{p})$, tandis que la phase vaut :

$$\phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p}) = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left(\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right) dt'. \quad (1.10)$$

La génération d'harmonique est alors vue comme une somme cohérente sur tous les chemins quantiques. Cependant, le calcul est rendu impossible par l'infinité de chemins possibles. On cherche alors les chemins quantiques dominant l'intégrale 1.9. On applique pour ce faire le principe de la *phase stationnaire* : en général, la phase ϕ_q varie beaucoup plus vite avec les paramètres du problème que l'amplitude. Un chemin dont la phase varie beaucoup aura une contribution négligeable, les différentes contributions s'annulant dans la somme. On cherche donc les chemins dont la phase est stationnaire : $\nabla \phi_q(t_r, t_i, \mathbf{p}) = 0$, où la différenciation est effectuée sur tous les paramètres. La résolution de cette équation permet de déterminer t_i , t_r et \mathbf{p} . Le comportement obtenu est alors étonnamment proche de celui décrit par le modèle semi-classique : on retrouve deux trajectoires dominantes, analogues aux courtes et longues décrites plus haut. On observe toutefois une légère différence sur les différents instants ainsi qu'une correction à la loi de coupure. Notons pour terminer qu'aucune trajectoire quantique supplémentaire n'a été observée expérimentalement à ce jour, bien que la théorie prédit leur existence.

1.3 Phases spatiale et spectrale des trajectoires quantiques

Nous avons vu que le modèle semi-classique était satisfaisant pour décrire qualitativement la GHOE. Toutefois, le modèle SFA donne accès à de nombreuses caractéristiques supplémentaires des harmoniques émises. Nous nous intéressons ici à leur phase.

1.3.1 Phase spectrale des harmoniques d'ordre élevé

Nous avons déjà vu que le spectre émis dans la GHOE était composé des harmoniques impaires du laser de génération. On dispose alors d'un rayonnement très large spectralement, qui peut se traduire par une impulsion ultra-brève dans le domaine temporel. Ceci est possible si les différentes harmoniques ont une phase spectrale relative bien définie. On considère ici le spectre composé de N harmoniques supposées monochromatiques d'amplitude spectrale A_q et de phase spectrale ϕ_q . Ceci revient à considérer l'impulsion femtoseconde de génération comme infiniment longue. Le profil temporel de l'émission s'écrit alors :

$$I(t) = \left| \sum_{q=1}^N A_q e^{-i\omega_q t + i\phi_q} \right|^2 \quad (1.11)$$

Étudions le profil temporel de l'émission pour différentes phases harmoniques :

- Si ϕ_q est constante quelque soit q , l'impulsion est dite limitée par transformée de Fourier. Sa durée est alors minimale étant donnée sa largeur spectrale.
- Si ϕ_q est linéaire avec q , le profil temporel est le même que précédemment mais décalé temporellement de $t_e = \partial\phi_q/\partial\omega$, grandeur appelée temps d'émission.
- Si ϕ_q a un autre comportement, alors l'impulsion est plus longue que celle donnée par la limite de Fourier. $t_e(\omega_q)$ est alors vu comme le retard de groupe de l'impulsion. Dans le cas extrême où la phase entre chaque harmonique est aléatoire, l'émission lumineuse devient continue. Il est donc important de connaître $t_e(\omega_q)$ si on veut parler d'impulsion attoseconde.

[Mairesse, 2005] montre que dans le modèle SFA présenté plus haut, $t_e(\omega_q)$ est directement donné par le temps de recombinaison $t_r(\omega_q)$. La figure 1.2, issue du modèle semi-classique, montre que t_e n'est pas constant avec ω_q . La figure 1.3 donne le résultat d'un calcul quantique complet dans l'argon. On y voit que t_e évolue quasiment linéairement avec ω_q . Cette pente linéaire correspond à une phase spectrale quadratique, qui va élargir le profil temporel de l'impulsion attoseconde.

Cette pente linéaire, couramment appelée *atto-chirp*, est donc intrinsèque au mécanisme de génération lui-même. Elle peut être mesurée expérimentalement, par exemple par la technique RABBIT [Mairesse et al., 2003], dont il sera question à la partie ?? . Sa mesure permet également de la compenser, de sorte à comprimer les impulsions attosecondes générées.

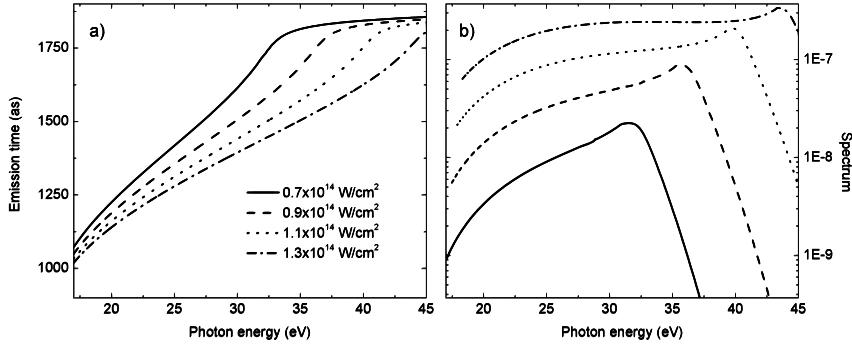


FIGURE 1.3 – Temps d'émission (gauche) et intensité harmonique (droite) en fonction de l'énergie de photon harmonique et pour différentes intensités de génération. Calcul fait pour l'argon en ne considérant que la trajectoire courte de la GHOE. Tiré de [Diveki, 2011].

1.3.2 Phase spatiale des trajectoires quantiques

Nous avons jusqu'à présent considéré un unique atome émettant un rayonnement harmonique. En réalité, le faisceau de génération a une extension transverse bien plus large qu'un atome, le rayonnement émis est donc la somme cohérente de la contribution de chaque atome unique. Si le faisceau de génération a un profil d'intensité transverse gaussien, son intensité n'est pas uniforme. Nous allons voir que cela se traduit par une phase spatiale non homogène dans l'émission harmonique. On utilise les coordonnées cylindriques (r, θ, z) . En un point (r, θ) dans le plan transverse, la phase du champ harmonique pour la trajectoire j est donnée par :

$$\phi_q^j = \omega_q t_r - \int_{t_i}^{t_r} \left(\frac{(\mathbf{p} + \mathbf{A}(t'))^2}{2} + I_p \right) dt', \quad (1.12)$$

où t_i , t_r et \mathbf{p} sont les solutions des équations de phase stationnaire. La phase dépend de l'intensité à travers le potentiel vecteur $\mathbf{A}(t)$.

Sur la figure 1.4, tirée de [Varjú et al., 2005], est tracée ϕ_q^j en fonction de l'intensité I pour l'harmonique 19 et pour les deux premières trajectoires quantiques. On observe une dépendance quasiment linéaire, de pente beaucoup plus forte pour la trajectoire longue. Pour les harmoniques loin de l'énergie de coupure, on approxime une dépendance linéaire :

$$\phi_q^j = -\alpha_q^j I, \quad (1.13)$$

où α_q^j est le coefficient de proportionnalité exprimé en $\text{rad cm}^2 \text{W}^{-1}$. Cette phase est appelée *phase atomique*. α_q^{courte} est de l'ordre de $-1 \text{ rad cm}^2 \text{W}^{-1}$ tandis que $\alpha_q^{\text{longue}} \sim -25 \text{ rad cm}^2 \text{W}^{-1}$. Sur le panneau de droite de la figure 1.4 est tracé $\partial \phi_q^j / \partial I$ en fonction de l'ordre harmonique. α_q^{courte} est donc une fonction croissante de l'ordre harmonique, tandis que α_q^{longue} est décroissante. Dans la coupure, les deux trajectoires se confondent et convergent vers $\approx -12 \text{ rad cm}^2 \text{W}^{-1}$

Si on considère maintenant la phase macroscopique du faisceau $\phi_q^j(r,\theta)$ pour une intensité gaussienne, on aura une courbure de phase : la dépendance en intensité du dipôle harmonique modifie la divergence de chaque harmonique. Pour les harmoniques les plus basses, les trajectoires longues auront une divergence bien plus grande que les courtes. Quand l'ordre harmonique augmente, la divergence des trajectoires courtes (resp. longues) augmente (resp. diminue) jusqu'à se confondre à la coupure. Cet effet est bien visible sur les spectres expérimentaux présentés plus loin (figure ??). Il jouera également un rôle central dans la GHOE par un faisceau de Laguerre-Gauss (partie ??).

