

THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ
PARIS-SACLAY

Effectuée au Laboratoire Interactions, Dynamique et Lasers, IRAMIS, DSM
Commissariat à l'Energie Atomique, Saclay.

Spécialité : Lasers et Matière

LE TITRE

Présentée par

ROMAIN GÉNEAUX

pour obtenir le grade de
DOCTEUR EN SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ PARIS-SACLAY.

devant le jury composé de :

M. LE JURY Rapporteur

LE TITRE

TABLE DES MATIÈRES

| | |
|---|--------------|
| I La génération d'harmoniques d'ordre élevé : bases théoriques et expérimentales | 1 |
| 1 Théorie de la génération d'harmoniques d'ordre élevé | 3 |
| 1.1 Modèle à 3 étapes | 3 |
| 1.2 Trajectoire courte, trajectoire longue | 3 |
| 2 Mise en place expérimentale de la GHOE | 5 |
| 2.1 GHOE à partir d'un faisceau Gaussien | 5 |
| II Le moment angulaire de la lumière | 7 |
| 3 Le moment angulaire en physique classique | 9 |
| 3.1 Mécanique Lagrangienne | 10 |
| 3.1.1 L'équation de Lagrange | 10 |
| 3.1.2 Symétries du Lagrangien et lois de conservation | 11 |
| 3.2 Les propriétés mécaniques de la lumière | 13 |
| 3.2.1 L'énergie du champ électromagnétique | 14 |
| 3.2.2 La quantité de mouvement de la lumière | 15 |
| 3.2.3 Le moment angulaire de la lumière | 16 |
| 4 L'équation d'onde et les modes du champ | 19 |
| 4.1 Ondes planes et polarisation | 19 |
| 4.1.1 L'équation d'Helmholtz | 19 |
| 4.1.2 La polarisation des ondes planes | 20 |
| 4.1.3 Moment angulaire d'une onde plane circulaire | 20 |
| 4.2 L'approximation paraxiale | 21 |
| 4.3 Les modes de Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss | 23 |
| 4.3.1 Modes de Hermite-Gauss | 23 |
| 4.3.2 Modes de Laguerre-Gauss | 24 |
| 4.3.3 Moment angulaire d'un faisceau de Laguerre-Gauss | 27 |
| 5 Le moment angulaire en mécanique quantique | 31 |
| 5.1 Symétries et lois de conservation | 31 |
| 5.1.1 Définition d'une symétrie | 31 |
| 5.1.2 Relation entre symétrie et loi de conservation | 33 |
| 5.1.3 La parité et l'opérateur inversion | 33 |
| 5.1.4 Le moment angulaire et l'opérateur rotation | 34 |
| 5.2 L'opérateur moment angulaire | 34 |
| 5.3 Moment angulaire de spin et moment angulaire orbital | 37 |
| 6 Séparation entre moment orbital et moment de spin de la lumière | 39 |
| 6.1 Moments intrinsèque et extrinsèque d'un champ classique | 39 |
| 6.2 Le moment angulaire du photon | 41 |
| 6.2.1 Exemple de quantification : ensemble d'oscillateurs harmoniques matériels | 41 |

| | | |
|------------|---|------------|
| 6.2.2 | La quantification du champ électromagnétique | 42 |
| 6.2.3 | Opérateurs de moment angulaire | 44 |
| 7 | Modes du champ portant du moment angulaire | 47 |
| 7.1 | États propres de moment angulaire | 47 |
| 7.2 | Moment angulaire de spin et polarisation de la lumière | 49 |
| 7.3 | Moment angulaire orbital et modes de Laguerre-Gauss | 50 |
| 8 | Règles de sélection du moment angulaire dans la photoionisation | 51 |
| 8.1 | Transitions multipolaires | 51 |
| 8.2 | Règles de sélection | 52 |
| 8.3 | Rôle du moment angulaire orbital dans une transition multipolaire | 53 |
| III | Le moment angulaire orbital dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé | 57 |
| 9 | Introduction | 59 |
| 10 | Génération d'harmoniques d'ordre élevé à partir de modes de Laguerre-Gauss | 61 |
| 10.1 | Le cas Gaussien : Aspects expérimentaux de la génération d'harmoniques d'ordre élevé | 61 |
| 10.1.1 | Système laser | 61 |
| 10.1.2 | Génération d'harmoniques d'ordre élevé | 61 |
| 10.2 | Génération de modes de Laguerre-Gauss dans le visible et proche infrarouge | 66 |
| 10.2.1 | Superposition de modes de Hermite-Gauss | 66 |
| 10.2.2 | Utilisation d'une lame de phase à spirale | 68 |
| 10.2.3 | Résultats expérimentaux sur la création de modes de Laguerre-Gauss dans l'infrarouge | 71 |
| 10.3 | Génération d'harmoniques d'ordre élevé d'un faisceau de Laguerre-Gauss | 74 |
| 10.3.1 | Contraintes expérimentales | 74 |
| 10.3.2 | Résultats | 77 |
| 11 | Conservation du moment angulaire orbital dans la GHOE | 81 |
| 11.1 | Vers une mesure non-interférométrique du moment angulaire orbital | 81 |
| 11.2 | Simulations numériques de la propagation de modes de Laguerre-Gauss | 82 |
| 11.2.1 | Reformulation de l'intégrale de Huygens-Fresnel pour le calcul | 83 |
| 11.2.2 | Résultats des simulations numériques | 84 |
| 11.3 | Interprétation des résultats observés à partir de calculs analytiques | 88 |
| 11.4 | Calculs SFA : une simulation complète de l'expérience réalisée | 89 |
| 12 | Rôle des trajectoires quantiques dans la GHOE à partir de faisceaux de Laguerre-Gauss | 93 |
| 12.1 | Observation des contributions des différentes trajectoires quantiques à partir des calculs numériques | 93 |
| 12.2 | Observation expérimentale de ces contributions | 94 |
| 12.2.1 | Modification du dispositif expérimental | 94 |
| 12.2.2 | Calibration du spectromètre | 95 |
| 12.3 | Interprétation des résultats obtenus : le rôle de l'indice radial des modes de Laguerre-Gauss | 98 |
| 12.3.1 | Sens physique de l'indice radial | 98 |
| 12.3.2 | Étude du contenu modal du champ par un modèle simple de la GHOE | 99 |
| 13 | Le profil spatio-temporel des impulsions générées : les <i>light springs</i> | 103 |
| 13.1 | Mesure de la phase spectrale de l'impulsion à partir de la technique RABBIT | 103 |
| 13.2 | Reconstruction du profil spatio-temporel de l'émission | 106 |
| 14 | Conclusion et perspectives | 109 |

| | |
|--|------------|
| IV Polarisation circulaire, molécules chirales et harmoniques d'ordre élevé | 111 |
| 15 Génération d'harmoniques d'ordre élevé polarisée elliptiquement | 113 |
| 15.1 Difficulté intrinsèque au mécanisme | 113 |
| 15.2 Solutions existantes | 113 |
| 15.3 Génération résonante | 113 |
| 16 Polarisation circulaire et chiralité | 115 |
| 16.1 Définitions de la chiralité | 115 |
| 16.2 Dichroïsme circulaire et activité optique | 115 |
| 16.3 Dichroïsme circulaire de photoélectron (PECD) | 115 |
| 17 Mesures de PECD avec une source d'harmoniques d'ordre élevé | 117 |
| 17.1 Mesures de PECD dans la fenchone | 117 |
| 17.2 Caractérisation de l'état de polarisation des harmoniques par le PECD | 117 |
| 18 Mesures chiroptiques à l'échelle femtoseconde | 119 |
| 18.1 Le PECD en régime multiphotonique | 119 |
| 18.2 Création et mesure résolue en temps de densités chirales | 119 |
| Bibliographie | 121 |

Première partie

La génération d'harmoniques d'ordre élevé : bases théoriques et expérimentales

CHAPITRE 1

THÉORIE DE LA GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ

1.1 Modèle à 3 étapes

1.2 Trajectoire courte, trajectoire longue

CHAPITRE 2

MISE EN PLACE EXPÉRIMENTALE DE LA GHOE

2.1 GHOE à partir d'un faisceau Gaussien

Deuxième partie

Le moment angulaire de la lumière

CHAPITRE 3

LE MOMENT ANGULAIRE EN PHYSIQUE CLASSIQUE

Dans ce chapitre, nous nous attacherons d'abord à définir le moment angulaire (MA) classiquement, dans le cas d'un objet quelconque puis pour le champ électromagnétique, en utilisant l'optique maxwellienne. Nous étudierons ensuite l'équation d'onde et le moment angulaire de plusieurs de ses solutions, mettant en évidence deux types de MA de nature différente. Pour comprendre la natures de ces MA, nous étudierons le concept de moment angulaire en mécanique quantique, où on trouvera deux composantes du moment angulaire : le moment angulaire de spin (MAS) et le moment angulaire orbital (MAO). Le champ électromagnétique sera traité comme un système quantique, ce qui nous permettra de construire des champs pour lesquels le MAS et le MAO sont connus. En particulier, nous détaillerons la forme et les propriétés de ces champs. Nous terminerons par une discussion de l'échange de moment angulaire lors d'une interaction entre un laser et une molécule. Cette présentation nous fournira les outils utiles à l'analyse des expériences décrites dans le chapitre suivant.

3.1 Mécanique Lagrangienne

3.1.1 L'équation de Lagrange

En mécanique classique, l'évolution d'un objet est décrite par les lois de Newton. Pour un objet ponctuel, on a $F = m\ddot{x}$, où F est la somme des forces appliquées à cet objet, m sa masse et \ddot{x} son accélération. Dans le cas d'objets plus complexes tels que ceux qui nous intéresserons dans ce chapitre, une description plus adaptée est celle développée par J.-L. Lagrange en 1764. Initialement utilisé pour l'étude de la libration de lune, ce formalisme a très largement dépassé son origine pour devenir une méthode générale de résolution de problèmes dynamiques. Le système y est décrit par un ensemble de *coordonnées généralisées*, qui définissent l'espace des configuration.

Par exemple, considérons un ensemble de particules soumises à un ensemble de forces conservatives décrites par un potentiel. De manière générale, on peut décrire l'état du système par un ensemble de coordonnées. Si on choisit les coordonnées cartésiennes dans un référentiel inertiel $x_i, i \in [1, N]$, l'équation de Newton s'écrit :

$$\forall i, m\ddot{x}_i = F_i. \quad (3.1)$$

Remarquons que le terme de gauche est la dérivée de la quantité de mouvement $p_i = m\dot{x}_i = \partial T / \partial \dot{x}_i$, où T est l'énergie cinétique. Le terme droite est la dérivée de l'énergie potentielle, $\partial U / \partial x_i$. Dans ces coordonnées, T est indépendant de x_i et U est indépendant de \dot{x}_i . On définit alors le **Lagrangien** $L = T - U$, qui est une fonction des x_i et des \dot{x}_i . On réécrit alors 3.1 :

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{x}_i} - \frac{\partial L}{\partial x_i} = 0, \quad (3.2)$$

qui est appelée **équation de Lagrange**. Montrons que cette équation est valable quelles que soient les coordonnées généralisées utilisées pour décrire le système. Supposons que l'espace des configurations soit décrit par $q_j, j \in [1, N]$, qui s'écrivent en fonction des coordonnées cartésiennes x_i et du temps :

$$\forall j, q_j = q_j(x_1, \dots, x_N, t) \text{ et inversement, } \forall i, x_i = x_i(q_1, \dots, q_N, t).$$

Réécrivons l'équation de Lagrange 3.2 en fonction des q_j . On a :

$$\frac{\partial L}{\partial \dot{x}_i} = \sum_j \frac{\partial L}{\partial q_j} \frac{\partial q_j}{\partial \dot{x}_i} + \sum_j \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \frac{\partial \dot{q}_j}{\partial \dot{x}_i}. \quad (3.3)$$

q_j ne dépend que de x_i et t , donc $\partial q_j / \partial \dot{x}_i = 0$ et le premier terme s'annule. De plus,

$$\dot{q}_j = \sum_i \frac{\partial q_j}{\partial x_i} \dot{x}_i + \frac{\partial q_j}{\partial t}, \text{ donc } \frac{\partial \dot{q}_j}{\partial \dot{x}_i} = \frac{\partial q_j}{\partial x_i}. \quad (3.4)$$

3.3 donne donc :

$$\frac{\partial L}{\partial \dot{x}_i} = \sum_j \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \frac{\partial q_j}{\partial x_i}. \quad (3.5)$$

L'équation de Lagrange en coordonnées cartésiennes comprend la dérivée temporelle de cette expression, qui s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{x}_i} &= \sum_j \left(\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \right) \frac{\partial q_j}{\partial x_i} + \sum_j \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \left(\frac{d}{dt} \frac{\partial q_j}{\partial x_i} \right) \\ &= \sum_j \left(\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \right) \frac{\partial q_j}{\partial x_i} + \sum_j \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \left(\sum_k \frac{\partial^2 q_j}{\partial x_i \partial x_k} \dot{x}_k + \frac{\partial^2 q_j}{\partial x_i \partial t} \right). \end{aligned}$$

Par ailleurs, le second terme de l'équation de Lagrange s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{\partial L}{\partial x_i} &= \sum_j \frac{\partial L}{\partial q_j} \frac{\partial q_j}{\partial x_i} + \sum_j \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \frac{\partial \dot{q}_j}{\partial x_i} \\ &= \sum_j \frac{\partial L}{\partial q_j} \frac{\partial q_j}{\partial x_i} + \sum_j \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} \left(\sum_k \frac{\partial^2 q_j}{\partial x_i \partial x_k} \dot{x}_k + \frac{\partial^2 q_j}{\partial x_i \partial t} \right), \end{aligned}$$

où on a utilisé 3.4. On connaît maintenant tous les termes de l'équation de Lagrange en fonction des q_j , et en les soustrayant un terme s'annule, ce qui donne :

$$\sum_j \left(\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_j} - \frac{\partial L}{\partial q_j} \right) \frac{\partial q_j}{\partial x_i} = 0.$$

$\frac{\partial q_j}{\partial x_i}$ est non singulière puisque son inverse est $\frac{\partial x_i}{\partial q_j}$, on obtient donc l'équation de Lagrange en coordonnées généralisées :

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} - \frac{\partial L}{\partial q_i} = 0. \quad (3.6)$$

Nous avons donc démontré que l'équation de Lagrange est invariante par changement des coordonnées utilisées pour décrire le système, ce qui en fait une formulation très pratique.

3.1.2 Symétries du Lagrangien et lois de conservation

L'équation de Lagrange permet d'obtenir des résultats généraux assez directement, tels que des lois de conservation. Une coordonnée q_k est dite *ignorable* ou *cyclique* si le Lagrangien L ne dépend pas de q_k . L'équation de Lagrange donne alors :

$$\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_k} = \frac{\partial L}{\partial q_k} = 0.$$

On définit naturellement la grandeur

$$P_k \equiv \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_k},$$

appelé *moment généralisé conjugué* de q_k , et qui est une constante du mouvement. Nous allons utiliser ce point pour établir trois lois de conservation : l'énergie, la quantité de mouvement et le moment angulaire.

Énergie et translation dans le temps

La dérivée temporelle du Lagrangien s'écrit :

$$\begin{aligned}\frac{dL}{dt} &= \sum_i \frac{\partial L}{\partial q_i} \frac{\partial q_i}{\partial t} + \sum_i \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} \frac{\partial \dot{q}_i}{\partial t} + \frac{\partial L}{\partial t} \\ &= \sum_i \left(\frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} \right) \frac{\partial \dot{q}_i}{\partial t} + \sum_i \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} \frac{\partial \dot{q}_i}{\partial t} + \frac{\partial L}{\partial t} \\ &= \sum_i \frac{d}{dt} \left(\frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} \dot{q}_i \right) + \frac{\partial L}{\partial t}.\end{aligned}$$

Soit :

$$\frac{d}{dt} \left(\sum_i \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} \dot{q}_i - L \right) + \frac{\partial L}{\partial t} = 0.$$

On définit alors la *fonction énergie*¹ ou *invariant de Jacobi* :

$$h(q, \dot{q}, t) = \sum_i \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} \dot{q}_i - L,$$

on a donc

$$\frac{dh}{dt} = - \frac{\partial L}{\partial t}$$

On voit que si le Lagrangien ne dépend pas explicitement du temps, i.e. est invariant par translation temporelle, alors h est conservé. Dans de nombreux cas, h peut se réduire à l'énergie mécanique du système (voir p. 62 de [Goldstein et al., 2001]). Le résultat obtenu est alors la *conservation de l'énergie mécanique*.

Quantité de mouvement et translation dans l'espace

Considérons maintenant un système invariant par translation dans l'espace. C'est le cas d'une particule libre, ou encore de N particules reliées par des interactions ne dépendant que de leur coordonnées relatives $|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$. On note $\mathbf{r}_i(t)$ la trajectoire des particules et on considère une translation infinitésimale du système de coordonnées : $\mathbf{r}_i \rightarrow \mathbf{r}_i + \epsilon$. Le changement du Lagrangien vaut :

$$\delta L = \sum_i \epsilon \cdot \frac{\partial L}{\partial \mathbf{r}_i} = \epsilon \cdot \frac{d}{dt} \sum_i \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i}$$

Si le système est invariant par rapport à la translation, alors $\delta L = 0$ et la quantité de mouvement totale

$$\mathbf{P} \equiv \sum_i \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i}$$

est conservée. Si l'invariance n'est vraie que dans une direction, alors seulement la composante de \mathbf{P} dans cette direction sera conservée.

1. La fonction énergie semble avoir la même définition que l'Hamiltonien H du système. Ils sont en effet égaux en valeur mais de nature différente : h est une fonction des N variables q_i , de leurs dérivées et éventuellement le temps, tandis que H est une fonction de $2N$ variables q_i, p_i et éventuellement du temps. Cette distinction est centrale pour la définition de la physique Hamiltonienne.

Moment angulaire et rotation

Enfin, considérons un système invariant par rotation autour d'un axe \mathbf{u} . Prenons une rotation infinitésimale d'angle $\delta\theta$ et notons $\delta\theta = \mathbf{u}\delta\theta$. Si on choisit l'origine du repère sur l'axe de rotation, le changement pour chaque vecteur de coordonnées est $\delta\mathbf{r}_i(t) = \delta\theta \times \mathbf{r}_i(t)$. De même, $\delta\dot{\mathbf{r}}_i(t) = \delta\theta \times \dot{\mathbf{r}}_i(t)$. Le changement du Lagrangien est :

$$\begin{aligned}\delta L &= \sum_i (\delta\theta \times \mathbf{r}_i(t)) \cdot \frac{\partial L}{\partial \mathbf{r}_i} + \sum_i (\delta\theta \times \dot{\mathbf{r}}_i(t)) \cdot \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i} \\ &= \delta\theta \cdot \sum_i \left(\mathbf{r}_i(t) \times \frac{d}{dt} \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i} + \dot{\mathbf{r}}_i(t) \times \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i} \right) \\ &= \delta\theta \cdot \sum_i \frac{d}{dt} \left(\sum_i \mathbf{r}_i(t) \times \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i} \right)\end{aligned}$$

où on a permué circulairement les produits mixtes et utilisé l'équation de Lagrange. Si le Lagrangien est invariant par rotation, alors $\delta L = 0$ et on note J la quantité conservée suivante :

$$J \equiv \sum_i \mathbf{r}_i(t) \times \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{r}}_i} = \sum_i \mathbf{r}_i \times \mathbf{p}_i. \quad (3.7)$$

J est le *moment angulaire* du système. Il est clair que sa valeur dépend du choix du centre du système de coordonnées. Si on applique $\mathbf{r}_i \rightarrow \mathbf{r}_i + \mathbf{a}$, alors $J \rightarrow J + \mathbf{a} \times \mathbf{P}$. Notons que dans le référentiel du centre de masse (c.d.m.), $\mathbf{P} = 0$. J est alors indépendant du choix de l'origine des coordonnées. Pour des raisons qui paraîtront claires plus tard, notons S la valeur de J dans le référentiel du c.d.m. Dans un référentiel où le c.d.m se déplace à une vitesse uniforme \mathbf{V} ,

$$\begin{aligned}J &= \sum_i (\mathbf{r}_i + \mathbf{V}t) \times (\mathbf{p}_i + m_i \mathbf{V}) \\ &= \sum_i \mathbf{r}_i \times \mathbf{p}_i + \mathbf{V}t \times \mathbf{P} + \sum_i m_i \mathbf{r}_i \times \mathbf{V} \\ &= S + M \mathbf{R}_{cdm} \times \mathbf{V} = S + \mathbf{R}_{cdm} \times \mathbf{P}.\end{aligned}$$

où $M = \sum_i m_i$ est la masse totale du système et \mathbf{R}_{cdm} la position du centre de masse. On décompose donc le moment angulaire total en deux parties : S , qui est indépendante du choix du repère, et $\mathbf{R}_{cdm} \times \mathbf{P}$.

3.2 Les propriétés mécaniques de la lumière

Comme nous l'avons fait pour la matière, nous établissons ici les expressions de l'énergie, de la quantité de mouvement et du moment angulaire associé à un rayonnement électromagnétique.

3.2.1 L'énergie du champ électromagnétique

Définir l'énergie du champ électromagnétique a donné lieu à de vifs débats à la fin du XIXème siècle, liés aux discussions sur la propagation d'une onde dans le vide. Dans une série de travaux pionniers, John H. Poynting a largement clarifié les discussions au sujet de l'énergie des ondes électromagnétiques, la pression de radiation, et même le moment angulaire de la lumière. Poynting faisait partie d'un groupe de physiciens mené par Heaviside, Fitzgerald, Lodge et Hertz qui travaillèrent à développer la théorie de Maxwell après sa mort en 1873. Nous reprenons ici la démarche de son article de 1884 [Poynting, 1884], qui amène à une expression de la densité d'énergie et du flux d'énergie d'un champ électromagnétique.

Considérons une distribution de charges et de courants contenus dans un volume V . En un court temps dt , une charge bougera de vdt . En utilisant l'expression de la force de Lorentz, le travail effectué sur la charge sera

$$dW = \mathbf{F} \cdot d\mathbf{l} = q(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B}) \cdot v dt = q\mathbf{E} \cdot v dt,$$

où l'on retrouve que la force magnétique ne fournit pas de travail. Notons ensuite ρ la densité de charge dans le volume ($q = \rho dV$) et $\mathbf{J} = \rho \mathbf{v}$ la densité de courant. En intégrant sur le volume V , on obtient

$$\frac{dW}{dt} = \int_V \mathbf{E} \cdot \mathbf{J} dV.$$

dW/dt est le taux auquel le travail est fourni, c'est-à-dire la puissance délivrée au système. $\mathbf{E} \cdot \mathbf{J}$ est donc la puissance délivrée par unité de volume, que l'on peut exprimer en utilisant l'équation de Maxwell-Ampère :

$$\begin{aligned} \mathbf{E} \cdot \mathbf{J} &= \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \cdot (\nabla \times \mathbf{B}) - \epsilon_0 \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \\ &= \frac{1}{\mu_0} [\mathbf{B} \cdot (\nabla \times \mathbf{E}) - \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B})] - \epsilon_0 \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \\ &= \frac{1}{\mu_0} [-\mathbf{B} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} - \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B})] - \epsilon_0 \mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{aligned}$$

On note que $\mathbf{B} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = \frac{1}{2} \frac{\partial \mathbf{B}^2}{\partial t}$ et $\mathbf{E} \cdot \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} = \frac{1}{2} \frac{\partial \mathbf{E}^2}{\partial t}$ et on obtient

$$\mathbf{E} \cdot \mathbf{J} = -\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial t} \left(\epsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2 \right) - \frac{1}{\mu_0} \nabla \cdot (\mathbf{E} \times \mathbf{B})$$

En intégrant cette équation sur le volume V et en utilisant le théorème d'Ostrogradski sur le dernier terme, elle se réécrit

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_V \frac{1}{2} \left(\epsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2 \right) dV + \frac{1}{\mu_0} \oint_S (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \cdot \mathbf{d}\mathbf{S} = -\frac{dW}{dt}, \quad (3.8)$$

On identifie deux quantités :

$$U = \frac{1}{2} \left(\epsilon_0 \mathbf{E}^2 + \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B}^2 \right) \text{ et } \Pi = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \times \mathbf{B} \quad (3.9)$$

U est la **densité d'énergie** (énergie par unité de volume) et Π est la **densité de flux d'énergie** (énergie par unité de surface par unité de temps). L'équation 3.8 est donc une équation de conservation de l'énergie qui se comprend ainsi :

Le taux de variation de l'énergie électromagnétique dans V + L'énergie qui sort du volume en traversant la surface S = L'opposé du travail total effectué par le champ sur les sources dans V .