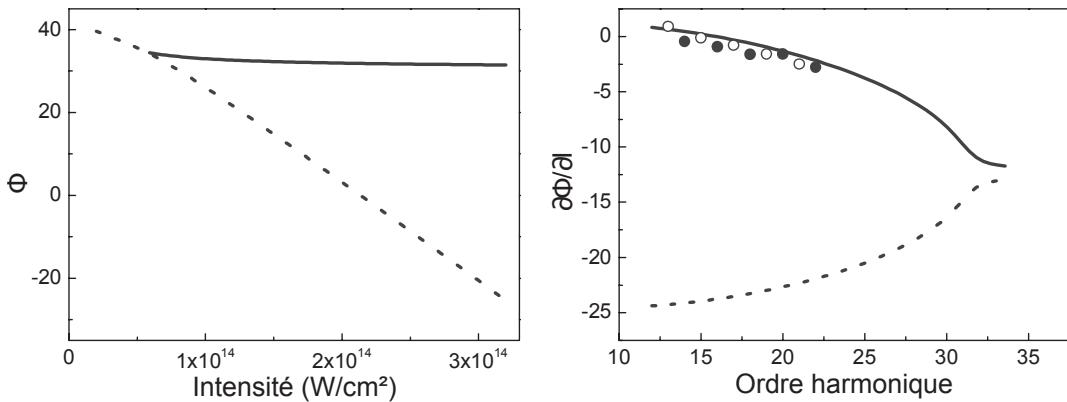


FIGURE 1.4 – Variation de la phase ϕ_q^j avec l'intensité (gauche). Le calcul est réalisé pour l'harmonique 19. Variation de $\partial\phi_q^j/\partial I$ avec l'ordre harmonique (droite), à une intensité de $1.5 \times 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$. Les lignes continues (resp. pointillées) correspondent aux trajectoires courtes (resp. longues).

1.3.3 Accord de phase

Ces considérations nous amènent à discuter d'un dernier point : l'accord de phase dans la GHOE. Nous avons déjà mentionné que le rayonnement était la somme cohérente de la contribution de chaque atome dans la zone d'interaction. Cette somme doit être réalisé selon la dimension transverse, (r,θ) , et longitudinale, z . Si les différentes contributions ne sont pas en phase, des interférences destructives empêchent l'émission macroscopique de rayonnement XUV.

Notons \mathbf{k}_q le vecteur d'onde de l'harmonique d'ordre q et \mathbf{k}_1 celui du faisceau gaussien de génération. À ces deux quantités s'ajoutent des termes de désaccord de phase dus à la phase atomique ainsi qu'à la dispersion électronique et ionique, que l'on note $\Delta\psi_q(r,\theta)$. La condition d'accord de phase pour l'harmonique q s'écrit alors [Balcou et al., 1997] :

$$\mathbf{k}_q(r,\theta,z) = q\mathbf{k}_1(r,\theta,z) + \Delta\psi_q(r,\theta,z) \quad (1.14)$$

[Balcou et al., 1997] évaluent le désaccord de phase $|\delta\mathbf{k}_q| = |\mathbf{k}_q - q\mathbf{k}_1 - \Delta\psi_q|$, en négligeant les effets de dispersions. La figure 1.5 montre ce désaccord de phase pour les

trajectoires courtes et longues.

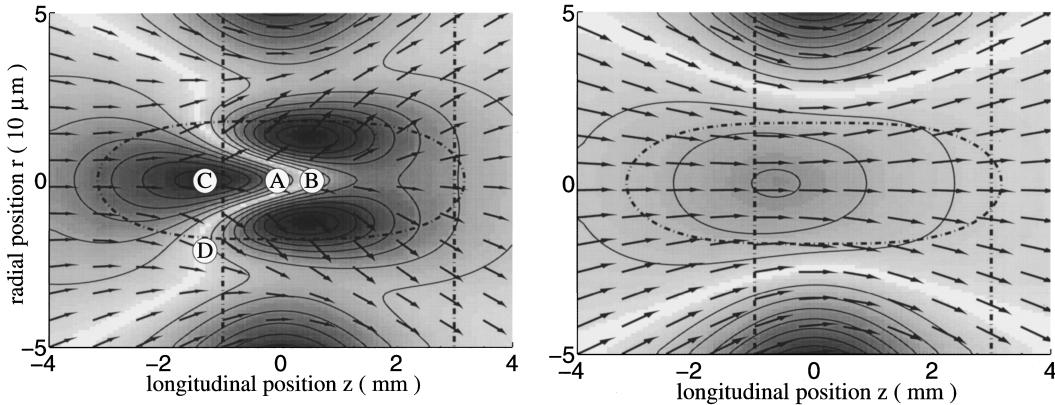


FIGURE 1.5 – Désaccord de phase pour les trajectoires longues (gauche) et courtes (droite). Les zones les plus claires indiquent un bon accord de phase. Les pointillés verticaux indiquent les positions des optima de génération d'harmonique. Les flèches représentent la direction d'émission du champ harmonique. Le calcul a été réalisé à une intensité de $6 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ dans le néon, pour l'harmonique 45. Le paramètre confocal est de 5 mm. Tiré de [Balcou et al., 1997].

Étudions le cas de la trajectoire longue. On observe une structure particulière, en forme de "moustache de morse". On a deux zones notée B et D où le désaccord de phase est minimisé. La zone notée B est située sur l'axe optique mais est très fine, tandis que la zone D est assez étendue et est située en dehors de l'axe optique. De par le volume disponible, la génération d'harmonique proviendra principalement de la zone D. Les flèches indiquent une émission très divergente, ce qui est dû à l'effet de la phase atomique décrit plus haut. Notons également que la zone D se situe en amont de $z = 0$, position du foyer du laser de génération. Pour la trajectoire courte (panneau de droite), le comportement est plus simple : on a un maximum du désaccord de phase vers $z \approx -0.5 \text{ mm}$, qui diminue ensuite dans toutes les directions. Si on s'éloigne trop du foyer laser, l'intensité devient trop faible pour avoir une génération efficace. [Balcou et al., 1997] montrent que l'optimum se situe à $z = 3 \text{ mm}$, où on a un désaccord faible sur un grand volume.

En conclusion, nous avons mis en évidence de familles de trajectoires électroniques, qui donnent lieu à deux composantes dans l'émission harmoniques de propriétés différentes. Finalement, nous avons vu que l'accord de phase permet de favoriser l'une ou l'autre : la trajectoire courte sera accordée lorsque le foyer optique se situe en amont du jet de gaz, tandis que la longue le sera lorsqu'il se situe en aval. Le modèle SFA présenté ici est la base des calculs numériques présentés plus loin (partie ??), qui prendront en compte tous les effets de propagation et d'accord de phase dans le milieu. Dans la suite de cette partie, nous expliquons comment réaliser une expérience de GHOE dans le cas habituel d'un faisceau de génération gaussien.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Nous avons étudié le comportement des deux types de moment angulaire dans la génération d'harmonique d'ordre élevé. Nous avons pu observer sa conservation, ce qui soutient la représentation de la GHOE comme un processus paramétrique. Cela permet également de transférer ces propriétés au rayonnement harmonique, c'est-à-dire à des impulsions ultra-brèves de très courte longueur d'onde. Dans ce chapitre de conclusion, nous récapitulons ces résultats et présentons les développements envisagés à partir de ces sources de lumière uniques. Nous discuterons successivement des deux composantes du moment angulaire de la lumière.

I Perspectives d'utilisation de rayonnement XUV portant du MAO

Dans la partie ??, nous avons d'abord discuté de la génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Cette expérience s'ajoute à deux précédentes [Gariepy et al., 2014, Zürch et al., 2012] et étend l'étude du transfert de MAO à une gamme de paramètre bien plus large. Le moment angulaire orbital porté par le rayonnement harmonique a été caractérisé en utilisant les propriétés de divergences des faisceaux de Laguerre-Gauss, qui permettent d'obtenir la loi de transfert $\ell_q = q \times \ell_1$ attendue théoriquement [Hernández-García et al., 2013]. Contrairement aux études précédentes, qui utilisent une méthode de caractérisation directe, notre raisonnement se base uniquement sur une observation du profil d'intensité harmonique en champ lointain. Il s'appuie sur des calculs analytiques et numériques (chapitre ??) et sur le fait que dans un processus non-linéaire, les maxima du champ émis au foyer coïncident avec ceux du champ de génération, qui est lui bien caractérisé. Cette approche indirecte est applicable quelque soit la longueur d'onde générée, ce qui nous a permis d'étudier les cas où le laser de génération porte $\ell_1 = 1, 2$ ou 3 unités de MAO. La plus haute valeur de MAO harmonique est obtenue pour $\ell_1 = 3$, où $\ell_{19} = 57$. Nous avons également pu étendre l'étude à des longueurs d'ondes très courtes, jusqu'à $\lambda_{41} = 19.5$ nm, en utilisant le néon comme gaz de génération.

I.1 Génération de moment angulaire orbital arbitraire

Ces résultats nous amènent à envisager des applications utilisant ce rayonnement aux propriétés particulière. Notons pour commencer qu'il serait utile de disposer d'un rayonnement XUV portant de faibles valeurs de MAO. Le schéma direct présenté ici n'est pas très flexible puisque gouverné par la loi $\ell_q = q \times \ell_1$. Pour répondre à ce problème, nous avons implémenté un schéma à deux faisceaux non-colinéaires, initialement proposé par [Gariepy et al., 2014]. On y utilise un faisceau à 800 nm Gaussien qui croise un faisceau à 400 nm portant $\ell_1 = 1$ dans la zone d'interaction avec le jet de gaz. Ce dispositif est très similaire à celui présenté à la partie ?? et se comprend dans une image photonique : l'harmonique d'ordre q peut être générée par l'absorption de q photons rouges, mais également de $q - 4n$ photons rouges et $2n$ photons bleu. Le faisceau bleu étant non-colinéaire, la contribution du chemin $(q - 4n, 2n)$ sera décalée en champ lointain à mesure que n augmente. De plus, le faisceau bleu portant $\ell_1 = 1$, la conservation du MAO impose que la contribution du chemin $(q - 4n, 2n)$ porte un MAO égal à $2n$. Ainsi, on peut générer à une longueur d'onde quelconque des faisceaux portant des valeurs très faibles de MAO.

Cette expérience a été réalisé à l'université de Nova Gorica, en collaboration avec le groupe du Prof. G. De Ninno. Nous présentons des résultats préliminaires sur la figure I.1, où on observe le spectre harmonique en champ lointain.

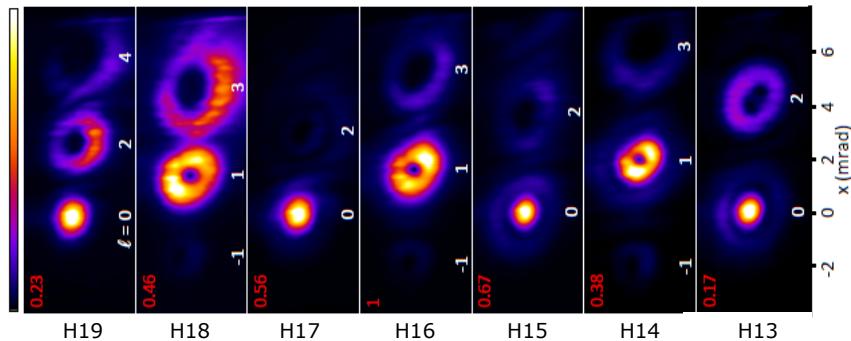


FIGURE I.1 – Intensité en champ lointain obtenue à partir du schéma à deux couleurs non-colinéaires. Chaque mode est repéré par le nombre de photons bleus absorbés, c'est-à-dire par leur moment angulaire orbital.

Pour chaque harmonique, on observe de nombreux ordres de diffractions portant des valeurs de MAO différentes. Ces valeurs ont été confirmées par une mesure de front d'onde à l'aide d'un capteur de Hartmann, capable de résoudre la phase hélicoïdale pour ces faibles valeurs de ℓ .

I.2 Impulsions ultra-courtes couplées spatio-temporellement

Dans un second temps, nous avons présenté une caractérisation complète du train d'impulsion attoseconde généré à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Pour ce faire, nous avons utilisé la technique RABBIT, qui permet de mesurer la phase relative entre chaque harmonique constituant le train d'impulsions. Ces mesures ont mis en évidence un problème intéressant : dans la technique RABBIT, le signal mesuré est intégré sur la totalité du volume d'interaction. Si on utilise une impulsion attoseconde portant du MAO et une impulsion d'habillage Gaussienne, la phase entre les deux faisceaux varie entre 0 et 2π dans le volume et la somme cohérente de ces contributions donne un résultat nul : les pics satellites de la trace RABBIT n'oscilleront pas. Nous avons donc utilisé une impulsion d'habillage portant le même MAO que celle de génération, de sorte à avoir un accord parfait entre les deux faisceaux au sein de la zone d'interaction. Il s'agit à notre connaissance de la première mesure de phase spectrale pour un faisceau non-Gaussien.

Mesures de phase spectrale résolues spatialement

Il est communément supposé que la phase spectrale varie peu selon les coordonnées spatiales, principalement car cette variation ne peut être résolue. En vérité, de nombreuses inhomogénéités peuvent introduire des couplages *spatio-temporeaux* dès l'impulsion laser de génération. On se reportera à la thèse de Gustave Pariente pour une discussion très complète sur la caractérisation de ces couplages dans le domaine infrarouge. Ils sont bien sûr transmis et amplifiés dans la GHOE, ce qui enlève une grande part de validité aux mesures intégrées spatialement. Un des axes principaux de recherche dans le domaine de la GHOE est la production d'impulsion attoseconde très énergétique, à partir de lasers de génération intenses qui interagissent sur plusieurs centimètres avec le milieu gazeux. Il est très probable que dans ces régimes extrêmes, les couplages spatio-temporeaux dans l'XUV seront un facteur limitant à l'augmentation de l'intensité sur cible.

Nos résultats suggèrent que la technique RABBIT habituelle pourrait être modifiée pour obtenir une partie de ces informations *spectro-spatiales*. En effet, nous avons mis en évidence la possibilité de modifier le faisceau d'habillage pour avoir accord ou non avec le faisceau harmonique. Plutôt que d'accorder habillage et génération sur tout le volume, on pourrait restreindre de manière contrôlée la zone d'accord de sorte à mesurer la phase spectrale provenant seulement de cette partie du faisceau. Pour ce faire, il est plus simple d'utiliser l'intensité que la phase : si on utilise un faisceau d'habillage plus petit spatialement, seule la zone où les intensités des deux faisceaux sont non nulles contribuera à la trace RABBIT.

Nous avons réalisé des expériences préliminaires pour tester ce principe, dans le

cadre d'une collaboration avec le groupe du Prof. L.F. DiMauro de la Ohio State University (Columbus OH, USA). Comme cas test, on cherche à caractériser un mode de Laguerre-Gauss XUV, pour lequel la phase varie linéairement avec la coordonnée azimutale. Pour le faisceau d'habillage, nous avons utilisé une lame de phase présentant une marche de π [Camper et al., 2014]. Cette lame crée au foyer deux tâches focales séparées de $\sim 100 \mu\text{m}$, comme représenté sur la figure I.2.