Π est connu sous le nom de **vecteur de Poynting**. De manière intéressante, si on considère une onde plane se propageant selon un vecteur d'onde k , on voit que Π est parallèle à k . Ce n'est pas le cas de manière générale : k pointe dans la direction de la vitesse de phase alors que Π pointe dans celle de la vitesse de groupe. De nombreux exemples montrent que ces quantités sont distinctes, tel que la biréfringence ou le phare attoseconde ([[Vincenti et Quéré, 2012](#)]).

3.2.2 La quantité de mouvement de la lumière

Nous avons démontré la conservation de l'énergie du système combiné du champ et des particules. De la même façon, la quantité de mouvement de ce système doit être conservée. On note P_{part} la somme des quantités de mouvement des particules dans le volume V . La seconde loi de Newton donne :

$$\frac{dP_{part}}{dt} = \int_V \rho E + \mathbf{J} \times \mathbf{B} \, dV.$$

On utilise l'équation de Maxwell-Gauss et de Maxwell-Ampère pour écrire :

$$\begin{aligned} \rho E + \mathbf{J} \times \mathbf{B} &= \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \cdot (\nabla \cdot \mathbf{E}) + \epsilon_0 \mathbf{B} \times \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} - \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \times (\nabla \times \mathbf{B}) \\ &= \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \cdot (\nabla \cdot \mathbf{E}) + \epsilon_0 \left(-\frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) + \mathbf{E} \times \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \right) - \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \times (\nabla \times \mathbf{B}) \\ &= \frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \cdot (\nabla \cdot \mathbf{E}) + \epsilon_0 \left(-\frac{\partial}{\partial t} (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) - \mathbf{E} \times (\nabla \times \mathbf{E}) \right) - \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \times (\nabla \times \mathbf{B}). \end{aligned}$$

Finalement,

$$\frac{dP_{part}}{dt} + \epsilon_0 \frac{d}{dt} \int_V (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \, dV = \int_V \left[\frac{1}{\mu_0} \mathbf{E} \cdot (\nabla \cdot \mathbf{E}) - \epsilon_0 \mathbf{E} \times (\nabla \times \mathbf{E}) - \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} \times (\nabla \times \mathbf{B}) \right] dV.$$

Comme démontré dans la section 6.9 de [[Jackson, 1999](#)], le terme de droite est le flux du quantité de mouvement vers l'extérieur du volume V à travers la surface S . Il s'écrit à l'aide du tenseur des contraintes de Maxwell $\overset{\leftrightarrow}{T}_M$. On trouve alors une équation de conservation pour la quantité de mouvement :

$$\frac{d(P_{part} + P_{champ})}{dt} = \oint_S \mathbf{n} \cdot \overset{\leftrightarrow}{T}_M \, dS,$$

avec :

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_{\text{champ}} &= \epsilon_0 \frac{d}{dt} \int_V (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \, dV \\ &= \frac{\Pi}{c^2}, \text{ où } \Pi \text{ est donné par 3.9.} \end{aligned} \quad (3.10)$$

C'est l'essence de la démarche utilisée par Henri Poincaré en 1900 [Poincaré, 1900], où il discute de la "quantité de mouvement de [...] notre fluide fictif". Dans ce même article, Poincaré parle de la force exercée par la lumière sur la matière, notion déjà présente chez Maxwell et même chez Kepler appelée *pression électromagnétique*. On l'appelle aujourd'hui plus couramment *pression de radiation*. Poynting développa considérablement ce concept par la suite [Poynting, 1903], et nota que malgré sa faible valeur comparée à la force de gravitation, elle pourrait avoir d'importantes conséquences en astronomie. À raison : par exemple, si la pression de radiation n'avait pas été prise en compte lors du programme Viking, les deux sondes envoyées sur Mars auraient raté l'orbite de la planète d'environ 15000 kilomètres [Hecht, 2001].

3.2.3 Le moment angulaire de la lumière

Poynting, en plus de ces contributions majeures, a été le premier à envisager l'existence du moment *angulaire* de la lumière. Il fit l'analogie entre une onde électromagnétique polarisée circulairement et une onde élastique de torsion, suggérant que la lumière possède un moment angulaire et peut fournir un couple à la matière [Poynting, 1909]. Il propose à la fin de son article un dispositif expérimental constitué d'une série de lames quart d'ondes, permettant de démultiplier cet effet jusqu'à le rendre mesurable. Il conclut toutefois avec pessimisme que "*even with such multiplications, my present experience of light forces does not give me much hope that the effect could be detected, if it has the value suggested by the mechanical model*".

Il aurait donc probablement été heureux d'apprendre qu'en 1936, R. A. Beth observa cet effet avec un schéma légèrement modifié [Beth, 1936], confirmant ainsi l'existence du moment angulaire de la lumière. [Delannoy et al., 2005] réalisèrent une expérience similaire en utilisant de la soie d'araignée.

On obtient l'expression de la densité de moment angulaire du champ de la même façon que celle de la quantité de mouvement. La somme des moments angulaires des particules dans le volume V vaut :

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_{\text{part}} &= \mathbf{r} \times \mathbf{P}_{\text{part}} \\ &= \mathbf{r} \times \left(-\mathbf{P}_{\text{champ}} + \oint_S \mathbf{n} \cdot \overleftrightarrow{\mathbf{T}_M} \, dS \right), \text{ donc} \\ \mathbf{J}_{\text{part}} + \mathbf{J}_{\text{champ}} &= \oint_S \mathbf{n} \cdot (\mathbf{r} \times \overleftrightarrow{\mathbf{T}_M}) \, dS, \end{aligned}$$

avec

$$J(\mathbf{r}) = \mathbf{r} \times \mathbf{P}_{champ} = \frac{\mathbf{r} \times \mathbf{\Pi}}{c^2} = \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \quad (3.11)$$

C'est l'expression classique du moment angulaire du champ électromagnétique, la quantité qui nous intéressera pendant la majorité de cette thèse. Nous allons maintenant étudier le moment angulaire de différentes solutions de l'équation d'onde.

CHAPITRE 4

L'ÉQUATION D'ONDE ET LES MODES DU CHAMP

4.1 Ondes planes et polarisation

4.1.1 L'équation d'Helmholtz

Par simplicité, nous ne considérerons pas la présence de densités de charges ou de courant. Dans ce cas, les équations de Maxwell donnent les équations d'onde :

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E} = 0, \quad \nabla^2 \mathbf{B} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{B} = 0.$$

On considère maintenant des faisceaux monochromatiques de fréquence angulaire ω . On introduit la notation complexe :

$$\mathbf{E} = \operatorname{Re}[\mathcal{E} \exp(-i\omega t)] \quad \text{et} \quad \mathbf{B} = \operatorname{Re}[\mathcal{B} \exp(-i\omega t)],$$

qui permet d'obtenir l'équation d'Helmhotz :

$$\begin{aligned} \nabla^2 \mathcal{E} + k^2 \mathcal{E} &= 0, \\ \nabla^2 \mathcal{B} + k^2 \mathcal{B} &= 0, \end{aligned} \tag{4.1}$$

où $k = \omega/c$ est le nombre d'onde, norme du vecteur d'onde \mathbf{k} . On considère alors l'ansatz $\mathcal{E} = \mathcal{E} e^{\pm i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} = \mathcal{E} e^{\pm i(k_x x + k_y y + k_z z)}$. En l'insérant dans 4.1, on obtient

$$k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = \frac{\omega^2}{c^2}$$

On suppose k_x, k_y, k_z réels et on obtient

$$\mathbf{E} = \operatorname{Re}[\mathcal{E} \exp(\pm i \mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - i\omega t)],$$

4.1.2 La polarisation des ondes planes

qui sont appelées les ondes planes. Les solutions avec un signe + (resp. -) se propagent dans la direction de (resp. inversement à) k . Pour que ces solutions vérifient les équations de Maxwell, il reste à vérifier qu'elles sont de divergence nulle : $\nabla \cdot E = 0$. Par conséquent, $k \cdot \mathcal{E} = 0$: le champ électrique est nécessairement perpendiculaire à k , on parle d'onde transverse électrique. La direction du champ B est donnée par l'équation de Maxwell-Faraday : en notation complexe, $\nabla \times \mathcal{E} = -i\omega \mathcal{B}$. Ainsi, B est perpendiculaire à E et k .

4.1.2 La polarisation des ondes planes

On choisit un repère cartésien tel que $k = e_z$. Un champ électrique transverse s'écrit :

$$E = \begin{pmatrix} E_{0x} \cos(\omega t - kz) \\ E_{0y} \cos(\omega t - kz - \phi) \\ 0 \end{pmatrix}$$

Le champ électrique décrit donc une ellipse dans le plan transverse. S'il la parcourt dans le sens trigonométrique autour de k , on dit que la polarisation est elliptique gauche (PEG). Inversement, dans le sens des aiguilles d'une montre la polarisation est elliptique droite (PED). On peut se placer dans le repère des axes de l'ellipse de sorte à ce que le champ s'écrive :

$$E = \begin{pmatrix} E_{0x} \cos(\omega t - kz) \\ \pm E_{0y} \sin(\omega t - kz) \\ 0 \end{pmatrix}$$

Le signe + représente une PEG et - une PED. Dans le cas particulier où $E_{0x} = E_{0y}$, l'ellipse devient un cercle et on dit que la polarisation est circulaire gauche (PCG) ou droite (PCD). Enfin, notons que la phase ϕ peut être nulle. Dans ce cas, la polarisation est rectiligne. Cette polarisation peut être construite en effectuant la somme d'une PEG et d'une PED. Inversement, une onde polarisée elliptiquement peut être vue comme la superposition de deux polarisations rectilignes.

4.1.3 Moment angulaire d'une onde plane circulaire

Intéressons nous maintenant au moment angulaire porté par ces ondes planes. L'équation 3.7 donne son moment angulaire selon l'axe de propagation :

$$\begin{aligned} J_z &= (\mathbf{r} \times \boldsymbol{\Pi}) \cdot e_z \\ &= \frac{1}{\mu_0} (\mathbf{r} \times [\mathbf{E} \times \mathbf{B}]) \cdot e_z \end{aligned}$$

Il est clair que pour une onde plane J_z s'annule. Ceci contredit ce qui est observé dans l'expérience de Beth [Beth, 1936] déjà mentionnée. En fait, ce cas est singulier :

Π_x et Π_y sont nuls alors que l'extension transverse de l'onde est infinie. On est donc confrontés à une indétermination du type $0 \times \infty$. Ce problème peut être résolu en restreignant le problème à un volume V où l'on prend en compte rigoureusement les effets de bords, puis en faisant tendre les dimensions du volume vers l'infini : voir [Stewart, 2005]. Une autre approche intéressante est celle de [Mansuripur, 2005], qui considère 4 ondes planes se propageant avec un angle θ par rapport à z dans chacun des quadrants de (x,y) . Chacune de ces ondes ayant un vecteur d'onde formant un angle avec z , J_z est non nul. Quand on somme le moment angulaire de ces 4 ondes, si θ est assez petit on obtient une quantité ne dépendant pas de θ . Il reste ensuite à faire tendre θ vers 0 pour retrouver l'onde plane comme cas limite, avec un moment angulaire non nul.

Remarquons pour terminer que dans l'expérience de Beth, la lumière transmet du moment angulaire à un objet qui se met à tourner *sur lui-même*, et pas par rapport au centre du faisceau. Ceci est cohérent avec la structure d'une onde plane : dans le plan transverse, son profil ne dépend pas du tout des coordonnées (x,y) . C'est bien sa polarisation, c'est-à-dire sa structure vectorielle intrinsèque, qui lui donne du moment angulaire.

4.2 L'approximation paraxiale

En optique géométrique, un rayon est appelé *paraxial* son inclinaison par rapport à l'axe optique est faible. En optique ondulatoire paraxiale, le spectre angulaire d'une onde doit être composé d'ondes planes paraxiales par rapport à la direction de propagation de l'onde. Cette condition est vérifiée dans la plupart des expériences de GHOE. Nous allons voir qu'elle permet de simplifier l'équation d'Helmholtz et d'en trouver des solutions.

On commence par transformer l'équation d'Helmholtz vectorielle en équation scalaire. Pour ce faire, on considère une onde de polarisation transverse à l'axe optique. On écrit alors :

$$\mathcal{V} = t\zeta(\mathbf{r}, z), \quad (4.2)$$

où \mathcal{V} est une grandeur vectorielle telle que le champ électrique, le champ magnétique ou le vecteur potentiel, t le vecteur de polarisation transverse unitaire et ζ une grandeur scalaire fonction des deux coordonnées de l'espace transverse. En injectant 4.2 dans l'équation de Helmholtz, on obtient :

$$\nabla^2 \zeta + k^2 \zeta = 0. \quad (4.3)$$

Pour une onde paraxiale, le vecteur d'onde k est principalement dirigé sur l'axe optique e_z :

$$k_z = \sqrt{k^2 - \kappa^2} \approx k - \frac{\kappa^2}{2k}.$$

On choisit l'ansatz suivant :

$$\xi(\mathbf{r}) = u(\mathbf{r}, z) \exp(ikz). \quad (4.4)$$

$u(\mathbf{r}, z)$ est une fonction d'amplitude. Elle peut varier avec la distance z , par diffraction ou effets de propagation, mais ces variations resteront faibles comparées à celles de $\exp(ikz)$. On injecte 4.4 dans l'équation 4.3 pour obtenir :

$$\nabla_t^2 u + \frac{\partial^2}{\partial z^2} u + 2ik \frac{\partial}{\partial z} u = 0. \quad (4.5)$$

L'approximation paraxiale consiste à négliger $\frac{\partial^2}{\partial z^2} u$ par rapport aux autres termes de 4.5, puisque u varie lentement avec z . Comparons les différents termes :

$$\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} u \right| \ll k \left| \frac{\partial}{\partial z} u \right| \quad (4.6)$$

Cette inégalité est vérifiée si le profil varie lentement avec z . En effet, la dérivée seconde de u sera plus faible que sa dérivée première multipliée par le nombre d'onde.

$$\left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} u \right| \ll |\nabla_t^2 u| \quad (4.7)$$

Cette condition est problématique si on l'applique à l'équation d'Helmholtz pour le champ électrique. Un champ électrique dans le vide a une divergence nulle, ce qui implique que sa divergence dans la direction transverse est nulle : $\nabla_t E = 0$. Le Laplacien transverse est alors également nul, ce qui contredit l'inégalité 4.7. [Davis, 1979] montre que ce problème peut être contourné en considérant à la place le potentiel vecteur A dans la jauge de Lorenz. Il est défini par :

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A}, \quad (4.8)$$

ce qui avec l'équation de Maxwell-Faraday permet d'écrire :

$$\nabla \left(\mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A} \right) = 0. \quad (4.9)$$

Il existe donc un potentiel scalaire Φ défini par :

$$\nabla \Phi = - \left(\mathbf{E} + \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{A} \right). \quad (4.10)$$

Les potentiels Φ et \mathbf{A} ne sont pas définis de manière unique. Pour les fixer, on utilise une condition de jauge. La jauge de Lorenz est donné par :

$$\nabla \cdot \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \Phi = 0. \quad (4.11)$$

Avec cette condition et les équations de Maxwell, on obtient une équation d'Helmholtz pour le potentiel vecteur :

$$\nabla^2 \mathbf{A} + k^2 \mathbf{A} = 0,$$

où on a utilisé l'ansatz $A = \operatorname{Re}[\mathcal{A} \exp(-i\omega t)]$. L'inégalité 4.7 est alors vérifiée avec $\mathcal{V} = A = t\zeta(r, z) = tu(r, z) \exp(ikz)$. On peut donc négliger $\frac{\partial^2}{\partial z^2} u$ et on obtient l'équation d'onde paraxiale :

$$\nabla_t^2 u + 2ik \frac{\partial}{\partial z} u = 0. \quad (4.12)$$

Une fois A obtenu, on peut retrouver les champs électrique et magnétique. Avec les notations complexes $E = \operatorname{Re}[\mathcal{E} \exp(-i\omega t)]$, $B = \operatorname{Re}[\mathcal{B} \exp(-i\omega t)]$ et $\Phi = \operatorname{Re}[\phi \exp(-i\omega t)]$, 4.10 se réécrit :

$$\mathcal{E} = -\nabla\phi + i\omega\mathcal{A} \quad (4.13)$$

$$= -\nabla \left(-\frac{c^2 \nabla \cdot \mathcal{A}}{i\omega} \right) + i\omega\mathcal{A} \quad (4.14)$$

$$= i\omega \left(\mathcal{A} + \frac{\nabla(\nabla \cdot \mathcal{A})}{k^2} \right), \quad (4.15)$$

et

$$\mathcal{B} = \nabla \times \mathcal{A}. \quad (4.16)$$

4.3 Les modes de Hermite-Gauss et de Laguerre-Gauss

4.3.1 Modes de Hermite-Gauss

Une solution de l'équation d'onde paraxiale 4.12 couramment employé est la famille des modes de Hermite-Gauss (HG). On se place en coordonnées cartésiennes et comme expliqué plus haut, on écrit le vecteur potentiel :

$$\mathcal{A} = e_x u(x, y, z) \exp(ikz),$$

où on a choisi la polarisation transverse t selon e_x . Les modes de HG sont obtenus en séparant les variables transverses :

$$u_{nm}^{HG}(x, y, z) = u_n^{HG}(x, z) u_m^{HG}(y, z),$$

où n et m sont les indices du mode dans chacune des directions transverses. u_n^{HG} et u_m^{HG} obéissent chacun à l'équation d'onde paraxiale à une dimension ; par exemple selon x on a :

$$\left(\nabla_t^2 + 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right) u_n^{HG}(x, z) = 0.$$

On vérifie que le champ suivant est une solution normalisée de cette équation :

$$u_n^{HG}(x, z) = \frac{C_n^{HG}}{\sqrt{w(z)}} \exp \left[ik \frac{x^2 z}{2(z_R^2 + z^2)} \right] \exp \left(-\frac{x^2}{w^2(z)} \right) \quad (4.17)$$

$$\times \exp \left[-i \left(n + \frac{1}{2} \right) \chi(z) \right] H_n \left(\frac{\sqrt{2}x}{w(z)} \right). \quad (4.18)$$

Dans cette expression on a noté :

- $C_n^{HG} = \sqrt{1/(2^n n!)}(2/\pi)^{(1/4)}$ la constante de normalisation
- $w(z) = w_0\sqrt{1 + (z/z_R)^2}$ la largeur à 1/e du faisceau à une position z donnée.
 $w_0 = w(0)$ est sa largeur au foyer et est appelé le *waist* du mode. $z_R = \pi w_0/\lambda$ est la longueur de Rayleigh.
- $\chi(z) = \tan(z/z_R)$ est la phase de Gouy, qui décrit le saut de phase de π d'un faisceau au passage du foyer.
- H_n est le polynôme de Hermite d'ordre n .

On remarquera que le mode $(0,0)$ n'est autre que le mode Gaussien usuel. Grâce aux propriétés d'orthogonalité des polynômes de Hermite, ces modes forment une base complète du champ. Tout champ électrique peut donc se décomposer comme une somme de modes de Hermite-Gauss. Quelques uns de ces modes sont représentés sur la figure 10.7.

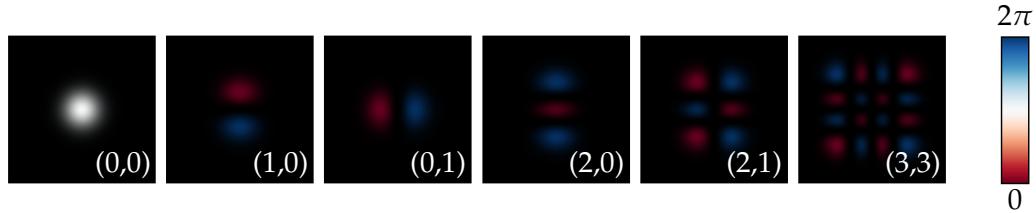


FIGURE 4.1 – Modes de Hermite-Gauss pour différentes valeurs de (n,m) . De gauche à droite, $(n,m) = (0,0), (1,0), (0,1), (2,0), (2,1), (3,3)$. Ces profils représentent à la fois l'intensité et la phase du mode : la couleur d'un pixel est donnée par la phase en ce point (de 0 à 2π) tandis que la luminosité d'un pixel est l'intensité. En pratique, on trace la phase en deux dimensions puis on multiplie la valeur RGB de chaque point par l'intensité normalisée.

4.3.2 Modes de Laguerre-Gauss

Les modes de HG sont fondamentaux en optique et particulièrement en physique des lasers, mais ils ne présentent pas de moment angulaire particulier, au contraire des modes de Laguerre-Gauss que nous présentons ici. Ils apparaissent naturellement en coordonnées cylindriques, notées (r,θ,z) . L'équation d'onde paraxiale s'écrit :

$$\left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial^2 r} + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2}{\partial^2 \theta} + 2ik \frac{\partial}{\partial z} \right) u_{\ell,p}^{LG} = 0.$$

La solution normalisée de cette équation est donnée par :

$$u_{\ell,p}^{LG}(r,\theta,z) = \frac{C_{\ell,p}}{w(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{|\ell|} \exp \left(-\frac{r^2}{w^2(z)} \right) L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) \times \exp(i\ell\theta) \exp \left(-ik \frac{r^2}{2R(z)} \right) \exp(-ikz) \exp(i(2p + |\ell| + 1)\chi(z)), \quad (4.19)$$

où on a noté les paramètres :

- ℓ l'index azimutal du mode,
- p l'index radial du mode,
- $R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z} \right)^2 \right]$ est le rayon de courbure.
- $C_{\ell,p}$ est une constante de normalisation qui vaut $C_{\ell,p} = \sqrt{2p! / [\pi(1 + \delta_{0\ell})(p + |l|)!]}$, où $\delta_{0\ell}$ est le delta de Kronecker.
- $L_p^{|\ell|}$ est le polynôme de Laguerre généralisé, d'où ces modes tiennent leur nom.
- Les grandeurs $w(z)$ et $\chi(z)$ sont les mêmes que celles données plus haut (4.18).

On utilise ensuite 4.15 et 4.16 pour obtenir le champ électromagnétique. [Arora et Lu, 1994] montrent que dans l'approximation paraxiale, les composantes du champ s'écrivent :

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_x &= i\omega \left(\mathcal{A}_x + \frac{1}{k^2} \frac{\partial^2 \mathcal{A}_x}{\partial x^2} \right) \approx i\omega u_{\ell,p}^{LG} e^{-ikz} \\ \mathcal{E}_y &= \frac{i\omega}{k^2} \frac{\partial^2 \mathcal{A}_x}{\partial y \partial x} \approx 0 \\ \mathcal{E}_z &= \frac{i\omega}{k^2} \frac{\partial^2 \mathcal{A}_x}{\partial z \partial x} \approx \frac{\omega}{k} \frac{\partial \mathcal{A}_x}{\partial x} \\ &= \frac{\omega e^{-ikz}}{k} \left(\cos \theta \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial r} - \frac{\sin \theta}{r} \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial \theta} \right) \\ \mathcal{B}_x &= 0 \\ \mathcal{B}_y &= \frac{\partial \mathcal{A}_x}{\partial z} \approx -ik u_{\ell,p}^{LG} e^{-ikz} \\ \mathcal{B}_z &= -\frac{\partial \mathcal{A}_x}{\partial y} = -e^{-ikz} \left(\sin \theta \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial r} - \frac{\cos \theta}{r} \frac{\partial u_{\ell,p}^{LG}}{\partial \theta} \right)\end{aligned}$$

On note que le champ électrique a une composante non nulle selon l'axe de propagation. C'est une condition nécessaire à la présence de moment angulaire : si le champ est purement transverse et d'extension finie, $\mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) \cdot \mathbf{e}_z$ s'annule et le moment angulaire est nul. La composante dominante est celle selon x . En pratique, il est courant de ne considérer qu'elle, on écrira alors $\mathcal{LG}_{(\ell,p)} \approx E_x \mathbf{x}$ [Lax et al., 1975]. Le champ électrique est alors égal à $u_{\ell,p}^{LG}$ à une constante de normalisation près. On obtient à partir de E le profil d'intensité et de phase de ces modes, tracés pour différentes valeurs de ℓ et p sur la figure 4.2.