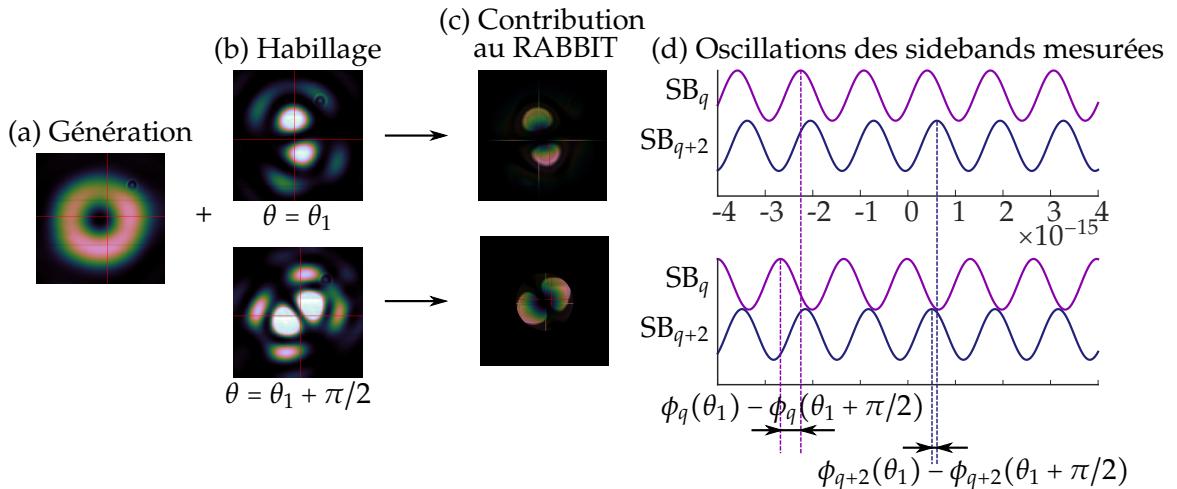


FIGURE I.2 – Principe d'une expérience RABBIT résolue spatialement. Le faisceau de génération (a) donne un profil de LG aux harmoniques générées. Le faisceau d'habillage (b) présente deux tâches focales, séparées d'une distance similaire au diamètre de l'anneau de génération. Ce profil peut être tourné d'un angle noté θ . (c) La contribution à la mesure RABBIT est déterminée par le recouvrement entre ces deux profils d'intensité. (d) Pour chaque valeur de θ , on mesure les oscillations des pics satellites dans la trace RABBIT. La phase de ces pics satellites nous donne $\phi_q(\theta)$.

Si le faisceau d'habillage (I.2.b) est ajusté pour avoir une taille similaire à l'anneau du faisceau de génération (I.2.a), on peut limiter la zone contribuant à la mesure RABBIT (I.2.c). La lame de phase $0 - \pi$ est montée sur une rotation motorisée, permettant de sélectionner l'angle contribuant à la trace RABBIT. Pour chaque valeur de cette angle θ , on mesure les oscillations à 2ω des pics satellites. La phase de ces oscillations donne donc la phase spectrale résolue angulairement, $\phi_q(\theta)$. La figure (I.2.d) illustre le décalage entre θ_1 et $\theta_1 + \pi/2$ pour une phase spectrale quelconque. Pour un faisceau de Laguerre-Gauss idéal de moment ℓ_q , on s'attend à mesurer $\phi_q(\theta) = \ell_q\theta + 2\Delta t_e\omega_q$, où Δt_e est le temps d'émission de l'atome de détection utilisé. Ces expériences n'ont pour l'instant pas été conclues, mais ce principe pourrait être généralisé à des mesures spatiales selon d'autres coordonnées.

Utilisation du couplage spatio-temporel en physique ultra-rapide

Les mesures RABBIT réalisées nous ont permis de reconstruire complètement le profil spatio-temporel du train attoseconde généré. Dans le cas de faisceaux portant du MAO, on obtient un profil d'intensité très particulier à deux spirales imbriquées. Cela met en évidence un couplage spatio-temporel très fort, où l'intensité est retardée temporellement avec la coordonnée azimutale. Nous discutons ici des possibilités d'utiliser les couplages spatio-temporels des faisceaux de LG en physique ultra-rapide.

Comme on l'a mentionné, les couplages spatio-temporels sont souvent non désirables en physique des champs forts. Toutefois, [Vincenti et Quéré, 2012] ont montré qu'ils pouvaient aussi être introduits volontairement pour contrôler l'émission harmonique. Dans leur schéma, on utilise un prisme cale (*wedge* en anglais) pour introduire une rotation de front d'onde au foyer au cours du temps, qui émet chaque impulsion attoseconde selon une direction angulaire donnée. Un faisceau de Laguerre-Gauss, de par sa phase $\ell\theta$, présente également un couplage spatio-temporel. La phase en un point donné évolue entre 0 et $\ell 2\pi$ pendant un cycle optique, on peut donc l'utiliser pour observer des phénomènes sub-cycles. Nous illustrons cette possibilité en commençant par un faisceau de Laguerre-Gauss infrarouge.

Intéressons-nous à la génération d'harmonique à deux couleurs. Dans ce schéma, des harmoniques sont générées par un faisceau à 800 nm superposé à sa deuxième harmonique, à 400 nm. Cette seconde couleur brise la centro-symétrie de la GHOE, qui était responsable de la génération d'harmoniques impaires uniquement. On obtient donc un spectre composé des harmoniques paires et impaires du laser de génération. [Dudovich et al., 2006] ont montré que quand le champ à 400 nm est très faible, il vient simplement perturber le phénomène de GHOE habituel : au cours de l'étape de propagation du modèle à trois étapes, la trajectoire électronique est légèrement modifiée. Une analyse perturbative montre qu'en changeant le délai entre les deux couleurs, il est possible de remonter au temps d'émission électronique, ainsi qu'aux paramètres t_i et p du modèle SFA [Pedatzur et al., 2015]. L'observable mesurée ici est l'intensité harmonique en fonction du délai rouge-bleu noté τ . Elle s'écrit dans le cas perturbatif et si les polarisations des champs sont parallèles :

$$I_q(\tau) = \begin{cases} I_1 + I_0^q |\cos(\omega_{800}\tau + \phi_q)|^2 & \text{si } q \text{ impair} \\ I_2 + I_0^q |\sin(\omega_{800}\tau + \phi_q)|^2 & \text{si } q \text{ pair} \end{cases} \quad (1.15)$$

L'information à extraire est ϕ_q , on peut donc effectuer un scan de délai entre les deux faisceaux (figure I.3.a). Une autre approche est de paramétriser ce délai spatialement de sorte à ne pas avoir à faire de scan. Prenons par exemple des faisceaux rouges et

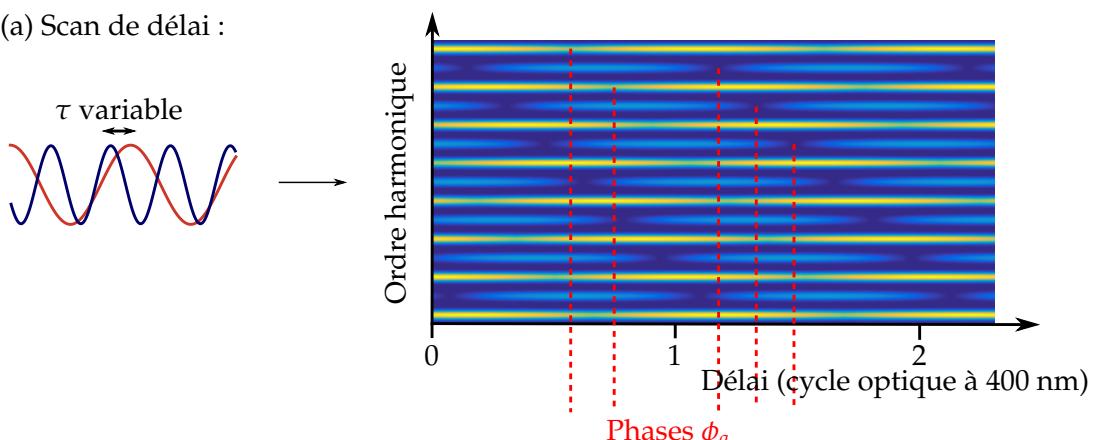
bleus portant chacun $\ell = 1$. Leur phase s'écrit au point (r, θ) :

$$\varphi_{400}(r, \theta, t) = \omega_{400}(t + \theta/\omega_{400}), \quad (1.16)$$