On voit directement à quoi correspondent les index azimutaux et radiaux d'un mode : ℓ est le nombre de sauts de phase effectués quand on va de $\theta = 0$ à 2π ,

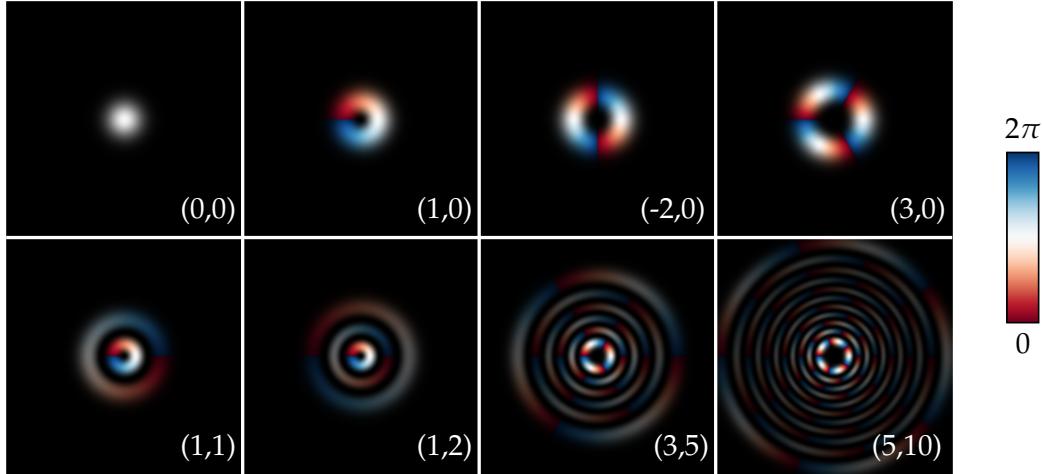


FIGURE 4.2 – Profils transverses des modes de Laguerre-Gauss tracés pour différentes valeurs de (ℓ, p) . De haut en bas et de gauche à droite, $(\ell, p) = (0,0), (1,0), (-2,0), (3,0), (1,1), (1,2), (3,5), (5,10)$. Ces profils représentent à la fois l'intensité et la phase du mode : la couleur d'un pixel est donnée par la phase en ce point (de 0 à 2π) tandis que la luminosité d'un pixel est l'intensité. En pratique, on trace la phase en deux dimensions puis on multiplie la valeur RGB de chaque point par l'intensité normalisée.

tandis que $p + 1$ est le nombre d'anneaux concentriques du mode. Une caractéristique importante des modes de Laguerre-Gauss est le zéro d'intensité en leur centre pour $\ell \neq 0$. C'est une conséquence du terme $\exp(i\ell\theta)$: en $r = 0$, la phase n'est pas définie, ce qui se traduit nécessairement par un zéro d'intensité.

De même que les modes de HG, les modes de Laguerre-Gauss constituent une base orthonormée :

$$\int_{r=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{2\pi} \mathcal{L}\mathcal{G}_{\ell,p} r dr d\theta = 1, \text{ et} \\ \int_{r=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{2\pi} \mathcal{L}\mathcal{G}_{\ell_1,p_1} \mathcal{L}\mathcal{G}_{\ell_2,p_2}^* r dr d\theta = \delta_{\ell_1\ell_2} \delta_{p_1p_2}. \quad (4.20)$$

Remarquons ici l'importance de deux paramètres non mentionnés dans ces équations : la largeur $w(z)$ et le rayon de courbure $R(z)$ du mode. En effet, la relation d'orthogonalité 4.20 n'est valable que si les deux modes en question ont les mêmes $w(z)$ et $R(z)$. Une décomposition s'effectue donc pour un choix de ces paramètres, on parle parfois de choix de la base Gaussienne équivalente. Ces deux paramètres peuvent être combinés dans le *rayon de courbure complexe* q :

$$q = z + iz_r = z + i\frac{\pi w_0^2}{\lambda},$$

On travaillera souvent avec des champs au foyer, dont le rayon de courbure est infini. On a donc $q = i\frac{\pi w_0^2}{\lambda}$ et le seul paramètre ajustable restant est w_0 , le waist Gaussien.

Pour choisir $w(z)$, il faut pouvoir le relier à une quantité physique. Intéressons nous pour commencer au cas d'un mode $(\ell, 0)$, dont le profil transverse ne présente qu'un seul anneau. Une grandeur facilement mesurable est le rayon de cet anneau, défini par la distance à l'origine r_{\max} pour laquelle l'intensité est maximale. Remarquons que $\forall \ell$, $L_0^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) = 1$, ce qui permet d'écrire l'intensité :

$$I_\ell(r, \theta, z) = \frac{C_{\ell,0}^2}{w^2(z)} \left(\frac{r\sqrt{2}}{w(z)} \right)^{2|\ell|} e^{\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)} \right)}$$

Le maximum d'intensité le long d'un rayon est obtenue pour $\partial I_\ell / \partial r = 0$, i.e.

$$\left(\frac{2|\ell|}{r} - \frac{4r}{w^2(z)} \right) \left(\frac{r}{w(z)} \right)^{2|\ell|} e^{\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)} \right)} = 0$$

Dont la solution est :

$$r_{\max} = w(z) \sqrt{\frac{|\ell|}{2}}. \quad (4.21)$$

Ce qui permet de déterminer de manière univoque $w(z)$ si on connaît ℓ .

Le cas $p \neq 0$ est plus compliqué à cause du terme $L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right)$ qui n'est pas nul. On peut quand même écrire l'équation vérifiée par r_{\max} :

$$\left[\frac{2|\ell|}{r} - \frac{4r}{w^2(z)} \right] L_p^{|\ell|} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) - \frac{8r}{w^2(z)} L_{p-1}^{|\ell|+1} \left(\frac{2r^2}{w^2(z)} \right) = 0$$

où on a utilisé la relation $\frac{d}{dx} [L_p^{|\ell|}(x)] = -L_{p-1}^{|\ell|+1}(x)$. Cette équation peut être résolue au cas par cas mais ne semble pas présenter de solution générale.

4.3.3 Moment angulaire d'un faisceau de Laguerre-Gauss

Le lien entre modes de Laguerre-Gauss et moment orbital angulaire est dû à [Allen et al., 1992], même si l'existence des modes de Laguerre-Gauss comme solutions de l'équation d'onde paraxiale était connue avant leur travail. La présence de moment angulaire peut être classiquement en s'intéressant à la forme bien particulière du vecteur de Poynting d'un mode de Laguerre-Gauss.

Pour visualiser ce lien, commençons par calculer les fronts d'ondes d'un mode de Laguerre-Gauss, qui sont normaux au vecteur de Poynting. Un front d'onde est par définition une surface d'équiphasse. En reprenant l'expression 4.19, on obtient directement leur définition :

$$\ell\theta - k \frac{r^2}{2R(z)} - kz + \psi_{\ell,p} = C^{\text{ste}}.$$

Commençons par considérer un faisceau collimaté : le rayon de courbure est alors infini et la phase de Gouy est constante. L'équation prend alors la forme très simple

4.3.3 Moment angulaire d'un faisceau de Laguerre-Gauss

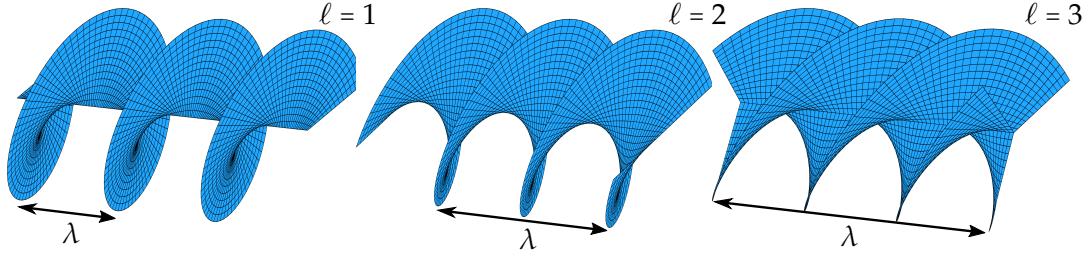


FIGURE 4.3 – Fronts d'ondes de modes de Laguerre-Gauss pour $\ell = 1,2,3$. Les échelles dans la direction de propagation sont pas les mêmes - elles sont précisées par rapport à la longueur d'onde λ .

d'une surface *hélicoïdale*. Ces surfaces sont tracées sur la figure 4.3 pour $\ell = 1,2,3$. Le front d'onde d'un mode d'indice ℓ est donc constitué de ℓ hélices entremêlées.

Il est alors facile de visualiser le vecteur de Poynting : il est normal à la surface d'onde en tout point, comme on le voit sur la Figure 4.4. On voit bien que pour une distance r fixée par rapport au centre, ce vecteur décrit une spirale autour de l'axe de propagation. Π donnant la direction de propagation de l'énergie, il est assez intuitif dans cette image qu'un mode de Laguerre-Gauss puisse transmettre un mouvement de rotation à un objet.

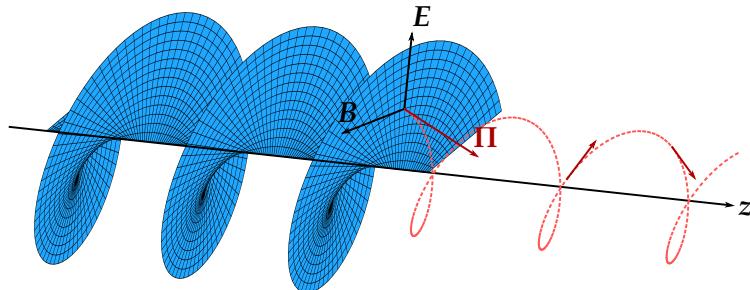


FIGURE 4.4 – Vecteur de Poynting d'un mode de Laguerre-Gauss $\ell = 1$. Sa définition est $\Pi \propto \mathbf{E} \times \mathbf{B}$. Le trait rose pointillé représente l'évolution de sa direction au cours de la propagation pour une distance r choisie.

On peut calculer explicitement l'expression du vecteur de Poynting. On obtient [Allen et al., 1992] :

$$\Pi = c |\mathcal{LG}_{\ell,p}|^2 \left(\frac{zr}{z_R^2 + z^2} \mathbf{e}_r + \frac{\ell}{kr} \mathbf{e}_\theta + \mathbf{e}_z \right).$$

Cette expression, contrairement aux deux figures tracées plus haut, prend en compte le rayon de courbure du faisceau, ce qui explique la composante selon \mathbf{e}_r . La composante selon \mathbf{e}_θ est source de moment angulaire, et celle selon \mathbf{e}_z est simplement la quantité de mouvement portée par l'onde. Pour un faisceau collimaté, on obtient directement l'angle entre le vecteur de Poynting et l'axe de propagation :

$$\alpha \sim \tan \alpha = \frac{\ell}{kr}.$$

Pour un rayon donné, le vecteur de Poynting forme donc un angle constant avec l'axe de propagation. Cet angle est communément appelé angle d'inclinaison (*pitch angle* en anglais), et a été mesuré expérimentalement [Leach et al., 2006].

Dans [Padgett et Allen, 1995], les auteurs remarquent qu'étudier le vecteur de Poynting pour un r constant n'a pas vraiment de sens pour un faisceau divergent. Si on a affaire à un faisceau qui diverge, le chemin "emprunté" par l'énergie du champ n'est pas donné par l'expression ci-dessus. Il faut plutôt choisir un rayon $r(z)$ tel que $r(z)/w(z)$ soit constant au court de la propagation.

Pour un mode $p = 0$, il est assez naturel de choisir $r_{\max}(z)$, défini plus haut (4.21). En substituant cette expression, on peut montrer [Padgett et Allen, 1995] qu'après une propagation jusqu'à l'abscisse z , le vecteur de Poynting en r_{\max} a tourné exactement de $\arctan(z/z_R)$ autour de l'axe optique. Cette rotation ne dépend pas de ℓ : le vecteur de Poynting en r_{\max} tourne donc toujours exactement de π au passage du foyer.

Ces représentations du vecteur de Poynting illustrent le lien entre MAO et faisceaux de LG, mais elles peuvent également le démontrer quantitativement. Π donne en effet directement la densité de moment angulaire $\mathbf{J} = \mathbf{r} \times \Pi/c^2$ (3.11) :

$$\mathbf{J} = |\mathcal{LG}_{\ell,p}|^2 \left(-\frac{\ell}{\omega} \frac{z}{r} \mathbf{e}_r + \frac{r}{c} \left(\frac{z^2}{z^2 + z_R^2} - 1 \right) \mathbf{e}_\theta + \frac{\ell}{\omega} \mathbf{e}_z \right).$$

Les termes selon \mathbf{e}_r et \mathbf{e}_θ sont symétriques par rapport à l'axe, ils s'annulent donc lorsqu'on intègre sur le profil transverse du faisceau. Il ne reste donc que la composante selon \mathbf{e}_z .

On remarque ici une différence avec le cas de l'onde plane polarisée circulairement présenté à la page 20. À cause de la dépendance spatiale de $\mathcal{LG}_{\ell,p}$, \mathbf{J} dépend de la coordonnée radiale. Des expériences réalisées montrent un effet similaire : [He et al., 1995] ont mis en rotation des particules avec un faisceau de LG, qui tournaient *autour* du centre du faisceau, et non pas sur elle-mêmes.

On en conclut qu'il y a deux types de moment angulaires de nature différente. Pour expliquer cette différence, il est nécessaire d'adopter une description quantique. On peut déjà noter que le rapport entre le flux de moment angulaire et le flux d'énergie est $J_z/(\Pi_z/c) = \ell/\omega$. Si on considère le champ comme constitué de N photons, et qu'on note J_{avg} le moment angulaire moyen par photon, alors le moment angulaire total du champ est $N J_{avg}$. L'énergie totale vaut $N \hbar \omega$, donc le rapport entre moment angulaire et énergie vaut $J_{avg}/(\hbar \omega)$. Pour être en accord avec le résultat classique, on obtient $J_{avg} = \ell \hbar$. Il reste à savoir si le moment angulaire est une quantité bien définie pour un photon, et si chacun des photons du champ porte effectivement $\ell \hbar$. Autrement dit, il faut comprendre comment se manifeste la grandeur macroscopique J_z au niveau microscopique.

LE MOMENT ANGULAIRE EN MÉCANIQUE QUANTIQUE

Dans cette partie nous discuterons de la définition du moment angulaire en mécanique quantique. Comme nous le verrons, cette approche est complémentaire de la précédente.

5.1 Symétries et lois de conservation

Nous avons déjà vu en mécanique Lagrangienne (partie 3.1.2) que les grandeurs conservées du système étaient reliées à ses symétries. Nous étudierons ici ce lien dans une approche quantique.

5.1.1 Définition d'une symétrie

Symétries du système

Commençons par définir la symétrie d'un système quantique. Notons $|\psi_1\rangle$ son état de départ et $|\psi_2\rangle$ son état après un temps t .

L'opérateur d'*évolution* ou de *translation temporelle*, que l'on note \hat{U} , est défini par :

$$|\psi_2\rangle = \hat{U}(t,0)|\psi_1\rangle.$$

Appliquons maintenant un certain nombre d'opérations sur le système, telles que des rotations, des translations, des inversions, etc. On fait alors correspondre au point $r_0(x,y,z)$ de l'espace le point $r'_0(x',y',z')$. On note \mathcal{Q} cette opération :

$$r'_0 = \mathcal{Q}r_0.$$

Dans ces nouvelles coordonnées, l'état du système devient $\forall \mathbf{r}, \psi'(\mathbf{r}) = \psi(\mathcal{Q}^{-1}\mathbf{r})$, où ψ est la fonction d'onde initiale. On définit alors l'opérateur \hat{Q} associé à l'opération géométrique \mathcal{Q} . \hat{Q} agit dans l'espace des états :

$$|\psi'\rangle = \hat{Q}|\psi\rangle.$$

Si le système est symétrique par rapport à \hat{Q} , alors il évolue de la même façon qu'on l'applique ou non. On note $|\psi'_1\rangle = \hat{Q}|\psi_1\rangle$ et $|\psi'_2\rangle = \hat{Q}|\psi_2\rangle$. Si le système est symétrique par rapport à \hat{Q} , ce schéma est vérifié :

$$\begin{array}{ccc} |\psi_1\rangle & \xrightarrow{\hat{Q}} & |\psi'_1\rangle \\ \hat{U} \downarrow & & \downarrow \hat{U} \\ |\psi_2\rangle & \xrightarrow{\hat{Q}} & |\psi'_2\rangle \end{array}$$

On a alors :

$$\begin{aligned} |\psi'_2\rangle &= \hat{U}|\psi'_1\rangle, \text{ soit} \\ \hat{Q}|\psi_2\rangle &= \hat{U}\hat{Q}|\psi_1\rangle, \text{ ou encore} \\ \hat{Q}\hat{U}|\psi_1\rangle &= \hat{U}\hat{Q}|\psi_1\rangle. \end{aligned}$$

On en conclut que \hat{U} et \hat{Q} commutent.

Pour un temps infinitésimal dt , l'équation de Schrödinger donne :

$$|\psi(t+dt)\rangle = \hat{U}(t+dt,t)|\psi(t)\rangle = (\hat{1} - \frac{i}{\hbar}\hat{H}dt)|\psi(t)\rangle,$$

où \hat{H} est l'hamiltonien du système. Ceci montre que \hat{H} et \hat{Q} commutent :

$$[\hat{H}, \hat{Q}] = 0,$$

Les symétries du système sont donc toutes les opérations qui commutent avec son hamiltonien.

Symétries d'un état

Un état $|\psi_1\rangle$ est dit symétrique par rapport à l'opérateur \hat{Q} si $\hat{Q}|\psi_1\rangle$ et $|\psi_1\rangle$ sont physiquement les mêmes. Autrement dit, ces états sont égaux à facteur de phase près :

$$\hat{Q}|\psi_1\rangle = e^{i\delta}|\psi_1\rangle.$$

5.1.2 Relation entre symétrie et loi de conservation

Considérons un état $|\psi_1\rangle$ symétrique par rapport à \hat{Q} . On suppose que le système est également symétrique. Après un temps t , on obtient l'état $|\psi_2\rangle$:

$$\begin{aligned} |\psi_2\rangle &= \hat{U}(t,0) |\psi_1\rangle \\ \hat{Q} |\psi_2\rangle &= \hat{Q} \hat{U}(t,0) |\psi_1\rangle \\ &= \hat{U}(t,0) \hat{Q} |\psi_1\rangle \text{ en utilisant la symétrie du système,} \\ &= \hat{U}(t,0) e^{i\delta} |\psi_1\rangle = e^{i\delta} \hat{U}(t,0) |\psi_1\rangle \\ &= e^{i\delta} |\psi_2\rangle. \end{aligned}$$

On vient de vérifier qui si la propriété de symétrie de l'état est vraie initialement, elle est vraie à n'importe quel autre instant. On a donc une *une loi de conservation* des symétries. Si le système est initialement dans un état à caractère symétrique **et** que l'hamiltonien du système est symétrique par rapport à cette opération, **alors** l'état du système aura ce même caractère symétrique à tout instant. C'est de cette relation que découlent les lois de conservation en mécanique quantique que nous détaillons ci-dessous.

5.1.3 La parité et l'opérateur inversion

Commençons par appliquer notre résultat au cas de l'opérateur inversion \hat{P} , associé à l'opération géométrique qui change (x,y,z) en $(-x, -y, -z)$. Supposons que l'on ait un état symétrique par rapport à \hat{P} :

$$\hat{P} |\psi_1\rangle = e^{i\delta} |\psi_1\rangle.$$

Si on applique deux fois l'opérateur, on obtient bien sûr l'état de départ

$$|\psi_1\rangle = \hat{P} \cdot \hat{P} |\psi_1\rangle = (e^{i\delta})^2 |\psi_1\rangle.$$

On en déduit que $(e^{i\delta})^2 = 1$, c'est à dire $e^{i\delta} = \pm 1$. On voit donc que seulement deux cas sont possibles :

$$\hat{P} |\psi_1\rangle = |\psi_1\rangle \text{ ou } \hat{P} |\psi_1\rangle = -|\psi_1\rangle.$$

Si $\hat{P} |\psi_1\rangle = |\psi_1\rangle$, on dit que $|\psi_1\rangle$ est de parité *paire*, et si $\hat{P} |\psi_1\rangle = -|\psi_1\rangle$, on dit que $|\psi_1\rangle$ est de parité *impaire*. \hat{P} est également appelé opérateur parité. Notons que la grande majorité des lois physiques sont symétriques par rapport à \hat{P} . En fait, seule l'interaction faible ne respecte pas cette propriété¹. Pour tout ce qui va nous intéresser par

1. Cette violation de la parité dans l'interaction faible est importante dans l'étude de molécules chirales, dont il sera question à la partie ?? En effet, elle induit une différence d'énergie entre deux énantiomères [Yamagata, 1966], qui pourrait être à l'origine de l'homochiralité de la vie [Bonner, 2000].

la suite, on considérera toujours que l'hamiltonien de notre système est symétrique par rapport à \hat{P} . On en conclut que si le système a une parité définie à un instant, alors il gardera la même parité. C'est ce qu'on appelle *la conservation de la parité*, très importante dans les interactions lumière-matière.

5.1.4 Le moment angulaire et l'opérateur rotation

Nous pouvons appliquer la même démarche cette fois en utilisant l'opérateur rotation $\hat{R}_z(\theta)$, associé à la rotation géométrique du système d'un angle θ autour de l'axe z , notée $\mathcal{R}_z(\theta)$. Dans un problème à symétrie cylindrique, un tel opérateur laisse le système inchangé, à un terme de phase près :

$$\hat{R}_z(\theta) |\psi_1\rangle = e^{i\delta} |\psi_1\rangle.$$

Si on applique deux fois $\hat{R}_z(\theta)$, ce qui revient à appliquer $\hat{R}_z(2\theta)$, on obtient :

$$\hat{R}_z(\theta)\hat{R}_z(\theta) |\psi_1\rangle = \hat{R}_z(\theta)e^{i\delta} |\psi_1\rangle = e^{i\delta}\hat{R}_z(\theta) |\psi_1\rangle = e^{i2\delta} |\psi_1\rangle.$$

La phase δ est donc nécessairement proportionnelle à θ . Ainsi,

$$\hat{R}_z(\theta) |\psi_1\rangle = e^{im\theta} |\psi_1\rangle, \quad (5.1)$$

où le facteur de proportionnalité m est un nombre réel.

Nous savons donc que si le système est symétrique par rapport à la rotation autour de l'axe z , et que l'état initial vérifie 5.1, alors cette relation reste vraie au cours du temps. La quantité m est donc importante : c'est une constante du mouvement. Nous verrons juste après que m est en fait le moment angulaire du système par rapport à l'axe z

Le raisonnement effectué en utilisant \hat{P} et $\hat{R}_z(\theta)$ pour démontrer la conservation respectivement de la parité et du moment angulaire s'applique pour d'autres opérateurs. Ainsi, la symétrie par rapport à $\hat{D}_x(a)$, opérateur qui translate le système d'une distance a selon l'axe x , donne la conservation de $\hbar k_x$, la quantité de mouvement selon x . De même, $\hat{D}_t(\tau)$, l'opérateur de translation temporelle τ , donne la conservation de $\omega\hbar$, l'énergie du système.

5.2 L'opérateur moment angulaire

Nous avons démontré dans la partie précédente que la quantité m était une grandeur constante du mouvement. Nous allons la relier au moment angulaire.