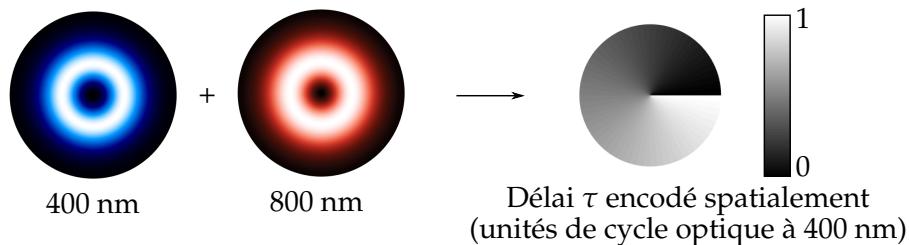
$$\varphi_{800}(r, \theta, t) = \omega_{800}(t + \theta/\omega_{800}). \quad (1.17)$$

Le délai les séparant s'écrit donc en tout point $\tau(r, \theta) = \theta/\omega_{800} - \theta/\omega_{400} = \theta/\omega_{400}$, ce qui est tracé en I.3.b. On a donc un délai variant spatialement : le délai rouge-bleu est paramétré sur la coordonnée azimutale. On retrouvera donc l'évolution temporelle de l'intensité des harmoniques sur leur coordonnée azimutale, comme illustré sur la figure I.3.c. Expérimentalement, les harmoniques sont observées en

(a) Scan de délai :



(b) Couplage angle-délai :



(c) Profil des harmoniques au foyer :

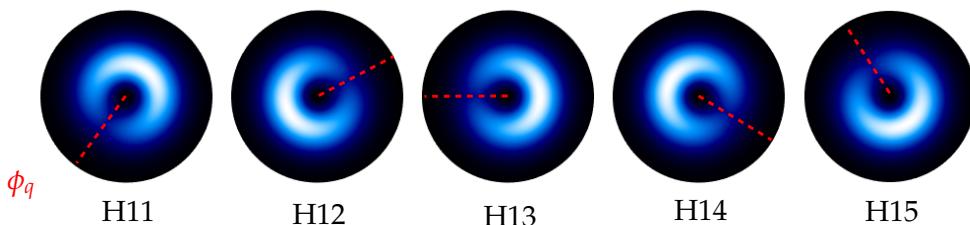


FIGURE I.3 – Principe d'expériences de GHOE à deux couleurs utilisant le couplage spatio-temporel des faisceaux de LG. L'expérience habituelle est de mesurer le spectre harmonique en fonction du délai rouge-bleu (a). Si on utilise des faisceaux de LG, on a un délai variant azimutalement (b). Les harmoniques générées sont donc modulées selon θ , ce qui permet de mesurer ϕ_q sans effectuer de scan (lignes pointillées rouges).

champ lointain. Nous ne pouvons pas réaliser le calcul de propagation car nous

ne connaissons pas la phase spatiale des harmoniques, elle aussi perturbée par le champ à 400 nm. Nous prévoyons d'effectuer des calculs SFA 4D complets pour prédire et quantifier cet effet. Dans tous les cas, l'observable ϕ_q se retrouvera dans le profil spatial en champ lointain. On peut donc mesurer la quantité recherchée en un seul tir laser, plutôt qu'en effectuant un scan de délai.

Dans le cas de faisceaux de Laguerre-Gauss dans l'XUV, on a la même propriété de phase paramétrée avec l'angle. De plus, si on considère non plus une harmonique donnée mais l'impulsion attoseconde entière, l'intensité a un profil de *light spring*. Chaque point de l'espace (r, θ) voit donc un train d'impulsion attoseconde qui se décale temporellement de façon linéaire avec θ . Cette propriété pourrait être utilisée dans une expérience d'absorption transitoire, dans laquelle on mesure habituellement l'intensité transmise par un échantillon, intégrée spatialement, au cours du temps. Avec un *light spring*, on pourrait plutôt résoudre spatialement l'intensité transmise, dans laquelle chaque valeur de θ correspond à une valeur de délai différente.

I.3 Spectroscopies utilisant le moment angulaire orbital XUV

En plus de ces couplage spatio-temporels, les faisceaux de Laguerre-Gauss possèdent un intérêt plus fondamental : les photons y portent un moment angulaire orbital bien défini. Il est très tentant de voir cette grandeur comme un paramètre supplémentaire pour contrôler et étudier l'interaction laser-matière. Par exemple, la perspective de nouvelles règles de sélection en photoionisation permettrait d'étudier des niveaux atomiques normalement interdits. Dans la partie ??, nous avons montré que la réalité n'était pas si clémence : le MAO se couple préférentiellement au moment externe d'un atome. Le couplage avec le moment interne de l'atome n'apparaît qu'au second ordre. C'est également ce qui est observé dans nos mesures RABBIT : si la photoionisation était modifiée par la présence de MAO, on aurait mesuré un temps d'émission différent de celui obtenu en faisceau gaussien¹.

Dans notre expérience, nous disposions d'un faisceau de diamètre $\sim 100 \mu\text{m}$ au foyer, à comparer avec un atome d'argon dont le diamètre est de l'ordre de l'Angström. Là est le problème principal : à l'échelle de l'atome, la phase du faisceau de LG est plate. Il n'y a qu'au centre du faisceau que la phase varie à l'échelle de l'atome, mais l'intensité y est nulle. Une transition quadripolaire dépendant du gradient du champ électrique, il est naturel qu'on ne les observe pas dans notre cas. Pour cette raison, l'intégralité des prédictions théoriques se sont jusqu'à présent limitées à des valeur d'intensité et de focalisation non réalisables en pratique.

1. En effet, le temps d'émission dépend du niveau électronique ionisé. Par exemple, [Schultze et al., 2010] ont mesuré un délai de 21 as entre les électrons issus de l'orbitale 2p du néon par rapport à ceux issus de la 2s.

Par exemple, [Picón et al., 2010] prédisent une modification des règles de sélection pour l'atome d'hydrogène, avec un faisceau à 27.2 eV, de waist 4.79 μm et d'intensité égale à $6.8 \times 10^{18} \text{ W cm}^{-2}$. De même, [Wätzel et Berakdar, 2016] proposent une mesure de délais attosecondes de sous-niveaux magnétiques de l'argon à partir d'un faisceau à 90 eV et d'intensité $5.6 \times 10^{19} \text{ W cm}^{-2}$.

De telles intensités dans l'XUV dépassent l'état de l'art actuel de nombreux ordres de grandeurs. S'il est certain que les intensités XUV disponibles continueront d'augmenter dans le futur, il est sûrement plus simple de chercher des systèmes plus adaptés, c'est-à-dire plus gros par rapport au faisceau harmonique. Par exemple, un atome de Rydberg a un rayon déjà bien plus important : pour le niveau n=137 de l'hydrogène, il vaut ~ 1 μm. D'autres candidats sont les agrégats d'atome, ou bien des molécules de C₆₀, un des plus gros objets dans lequel a été observée la dualité onde-particule [Arndt et al., 1999]. Leur interaction avec un faisceau portant du MAO est étudié théoriquement par [Wätzel et Berakdar, 2016], qui observent un effet pour une intensité de $3.2 \times 10^{17} \text{ W cm}^{-2}$ à 90 eV. L'intensité est réduite par rapport à l'argon mais pas de manière suffisante pour envisager une expérience. Peut-être que les cibles adaptées aux capacités expérimentales actuelles ne doivent pas être cherchées parmi les molécules, mais plutôt dans la phase condensée. Il est en effet possible de créer optiquement des excitations collectives à la surface ou dans le volume d'un solide, dont certaines pourraient être sensibles au MAO. Deux propositions intéressantes existent en ce sens : [van Veenendaal et McNulty, 2007] prédit un dichroïsme induit par le MAO dans l'absorption au point K de métaux de transitions, tandis que [van Veenendaal, 2015] discute de l'interaction entre un faisceau de LG XUV et un vortex magnétique. Nous sommes en train d'évaluer la faisabilité expérimentale de ces propositions.

En conclusion, il nous semble très intéressant de continuer à développer le contrôle de faisceaux harmoniques portant du moment angulaire orbital. Les utilisations les plus immédiates nous paraissent être celles utilisant les propriétés macroscopiques de ces faisceaux. Nous avons mentionné l'utilisation de la structure spatio-temporelle des modes de LG et des impulsions attosecondes générées. Notons au passage que cette structure survit dans le cas d'impulsions attosecondes isolées [Hernández-García et al., 2013]. Il serait également assez direct d'utiliser les faisceaux de LG XUV en imagerie. En effet, ils sont déjà utilisés dans le domaine visible pour la microscopie [Fürhapter et al., 2005] et commencent à être étudiés pour l'imagerie par diffraction cohérente [Wang et al., 2009]. La résolution de ces deux techniques est grandement améliorée par l'utilisation de rayonnement XUV ; nos résultats permettent donc d'envisager la combinaison avantageuse de faibles longueurs d'ondes et de modes de LG. Quant aux applications de rayonnement XUV portant du MAO en spectroscopie, il est probablement trop tôt pour prédire la marche à suivre. L'étude théorique de l'interaction doit continuer à se développer en se dirigeant vers des conditions plus

réalistes expérimentalement, tandis que la production expérimentale de faisceaux intenses et fortement focalisés doit être optimisée dans l’XUV. La focalisation dans ces gammes spectrales est particulièrement étudiée par la communauté des lasers à électron libre, où des tâches focales de l’ordre de 10 nm ont été obtenues [Chao et al., 2005]. Ces grands instruments ouvrent d’ailleurs une autre voie de recherche, illustrée par de récentes propositions [Hemsing et Marinelli, 2012, Hemsing et al., 2011, Rebernik-Ribič et al., 2014]. Elles visent à contrôler le moment angulaire orbital de lasers à électron libre, qui fournissent un rayonnement XUV très intense. Nous avons eu la chance de participer aux premiers essais d’implémentation sur FERMI (Trieste, Italie) et tenons à remercier Prof. G. De Ninno et D. Gauthier pour cette opportunité.

II Conclusions et perspectives sur le moment angulaire de spin

Dans la partie ??, nous avons étudié l’effet du moment angulaire de spin dans la génération d’harmoniques d’ordre élevé. Nous avons vu qu’il y est conservé, mais que l’efficacité du processus habituel chute fortement à mesure que l’ellipticité du laser de génération augmente. Nous avons étudié la GHOE au voisinage d’une résonance du milieu de génération, dans le cas d’une résonance près du seuil de l’argon, et d’une résonance de forme dans le continuum d’une molécule, ici SF₆. Aux énergies résonantes, on observe une forte augmentation de l’ellipticité harmonique attribuée à une modification de la dynamique électronique au moment de la recombinaison. Cette interprétation est soutenue par des calculs TDSE, réalisés par B. Pons et B. Fabre.

II.1 GHOE proche du seuil de l’argon : l’effet xFID

Dans le cas particulier de l’argon, ces expériences ont mis en évidence le phénomène de xFID. Il a été étudié en détail par [Beaulieu et al., 2016]. En collaboration avec Samuel Beaulieu, Étienne Bloch, Valérie Blanchet et Yann Mairesse, nous avons poursuivi ces expériences en utilisant une longueur d’onde de 400 nm et en choisissant des conditions de focalisation favorisant grandement le xFID. Dans ce processus, on crée une superposition cohérente entre l’état fondamental et plusieurs états de Rydberg de l’atome. Le paquet d’onde ainsi créé se désexcite en émettant un rayonnement XUV cohérent. Cet effet n’est pas très différent de celui utilisé en absorption transitoire attoseconde (ATAS, pour *Attosecond Transient Absorption Spectroscopy*) [Beck et al., 2014], dans laquelle les oscillations d’un dipôle induit par une excitation XUV sont observées à l’aide d’une seconde impulsion infrarouge. Il est

possible de réaliser une expérience pompe-sonde similaire en perturbant l'émission xFID à l'aide d'une impulsion infrarouge de délai variable. Des expériences préliminaires démontrent la possibilité de résoudre les battements femtoseconde du paquet d'onde électronique créé dans l'argon. À ces mesures d'amplitude nous prévoyons d'ajouter une mesure de phase en utilisant la technique d'interférométrie à deux sources développée par [Camper, 2014]. Dans cette technique, on crée deux sources de xFID séparées spatialement qui interfèrent en champ lointain. En perturbant une seule des deux sources avec une impulsion infrarouge, on retrouve le déphasage induit dans ces interférences spatiales. La figure II.4 présente un exemple de franges observées à l'aide de ce dispositif. Ces expériences sont toujours en cours au CELIA Bordeaux.

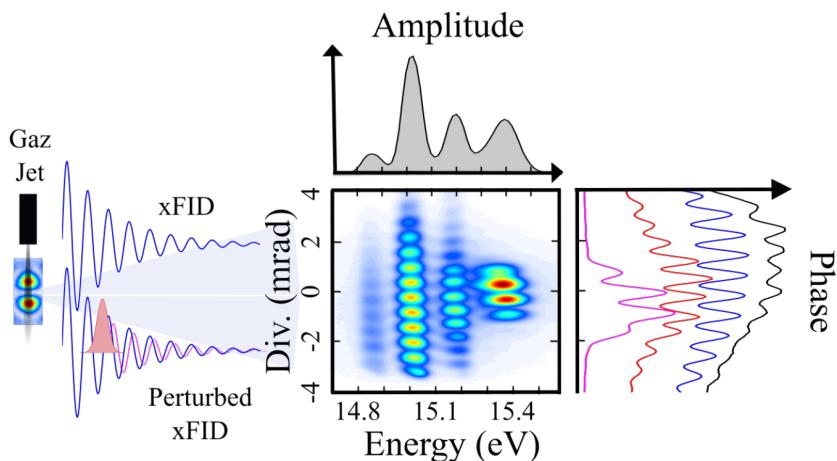


FIGURE II.4 – Interférences observées en champ lointain entre deux sources de xFID séparées spatialement. Chacune des deux sources émet un rayonnement XUV à 4 énergies différentes qui correspondent aux états de Rydberg de l'argon. Une impulsion infrarouge vient perturber et introduire un déphasage sur la source du bas, créant un décalage de ces franges. On mesure ainsi la phase relative des deux sources pour chacun des états.

II.2 Mesures de PECD résolue en temps

Après avoir développé une source d'harmoniques polarisées elliptiquement, nous avons montré qu'elle pouvait être utilisée pour mesurer des dichroïsmes circulaires de photoélectron (PECD) dans des molécules chirales. Nous avons démontré cet effet dans la fenchone avant de comparer les résultats obtenus à des mesures réalisées sur la ligne DESIRS du synchrotron SOLEIL. En plus de présenter un accord satisfaisant, cette comparaison nous permet d'envisager une caractérisation complète de l'état de polarisation du rayonnement harmonique. Des mesures complémentaires doivent être réalisées pour conclure cette étude, comme détaillé en partie ??.

Une fois réalisées, nous envisageons d'utiliser le PECD pour caractériser le rayon-

nement produit par les différentes techniques de génération de polarisations elliptiques dans l’XUV, dans le but de choisir la plus adaptée à l’étude de dynamiques de molécules chirales.

Dans ce manuscrit, nous n’avons présenté que des mesures de PECD *statiques*. Nous reproduisons donc les mesures synchrotron, bien résolues en fréquence. En plus de les reproduire, nos travaux permettent de réaliser ces mesures sur une source ultra-brève et d’y ajouter une résolution temporelle. Nous avons commencé une série d’expériences pompe-sondes dans lesquelles on explore les dynamiques électroniques dans des potentiels chiraux. Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés au cas plus simple à mettre en œuvre du PECD multi-photonique [Lux et al., 2012]. La première expérience réalisée, toujours au CELIA Bordeaux, utilise une impulsion de pompe polarisée linéairement à 200 nm pour exciter la molécule de fenchone vers les états de Rydberg 3s. L’impulsion de sonde, à 400 nm, est polarisée circulairement et ionise la molécule. Un PECD significatif est observé, signe que même pour un état de Rydberg éloigné du centre chiral, l’électron ionisé est toujours sensible au potentiel chiral. Ce PECD est ensuite étudié au cours du temps.