De façon classique, la composante selon x du moment angulaire \mathcal{J} s'écrit (voir section 3.7) :

$$\mathcal{J}_x = yp_z - zp_y.$$

Pour obtenir une observable quantique, y , z , p_y et p_z sont remplacés par les observables \hat{y} , \hat{z} , \hat{p}_y et \hat{p}_z . \hat{y} et \hat{p}_z , de même que \hat{z} et \hat{p}_y , commutent, on obtient donc directement l'opérateur \hat{J}_x :

$$\hat{J}_x = \hat{y}\hat{p}_z - \hat{z}\hat{p}_y.$$

En prenant en compte les autres composantes de \mathcal{J} on obtient

$$\hat{\mathbf{J}} = \hat{\mathbf{r}} \times \hat{\mathbf{p}},$$

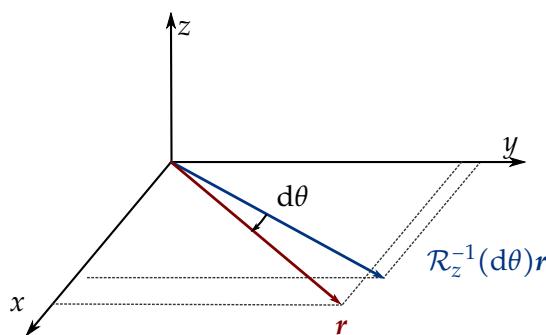
où $\hat{\mathbf{r}}$ et $\hat{\mathbf{p}}$ sont les observables de position et d'impulsion habituelles. À partir de leurs règles de commutation canoniques, les relations de commutation pour les composantes de $\hat{\mathbf{J}}$ sont :

$$\begin{aligned} [\hat{J}_x, \hat{J}_y] &= i\hbar \hat{J}_z \\ [\hat{J}_y, \hat{J}_z] &= i\hbar \hat{J}_x \\ [\hat{J}_z, \hat{J}_x] &= i\hbar \hat{J}_y \end{aligned} \tag{5.2}$$

Nous sommes partis d'un moment angulaire classique pour obtenir les relations 5.2. Nous allons démontrer qu'elles sont bien plus générales que cela : elles définissent en fait un opérateur moment angulaire en mécanique quantique, même s'il n'a pas forcément d'équivalent en mécanique classique.

Considérons l'opérateur de rotation d'angle infinitésimal $d\theta$, $\hat{R}_z(d\theta)$. Il est défini par l'opération géométrique $\mathcal{R}_z(d\theta)$:

$$\psi'(\mathbf{r}) = \psi(\mathcal{R}_z^{-1}(d\theta)\mathbf{r}).$$



Les composantes de $\mathcal{R}_z^{-1}(d\theta)\mathbf{r}$ s'écrivent :

$$\mathcal{R}_z^{-1}(d\theta)\mathbf{r} = \mathcal{R}_z(-d\theta)\mathbf{r} = (\mathbf{r} - d\theta \mathbf{z} \times \mathbf{r}).$$

Si on note (x,y,z) les coordonnées cartésiennes, on a :

$$\psi'(x,y,z) = \psi(x + d\theta y, y - d\theta x, z).$$

Au premier ordre,

$$\begin{aligned}\psi'(x,y,z) &= \psi(x,y,z) + d\theta \left[y \frac{\partial \psi}{\partial x} - x \frac{\partial \psi}{\partial y} \right] \\ &= \psi(x,y,z) - d\theta \left[x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right] \psi(x,y,z)\end{aligned}$$

On reconnaît alors l'opérateur \hat{J}_z présenté plus haut exprimé en représentation $|r\rangle$. Ainsi, $\forall |\psi\rangle$,

$$\begin{aligned}|\psi'\rangle &= \left(1 - \frac{i}{\hbar} d\theta \hat{J}_z \right) |\psi\rangle \\ &= \hat{R}_z(d\theta) |\psi\rangle\end{aligned}$$

Ceci est valable en choisissant n'importe quel axe de rotation u . On obtient donc :

$$\hat{R}_u(d\theta) = 1 - \frac{i}{\hbar} d\theta \hat{J} \cdot u. \quad (5.3)$$

Pour un état symétrique selon \hat{R}_z on a également la relation 5.1 :

$$\begin{aligned}\hat{R}_z(d\theta) |\psi\rangle &= e^{imd\theta} |\psi\rangle \\ &= (1 + imd\theta) |\psi\rangle\end{aligned}$$

On obtient donc :

$$\hat{J}_z |\psi\rangle = m\hbar |\psi\rangle,$$

où le signe $(-)$ a été omis puisqu'il n'est qu'une question de définition. Nous avons obtenu le résultat recherché : pour un état de bonne symétrie, la quantité $m\hbar$ est bien la valeur propre de l'opérateur moment angulaire \hat{J}_z , et c'est une grandeur conservée. Terminons par retrouver les relations de commutations 5.2.

Pour ce faire, on utilise l'égalité suivante (démontrée p. 699-700 de [Cohen-Tannoudji et al., 1973]), valable au premier ordre par rapport à $d\theta$ et $d\theta'$:

$$\mathcal{R}_y(-d\theta') \mathcal{R}_x(d\theta) \mathcal{R}_y(d\theta') \mathcal{R}_x(-d\theta) = \mathcal{R}_z(-d\theta d\theta').$$

Cette relation illustre la structure non-commutative du groupe des rotations géométriques. Le passage de \mathcal{R} à \hat{R} conserve la loi de groupe (voir 3.b.γ de [Cohen-Tannoudji et al., 1973]), cette relation est donc valable pour les opérateurs \hat{R} . On substitue alors leur expression 5.3 :

$$\left[1 + \frac{i}{\hbar} d\theta' \hat{J}_y \right] \left[1 - \frac{i}{\hbar} d\theta \hat{J}_x \right] \left[1 - \frac{i}{\hbar} d\theta' \hat{J}_y \right] \left[1 + \frac{i}{\hbar} d\theta \hat{J}_x \right] = 1 - \frac{i}{\hbar} d\theta d\theta' \hat{J}_z.$$

Il reste à développer l'expression de gauche et à identifier les termes à l'ordre $d\theta d\theta'$, on obtient alors directement :

$$[\hat{J}_x, \hat{J}_y] = i\hbar \hat{J}_z.$$

En permutant les axes x , y et z , on retrouve ainsi toutes les relations de commutation 5.2, cette fois-ci en utilisant uniquement la structures des rotations géométriques.

5.3 Moment angulaire de spin et moment angulaire orbital

Nous avons mis en avant le lien fort entre symétries du système et moment angulaire. Ceci permet de définir le moment angulaire quantiquement, sans qu'il ait forcément d'équivalent classique. À partir d'ici, nous définirons un moment angulaire **orbital** comme un moment ayant un équivalent en mécanique classique, et un moment angulaire **de spin** comme un effet purement quantique. Nous les noterons respectivement \hat{L} et \hat{S} . On peut alors montrer en utilisant les règles d'additions des moments angulaires (Chapitre X de [Cohen-Tannoudji et al., 1973]) que le moment angulaire total du système est donné par :

$$\hat{J} = \hat{L} + \hat{S}. \quad (5.4)$$

Le concept de spin a été initialement proposé par G. Uhlenbeck et S. Goudsmit en 1925, alors étudiants de P. Ehrenfest, pour expliquer une série de résultats expérimentaux inattendus tels que l'effet Zeeman anomal ou l'expérience de Stern et Gerlach.

Pour décrire complètement l'état d'un système quantique, on peut rajouter aux coordonnées spatiales de nombreux paramètres, dont la variable de spin. Puisqu'il ne dépend pas des coordonnées spatiales, \hat{S} est également appelé moment angulaire *intrinsèque*. C'est un opérateur qui n'agit pas sur les coordonnées spatiales, contrairement à \hat{L} . Dans la partie suivante, nous décrirons plus précisément chacun de ces deux moments angulaires.

CHAPITRE 6

SÉPARATION ENTRE MOMENT ORBITAL ET MOMENT DE SPIN DE LA LUMIÈRE

Dans cette partie nous identifierons les composantes intrinsèques et extrinsèques du moment angulaire de la lumière, d'abord classiquement puis quantiquement.

6.1 Moments intrinsèque et extrinsèque d'un champ classique

Nous avons vu dans la partie 3 que le moment angulaire d'un champ classique s'écrivait

$$J = \int \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E} \times \mathbf{B}) d\mathbf{r}. \quad (6.1)$$

Nous cherchons à identifier deux contributions à J , dont l'une serait intrinsèque, c'est-à-dire dépendante de l'origine des coordonnées. On pourrait alors écrire $J = L + S$. Pour y parvenir, nous séparons \mathbf{E} et \mathbf{B} en leurs parties longitudinales et transverses. Un champ \mathbf{U} est longitudinal (resp. transverse) s'il vérifie $\nabla \times \mathbf{U} = 0$ (resp. $\nabla \cdot \mathbf{U} = 0$). On note :

$$\mathbf{E} = E_{||} + E_{\perp} \text{ et } \mathbf{B} = B_{||} + B_{\perp},$$

où $||$ et \perp représentent respectivement la composante longitudinale et transverse d'un champ. L'équation de Maxwell-Thomson, $\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$, montre que le champ magnétique est purement transverse : $\mathbf{B} = B_{\perp}$.

Composante longitudinale

Considérons maintenant le système lumière+particules. La contribution de E_{\parallel} au moment angulaire du système s'écrit :

$$\begin{aligned} J_{\parallel} &= \int \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E}_{\parallel} \times \mathbf{B}) d\mathbf{r} \\ &= \epsilon_0 \int \mathbf{r} \times (\mathbf{E}_{\parallel} \times [\nabla \times \mathbf{A}_{\perp}]) d\mathbf{r} \\ &= \epsilon_0 \int \left(\sum_{a=x,y,z} E_{\parallel}^a (\mathbf{r} \times \nabla) A_{\perp}^a - \mathbf{r} \times (\mathbf{E}_{\parallel} \cdot \nabla) \mathbf{A}_{\perp} \right) d\mathbf{r}. \end{aligned} \quad (6.2)$$

Le terme de droite se réécrit :

$$\begin{aligned} \int \mathbf{r} \times (\mathbf{E}_{\parallel} \cdot \nabla) \mathbf{A}_{\perp} d\mathbf{r} &= \int -\mathbf{E}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} \times (\nabla \cdot \mathbf{A}_{\perp}) d\mathbf{r} \\ &= \int -\mathbf{E}_{\parallel} \cdot (\nabla [\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}] - [\nabla \cdot \mathbf{r}] \times \mathbf{A}_{\perp}) d\mathbf{r} \\ &= \int [\mathbf{E}_{\parallel} \cdot \nabla (\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}) - \mathbf{E}_{\parallel} \times \mathbf{A}_{\perp}] d\mathbf{r} \end{aligned}$$

On intègre ensuite le premier terme de cette relation par partie :

$$\int \mathbf{E}_{\parallel} \cdot \nabla (\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}) d\mathbf{r} = \int -(\nabla \cdot \mathbf{E}_{\parallel}) (\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}) d\mathbf{r} + \oint_{\partial V} \mathbf{E}_{\parallel} (\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}) dS$$

L'intégrale de surface s'annule si \mathbf{E} tend vers zéro suffisamment rapidement. De plus, l'équation de Maxwell-Gauss donne $(\nabla \cdot \mathbf{E}_{\parallel}) = \rho/\epsilon_0$. On réécrit maintenant l'équation 6.2 en remplaçant \mathbf{E}_{\parallel} par $-\nabla\Phi$, où Φ est le potentiel vecteur dans la jauge de Coulomb.

$$J_{\parallel} = \int \left[-\epsilon_0 \sum_{a=x,y,z} (\nabla^a \Phi) (\mathbf{r} \times \nabla) A_{\perp}^a + \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}) - \epsilon_0 (\nabla \Phi) \times \mathbf{A}_{\perp} \right] d\mathbf{r} \quad (6.3)$$

Montrons maintenant que le premier et le dernier terme de cette expression s'annulent. En les intégrant par partie et en considérant les intégrales de surface nulles, on obtient :

$$\int \left[\sum_{a=x,y,z} (\nabla^a \Phi) (\mathbf{r} \times \nabla) A_{\perp}^a + (\nabla \Phi) \times \mathbf{A}_{\perp} \right] d\mathbf{r} = \int \left[\sum_{a=x,y,z} \Phi \nabla^a (\mathbf{r} \times \nabla) A_{\perp}^a + \Phi (\nabla \times \mathbf{A}_{\perp}) \right] d\mathbf{r}. \quad (6.4)$$

De plus,

$$\sum_{a=x,y,z} \Phi \nabla^a (\mathbf{r} \times \nabla) A_{\perp}^a = \Phi (\mathbf{r} \times \nabla) (\nabla \cdot \mathbf{A}_{\perp}) - \Phi (\nabla \times \mathbf{A}_{\perp})$$

Dans la jauge de Coulomb, $\nabla \cdot \mathbf{A}_{\perp} = 0$, donc le premier terme est nul. Le second s'annule avec le dernier terme de 6.4. Il ne reste donc qu'un terme à 6.3 :

$$J_{\parallel} = \int \rho (\mathbf{r} \times \mathbf{A}_{\perp}) d\mathbf{r} \quad (6.5)$$

\mathbf{A}_{\perp} est invariant par transformation de jauge (voir I.B.4 de [Cohen-Tannoudji et al., 1997]), donc l'expression 6.5 l'est aussi.

Composante transverse

Le calcul réalisé pour la composante longitudinale est valable en remplaçant E_{\parallel} par E_{\perp} . On a de plus $\nabla \cdot E_{\perp} = 0$, donc l'intégration par partie 6.1 donne zéro. Il reste alors :

$$\begin{aligned} J_{\perp} &= \int \epsilon_0 \mathbf{r} \times (\mathbf{E}_{\perp} \times \mathbf{B}) d\mathbf{r} \\ &= \epsilon_0 \int \left[\sum_{a=x,y,z} \mathbf{E}_{\perp}^a (\mathbf{r} \times \nabla) \mathbf{A}_{\perp}^a + \mathbf{E}_{\perp} \times \mathbf{A}_{\perp} \right] d\mathbf{r} \end{aligned}$$

J_{\parallel} dépend de la densité de charge ρ , elle est donc reliée aux particules présentes dans le volume. Par contre, J_{\perp} ne dépend que du champ électromagnétique. On remarque que le premier terme dépend explicitement de \mathbf{r} alors que le second dépend de la nature vectorielle du champ (et donc de sa polarisation) mais pas du choix de l'origine des coordonnées du système. Par analogie avec les opérateurs quantiques, on identifie donc une partie orbitale et une partie de spin :

$$L = \epsilon_0 \int d\mathbf{r} \sum_{a=x,y,z} \mathbf{E}_{\perp}^a (\mathbf{r} \times \nabla) \mathbf{A}_{\perp}^a \quad S = \epsilon_0 \int d\mathbf{r} \mathbf{E}_{\perp} \times \mathbf{A}_{\perp} \quad (6.6)$$

Ces résultats permettent de définir L et S pour un faisceau donné. Dans le paragraphe suivant nous reviendrons au niveau microscopique et définirons le MAO et MAS d'un photon.

6.2 Le moment angulaire du photon

6.2.1 Exemple de quantification : ensemble d'oscillateurs harmoniques matériels

Expliquons le processus de quantification sur l'exemple simple d'un ensemble de N oscillateurs harmoniques indépendants, de même masse m mais de pulsations différentes ω_i , $i = 1 \dots N$. On commence par écrire l'énergie du système :

$$H = \sum_{i=1 \dots N} \left(\frac{1}{2m} p_i^2 + \frac{1}{2} m \omega_i^2 x_i^2 \right), \quad (6.7)$$

où x_i et p_i sont la position et l'impulsion de la particule i , les variables classiques conjuguées. On les remplace par les opérateurs \hat{x}_i et \hat{p}_i , qui obéissent aux règles de commutation canoniques :

$$[\hat{x}_i, \hat{p}_{i'}] = i\hbar \delta_{ii'},$$

où δ est le delta de Kronecker. On obtient alors l'hamiltonien du système \hat{H} , dont on doit chercher les valeurs et vecteurs propres. Pour ce faire, on introduit les opérateurs de *création* et d'*annihilation*, qui sont conjugués hermitiques et s'expriment

respectivement :

$$\begin{aligned}\hat{a}_i^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{\frac{m\omega_i}{\hbar}} \hat{x}_i - \frac{i}{\sqrt{\hbar m\omega_i}} \hat{p}_i \right) \\ \hat{a}_i &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\sqrt{\frac{m\omega_i}{\hbar}} \hat{x}_i + \frac{i}{\sqrt{\hbar m\omega_i}} \hat{p}_i \right)\end{aligned}$$

On inverse ces relations pour exprimer \hat{x}_i et \hat{p}_i :

$$\begin{aligned}\hat{x}_i &= \sqrt{\frac{\hbar}{2m\omega_i}} (\hat{a}_i + \hat{a}_i^\dagger) \\ \hat{p}_i &= \frac{1}{i} \sqrt{\frac{\hbar m\omega_i}{2}} (\hat{a}_i - \hat{a}_i^\dagger)\end{aligned}$$

L'hamiltonien prend alors la forme intéressante :

$$\hat{H} = \sum_i \frac{\hbar\omega_i}{2} (\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \hat{a}_i \hat{a}_i^\dagger) = \sum_i \hbar\omega_i \left(\hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i + \frac{1}{2} \right),$$

où on a utilisé la règle de commutation $[\hat{a}_i, \hat{a}_{i'}^\dagger] = \delta_{ii'}$ facilement obtenue à partir de celles de \hat{x}_i et \hat{p}_i . On introduit alors $\hat{N}_i = \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_i$, appelé opérateur *nombre*. Le spectre de cet opérateur est l'ensemble des nombres entiers n_i non-négatifs (voir section V.B.2 de [Cohen-Tannoudji et al., 1973]). On en conclut que l'énergie du système est quantifiée et vaut :

$$E = \sum_{i=1 \dots N} \hbar\omega_i (n_i + \frac{1}{2}).$$

6.2.2 La quantification du champ électromagnétique

Le champ électromagnétique peut être traité de façon analogue à l'ensemble d'oscillateurs harmoniques. Pour ce faire, on l'exprime en fonction de N modes, qui seront analogues aux N oscillateurs. Nous avons déjà détaillé ce problème au chapitre 4. Nous avons vu qu'on part du vecteur potentiel A et qu'on l'exprime sur une base de notre choix, telle que les ondes planes, les modes de Laguerre-Gauss, de Hermite-Gauss, etc. On considère des modes purement transverses, qu'on note F_i . Dans la jauge de Coulomb, A est également transverse et s'écrit :

$$A = \sum_i \mathcal{A}_i (a_i F_i + a_i^* F_i^*), \quad (6.8)$$

où a_i est une amplitude complexe sans dimension et $\mathcal{A}_i = \sqrt{\frac{\hbar}{2\epsilon_0\omega_i}}$ est une constante de normalisation.

De manière générale, il est intéressant de choisir une base F_i adaptée aux grandeurs physiques que l'on mesure. Dans une approche quantique, on choisit un ensemble d'opérateurs hermitiens qui commutent et on cherche leurs fonctions propres communes. Par exemple, si on choisit les opérateurs d'impulsion $\hat{p}_x, \hat{p}_y, \hat{p}_z$ et l'opérateur de spin, les fonctions propres communes sont les ondes planes progressives. Les valeurs propres sont alors k_x, k_y, k_z , et l'hélicité $\alpha = \pm 1$. On indexera par la suite F_i par l'ensemble β de ces valeurs propres : pour les ondes planes, la base est $F_\beta, \beta = k_x, k_y, k_z, \alpha$.

L'énergie du rayonnement peut alors s'écrire en fonction de A . [Aspect et Grangier, 2005] montrent qu'elle prend la même forme que l'énergie de l'ensemble d'oscillateurs harmoniques 6.7 avec A comme analogue de la position et E_\perp celui de l'impulsion. On peut alors définir les opérateur de création et d'annihilation de la même façon qu'auparavant pour obtenir l'hamiltonien sous la forme :

$$\hat{H} = \sum_{\beta} \hbar \omega_{\beta} \left(\hat{a}_{\beta}^{\dagger} \hat{a}_{\beta} + \frac{1}{2} \right),$$

Tout comme \hat{x}_i et \hat{p}_i auparavant, les opérateurs associées aux grandeurs physiques s'expriment en fonction des $\hat{a}_{\beta}^{\dagger}$ et \hat{a}_{β} (voir [Van Enk et Nienhuis, 1994]) :

$$\begin{aligned} \hat{A} &= \sum_{\beta} \mathcal{A}_{\beta} (\hat{a}_{\beta} F_{\beta} + \hat{a}_{\beta}^{\dagger} F_{\beta}^*) \\ \hat{E}_{\perp} &= \sum_{\beta} i \omega_{\beta} \mathcal{A}_{\beta} (\hat{a}_{\beta} F_{\beta} - \hat{a}_{\beta}^{\dagger} F_{\beta}^*) \\ \hat{B} &= \sum_{\beta} \mathcal{A}_{\beta} (\hat{a}_{\beta} \nabla \times F_{\beta} + \hat{a}_{\beta}^{\dagger} \nabla \times F_{\beta}^*) \end{aligned} \quad (6.9)$$

Précisons la forme de l'espace dans lequel évolue le champ. Nous avons déjà introduit l'opérateur nombre $\hat{N}_{\beta} = \hat{a}_{\beta}^{\dagger} \hat{a}_{\beta}$, dont les valeurs propres sont les entiers positifs ou nuls n_{β} . On note ses vecteurs propres $|n_{\beta}\rangle$. Ces vecteurs forment une base des états du champ dans le mode β . Les modes F_{β} constituant une base complète, on voit que les états propres de \hat{H} sont les produits tensoriels entre tous les états $|n_{\beta}\rangle$: $|n_{\beta_1}\rangle \otimes |n_{\beta_2}\rangle \otimes \dots$. En fait, chaque état peut être vu comme un ensemble de particules indépendantes comportant n_{β_1} particules dans le mode β_1 , n_{β_2} dans le mode β_2 , etc. Ces particules sont appelées **photons**¹ et décrivent les excitations élémentaires

1. Comme pour toute particule, on peut définir la fonction d'onde d'un photon. Il faut cependant effectuer une distinction importante avec le cas d'une particule telle qu'un atome. En effet, le photon se déplace à la vitesse de la lumière, ce qui oblige à utiliser une description relativiste. Dans ce cas, la fonction d'onde ne peut pas être vue comme l'amplitude de probabilité de trouver le photon à un endroit donné. En effet, on vient de voir que l'énergie du photon s'écrit $E = \hbar \omega = \hbar |\mathbf{k}| c = |\mathbf{p}| c$. On peut alors écrire l'incertitude sur la position du photon comme :

$$\Delta x \sim \hbar c / E = \hbar / p.$$

Δx est donc de l'ordre de grandeur de la longueur de de Broglie de la particule, soit dans le cas du photon la longueur d'onde de la lumière. On voit donc que la position d'un photon n'a de sens que si le problème est grand comparé à la longueur d'onde, ce qui revient en fait à passer à la limite classique.

de chacun des modes du champ quantifié. L'opérateur de création \hat{a}_β^\dagger augmente le nombre de photon dans le mode β d'une unité, tandis que \hat{a}_β le diminue.

6.2.3 Opérateurs de moment angulaire

Ayant obtenu les expressions des opérateurs associés au champ électromagnétique, calculons celles des opérateurs de moment angulaire orbital et de spin. On utilise les expressions trouvées classiquement (équation 6.6), par exemple pour S :

$$S = \epsilon_0 \int d\mathbf{r} \mathbf{E}_\perp \times \mathbf{A}_\perp$$

On substitue alors les expressions quantifiées (6.9) de \mathbf{E}_\perp et \mathbf{A}_\perp :

$$\hat{S} = \epsilon_0 \sum_{\beta, \beta'} i\omega_\beta \mathcal{A}_\beta \mathcal{A}_{\beta'} \int d\mathbf{r} [\hat{a}_\beta \mathbf{F}_\beta - \hat{a}_\beta^\dagger \mathbf{F}_\beta^*] \times [\hat{a}_{\beta'} \mathbf{F}_{\beta'} + \hat{a}_{\beta'}^\dagger \mathbf{F}_{\beta'}^*]$$

[Van Enk et Nienhuis, 1994] montre qu'on obtient les résultats suivants pour \hat{S} et \hat{L} :

$$\hat{L} = \frac{1}{2} \sum_{\beta, \beta'} (a_\beta^\dagger a_{\beta'} + a_{\beta'} a_\beta^\dagger) \langle \mathbf{F}_\beta | \hat{L} | \mathbf{F}_{\beta'} \rangle \quad \hat{S} = \frac{1}{2} \sum_{\beta, \beta'} (a_\beta^\dagger a_{\beta'} + a_{\beta'} a_\beta^\dagger) \langle \mathbf{F}_\beta | \hat{S} | \mathbf{F}_{\beta'} \rangle, \quad (6.10)$$

où on a utilisé les opérateurs de la mécanique quantique pour le moment angulaire orbital et de spin d'une particule de spin 1, définis par :

$$\begin{aligned} \hat{L} &= -i\hbar(\mathbf{r} \times \nabla), \\ (\hat{S}_k)_{ij} &= -i\hbar\epsilon_{ijk}, \end{aligned} \quad (6.11)$$

où $i, j, k = x, y, z$ et ϵ_{ijk} est le symbole de Levi-Civita.

Étudions maintenant les relations de commutations de \hat{S} et \hat{L} . L'opérateur moment angulaire total est donné par $\hat{\mathbf{J}} = \hat{S} + \hat{L}$. On peut montrer [Lenstra et Mandel, 1982] que $\hat{\mathbf{J}}$ génère bien des rotations dans l'espace et vérifie les règles de commutations 5.2 qui définissent un opérateur moment angulaire.

Ce n'est pas le cas de l'opérateur \hat{S} . Il suffit pour s'en rendre compte de choisir la base des ondes planes pour décomposer le champ. On choisit les \mathbf{F}_β avec $\beta = k_x, k_y, k_z, \alpha$, ce qui permet d'écrire $\mathbf{F}_{k\alpha} = \boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha} e^{ik \cdot \mathbf{r}}$, où $\boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha}$ est un vecteur unitaire. On réécrit alors l'équation 6.10 :

$$\hat{S} = \frac{1}{2} \sum_{k\alpha, k'\alpha'} (a_{k\alpha}^\dagger a_{k'\alpha'} + a_{k'\alpha'} a_{k\alpha}^\dagger) \int d\mathbf{r} \boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha} e^{ik \cdot \mathbf{r}} \times \boldsymbol{\epsilon}_{k'\alpha'} e^{ik' \cdot \mathbf{r}} \quad (6.12)$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{k\alpha, k'\alpha'} (a_{k\alpha}^\dagger a_{k'\alpha'} + a_{k'\alpha'} a_{k\alpha}^\dagger) \boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha} \times \boldsymbol{\epsilon}_{k'\alpha'} \int d\mathbf{r} e^{ik \cdot \mathbf{r}} e^{ik' \cdot \mathbf{r}} \quad (6.13)$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{k\alpha, k'\alpha'} (a_{k\alpha}^\dagger a_{k'\alpha'} + a_{k'\alpha'} a_{k\alpha}^\dagger) \boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha} \times \boldsymbol{\epsilon}_{k'\alpha'} \delta_{kk'} \quad (6.14)$$

$$= \frac{1}{2} \sum_{k\alpha, \alpha'} \boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha} \times \boldsymbol{\epsilon}_{k\alpha'} (a_{k\alpha}^\dagger a_{k\alpha'} + a_{k\alpha'} a_{k\alpha}^\dagger) \quad (6.15)$$

$$(6.16)$$

On voit que \hat{S} n'est constitué que des opérateurs *numbers* définis plus haut. Par conséquent, toutes ses composantes commutent. Autrement dit, $[S_i, S_j] = 0 \forall (i, j)$. \hat{S} n'est donc pas un opérateur moment angulaire. Les relations de commutations pour \hat{L} peuvent être directement obtenues en utilisant celles de \hat{J} et \hat{S} , et on trouve également que \hat{L} n'est pas un moment angulaire, et que \hat{L} et \hat{S} ne commutent pas.

Ce résultat peut paraître étonnant : la séparation de \hat{L} n'est donc pas possible pour le champ électromagnétique. Ce problème est en fait lié au fait que le photon se déplace à la vitesse de la lumière. En effet, le moment angulaire de spin peut être vu comme le moment angulaire de la particule dans le référentiel dans lequel elle est au repos. Un tel référentiel n'existe pas pour le photon. Une autre façon de le voir consiste à utiliser le lien entre rotations et moment angulaire. Pour qu'un opérateur soit un moment angulaire de spin, il doit générer des rotations de la polarisation par rapport à un axe quelconque. Dans le cas du photon, c'est seulement vrai autour de l'axe de propagation : il ne peut y avoir de symétrie autour de tous les axes puisqu'il existe toujours un axe privilégié. Ainsi, seul le moment angulaire *total* du champ a un sens.

Toutefois, il est possible de montrer [Van Enk et Nienhuis, 1994] que les composantes de \hat{S} et de \hat{L} selon k génèrent bien des rotations autour de k . Si l'onde se propage selon une direction z bien définie, c'est-à-dire que $k \approx k_z$, alors la séparation $J_z = S_z + L_z$ est justifiée. S_z et L_z constituent alors des observables qui commutent, et il est possible de chercher des fonctions de bases qui sont des états propres communs à ces deux opérateurs.

MODES DU CHAMP PORTANT DU MOMENT ANGULAIRE

Au chapitre 4, nous avons remarqué que deux formes de champ particulières portaient du moment angulaire : les ondes polarisées circulairement et les modes de Laguerre-Gauss. Nous disposons maintenant des outils pour chercher des solutions de l'équation d'onde pour lesquelles le photon a un moment angulaire défini.

7.1 États propres de moment angulaire

On cherche une base des états du champ dans laquelle le moment angulaire de spin et orbital sont bien définis. Les solutions de ce problème doivent être fonctions propres des opérateurs correspondant. On choisit donc les observables \hat{S}_z et \hat{L}_z . On rajoute \hat{P}_z , la quantité de mouvement selon z , et \hat{P}^2 . Les solutions F_β doivent alors vérifier :

$$\begin{aligned}\hat{S}_z |F_\beta\rangle &= s |F_\beta\rangle \\ \hat{L}_z |F_\beta\rangle &= (m - s) |F_\beta\rangle \\ \hat{P}_z |F_\beta\rangle &= k_z |F_\beta\rangle \\ \hat{P}^2 |F_\beta\rangle &= k^2 |F_\beta\rangle = (k_t^2 + k_z^2) |F_\beta\rangle\end{aligned}$$

où s est le moment angulaire de spin, m est le moment angulaire total, k_z est le nombre d'onde longitudinal et k_t est le nombre d'onde transverse. La résolution de ce problème est détaillée dans [Van Enk et Nienhuis, 1994], qui montrent que ces équations permettent de définir une base F_{s,m,k_z,k_t} . L'expression de ces fonctions de

base est donnée en coordonnées cartésiennes :

$$\begin{aligned} F_\beta^x &= \frac{k_z - sk}{k} f(k_t, k_z, m+1) + \frac{k_z + sk}{k} f(k_t, k_z, m-1), \\ F_\beta^y &= -i \left[\frac{k_z - sk}{k} f(k_t, k_z, m+1) - \frac{k_z + sk}{k} f(k_t, k_z, m-1) \right], \\ F_\beta^z &= \frac{k_t}{\sqrt{2k}} f(k_t, k_z, m). \end{aligned} \quad (7.1)$$

avec

$$f(k_t, k_z, m) = J_m(k_t \rho) \exp(ik_z z) \exp(im\phi), \quad (7.2)$$

où (ρ, ϕ) sont les coordonnées cylindriques et où J_m est la fonction de Bessel de première espèce d'ordre m . Les fonctions J_m sont représentées pour $m = 0 \dots 4$ sur la Figure 7.1.

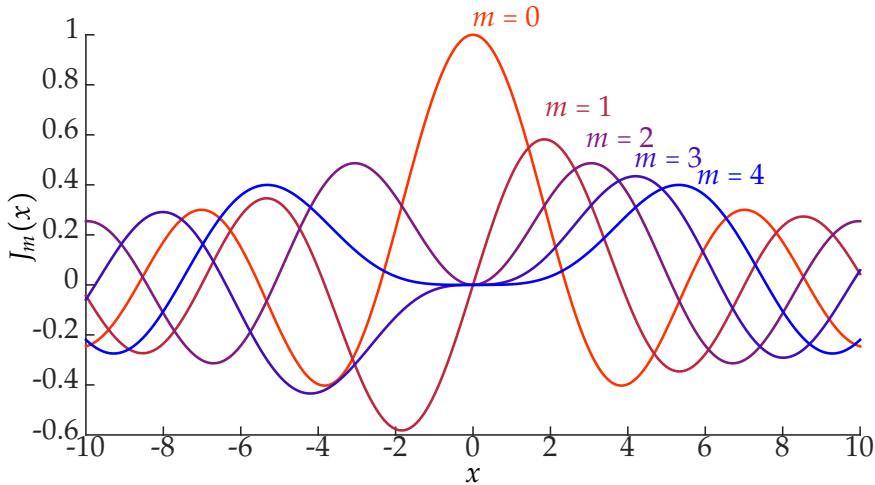


FIGURE 7.1 – Fonctions de Bessel de première espèce $J_m(x)$ tracées pour $m = 0 \dots 4$ et $x = -10 \dots 10$.

Quand on applique les opérateurs de moment angulaire à ces fonctions F_β , on obtient :

$$\begin{aligned} \hat{J}_z |F_\beta\rangle &= m |F_\beta\rangle \\ \hat{S}_z |F_\beta\rangle &= \frac{sk_z \hbar}{k} |F_\beta\rangle \\ \hat{L}_z |F_\beta\rangle &= m \hbar - \frac{sk_z \hbar}{k} |F_\beta\rangle. \end{aligned} \quad (7.3)$$

On a donc bien trouvé des fonctions propres de ces opérateurs. Remarquons toutefois que $\frac{sk_z \hbar}{k}$ est une quantité continue : encore une fois, S_z et L_z ne sont pas des opérateurs de moment angulaire dans le cas général, sans quoi leurs valeurs propres seraient discrètes.

Nous pouvons maintenant étudier le moment angulaire porté par une onde plane circulaire ou un mode de Laguerre-Gauss. Nous retrouverons ainsi les résultats obtenus classiquement au chapitre 4, mais ils auront cette fois un sens au niveau microscopique.

7.2 Moment angulaire de spin et polarisation de la lumière

Commençons par le moment angulaire de spin. Remarquons d'abord que s n'apparaît pas dans le profil transverse des modes F_β , mais plutôt dans les relations entre les différentes composantes du champ. C'est assez naturel, puisque le spin est relié à la structure vectorielle du champ et donc à sa polarisation. Nous avions déjà observé ce point dans le cas classique, où la contribution du moment angulaire de spin s'écrit $S = \epsilon_0 \int dr E_\perp \times A_\perp$ (6.6).

Une onde plane progressive selon z et polarisée circulairement a une extension transverse infinie, et vérifie $k_t = 0$, ou $k = k_z$. Les expressions 7.1 se simplifient :

$$\begin{aligned} F_\beta^x &= (1-s)f(0,k_z,m+1) + (1+s)f(0,k_z,m-1), \\ F_\beta^y &= -i[(1-s)f(0,k_z,m+1) - (1+s)f(0,k_z,m-1)], \\ F_\beta^z &= 0 \end{aligned}$$

On retrouve bien que F_β^z s'annule. Remarquons ensuite que $f(0,k_z,i) \propto J_i(0)$. Ainsi, $f(0,k_z,i)$ est non nul si et seulement si $i = 0$. Les seules valeurs de m pour lesquelles le champ n'est pas totalement nul sont donc $m = \pm 1$. On trouve donc deux solutions :

| $m = 1$ | $m = -1$ |
|----------------------------------|-----------------------------------|
| $F_\beta^x = (1+s)f(0,k_z,m-1)$ | $F_\beta^x = (1-s)f(0,k_z,m+1)$ |
| $F_\beta^y = i(1+s)f(0,k_z,m-1)$ | $F_\beta^y = -i(1-s)f(0,k_z,m+1)$ |

On trouve ainsi les valeurs de s pour que le champ ne soit pas nul :

| $m = 1, s = 1$ | $m = -1, s = -1$ |
|--|---|
| $F_\beta^x = iF_\beta^y = \exp(i k_z z)$ | $F_\beta^x = -iF_\beta^y = \exp(i k_z z)$ |
| Onde circulaire gauche | Onde circulaire droite |

Nous avons ainsi retrouvé les polarisations circulaires droites et gauches, contenues dans les fonctions F_β . On obtient également leur moment angulaire en tant que valeur propre des opérateurs agissant sur l'espace $|n_1\rangle \otimes |n_2\rangle \otimes \dots$ du champ quantifié :

| Circulaire Gauche | Circulaire Droite |
|---|--|
| $J_z L\rangle = m\hbar L\rangle = \hbar L\rangle,$ | $J_z R\rangle = m\hbar R\rangle = -\hbar R\rangle,$ |
| $S_z L\rangle = \frac{sk_z\hbar}{k} L\rangle = \hbar L\rangle,$ | $S_z R\rangle = \frac{sk_z\hbar}{k} R\rangle = -\hbar R\rangle,$ |
| $L_z L\rangle = m\hbar - \frac{sk_z\hbar}{k} L\rangle = 0.$ | $L_z R\rangle = m\hbar - \frac{sk_z\hbar}{k} R\rangle = 0.$ |

La séparation du moment angulaire en parties spin et orbitale est ici justifiée, ce qui est cohérent avec le fait qu'on obtienne des valeurs propres discrètes pour ces opérateurs.

7.3 Moment angulaire orbital et modes de Laguerre-Gauss

Appliquons maintenant la même démarche aux modes de Laguerre-Gauss. Nous avons vu que ces modes étaient solution de l'équation d'Helmholtz paraxiale (voir partie 4.3.2), ce qui amène à considérer $k_t \ll k$. Sans perte de généralité, supposons $s = 1$, c'est-à-dire une onde polarisée circulaire gauche. Dans les conditions paraxiales, les expressions 7.1 s'écrivent :

$$\begin{aligned} F_\beta^x &\approx f(k_t, k_z, m - 1), \\ F_\beta^y &\approx i f(k_t, k_z, m - 1), \\ F_\beta^z &\approx 0 \end{aligned}$$

Les F_β constituent une base, on peut donc y décomposer le champ de LG. Pour chaque composante du champ $a = x, y, z$, on écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{LG}_{\ell,p}^a &= \sum_{\beta} \left\langle \mathcal{LG}_{\ell,p}^a \middle| F_\beta^a \right\rangle |F_\beta^a\rangle \\ &= \sum_{\beta} \left[\int_{\rho,\phi} (\mathcal{LG}_{\ell,p}^a)^* \cdot F_\beta^a \, dV \right] |F_\beta^a\rangle. \end{aligned} \quad (7.4)$$

Remarquons maintenant que $\mathcal{LG}_{\ell,p}^a \propto e^{i\ell\phi}$ et $F_\beta^a \propto e^{i(m-1)\phi}$. Ainsi, l'intégrale dans 7.4 est non nulle si et seulement si $m = \ell + 1$. On obtient donc le moment angulaire d'un mode de Laguerre-Gauss polarisé circulairement gauche : son MAS vaut $s\hbar = \hbar$, son MA total vaut $m\hbar = (\ell + s)\hbar$, et son MA orbital vaut $(m - s)\hbar = \ell\hbar$.

De même que pour les ondes planes polarisées circulairement, les valeurs propres sont ici discrètes. Dans l'approximation paraxiale, la séparation $J_z = L_z + S_z$ est également légitime. Ainsi, on peut générer un mode ne portant que du moment angulaire orbital : la somme de deux modes de LG de même ℓ , l'un polarisé gauche et l'autre droit, donne un MAS de 0 et un MAO de ℓ .

CHAPITRE 8

RÈGLES DE SÉLECTION DU MOMENT ANGULAIRE DANS LA PHOTOIONISATION

8.1 Transitions multipolaires

Nous étudions ici le rôle respectif du MAO et du MAS dans une interaction entre la lumière et un atome. Notons $|\psi_i\rangle$ l'état initial de l'atome. Il peut émettre ou absorber un photon d'énergie $\hbar\omega$ et passer à l'état final $|\psi_f\rangle$. On considère le système atome + champ électromagnétique, dont l'hamiltonien prend la forme :

$$H = H_{champ} + H_{atome} + H_{int},$$

où H_{champ} et H_{atome} sont les hamiltoniens du champ et de l'atome non perturbés, et H_{int} est l'hamiltonien d'interaction. Pour une particule de charge q , de masse m , de position \mathbf{r} et de moment canonique \mathbf{p} , il s'écrit dans la jauge de Coulomb :

$$H_{int} = -\frac{q}{m} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{p} + \frac{q^2}{2m} \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + q\Phi(\mathbf{r}, t), \quad (8.1)$$

où \mathbf{A} et Φ sont les potentiels vecteurs et scalaires définis page 22. L'hamiltonien d'interaction total est obtenu en sommant ceux des N particules.

Pour simplifier le problème, intéressons-nous aux échelles de grandeur. L'extension typique d'une fonction d'onde électronique autour d'un atome, qu'on note a , est de l'ordre de l'angstrom, c'est-à-dire 3 ou 4 ordres de grandeur plus faible que la longueur d'onde du champ λ . On a donc $a/\lambda \ll 1$. Notons \mathbf{R}_0 la position du centre de masse de l'atome et $\mathbf{r} = \mathbf{R}_0 + \delta\mathbf{r}$ celle de la particule considérée. Comme $|\delta\mathbf{r}| \approx a \ll |\mathbf{R}_0|$, on peut effectuer un développement limité des champs électromagnétiques au voisinage de $\mathbf{r} = \mathbf{R}_0$. Ce développement s'écrit, par exemple pour E :

$$E(\mathbf{r}) = E(\mathbf{R}_0) + (\mathbf{r} \cdot \nabla)E(\mathbf{R}_0) + \frac{1}{2!}(\mathbf{r} \cdot \nabla)^2E(\mathbf{R}_0) + \dots \quad (8.2)$$

On en déduit A et Φ , qu'on réinjecte dans 8.1 pour obtenir H_{int} comme un développement limité en puissances de r . Ce développement se réécrit [Barron, 2004] :

$$H_{int} = q_{tot}\Phi(R_0,t) - \mathbf{p} \cdot \mathbf{E}(R_0,t) - \mathbf{m} \cdot \mathbf{B}(R_0,t) - [\overleftrightarrow{\mathbf{Q}} \cdot \nabla] \cdot \mathbf{E}(R_0,t) - \dots, \quad (8.3)$$

où on a noté

| | |
|--|--|
| La charge totale du système (monopole) | $q_{tot} = \sum_n q_n$ |
| Le moment dipolaire électrique total | $\mathbf{p} = \sum_n q_n \mathbf{r}_n$ |
| Le moment dipolaire magnétique total | $\mathbf{m} = \sum_n (q_n/2m_n) \mathbf{r}_n \times \mathbf{p}_n$ |
| Le moment quadripolaire électrique total | $\overleftrightarrow{\mathbf{Q}} = \sum_n (q_n/2) \mathbf{r}_n \cdot \mathbf{r}_n$ |

On vient de réaliser une *expansion multipolaire* du champ électromagnétique. Le premier terme de 8.3 disparaît pour un système neutre. Les suivants décrivent respectivement une interaction dipolaire électrique, une dipolaire magnétique, une quadripolaire électrique, puis tous les 2^j -polaires électriques et magnétiques. a/λ étant faible, le premier terme non nul domine en général tous les suivants et on dit que la transition $i \rightarrow f$ est 2^j -polaire électrique ou magnétique.

8.2 Règles de sélection

Un photon absorbé ou émis dans une transition 2^j -polaire a des propriétés particulières. On montre en effet [Berestetskii et al., 1982] qu'il a une parité $P = (-1)^j$ pour un multipôle électrique, $P = (-1)^{j+1}$ pour un multipôle magnétique, et un moment angulaire égal à j . Bien sûr, la transition $i \rightarrow f$ doit respecter la conservation de la parité et du moment angulaire (voir section 5.1). Ceci impose des conditions à ψ_i et ψ_f , appelées *règles de sélection*. Si l_i, π_i, l_f, π_f sont les moments angulaires et parités de ψ_i et ψ_f , elles s'écrivent :

$$l_f - l_i = \pm j \text{ et } \pi_f = P\pi_i.$$

Si ces règles ne sont pas vérifiées, la transition est interdite et l'élément de matrice de transition $\langle \psi_f | H_{int} | \psi_i \rangle$ est nul.

De manière intéressante, on voit que dans une transition quadripolaire électrique, deux unités de moment angulaire peuvent être échangées entre le champ et l'atome. Bien sûr, le photon ne peut porter qu'un moment angulaire de spin $s = \pm 1$. Il est donc tentant de penser que la seconde unité de moment angulaire est fournie par le moment angulaire *orbital*. Dans la partie suivante, nous verrons que ce n'est pas nécessairement le cas.

8.3 Rôle du moment angulaire orbital dans une transition multipolaire

Considérons donc un champ portant du moment angulaire orbital. Dans les coordonnées cylindriques, nous l'écrivons :

$$E(r,\theta,z,t) = \mathbf{u}f(r)e^{i(kz-\omega t)}e^{i\ell\theta}$$

où \mathbf{u} est le vecteur unitaire selon la polarisation du champ, $f(r)$ est le profil transverse du champ qui ne dépend que de r , et $e^{i\ell\theta}$ est la phase hélicoïdale donnant un MAO de ℓ au champ (voir section 7.3).

On considère un système hydrogénoid à deux particules : un électron et un neutron sans spin, notés 1 et 2. On note leurs vecteurs positions \mathbf{q}_i . Le centre de masse du système est alors en $\mathbf{Q} = (m_1\mathbf{q}_1 + m_2\mathbf{q}_2)/M$, et la coordonnée interne du système est $\mathbf{q} = \mathbf{q}_1 - \mathbf{q}_2$. Nous verrons qu'il est essentiel ici de considérer \mathbf{Q} comme un variable quantique et non pas de la laisser fixe.

Dans ces conditions, le système atome + champ est par les variables quantiques suivantes :

- Les opérateurs nombres $|\hat{N}_\beta\rangle$ décrivent l'état du champ quantifié, qui a un MAO de ℓ (voir section 6.2.2).
- Le centre de masse de coordonnées $\mathbf{Q} = (Q, \phi_Q, z_Q)$ est libre de se translater ou de tourner. On note P_Q sa quantité de mouvement et L_Q son moment angulaire. Ce sont les coordonnées *externes* du système.
- Les nombres quantiques internes sont ceux d'un état hydrogénoid. On les note $|\psi_i\rangle = |n_i, l_i, m_i\rangle$ pour l'état initial et $|\psi_f\rangle = |n_f, l_f, m_f\rangle$ pour l'état final. On note la coordonnée interne $\mathbf{q} = (q, \phi_q, z_q)$.

Le couplage lumière-matière est décrit par l'élément de matrice de transition suivant :

$$\mathcal{M}_{if} = \langle P'_Q, L'_Q ; \psi_f ; \hat{N}'_\beta | H_{int} | P_Q, L_Q ; \psi_i ; \hat{N}_\beta \rangle \quad (8.4)$$

Le calcul est réalisé dans [Babiker et al., 2002], en négligeant les effets du champ magnétique et en effectuant un développement limité au voisinage de Q . La forme de la solution est :

$$H_{int} = \alpha \mathbf{u} \cdot \mathbf{q} (1 + \beta q_z) \times \left(\chi e^{i\ell\phi_Q} + \delta q_\parallel \left[\epsilon e^{i(\ell-1)\phi_Q} e^{i\phi_q} + \gamma e^{i(\ell+1)\phi_Q} e^{-i\phi_q} \right] \right) + \text{c.c.}, \quad (8.5)$$

$\alpha, \beta, \chi, \delta, \epsilon, \gamma$ étant des facteurs dont l'expression complète n'est pas essentielle.

On obtient bien un développement en puissance des composantes cartésiennes de q . On peut donc identifier les transitions multipolaires et trouver lorsque l'élément de matrice de transition 8.4 est non nul.

(1) Transition dipolaire électrique : on considère la partie de 8.5 linéaire en \mathbf{q} :

$$H_{int}^{dipole} = \alpha \mathbf{u} \cdot \mathbf{q} \times \chi e^{i\ell\phi_Q} + \text{c.c.}$$

On effectue alors l'intégrale sur toutes les coordonnées pour calculer l'élément de matrice de transition. Le terme intéressant ici est $e^{i\ell\phi_Q}$. En effet, en calculant \mathcal{M}_{if} , ce terme intervient dans $\langle L'_Q | e^{i\ell\phi_Q} | L_Q \rangle$. On obtient une intégrale de la forme :

$$\int_{\phi_Q=0}^{2\pi} \dots e^{-iL'_Q\phi} e^{i\ell\phi} e^{iL_Q\phi} d\phi$$

Cette intégrale est non nulle si et seulement si $L'_Q + \ell - L_Q = 0$. On voit donc que le MAO du champ, ℓ , est transféré au centre de masse de position Q . Les règles de sélection internes ne sont quant à elles pas modifiées par la présence de MAO.