Un résultat étonnant est obtenu lorsque les impulsions de pompe et de sonde sont échangées. Dans ce cas, on observe toujours un PECD alors que l’impulsion de sonde est polarisée linéairement. L’asymétrie observée est surprenante car elle ne s’explique pas dans la description habituelle du PECD. En vérité, l’asymétrie est créée non pas durant l’ionisation, mais lors de l’excitation. L’impulsion de pompe, polarisée circulairement, crée une densité macroscopique chirale dans la molécule, révélée dans un second temps dans la distribution angulaire de photoélectron.

Ces résultats, qui feront l’objet de prochaines publications, montrent une dynamique très riche due au potentiel moléculaire chiral. Ils constituent les premières mesures *dynamiques* de PECD et plus généralement démontrent la possibilité d’effectuer des mesures chiroptiques ultra-rapides, extrêmement difficiles à réaliser par ailleurs. Dans la suite logique de cette démarche, nous prévoyons d’effectuer des expériences pompe-sondes XUV-Infrarouge, où on pourrait utiliser l’ionisation à deux photons pour observer des traces similaires au RABBIT (voir section ??). En plus de l’intensité des pics satellites habituels (b_0 dans le formalisme du PECD), on aura également accès à leur paramètre dichroïque, b_1 . Comme on l’a vu, ce paramètre est très sensible aux finesse du potentiel chiral. Une analyse de type RABBIT pourrait donner accès aux délais de photoionisation entre les différents canaux d’ionisation et permettre d’observer des dynamiques moléculaires chirales, à l’échelle attoseconde.

III Le couplage spin-orbite optique

Notons pour conclure qu'au cours de cette thèse, nous nous sommes efforcés de séparer moment angulaire de spin et orbital. La séparabilité de ces deux quantités est un sujet d'étude à part entière, mais en général leur effet respectif dans une interaction laser-matière est identifiable. L'exemple le plus visuel est le mouvement d'une particule, mise en rotation sur elle-même par le MAS et autour du centre du faisceau par le MAO. Toutefois, en 2002 apparaît la première observation d'un couplage spin-orbite optique [Bomzon et al., 2001]. Dans certains processus, on peut avoir conservation du moment angulaire total mais une variation du MAS et du MAO. S'ensuivent plusieurs études de milieux exotiques où on a conversion entre MAS et MAO, tels que les cristaux uniaxiaux [Brasselet et al., 2009], des milieux présentant un gradient de constante diélectrique, qui montrent des "effets Hall de spin" [Onoda et al., 2004] et des "effets Hall de MAO" [Bliokh, 2006], ou encore dans des "q-plates" [Marrucci et al., 2006]. On a également un effet de conversion dans des faisceaux très fortement focalisés [Zhao et al., 2007]. S'il est difficile d'affirmer aujourd'hui quand et comment un couplage spin-orbite optique sera observé dans l'XUV, nos travaux nous autorisent au moins à envisager cette question.

BIBLIOGRAPHIE

- Allen L, Beijersbergen MW, Spreeuw RJC, et Woerdman JP. *Orbital angular momentum of light and the transformation of laguerre-gaussian laser modes*. Phys. Rev. A **45**, 8185–8189 (1992). [Cité pages 1 et 2.]
- Arndt M, Nairz O, Vos-Andreae J, Keller C, Van der Zouw G, et Zeilinger A. *Wave-particle duality of c60 molecules*. Nature **401**, 680–682 (1999). [Cité page 26.]
- Ashkin A. *Optical trapping and manipulation of neutral particles using lasers*. Proceedings of the National Academy of Sciences **94**, 4853–4860 (1997). [Cité page 3.]
- Aspect A, Grangier P, et Roger G. *Experimental realization of einstein-podolsky-rosen-bohm Gedankenexperiment : A new violation of bell's inequalities*. Phys. Rev. Lett. **49**, 91–94 (1982). [Cité page 3.]
- Balcou P, Salieres P, L'Huillier A, et Lewenstein M. *Generalized phase-matching conditions for high harmonics : The role of field-gradient forces*. Physical Review A **55**, 3204 (1997). [Cité pages 17 et 18.]
- Barnett SM, Allen L, Cameron RP, Gilson CR, Padgett MJ, Speirs FC, et Yao AM. *On the natures of the spin and orbital parts of optical angular momentum*. Journal of Optics **18**, 064004 (2016). [Cité page 2.]
- Beaulieu S, Descamps D, Comby A, Wanie V, Petit S, Légaré F, Catoire F, et Mairesse Y. *Role of rydberg states in high-order harmonic generation*. arXiv :1603.07905 (2016). [Cité page 27.]
- Beck AR, Bernhardt B, Warrick ER, Wu M, Chen S, Gaarde MB, Schafer KJ, Neumark DM, et Leone SR. *Attosecond transient absorption probing of electronic superpositions of bound states in neon : detection of quantum beats*. New Journal of Physics **16**, 113016 (2014). [Cité page 27.]
- Berestetskii V, Lifshitz E, et Pitaevski L. *Quantum Electrodynamics*. vol. 4 of Course of Theoretical Physics. Butterworth-Heinemann (1982). ISBN 9780750633710. [Cité page 1.]
- Beth RA. *Mechanical detection and measurement of the angular momentum of light*. Phys. Rev. **50**, 115–125 (1936). [Cité page 1.]
- Bliokh KY. *Geometrical optics of beams with vortices : Berry phase and orbital angular momentum hall effect*. Phys. Rev. Lett. **97**, 043901 (2006). [Cité page 30.]
- Bomzon Z, Kleiner V, et Hasman E. *Formation of radially and azimuthally polarized light using space-variant subwavelength metal stripe gratings*. Applied Physics Letters **79**, 1587–1589 (2001). [Cité page 30.]
- Brasselet E, Izdebskaya Y, Shvedov V, Desyatnikov AS, Krolikowski W, et Kivshar YS. *Dynamics of optical spin-orbit coupling in uniaxial crystals*. Optics letters **34**, 1021–1023 (2009). [Cité page 30.]
- Camper A. *Spectroscopie de phase multi-dimensionnelle de l'émission attoseconde moléculaire*. Thèses, Université Paris Sud, (2014). URL <http://www.theses.fr/2014PA112024>. [Cité page 28.]
- Camper A, Ruchon T, Gauthier D, Gobert O, Salieres P, Carré B, et Auguste T. *High-harmonic phase spectroscopy using a binary diffractive optical element*. Phys. Rev. A **89**, 043843 (2014). [Cité page 22.]
- Chao W, Harteneck BD, Liddle JA, Anderson EH, et Attwood DT. *Soft x-ray microscopy at a spatial resolution better than 15 nm*. Nature **435**, 1210–1213 (2005). [Cité page 27.]
- Corkum PB. *Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization*. Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993). [Cité page 9.]
- Courtial J, Dholakia K, Allen L, et Padgett MJ. *Second-harmonic generation and the conservation of orbital angular momentum with high-order laguerre-gaussian modes*. Phys. Rev. A **56**, 4193–4196 (1997). [Cité page 4.]
- Dirac PA. Quantised singularities in the electromagnetic field. In *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, volume 133, pages 60–72. The Royal Society, (1931). [Cité page 1.]