(2) Transition quadripolaire électrique : on étudie la partie quadratique en \mathbf{q} . On obtient trois termes différents :

- $H_{int}^{quad,1} = \alpha \mathbf{u} \cdot \mathbf{q} \beta q_z \times \chi e^{i\ell\phi_Q} + \text{c.c.}$
- $H_{int}^{quad,2} = \alpha \mathbf{u} \cdot \mathbf{q} \times \delta q_{||} \epsilon e^{i(\ell-1)\phi_Q} e^{i\phi_q} + \text{c.c.}$
- $H_{int}^{quad,3} = \alpha \mathbf{u} \cdot \mathbf{q} \times \delta q_{||} \gamma e^{i(\ell+1)\phi_Q} e^{-i\phi_q} + \text{c.c.}$

$H_{int}^{quad,1}$ ne présente qu'un terme de phase en ϕ_Q . Les conclusions sont donc identiques à celles avec H_{int}^{dipole} : le MAO du champ est transféré au centre de masse.

Au contraire, $H_{int}^{quad,2}$ et $H_{int}^{quad,3}$ sont différents. Pour le premier, la phase est $e^{i(\ell-1)\phi_Q} e^{i\phi_q}$. Le calcul de $\langle L'_Q | e^{i(\ell-1)\phi_Q} | L_Q \rangle$, intégrale selon l'angle externe, va donner la règle de sélection :

$$L'_Q - L_Q = \ell - 1$$

et celui de $\langle n_f, l_f, m_f | e^{i\phi_q} | n_i, l_i, m_i \rangle$, cette fois-ci une intégrale sur l'angle interne, donne :

$$l_f - l_i = 1$$

Le champ de MAO ℓ transfère donc $(\ell - 1)$ unités de moment angulaire à la dynamique externe, et une unité à la dynamique interne. De même, dans le terme $H_{int}^{quad,3}$, il transfère $(\ell + 1)$ à la dynamique externe, et prélève une unité à la dynamique interne.

Ces résultats démontrent un comportement très riche entre dynamiques externes et internes d'un atome, tant est que l'on puisse réaliser des transitions quadripolaires électriques. Le transfert de MAO vers la dynamique externe de l'atome est maintenant couramment utilisé en manipulation de micro-particules, où il permet de faire tourner la particule autour de l'axe de propagation de la lumière [He et al., 1995]. Au contraire, si le MAO est transféré à la dynamique interne de l'atome, il sera mis en rotation autour de son propre axe.

Le couplage entre moments internes et externes a été utilisé notamment par [Mu-thukrishnan et Stroud Jr, 2002], qui ont même pu intriquer ces deux quantités. On peut également citer le travail théorique de [Mondal et al., 2014], qui propose un schéma d'orientation de molécules froides par un faisceau de Laguerre-Gauss basé sur un transfert de MAO entre dynamique externe et interne.

Notons toutefois que ces deux travaux utilisent des atomes ou des molécules froides pour circonvenir au problème de la faible probabilité d'effectuer une transition quadripolaire électrique. En effet, si un atome est suffisamment refroidi, sa longueur de de Broglie se rapproche de la longueur d'onde optique, rendant les termes d'ordre supérieurs en a/λ plus importants. Une autre piste serait de diminuer la longueur d'onde du rayonnement. Comme on le verra dans la partie suivante, la génération d'harmonique d'ordre élevé permet de générer des champs portant du MAO à des longueurs d'onde très faibles.

Pour comprendre de manière intuitive les conclusions obtenues, considérons un faisceau de Laguerre-Gauss, dont l'expression est donnée par l'équation 4.19. Si un atome de taille a est placé à une distance $r \gg a$ du centre, la phase du faisceau est localement plate à l'échelle de l'atome. On retrouve donc le comportement d'une onde plane, où aucun MAO n'est transféré à l'atome. Si au contraire on veut que l'atome puisse "voir" la phase hélicoïdale, il faut le placer très près du centre, où le gradient de phase est le plus important. Malheureusement, c'est aussi là où l'intensité du faisceau tend vers zéro, rendant le transfert expérimental de MAO vers la dynamique interne de l'atome difficile. Une étude théorique à ce sujet a été effectuée par [Picón et al., 2010] : les auteurs considèrent un faisceau ultraviolet portant du MAO interagissant avec un atome à un électron. Leur calcul montre une modification des règles de sélection, mais en utilisant une intensité pic gigantesque, inatteignable en pratique.

Illustrons pour finir les conclusions de cette partie en citant le travail de [Schmiegelow et al., 2015]. Pour observer des échanges de MAO supérieurs à 1, les auteurs ont utilisé un ion refroidi placé au centre du faisceau et une focalisation proche de la limite de diffraction. On vérifie facilement qu'au centre du faisceau le gradient d'un champ de Laguerre-Gauss est maximal, et c'est précisément lui qui intervient dans une transition quadripolaire. Les auteurs démontrent que ce gradient est suffisant pour exciter un ion *in the dark* en mesurant une oscillation de Rabi (voir la figure 8.1), et s'en servent pour mesurer spatialement l'amplitude et le gradient du champ en déplaçant l'ion dans le faisceau.

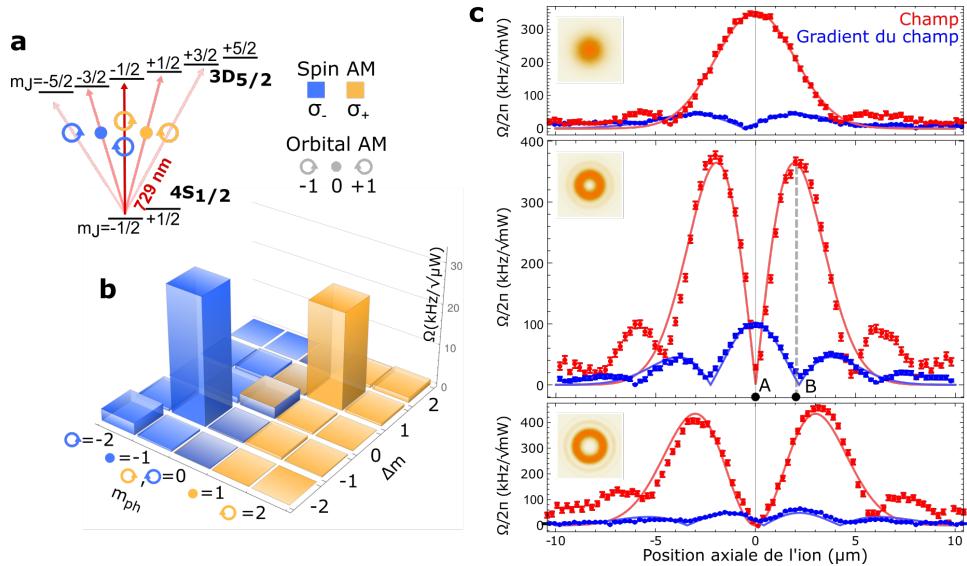


FIGURE 8.1 – Observation de transitions quadripolaires électriques. (a) Transitions possibles mettant en jeu le MAS et le MAO. (b) Amplitudes de transition mesurées en utilisant une oscillation de Rabi. (c) Amplitude de transition dipolaire (rouge) et quadripolaire (bleu) en fonction de la position transverse de l’ion. Ces amplitudes sont reliées respectivement à l’amplitude du champ et du gradient du champ. Tiré de [Schmiegelow et al., 2015].

Conclusion de la partie II

Nous avons introduit les définitions nécessaires et construit des champs électromagnétiques réalisables en pratiques dans lesquelles le moment angulaire est contrôlé. Dans le chapitre III, nous étudierons expérimentalement la génération de modes de Laguerre-Gauss à partir d’un laser infrarouge Gaussien, avant d’utiliser ces modes pour générer des harmoniques d’ordre élevé. Dans le chapitre IV, nous nous intéresserons au cas du moment angulaire de spin, c’est-à-dire de faisceaux polarisés circulairement. Nous chercherons à générer des harmoniques d’ordre élevé polarisées circulairement et à les utiliser dans l’étude de molécules chirales.

Troisième partie

Le moment angulaire orbital dans la génération d'harmoniques d'ordre élevé

INTRODUCTION

La GHOE est un phénomène aujourd’hui bien compris et qui a été longuement étudié en fonction de nombreux paramètres : intensité, pression, longueur d’onde, etc. Toutefois, mis à part quelques travaux numériques sur les faisceaux de Bessel [T. Auguste, 2008], la GHOE à partir de faisceaux portant du MAO n’a été que très peu étudiée.

Dans ce chapitre nous décrirons en détail le processus de GHOE à partir de faisceaux de Laguerre-Gauss, qui comme on l’a vu dans la partie 7.3 sont des modes propres du moment angulaire orbital. Nous commencerons par décrire notre dispositif de génération d’harmoniques d’ordre élevé dans le cas habituel d’un mode laser Gaussien, puis expliquerons comment passer au cas Laguerre-Gaussien. Les résultats observés seront ensuite expliqués à l’aide de simulations numériques, avant de conclure par une mesure spatio-temporelle complète du rayonnement généré.

GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ À PARTIR DE MODES DE LAGUERRE-GAUSS

10.1 Le cas Gaussien : Aspects expérimentaux de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

Note : cette section sera probablement déplacée en partie [2.1](#).

10.1.1 Système laser

Toutes les expériences présentées dans ce chapitre ont été réalisées sur le laser LUCA (Laser Ultra-Court Accordable) du LIDYL au CEA Saclay. Il délivre des impulsions ayant une enveloppe temporelle gaussienne de largeur à mi-hauteur $\tau = 50$ fs et un profil spatial gaussien de largeur $w_0 = 15$ mm à $\frac{1}{e^2}$. La longueur d'onde utilisée est 800 nm, et le taux de répétition est de 20 Hz. Ce système dispose d'une fibre utilisée pour filtrer spatialement le faisceau, ce qui garantit un profil très proche d'un mode gaussien pur [[Mahieu et al., 2015](#)]. Le prix à payer est une diminution de l'énergie par impulsion, qui atteint quand même environ 35 mJ après la fibre et le dernier étage de compression.

10.1.2 Génération d'harmoniques d'ordre élevé

Nous commençons par mettre en forme le faisceau laser : son diamètre est ajusté à l'aide d'un iris et son énergie est ajustée grâce à un atténuateur constitué d'une

lame demi-onde et d'une paire de polariseur croisés. À la sortie de cet atténuateur, la polarisation du laser est verticale (S). Le faisceau est ensuite focalisé par une lentille dans un jet de gaz délivré par une vanne pulsée à la fréquence du laser par un système piezo-électrique (Attotech). L'utilisation d'une vanne pulsée permet de n'envoyer du gaz que lorsque le faisceau laser est présent, ce qui limite la pression résiduelle dans les chambres à vide. Ainsi, on peut atteindre une pression assez élevée (XXX) dans la région focale sans que l'émission harmonique ne soit réabsorbée par le gaz résiduel. Un autre paramètre important est le diamètre de l'orifice de la vanne (ici, 150 µm) : en choisissant un diamètre faible, on crée une extension supersonique du gaz ce qui garantit une longueur d'interaction avec le laser courte dans la direction longitudinale. On s'approche ainsi des conditions idéales d'un plan d'atomes, ce qui limite l'importance des effets d'accord de phase dans la GHOE.

Le choix du gaz dépend de l'expérience réalisée : on peut par exemple utiliser une molécule dont on étudie la réponse - c'est le principe de la spectroscopie harmonique. Le gaz n'est pas l'objet d'étude dans notre cas, on préférera donc choisir un système simple, facile à se procurer, et ayant une grande section efficace. Le gaz le plus courant est l'Argon, qui est peu coûteux et génère de manière très efficace. Son potentiel d'ionisation est de 15.76 eV, ce qui donne une énergie de coupure assez faible et qui empêche de générer des ordres harmoniques très élevés. Dans les cas où on désire générer des ordres élevés et nombreux, on pourra utiliser d'autres gaz rares comme le Néon ($I_p = 21.6$ eV) même si la génération sera moins efficace.

Pour notre système, les paramètres nominaux sont :

- Le diamètre avant focalisation $\mathcal{O} \approx 10\text{-}15$ mm,
- L'énergie par impulsion de l'ordre de $E = 1$ mJ,
- La lentille de longueur focale $f = 1$ m.

Pour calculer la valeur de l'intensité pic au foyer, le profil du faisceau après focalisation peut être calculé par un calcul numérique. Le champ avant la lentille est défini dans les coordonnées cylindriques (R, θ) par :

$$E(R, \theta) = \sqrt{I_0} \exp\left(-\frac{R^2}{w_0^2}\right) \times \delta\left(\frac{\mathcal{O}}{2} - R\right),$$

où w_0 est la largeur du faisceau collimaté avant l'iris, \mathcal{O} est le diamètre de l'iris, δ est la fonction de Heaviside, et $I_0 = \frac{2E\sqrt{\frac{4\log 2}{\pi}}}{\tau\pi w_0^2}$. La focalisation d'un faisceau par une lentille mince peut être calculée par une transformée de Fourier (voir [Goodman, 2005], un des ouvrages de référence pour l'optique de Fourier, et [Tan] pour des exemples d'implémentations numériques). Ces calculs permettent d'étudier l'influence des différents paramètres. Par exemple, on peut faire varier le diamètre de l'iris : la Figure 10.1 montre le profil du faisceau au foyer quand \mathcal{O} varie entre 5 et 25 mm. On voit alors que l'intensité pic au foyer évolue entre ≈ 0 et 10×10^{14} W/cm. On

se trouve donc parfaitement dans le régime d'intensité nécessaire à la génération d'harmonique : l'intensité est suffisante pour enclencher une ionisation tunnel mais reste assez faible pour ne pas ioniser et dépléter tout le milieu.

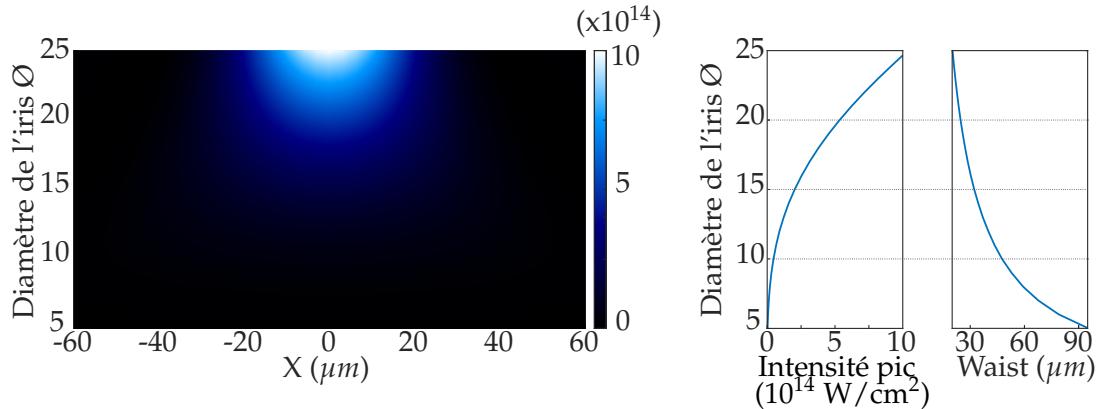


FIGURE 10.1 – Évolution du foyer lorsqu'on varie la taille de l'iris. De gauche à droite : (1) profil transverse de l'intensité au foyer, (2) intensité pic, (3) taille du waist. Les paramètres sont les suivants : $E = 1 \text{ mJ}$, $w_0 = 15 \text{ mm}$, $\tau = 50 \text{ fs}$, $\lambda = 792 \text{ nm}$, $f = 1 \text{ m}$ et \mathcal{O} variant de 5 à 25 mm par pas de 1 mm. Le calcul est réalisé sur une grille de 1025x1025 points correspondant à une taille réelle de $5^*\mathcal{O}$.

Les harmoniques d'ordre élevé du laser infrarouge sont ainsi générées par le gaz situé près du foyer de la lentille. Ce rayonnement XUV est ensuite ré-imagé par un dispositif composé de deux optiques :

- (i) Un miroir torique en or de 50 cm de focale. Le miroir travaille à 11.5° d'incidence rasante (78.5° par rapport à la normale au miroir), ce qui permet d'avoir une réflectivité importante et plate sur la gamme spectrale considérée (voir Figure 10.2).

Le miroir toroïdal est positionné dans une configuration 2f-2f de sorte à garder un rapport 1 : 1 entre le foyer de génération et le second foyer. Ré-imager le foyer de génération est utile car on peut focaliser le rayonnement harmonique dans un deuxième dispositif, comme par exemple un spectromètre à temps de vol dans le cas d'une mesure RABBIT (voir les parties ?? et 13.1). Un autre avantage est qu'il éloigne la zone de génération, où la pression est élevée, de la zone de détection, qui requiert souvent un vide de qualité pour que les détecteurs fonctionnent.

- (ii) La deuxième optique est une lame de SiO_2 , qui joue le rôle de filtre de l'infrarouge de génération. La lame de silice est traitée antireflet pour l'infrarouge grâce à un dépôt de multicouches. La dernière de ces couches est en silice, ce qui combiné à une bonne qualité de surface permet de réfléchir efficacement le rayonnement harmonique. La Figure 10.3, tirée de [Mairesse, 2005] présente la réflectivité de la lame pour le rayonnement harmonique et infrarouge. La réflectivité dans l'extrême ultra violet (XUV) est donc supérieure à 50% jus-

10.1.2 Génération d'harmoniques d'ordre élevé

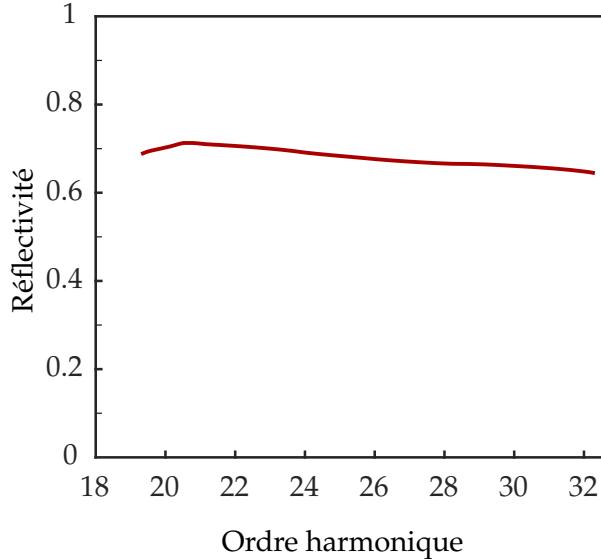


FIGURE 10.2 – Réflectivité calculée du miroir torique en or à un angle d'incidence de 11.5°. (CXRO, [Henke et al., 1993]).

qu'à l'ordre ≈ 37 , tandis que moins de 10% de l'infrarouge est réfléchi. Le filtrage de l'infrarouge de génération est souvent crucial : il constitue un bruit de mesure non négligeable, sans compter qu'il peut facilement endommager des optiques ou des détecteurs en aval s'il est focalisé.

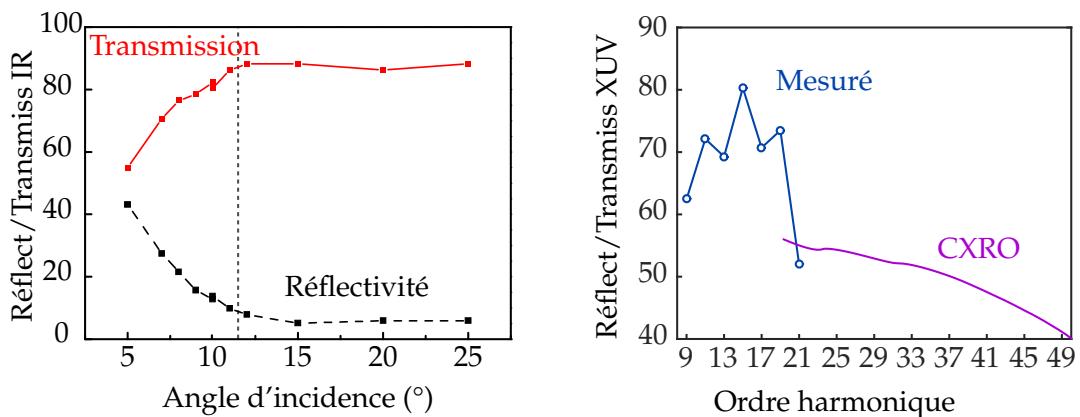


FIGURE 10.3 – Réflectivité de la lame de silice. À gauche, transmission et réflectivité à 800 nm en fonction de l'angle d'incidence rasante. Les pointillés repèrent notre angle de 11.5°. À droite, réflectivité XUV mesurée (cercles bleus) et donnée par le CXRO (ligne violette) ([Henke et al., 1993]). Figure adaptée de [Mairesse, 2005].

Nous souhaiterions ensuite pouvoir imager le spectre harmonique, c'est-à-dire séparer les différents ordres harmoniques et mesurer leurs propriétés spatiales. Un peu après le second foyer, les harmoniques sont dispersées par un réseau à pas variable Hitachi 001-0437 (voir [Kita et al., 1983] pour des détails sur son fonctionnement). L'angle de réflexion d'un rayonnement monochromatique de longueur

d'où λ est donné par la formule des réseau :

$$m\lambda = \frac{\sin \alpha + \sin \beta}{\sigma},$$

où m est l'ordre de diffraction considéré (généralement 1), σ le nombre de trait par mètre (1200 traits/mm dans notre cas), α et β les angles d'incidence et de réflexion, définis par rapport à la normale au réseau (la documentation donne $\alpha = 87^\circ$ pour un fonctionnement optimal).

Le réseau de diffraction est cylindrique : il est focalisant dans la dimension horizontale mais est plan dans la direction verticale. Un rayonnement gaussien de faible largeur spectrale $\Delta\lambda$ et de largeur spatiale $w(z)$ formera donc dans le plan focal du réseau une fine ligne verticale de largeur proportionnelle à $\Delta\lambda$ et de hauteur $w(z)$. On image ainsi à la fois les dimensions spectrale et spatiale, si on suppose la symétrie cylindrique. Ce spectre est imagé par des galettes de micro-canaux couplées à un écran de phosphore, lui-même observé par une caméra CCD Basler A102f.

L'intégralité du dispositif expérimental est représenté sur la Figure 10.4.

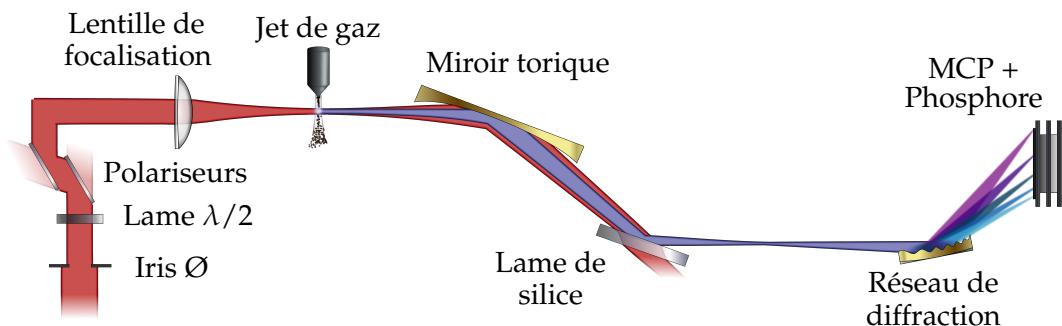


FIGURE 10.4 – Dispositif expérimental de génération et détection d'harmoniques d'ordre élevé.

Les figures 10.5 et 10.6 présentent des spectres obtenus avec ce dispositif en utilisant respectivement l'argon et le néon comme gaz de génération. On observe les ordres harmoniques allant de 13 à 29 dans l'argon, et de 13 à 57 dans le néon, la différence d'énergie de coupure étant attendue puisque le néon a un I_p plus élevé. Sur le spectre de l'argon, on observe clairement les deux trajectoires quantiques de la GHOE (voir partie 1.2) : une contribution sur l'axe correspond à la trajectoire courte et une plus divergente et moins intense correspond à la trajectoire longue. Dans le cas du néon, les conditions d'accord de phase utilisées favorisent la trajectoire courte. On remarque également que la divergence de la trajectoire courte (resp. longue) augmente (resp. diminue) avec l'ordre harmonique, jusqu'à ce que les deux trajectoires se confondent dans la coupure. Notons finalement la présence sur le spectre du néon de pics satellites autour des harmoniques les plus basses : il s'agit des harmoniques plus élevées diffractées au second ordre par le réseau.

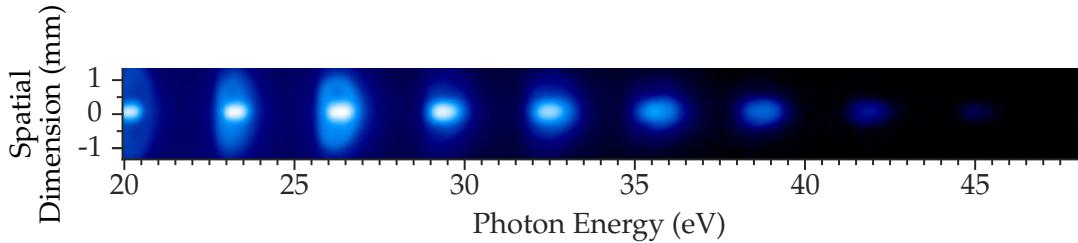


FIGURE 10.5 – Spectre d’harmoniques d’ordre élevé générées dans l’argon à partir d’un mode laser gaussien.

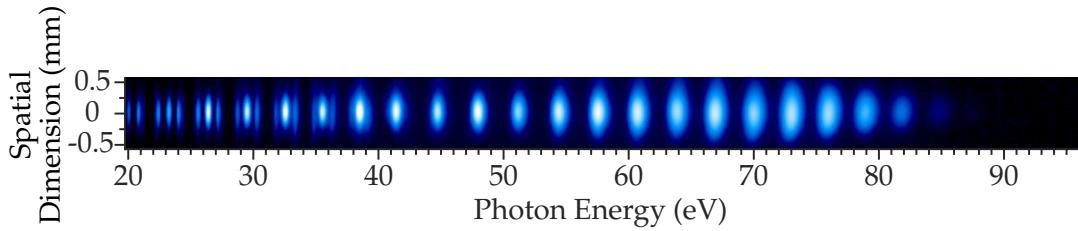


FIGURE 10.6 – Spectre d’harmoniques d’ordre élevé générées dans le néon à partir d’un mode laser gaussien.

10.2 Génération de modes de Laguerre-Gauss dans le visible et proche infrarouge

Ayant décrit la génération “habituelle” d’harmoniques d’ordre élevé, décrivons maintenant l’expérience où le laser générateur possède un mode de Laguerre-Gauss, dont l’expression a été donnée au chapitre précédent (équation 4.19). Les modes de Laguerre-Gauss possèdent un moment angulaire orbital bien défini grâce à leur phase hélicoïdale. Plus précisément, c’est le terme $e^{i\ell\theta}$, également présent dans les modes de Bessel, qui leur confère cette propriété. Il sera question de l’index radial p des modes de Laguerre-Gauss plus loin dans cette thèse, mais il n’a pour l’instant pas d’importance pour notre problème. La première question est donc de savoir comment produire un mode de Laguerre-Gauss d’index $(\ell_{IR}, 0)$ dans l’infra-rouge.

10.2.1 Superposition de modes de Hermite-Gauss

Les faisceaux de LG étant des modes du champ électromagnétique, on peut d’abord penser à modifier le laser lui-même pour qu’il lase directement dans le mode désiré. En introduisant des éléments absorbants dans la cavité, il est a priori possible d’interdire la génération d’un mode Gaussien. En pratique, il est assez compliqué de sélectionner un mode de LG. Il est par contre assez simple de sélectionner un des modes de *Hermite-Gauss*, qui sont les solutions de l’équation d’onde en coordonnées cartésiennes. Ces modes sont souvent appelés modes TEM_{nm} , pour “Trans-

verse Electro-Magnetic”, dont le mode Gaussien TEM_{00} n'est simplement que le mode d'index le plus bas. Quelques uns de ces modes sont représentés sur la figure 10.7. En insérant simplement un fil vertical (resp. horizontal) dans la cavité laser, on bloque la génération du TEM_{00} et on obtient un mode TEM_{01} (resp. TEM_{10}).

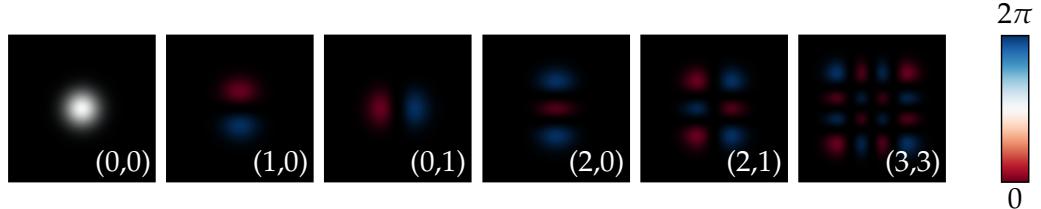


FIGURE 10.7 – Modes de Hermite-Gauss pour différentes valeurs de (n,m) . De gauche à droite, $(n,m) = (0,0), (1,0), (0,1), (2,0), (2,1), (3,3)$. Le code couleur est le même que celui de la figure 4.2 : la couleur donne la phase et la luminosité l'intensité. **IRA AU CHAP. 2**

Les faisceaux de Hermite-Gauss constituent également une base des modes du champ, dans laquelle on peut donc écrire les modes de Laguerre-Gauss. On peut montrer ([Beijersbergen et al., 1993]) que les composantes du mode $\mathcal{LG}_{\ell,p}$ sont égales aux composantes d'un mode TEM_{nm} incliné à 45° avec $p = \min(m,n)$ et $\ell = m - n$, la seule différence étant l'ajout d'une phase de $\pi/2$ entre les différentes composantes successives. Par exemple pour $\ell = 1$,

$$\begin{aligned} \text{TEM}_{n,m}^{45^\circ} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \text{TEM}_{01} + \frac{1}{\sqrt{2}} \text{TEM}_{10} \text{ et} \\ \mathcal{LG}_{1,0} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \text{TEM}_{01} + \frac{i}{\sqrt{2}} \text{TEM}_{10}. \end{aligned}$$

Pour $\ell = 2$,

$$\mathcal{LG}_{2,0} = \frac{1}{2} \text{TEM}_{02} + \frac{i}{\sqrt{2}} \text{TEM}_{11} - \frac{1}{\sqrt{2}} \text{TEM}_{20}$$

et ainsi de suite. Comme dit plus haut, il est possible de générer un mode $\text{TEM}_{n,m}$ en cavité, il reste seulement à l'incliner à 45° par rapport au repère choisi. Pour contrôler la phase entre les composantes relatives, les auteurs de [Beijersbergen et al., 1993] ont montré qu'on pouvait utiliser des lentilles cylindriques. En effet, une lentille cylindrique convergente ne focalise qu'une seule des composantes cartésiennes, qui va subir un déphasage au passage du foyer dû à la phase de Gouy. On recollimate ensuite le faisceau avec une deuxième lentille cylindrique de même focale f . La phase ajoutée est ajustée en changeant la distance entre ces deux lentilles ; pour obtenir $\pi/2$ il faut choisir $\sqrt{2}f$. La Figure 10.8 illustre le principe de ce dispositif, appelé convertisseur de mode.

L'intérêt de ce dispositif est de créer des modes purs : on obtient exactement le faisceau de Laguerre-Gauss recherché. Il présente cependant deux inconvénients : (1) il faut disposer d'un mode $\text{TEM}_{0\ell}$ au départ, ce qui devient compliqué dès que ℓ

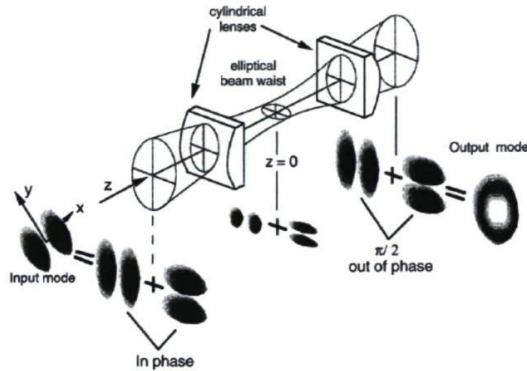


FIGURE 10.8 – Schéma de fonctionnement d'un convertisseur de mode : en partant d'un TEM_{01} incliné à 45° , on obtient un mode $\mathcal{LG}_{1,0}$. Tiré de [Padgett et Allen, 1999].

augmente. De plus, il est peu pratique de devoir modifier la cavité laser, particulièrement dans le cas des lasers de puissances utilisés pour la HHG. (2) Le faisceau est focalisé dans une dimension entre les deux lentilles. La puissance fournie par notre laser imposerait de réaliser la conversion dans une enceinte à vide, sans quoi la focalisation dans l'air détruira le profil spatial et temporel du faisceau. Pour ces raisons, nous avons choisi une méthode plus flexible et plus adapté à un laser de puissance.

10.2.2 Utilisation d'une lame de phase à spirale

Cette technique est probablement la façon la plus intuitive d'ajouter le terme de phase qui nous intéresse au faisceau. Pour rajouter une phase $e^{i\ell\theta}$, il suffit d'utiliser une lame de verre transparente dont l'épaisseur varie proportionnellement à θ . On forme ainsi une *lame de phase à spirale* (Spiral Phase Plate, SPP), concept proposé dans [Beijersbergen et al., 1994] et représenté sur la Figure 10.9.

La lame présente une discontinuité pour $\theta = 0^\circ$, dont la hauteur h permet de contrôler le moment angulaire orbital transféré au faisceau pour une longueur d'onde donnée. Si cette hauteur est assez faible pour que l'on reste dans le régime paraxial, on peut considérer que la lame agit uniquement sur la phase du faisceau incident. Ainsi si on choisit

$$h = \frac{\ell\lambda}{n - 1},$$

où n est l'indice de réfraction du milieu, pour un champ d'entrée $u(r,\theta,z)$ on obtient directement après la lame $u' = u \exp(-i\ell\theta)$. Il est donc non seulement possible de passer d'un mode Gaussien à un mode Laguerre-Gaussien, mais encore de changer l'indice d'un mode déjà Laguerre-Gaussien.

La lame de phase illustre joliment la création de MAO : si on considère une onde

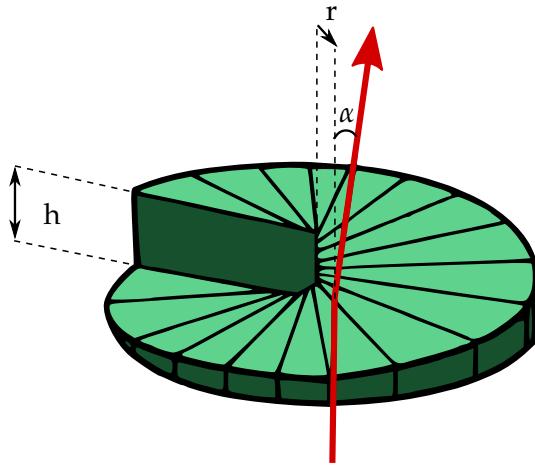


FIGURE 10.9 – Lame de phase à spirale. La flèche rouge représente le trajet d'un rayon optique. Adapté de [Yao et Padgett, 2011].

plane arrivant perpendiculairement à la surface plane de la lame, le rayon qui sort de la lame sera dévié par réfraction à travers la surface hélicoïdale. Cette réfraction se fait dans la direction azimutale, le moment linéaire de la lumière acquiert donc une composante azimutale, synonyme de moment angulaire. Plus précisément, pour un rayon r donné, l'angle de la surface vaut $h/(2\pi r)$. Si on applique la loi de Snell-Descartes on obtient que le rayon est dévié d'un angle $\alpha = (n - 1)\ell\lambda/(2\pi r(n - 1)) = \ell/(k_0 r)$. Le moment linéaire par photon vaut $\hbar k_0$, donc le moment angulaire par photon vaut $r \times \hbar k_0 \times \ell/(k_0 r) = \ell\hbar$.

Si le principe d'une SPP est simple, sa construction est beaucoup plus compliquée. Les tolérances sur la valeur de h et la régularité de la surface sont très strictes aux longueurs d'ondes optiques, sans quoi la qualité du mode de sortie sera détériorée (si h n'est pas adapté, on peut même créer des modes d'indice non entier, cf. [Leach et al., 2004]). D'ailleurs, lors des premiers travaux sur le sujet ([Beijersbergen et al., 1994]), la température de la lame était ajustée pour accorder précisément la hauteur de la lame à la longueur d'onde. La technique a évolué et il est maintenant possible de créer des SPP de très bonne qualité [Oemrawsingh et al., 2004].

Enfin, remarquons que même pour une SPP parfaite, la conversion d'un mode à l'autre n'est jamais idéale. La SPP agit sur la phase du faisceau, mais ne modifie pas le profil d'intensité. Ainsi, à sa sortie le champ électrique a la bonne phase mais pas la distribution d'intensité d'un mode de Laguerre-Gauss (termes sur la première ligne de l'équation 4.19). La conséquence est que le champ u_{exp} créé n'est pas un mode pur du champ, mais une superposition de modes de Laguerre-Gauss de différents indices. Ainsi, son intensité sera fortement modulée au cours de la propagation selon la phase entre ces différents modes. Le cas qui nous intéresse principalement est la conversion d'un mode Gaussien vers un mode LG. Dans ce

cas, cette superposition s'écrit :

$$\begin{aligned} u_{exp}(r,\theta,z) &= \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} \langle u_{exp}(r,\theta,z) | \mathcal{LG}_{\ell,p}(r,\theta,z) \rangle |\mathcal{LG}_{\ell,p}(r,\theta,z)\rangle \\ &= \sum_{p=0}^{\infty} \sum_{\ell=-\infty}^{\infty} \langle TEM_{00}(r,\theta,z) \cdot e^{i\ell'\theta} | \mathcal{LG}_{\ell,p}(r,\theta,z) \rangle |\mathcal{LG}_{\ell,p}(r,\theta,z)\rangle, \end{aligned} \quad (10.1)$$

où ℓ' est l'indice azimutal correspond à la hauteur de la SPP. Les coefficients sont simplement donnés par le produit scalaire ci-dessus. On remarque qu'il a la forme suivante :

$$\langle TEM_{00}(r,\theta,z) \cdot e^{i\ell'\theta} | \mathcal{LG}_{\ell,p}(r,\theta,z) \rangle = \int_{r=0}^{\infty} \int_{\theta=0}^{2\pi} \dots e^{i(\ell'-\ell)\theta} r dr d\theta,$$

l'intégrale selon θ s'annule donc dès que $\ell \neq \ell'$. Les modes de la superposition ont donc tous le même index azimutal mais des p différents. Ces coefficients peuvent être calculés numériquement, par exemple [Beijersbergen et al., 1994] obtiennent pour le cas $\ell' = 1$ les valeurs présentées dans le Tableau 10.10. On conclut donc que le faisceau est composé majoritairement du mode $\mathcal{LG}_{1,0}$. Les valeurs deviennent moins bonne lorsqu'on augmente ℓ , par exemple un Gaussien passant à travers une lame dessinée pour ajouter $\Delta\ell = 2$ n'est composé qu'à 50% du mode $\mathcal{LG}_{2,0}$ recherché.

| | $p = 0$ | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 |
|------------|---------|------|------|------|------|------|
| $\ell = 1$ | 78.5 | 9.82 | 3.68 | 1.92 | 1.17 | 0.79 |

FIGURE 10.10 – Décomposition du champ obtenu en passant un mode Gaussien pur à travers une lame de phase à spirale. D'après [Beijersbergen et al., 1994].

Pour finir, mentionnons une technique permettant de relâcher un peu les contraintes de fabrication d'une SPP : il est possible de discréteriser la pente de phase, ce qui rend la lame plus facile à construire et donc plus accessible. Cette technique est détaillée dans [Sueda et al., 2004], où les auteurs calculent l'influence du nombre de points de discréterisation sur la pureté modale obtenue :

| Nombre de points de discréterisation | ∞ | 32 | 16 | 8 | 4 |
|--|----------|------|------|------|------|
| Efficacité $\mathcal{LG}_{0,0} \rightarrow \mathcal{LG}_{1,0}$ | 78.5 | 78.3 | 77.5 | 74.6 | 63.7 |

FIGURE 10.11 – Efficacité de conversion d'une lame de phase à spirale $\Delta\ell = 1$ en fonction du niveau de discréterisation. D'après [Sueda et al., 2004].

La qualité du mode obtenue est donc très correcte même jusqu'à 8 niveaux. Les auteurs montrent également que ces lames de phase sont adaptées à des utilisations avec des faisceaux courts et intenses, contrairement à la plupart des autres méthodes. Pour ces raisons, nous avons finalement choisi d'utiliser une lame de phase discréterisée sur 16 niveaux, et disposons de lames $\Delta\ell = 1$ et $\Delta\ell = 2$ à 800 nm, ce qui nous permet d'aller jusqu'à $\ell = 3$ en les mettant l'une après l'autre.

10.2.3 Résultats expérimentaux sur la création de modes de Laguerre-Gauss dans l'infrarouge

Même si le système laser a été décrit plus haut, notons encore une fois l'importance du filtrage spatial installé sur notre chaîne : il nous garantit un mode Gaussien très pur, ce qui favorise grandement la création de modes Laguerre-Gaussien de qualité.

Les lames de phases utilisées ont été construites par la société Silios Technologies et font 17 mm de diamètre. Elles ou elles sont insérées directement après l'iris et avant la lentille. Le faisceau étant bien collimaté, nous n'avons pas observé de différence notable selon le placement de la lame. Il est intéressant d'observer l'intensité du faisceau un peu après le passage dans la lame :

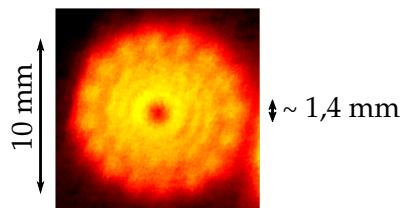


FIGURE 10.12 – Intensité transverse après être passée dans une lame de phase à spirale $\Delta\ell = 1$. Le faisceau est d'abord diaphragmé par un iris de diamètre 10 mm, la distance d'observation après la lame est de 1 m.

On observe 16 "pétales" sur les bords du faisceau, qui correspondent à la diffraction par les 16 marches de la lame. On voit également la singularité de phase déjà formée, qui donne un zéro d'intensité au centre. Clairement, l'intensité du faisceau est encore très loin de celle d'un mode de Laguerre-Gauss : il n'y a que dans le champ lointain que le faisceau prendra la forme désirée. Dans notre cas, cela se passe au foyer de la lentille de génération. Nous imageons ce foyer à l'aide d'une caméra CCD Imagine Source équipée d'un objectif x5 et d'un tube de 160 mm. La figure 10.13 présente les résultats obtenus.

On mesure le diamètre de l'anneau, défini comme la distance entre les deux maxima d'intensité le long d'une ligne radiale, et on obtient 200, 280 et 400 μm pour $\ell = 1, 2, 3$. Ceci est cohérent avec la dépendance en $\sqrt{\ell}$ attendue (voir équation 4.21), mais ne constitue pas une mesure directe du MAO porté par le faisceau. Pour ce faire, il existe de nombreuses techniques développées dans le domaine visible et infrarouges dont le but est toujours de révéler le terme de phase $e^{i\ell\theta}$. Pour révéler cette phase spatiale, il est naturel d'essayer d'observer des interférences, soit avec un autre faisceau - l'interférence avec un gaussien donne une "fourche" d'ordre ℓ [Bazhenov, 1990] - ou bien du faisceau avec lui-même, c'est-à-dire sa diffraction. De nombreux objets diffractifs ont été utilisés, par exemple une fente [Ghai et al., 2009]

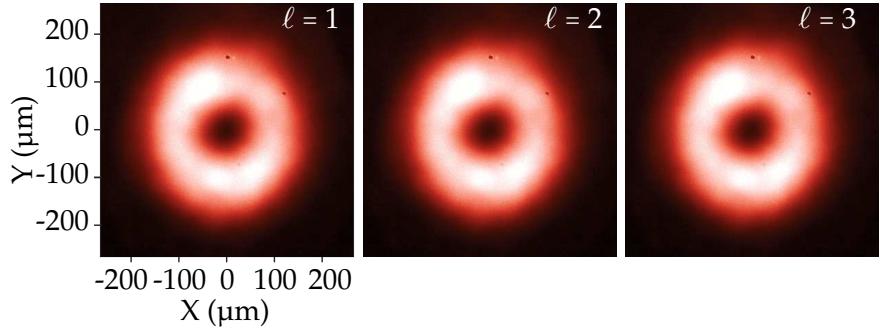


FIGURE 10.13 – Intensité laser au foyer d'une lentille de 1m, après passage à travers (1) une lame de phase $\Delta\ell = 1$, (2) une lame de phase $\Delta\ell = 2$, et (3) les deux lames placées successivement. $\ell = 2,3$ à mesurer !

ou des fentes de Young [Sztul et Alfano, 2006], avec lesquelles le signe et la parité de ℓ se retrouvent dans le décalage des franges, ou bien des objets plus compliqués tels que des grilles de pupilles [Berkhout et Beijersbergen, 2008] qui donnent directement la valeur de ℓ . On peut également mentionner les ouvertures bloquant une partie angulaire du faisceau, ce qui se répercute sur le contenu modal du faisceau à travers la relation d'incertitude $\Delta\ell\Delta\phi > K$ déjà mentionnée (rajouter au chapitre 2). Certaines méthodes sont généralisables au cas d'un photon unique et ont permis de mesurer de l'intrication entre différents états de moment orbital angulaire [Mair et al., 2001] ainsi qu'un équivalent angulaire au paradoxe EPR [Leach et al., 2010].

Nous avons choisi d'utiliser une ouverture en triangle, qui donne une figure de diffraction assez surprenante : on obtient une grille de points diffractés en forme de triangle, dont l'orientation donne le signe de ℓ alors que le nombre de points donne $|\ell|$: sur l'arête extérieure au triangle, on a $|\ell| + 1$ points [Hickmann et al., 2010]. Après être passé dans la SPP, le faisceau est diffracté par une ouverture triangulaire dont la taille est ajustable à l'aide d'un système motorisé conçu par M. Bougeard. On choisit l'ouverture de l'ordre du waist du faisceau, ce qui permet d'observer la figure de diffraction en imageant le foyer d'une lentille de focale $f=1m$. La figure 10.14 illustre le principe et les résultats de cette expérience.

Nous avons pu vérifier la validité de cette méthode pour des moments angulaires plus élevés. Pour les obtenir, le champ infrarouge E_{800} est doublé à l'aide d'un cristal de BBO (bêta-borate de baryum). On obtient un champ à 400 nm, dont l'amplitude est donné par la loi habituelle de l'optique non-linéaire perturbative $E_{400} \propto E_{800}^2 \propto e^{2i\ell_{IR}\theta}$. Le MAO du faisceau est ainsi doublé, comme vérifié expérimentalement par [Dholakia et al., 1996]. Les résultats obtenus après diffraction par la fente triangulaire sont présentés sur la figure 10.15.

Ceci constitue donc une preuve directe que le faisceau est composé très majoritairement du mode $\mathcal{LG}_{\ell,0}$. Bien sûr, on ne s'attend quand même pas à ce que les modes

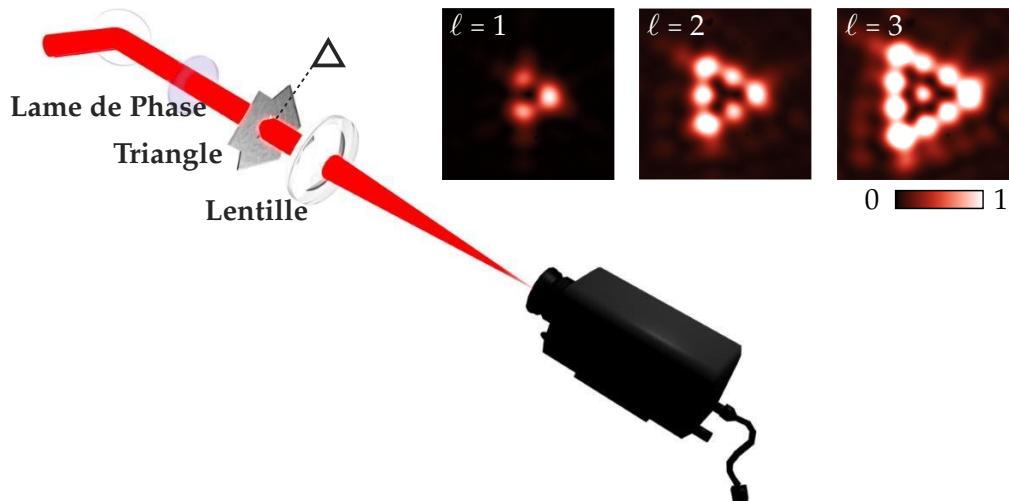


FIGURE 10.14 – Mesure directe du moment angulaire orbital porté par le faisceau infrarouge à l'aide d'une ouverture triangulaire.