- Diveki Z. *Generation and Application of Attosecond Pulses*. Thèses, Université Paris 11, (2011). URL <http://www.theses.fr/2011PA112290>. [Cité page 16.]
- Dudovich N, Smirnova O, Levesque J, Mairesse Y, Ivanov MY, Villeneuve D, et Corkum PB. *Measuring and controlling the birth of attosecond xuv pulses*. Nature physics **2**, 781–786 (2006). [Cité page 23.]
- Farkas G et Tóth C. *Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases*. Physics Letters A **168**, 447–450 (1992). [Cité page 5.]
- Ferray M, l’Huillier A, Li X, Lompre L, Mainfray G, et Manus C. *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*. Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics **21**, L31 (1988). [Cité pages 4 et 9.]
- Fürhapter S, Jesacher A, Bernet S, et Ritsch-Marte M. *Spiral interferometry*. Opt. Lett. **30**, 1953–1955 (2005). [Cité pages 3 et 26.]
- Garcia GA, Nahon L, Lebech M, Houver JC, Dowek D, et Powis I. *Circular dichroism in the photoelectron angular distribution from randomly oriented enantiomers of camphor*. The Journal of Chemical Physics **119**, 8781–8784 (2003). [Cité page 4.]
- Gariepy G, Leach J, Kim KT, Hammond, T. J, Frumker E, Boyd RW, et Corkum, P. B. *Creating high-harmonic beams with controlled orbital angular momentum*. Phys. Rev. Lett. **113**, 153901 (2014). [Cité pages 19 et 20.]
- Gruson V. *Polarimétrie harmonique et spectroscopie de photoionisation attoseconde*. Thèses, Université Paris-Saclay, (2015). URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01325226>. [Cité page 10.]
- Hell SW et Wichmann J. *Breaking the diffraction resolution limit by stimulated emission : stimulated-emission-depletion fluorescence microscopy*. Optics letters **19**, 780–782 (1994). [Cité page 3.]
- Hemsing E et Marinelli A. *Echo-enabled x-ray vortex generation*. Phys. Rev. Lett. **109**, 224801 (2012). [Cité page 27.]
- Hemsing E, Marinelli A, et Rosenzweig JB. *Generating optical orbital angular momentum in a high-gain free-electron laser at the first harmonic*. Phys. Rev. Lett. **106**, 164803 (2011). [Cité page 27.]
- Hernández-García C, Picón A, San Román J, et Plaja L. *Attosecond extreme ultraviolet vortices from high-order harmonic generation*. Phys. Rev. Lett. **111**, 083602 (2013). [Cité pages 19 et 26.]
- Keldysh L. *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*. Zh. Eksperim. i Teor. Fiz. **47** (1964). [Cité page 11.]
- Leader E et Lorcé C. *The angular momentum controversy : What's it all about and does it matter ?* Physics Reports **541**, 163 – 248 (2014). [Cité page 2.]
- Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M, L’Huillier A, et Corkum PB. *Theory of high-order harmonic generation by low-frequency laser fields*. Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994). [Cité page 13.]
- Lux C, Wollenhaupt M, Bolze T, Liang Q, Köhler J, Sarpe C, et Baumert T. *Circular dichroism in the photoelectron angular distributions of camphor and fenchone from multiphoton ionization with femtosecond laser pulses*. Ang. Chem. Int. Ed. **51**, 5001–5005 (2012). [Cité page 29.]
- Mair A, Vaziri A, Weihs G, et Zeilinger A. *Entanglement of the orbital angular momentum states of photons*. Nature **412**, 313–316 (2001). [Cité page 3.]
- Mairesse Y. *Generation and characterization of attosecond pulses*. Thèses, Université Paris Sud - Paris XI, (2005). URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011620>. [Cité page 15.]
- Mairesse Y, de Bohan A, Frasinski LJ, Merdji H, Dinu LC, Monchicourt P, Breger P, Kovačev M, Taïeb R, Carré B, Muller HG, Agostini P, et Salières P. *Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays*. Science **302**, 1540 (2003). [Cité pages 5 et 15.]
- Marrucci L, Manzo C, et Paparo D. *Optical spin-to-orbital angular momentum conversion in inhomogeneous anisotropic media*. Phys. Rev. Lett. **96**, 163905 (2006). [Cité page 30.]

- McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk TS, McIntyre I, Boyer K, et Rhodes CK. *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. JOSA B **4**, 595–601 (1987). [Cité pages 4 et 9.]
- Nahon L, Polack F, Lagarde B, Thissen R, Alcaraz C, Dutuit O, et Ito K. *Complete characterization of su5 : a vuv high resolution beamline with variable polarizations*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment **467**, 453–457 (2001). [Cité page 4.]
- Nye J et Berry M. Dislocations in wave trains. In *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, volume 336, pages 165–190. The Royal Society, (1974). [Cité page 1.]
- Nye JF. *Natural focusing and fine structure of light : caustics and wave dislocations*. CRC Press (1999). [Cité page 2.]
- Onoda M, Murakami S, et Nagaosa N. *Hall effect of light*. Phys. Rev. Lett. **93**, 083901 (2004). [Cité page 30.]
- Pedatzur O, Orenstein G, Serbinenko V, Soifer H, Bruner B, Uzan A, Brambila D, Harvey A, Torlina L, Morales F, et al. *Attosecond tunnelling interferometry*. Nature Physics **11**, 815–819 (2015). [Cité page 23.]
- Picón A, Mompart J, de Aldana JRV, Plaja L, Calvo GF, et Roso L. *Photoionization with orbital angular momentum beams*. Opt. Express **18**, 3660–3671 (2010). [Cité page 26.]
- Rankine WJM. *A manual of applied mechanics*. London : R. Griffin (1858). [Cité page 1.]
- Rebernik-Ribič P, Gauthier D, et De Ninno G. *Generation of coherent extreme-ultraviolet radiation carrying orbital angular momentum*. Phys. Rev. Lett. **112**, 203602 (2014). [Cité page 27.]
- Ruchon T. *Interaction magnétochirale : étude théorique et expériences dans les lasers*. Thèses, Université Rennes 1, (2005). URL <http://www.theses.fr/2005REN1S037>. [Cité page 3.]
- Salières P, Carré B, Le Déroff L, Grasbon F, Paulus G, Walther H, Kopold R, Becker W, Milošević D, Sanpera A, et al. *Feynman's path-integral approach for intense-laser-atom interactions*. Science **292**, 902–905 (2001). [Cité page 14.]
- Schafer KJ, Yang B, DiMauro LF, et Kulander KC. *Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff*. Phys. Rev. Lett. **70**, 1599–1602 (1993). [Cité page 9.]
- Schultze M, Fieß M, Karpowicz N, Gagnon J, Korbman M, Hofstetter M, Neppl S, Cavalieri AL, Komninou Y, Mercouris T, Nicolaides CA, Pazourek R, Nagele S, Feist J, Burgdörfer J, Azzeer AM, Ernsttorfer R, Kienberger R, Kleineberg U, Goulielmakis E, Krausz F, et Yakovlev VS. *Delay in Photoemission*. Science **328**, 1658– (2010). [Cité page 25.]
- Tamburini F, Thidé B, Molina-Terriza G, et Anzolin G. *Twisting of light around rotating black holes*. Nature Physics **7**, 195–197 (2011). [Cité page 3.]
- Van Enk S et Nienhuis G. *Commutation rules and eigenvalues of spin and orbital angular momentum of radiation fields*. Journal of Modern Optics **41**, 963–977 (1994). [Cité page 2.]
- van Veenendaal M. *Interaction between x-ray and magnetic vortices*. Phys. Rev. B **92**, 245116 (2015). [Cité page 26.]
- van Veenendaal M et McNulty I. *Prediction of strong dichroism induced by x rays carrying orbital momentum*. Phys. Rev. Lett. **98**, 157401 (2007). [Cité page 26.]
- Varjú K, Mairesse Y, Carré B, Gaarde M, Johnsson P, Kazamias S, López-Martens R, Mauritsson J, Schafer K, Balcou P, et al. *Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses*. Journal of Modern Optics **52**, 379–394 (2005). [Cité page 16.]
- Vincenti H et Quéré F. *Attosecond lighthouses : how to use spatiotemporally coupled light fields to generate isolated attosecond pulses*. Physical review letters **108**, 113904 (2012). [Cité page 23.]
- Wang F, Yangjian C, et Korotkova O. *Partially coherent standard and elegant laguerre-gaussian beams of all orders*. Optics Express **17**, 22366–22379 (2009). [Cité page 26.]

Wätzel J et Berakdar J. *Discerning on a sub-optical-wavelength the attosecond time delays in electron emission from magnetic sublevels by optical vortices.* Phys. Rev. A **94**, 033414 (2016). [Cité page 26.]

Zhao Y, Edgar JS, Jeffries GDM, McGloin D, et Chiu DT. *Spin-to-orbital angular momentum conversion in a strongly focused optical beam.* Phys. Rev. Lett. **99**, 073901 (2007). [Cité page 30.]

Zürch M, Kern C, Hansinger P, Dreischuh A, et Spielmann C. *Strong-field physics with singular light beams.* Nat. Phys. **8**, 743–746 (2012). [Cité page 19.]