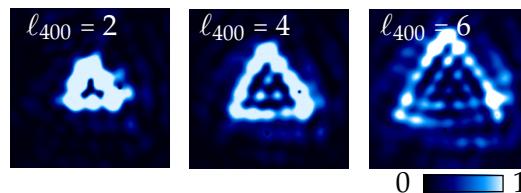


FIGURE 10.15 – Mesure directe du moment angulaire orbital porté par le champ obtenu après doublage du faisceau infrarouge dans un cristal de BBO.

obtenus soient purs, du fait de la lame de phase mais également à cause de l'iris qui limite la dimension transverse du faisceau. On peut évaluer numériquement l'effet de tous ces éléments : on effectue un calcul de propagation de la même façon qu'expliqué en page 63, cette fois en rajoutant l'effet de la lame de phase discrète. Une fois le foyer obtenu, on calcule sa décomposition dans la base des modes de Laguerre-Gauss en évaluant numériquement les coefficients du type 10.1. Comme noté page 27, les modes de Laguerre-Gauss ne constituent une base que pour une valeur de $w(z)$ donnée. Il faut donc choisir cette valeur avant d'effectuer la décomposition. On fait l'hypothèse que le mode obtenu est assez proche d'un mode pur $(\ell, 0)$ pour que son rayon soit donné par l'équation 4.21, ce qui nous permet de fixer $w(z)$. La figure 10.16 montre l'intensité au foyer et les coefficients de la décomposition ainsi obtenus. On voit que le foyer est composé du mode $\mathcal{LG}_{\ell,0}$ à 72, 48 et 42% pour $\ell = 1, 2, 3$ respectivement. On observe également l'apparition d'un deuxième anneau pour $\ell = 2$ et 3, dû au vignetage du faisceau par l'iris et cohérent avec la présence de davantage de modes p .

Nous concluons donc que même si le contenu modal devient moins pur à mesure que ℓ augmente, le mode dominant reste celui qui nous intéresse. La GHOE étant un processus très non-linéaire, c'est lui qui contribuera majoritairement.

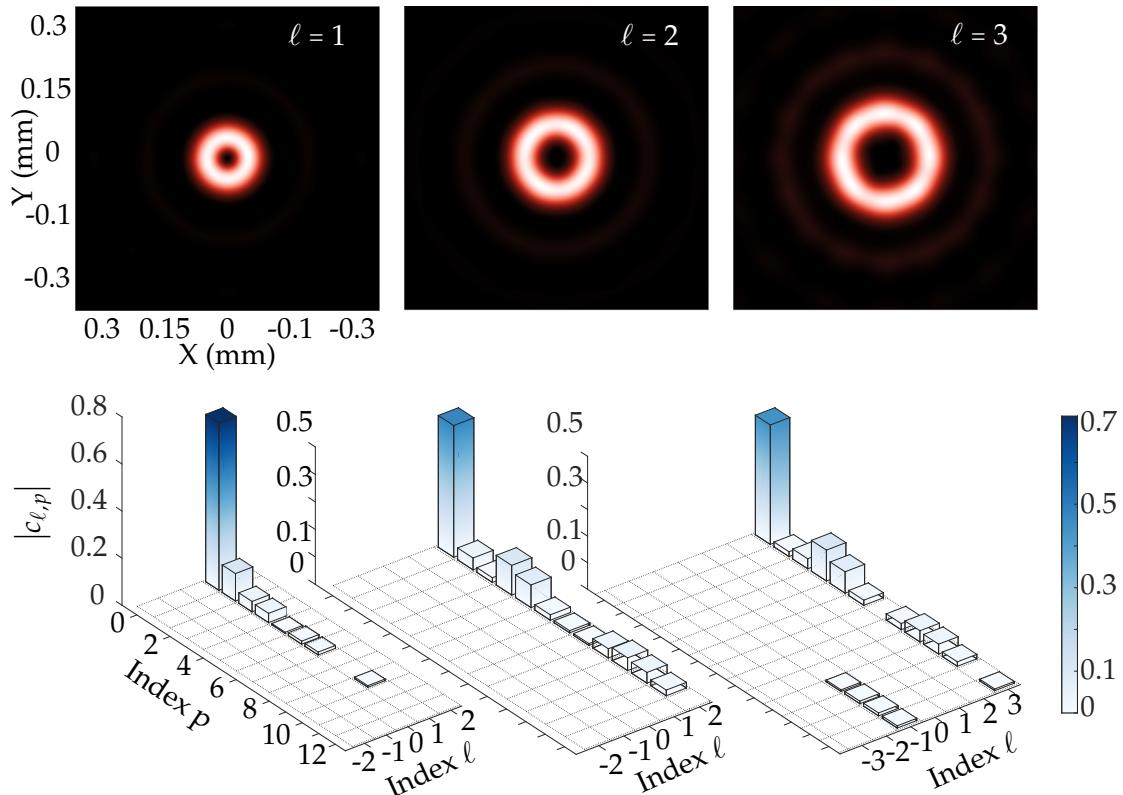


FIGURE 10.16 – Intensité laser au foyer d'une lentille de 1m, après passage à travers (1) une lame de phase $\Delta\ell = 1$, (2) une lame de phase $\Delta\ell = 2$, et (3) les deux lames placées successivement.

10.3 Génération d'harmoniques d'ordre élevé d'un faisceau de Laguerre-Gauss

10.3.1 Contraintes expérimentales

Une fois qu'on dispose d'un faisceau infrarouge de MAO défini, l'expérience ne diffère en principe pas du cas Gaussien présenté dans la partie 10.1. En pratique, un problème important subsiste : celui de l'intensité pic. Nous avons vu que pour générer des harmoniques d'ordre élevé, l'intensité au foyer doit être de l'ordre de $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Pour un mode de Laguerre-Gauss d'index $(\ell, 0)$, l'intensité maximale est obtenue en r_{\max} (équation 4.21) :

$$\begin{aligned} I_\ell(r_{\max}, z=0) &= \frac{C_{\ell,0}^2}{w_0^2} \left(\frac{r_{\max}\sqrt{2}}{w_0} \right)^{2|\ell|} e^{-\left(\frac{2r_{\max}^2}{w_0^2}\right)} \\ &= \frac{2}{\pi(1+\delta_{0\ell}) |\ell|! w_0^2} \ell^{|\ell|} e^{-\ell} \end{aligned}$$

La formule de Stirling donne $|\ell|! \approx \sqrt{2\pi|\ell|} |\ell|^{\ell} e^{-|\ell|}$. Elle est valable respectivement à 8%, 4% et 2.6% près pour $\ell = 1, 2, 3$. On peut donc approximer :

$$I_\ell(r_{\max}, z=0) \approx \frac{2}{\pi w_0^2} \frac{1}{\sqrt{2\pi|\ell|}} \text{ pour } \ell \neq 0.$$

L'intensité pic évolue donc en $1/\sqrt{|\ell|}$, la génération est donc de plus en plus compliquée à mesure que le MAO de l'infrarouge ℓ_1 augmente. Si on évalue l'expression exacte ci-dessus, on obtient :

| ℓ_1 | 0 | 1 | 2 | 3 |
|------------|---|--------|--------|--------|
| I_{\max} | 1 | 0.7358 | 0.5413 | 0.4481 |

FIGURE 10.17 – Intensité pic d'un mode de Laguerre-Gauss en fonction de ℓ . Les intensités sont normalisées à celle du mode $\ell = 0$.

Nous avons la chance de disposer d'un laser assez énergétique (jusqu'à 35 mJ disponibles), qui comme on le verra est suffisant pour générer jusqu'à $\ell_1 = 3$. Il est également probable que l'accord de phase s'effectue différemment avec un faisceau de LG, mais ces effets sont minimisés dans notre dispositif par l'utilisation d'un jet de gaz pulsé fournissant un milieu très fin.

La seconde contrainte expérimentale est due au système d'imagerie. Comme démontré plus haut, le faisceau infrarouge est constitué d'un mode de Laguerre-Gauss principal. Le principe de conservation du moment angulaire nous amène à penser que les harmoniques générées doivent également porter du MAO, et prendront donc probablement la forme de modes de Laguerre-Gauss. Nous avons vu dans la partie 10.2.1 que les modes de Laguerre-Gauss peuvent être vus comme la superposition de plusieurs modes d'Hermite-Gauss et que le déphasage entre ces modes était crucial. En particulier, le convertisseur de mode présenté sur la figure 10.8 repose sur l'utilisation de lentilles cylindriques pour contrôler la phase d'un seul des modes de Hermite-Gauss. On comprend donc que n'importe quel élément optique focalisant différemment les deux composantes cartésiennes du champ va modifier la phase relatives des modes HG et détruire le mode de Laguerre-Gauss. Dans notre dispositif présenté sur la figure 10.4, on trouve deux éléments problématiques :

- Les optiques de focalisation peuvent être astigmatiques. En particulier, la lentille de focalisation et le miroir torique doivent être alignés parfaitement, sans quoi notre mode en sera perturbé.
- Le réseau de diffraction du spectromètre est un réseau cylindrique, il va donc systématiquement détruire le profil du faisceau au passage de son foyer.

L'effet du réseau de diffraction cylindrique peut être calculé. Par exemple, [Vaitiy et al., 2013] proposent d'utiliser l'astigmatisme introduit par une lentille inclinée pour mesurer le MAO porté par un faisceau. Nous adaptons ici leur formalisme au cas de notre réseau de diffraction. Considérons par simplicité un faisceau collimaté incident sur le réseau de diffraction. Pour décrire sa propagation, on peut utiliser les matrices de transfert. La matrice totale du système est

$$M_{\text{tot}} = M_{z_1} \cdot M_{\text{réseau}} \cdot M_{z_0},$$

où z_0 est la distance de propagation en amont du réseau, z_1 la distance en aval, M_z et $M_{\text{réseau}}$ décrivent respectivement la propagation sur une distance z et la focalisation par le miroir :

$$M_z = \begin{pmatrix} I & zI \\ 0 & I \end{pmatrix} \text{ avec } I = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

$$M_{\text{réseau}} = \begin{pmatrix} I & 0 \\ -C/f & I \end{pmatrix} \text{ avec } C = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

f est la longueur focale effective du réseau dans la direction horizontale. En fonction nominal, le réseau focalise horizontalement les harmoniques dans un plan appelé "spectral" situé 235 mm en aval [Kita et al., 1983]. Comme on considère ici un faisceau collimaté, on prendra $f = 235$ mm. À partir de M_{tot} , l'équation (8) de [Vaitiy et al., 2013] donne l'expression analytique du champ à une distance z_1 du réseau :

$$E(x,y) = A(i/2)^{|\ell|+1} \exp[-(\beta_1 x^2 + \beta_2 y^2)] \times \gamma^{|\ell|} HG_\ell[(\alpha_1 x + i\epsilon\alpha_2 y)/\gamma], \quad (10.2)$$

où ℓ est le MAO de l'harmonique considérée, $A, \beta_1, \beta_2, \alpha_1, \alpha_2, \gamma$ sont des constantes déterminées par les paramètres du problème, et $\epsilon = \pm 1$ est le signe de ℓ .

L'expression 10.2 contient un polynôme de Hermite d'ordre ℓ , signe que le réseau agit comme un convertisseur de mode. Pour évaluer cette expression, choisissons par exemple l'harmonique 11 et supposons qu'elle porte un moment angulaire orbital bien défini. Considérons qu'elle soit collimaté et que son waist soit égal à 10 mm. La figure 10.18 représente l'intensité obtenue pour z_1 variant autour de 235 mm, en supposant $\ell_{11} = 3$ ou 11. Nous voyons d'abord qu'à l'écart du foyer, l'anneau est simplement focalisé dans la dimension spectrale (noter les échelles différentes en x et y). Au foyer le faisceau prend la forme d'un mode de Hermite-Gauss d'index ℓ_{11} tourné à 45° par rapport à l'axe du réseau. On ne peut donc pas imager le spectre harmonique en ce point comme dans le cas Gaussien. Cependant, si on s'écarte trop du plan spectral du réseau, les harmoniques ne sont plus séparées spatialement. De plus, leur intensité est moindre, ce qui rend la mesure plus difficile. Le compromis finalement choisi est de placer le détecteur 8 cm en amont du plan focal, ce qui donne des harmoniques séparées et un effet cylindrique peu visible (voir la section suivante).

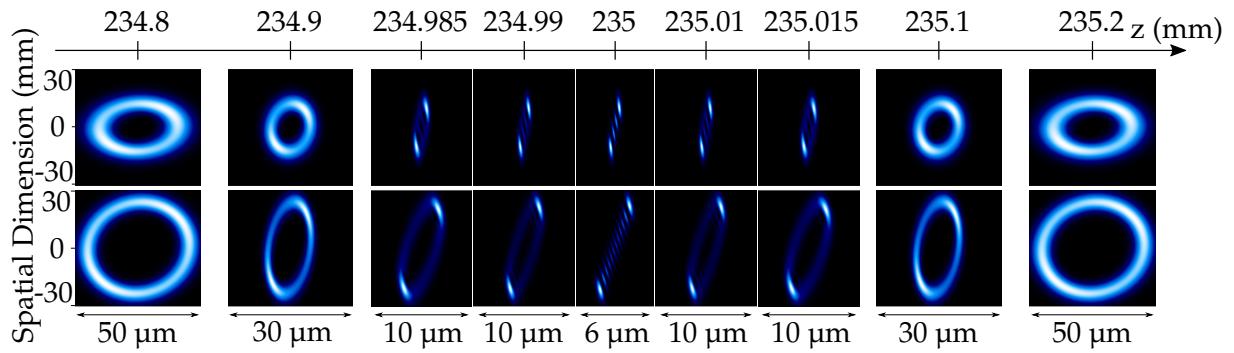


FIGURE 10.18 – Intensité de l'harmonique 11 au voisinage du foyer du réseau de diffraction cylindrique, en supposant $\ell_{11} = 3$ (ligne du haut) et $\ell_{11} = 11$ (ligne du bas). La position longitudinale z est indiquée au dessus des images. La dimension verticale est celle non focalisée par le réseau, et est donc plusieurs ordres de grandeurs plus large que la dimension horizontale. Notons également que l'échelle horizontale change d'une image à l'autre, de sorte à garder une image résolue.

La dernière contrainte expérimentale est celle de la divergence du faisceau, qui évolue comme $\sqrt{\ell}$. Nous choisissons de réduire cette divergence en utilisant une lentille de focale $f = 2 \text{ m}$, de sorte à ce que même si ℓ devient grand, les harmoniques ne soient pas tronquées par les optiques du dispositif. Le prix à payer étant bien sûr une intensité disponible au foyer plus faible.

10.3.2 Résultats

Nous présentons sur la figure 10.19 les spectres obtenus après les modifications expliquées ci-dessus effectuées, en utilisant $\ell_1 = 1, 2, 3$.

Nous observons donc une série d'harmoniques constituées d'un anneau. La première observation est que l'énergie de coupure diminue avec le MAO du laser de génération ℓ_1 , ce qui s'explique par la diminution de l'intensité pic (voir section 10.3.1). On rappelle que l'énergie de coupure est donnée par $I_c = I_p + 3.17U_p$. I_c pour $\ell_1 = 1$ vaut environ $27 * 1.55 = 41.85 \text{ eV}$. Si on utilise cette valeur et les rapports d'intensité pic données par le tableau 10.17, on obtient $I_c = 34.91 \text{ eV}$ et $I_c = 31.59 \text{ eV}$ pour $\ell_1 = 2$ et 3 . Ces valeurs sont comparables à celles de la figure 10.19, malgré la difficulté d'estimer précisément une énergie de coupure à partir d'un spectre d'harmoniques.

Intéressons nous ensuite à la forme des harmoniques. Les anneaux sont elliptiques, effet du réseau de diffraction qui commence à focaliser dans la dimension horizontale. Une autre conséquence de la focalisation est que ne nous retrouvons pas strictement un zéro au centre des anneaux. On n'observe pas de sur-intensités selon la diagonale, signe que l'effet aberrant du réseau décrit plus haut est bien minimisé

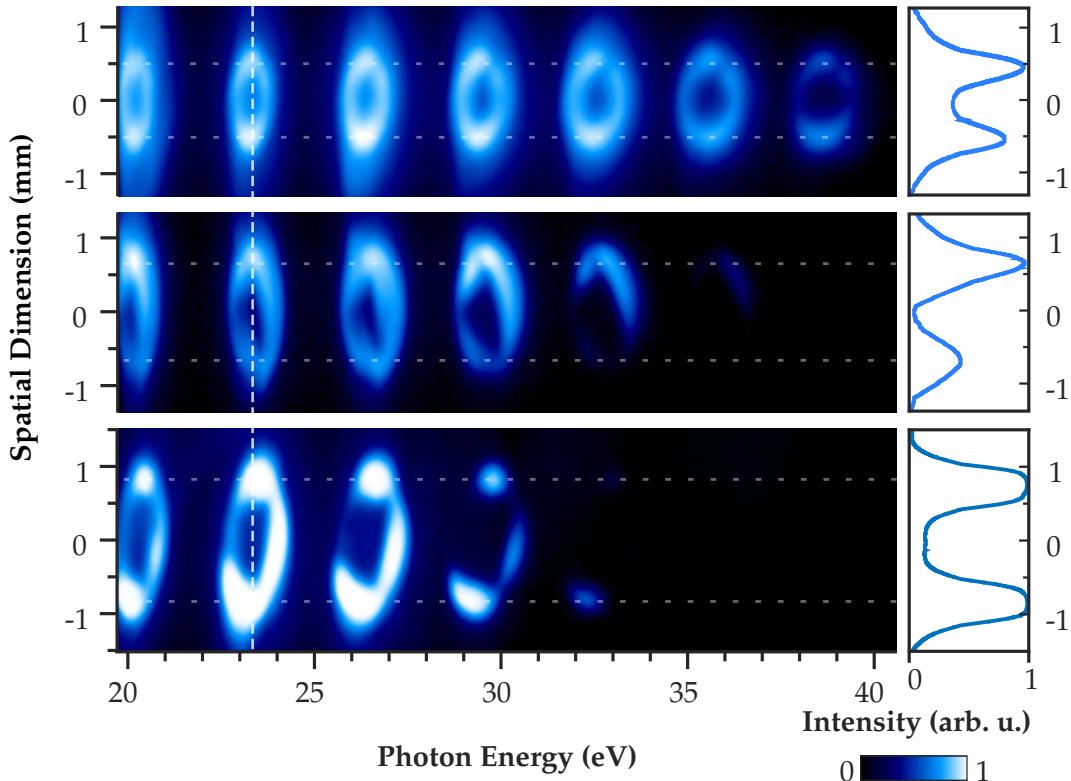


FIGURE 10.19 – Intensité normalisée des harmoniques 13 à 25 générées dans l’argon et observées en champ lointain, en utilisant $\ell_1 = 1$ (ligne du haut), $\ell_1 = 2$ (ligne du milieu) et $\ell_1 = 3$ (ligne du bas). Le détecteur (MCP) est placé 8 cm avant le plan spectral du réseau de diffraction, comme expliqué plus haut. Sur la droite, coupe de l’intensité le long de la ligne pointillée verticale blanche. Les lignes pointillées horizontales blanches représentent la position moyenne des maxima des anneaux.

et que les optiques de transport sont correctement alignées. On observe que le profil des anneaux se dégrade à mesure que ℓ_1 augmente. La cause principale de cet effet est la conversion du mode TEM_{00} en mode $\mathcal{LG}_{\ell_1,0}$, qui comme vu plus haut devient mauvaise pour des ℓ_1 élevés (voir la figure 10.16). Il est également possible que l’intensité plus faible au foyer des modes d’indices élevés nous force à utiliser un faisceau de diamètre avant focalisation plus grand et donc plus aberré.

Finalement, on remarque que l’émission harmonique n’est constituée que d’un seul anneau. Comme nous le verrons par la suite, cela signifie que seule la trajectoire quantique courte a un accord de phase favorable dans nos conditions expérimentales. On montrera également que dans ces conditions, le champ de chaque harmonique est constitué principalement d’un unique mode de Laguerre-Gauss. Enfin, remarquons que la divergence des harmoniques (dimension verticale) semble constante avec l’ordre harmonique, et ce pour chaque valeur de ℓ_1 . On mesure le diamètre moyen des anneaux, qui vaut 1.01 ± 0.02 mm, 1.33 ± 0.04 mm et 1.61 ± 0.01 mm.

Nous avons également pu effectuer cette expérience dans le Néon, le spectre obtenu avec $\ell_1 = 1$ est présenté sur la figure 10.20. Grâce à son potentiel d'ionisation plus élevé que l'Argon, on observe un spectre allant jusqu'à l'harmonique 41. Cependant, la génération est beaucoup moins efficace et nous n'avons pas réussi à atteindre l'intensité nécessaire lorsque le laser de génération portait $\ell_1 = 2, 3$. Toutes les observations faites dans l'Argon sont valables : on observe bien des anneaux simples de diamètre constant, égal à 1.00 ± 0.05 mm en moyenne.

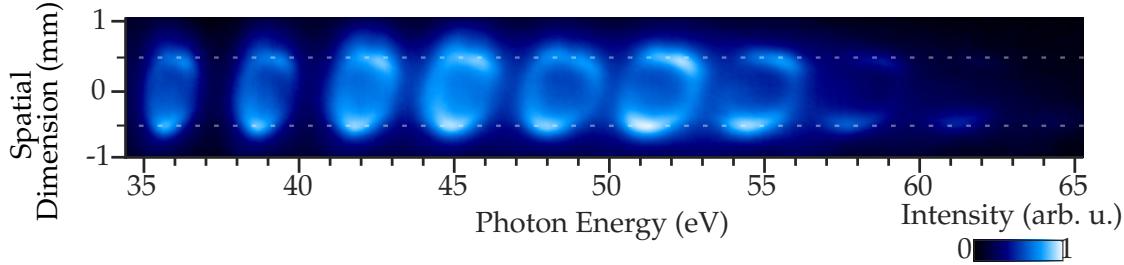


FIGURE 10.20 – Intensité normalisée des harmoniques 23 à 41 générées dans le néon et observées en champ lointain, en utilisant $\ell_1 = 1$.

Les propriétés observées sont donc robustes : elles sont vérifiées pour plusieurs valeurs du MAO de l'infrarouge et dans des gaz différents. Nous allons voir dans la partie suivante qu'elles sont suffisantes pour démontrer la conservation du moment angulaire dans le processus de génération d'harmoniques.

CONSERVATION DU MOMENT ANGULAIRE ORBITAL DANS LA GHOE

11.1 Vers une mesure non-interférométrique du moment angulaire orbital

Comme vu dans le chapitre II, le moment angulaire est une quantité conservée. Dans l’interaction laser-matière que nous étudions, le MAO porté par le faisceau infrarouge doit être transféré soit à la matière, soit au faisceau harmonique généré. Il est donc crucial de parvenir à mesurer le MAO porté par chaque ordre harmonique du spectre. Deux équipes se sont déjà intéressées à ce problème :

- [Zürch et al., 2012] ont été les premiers à utiliser des faisceaux de LG dans la GHOE. Ils ont pu étudier l’harmonique 11, et ont mesuré son MAO en la faisant diffracter sur un fil de tungsten de $5\text{ }\mu\text{m}$. Le résultat de cette expérience est $\ell_{11} = 1$.
- [Gariepy et al., 2014] ont quant à eux choisi de créer deux sources d’harmoniques côte à côte, l’une Gaussienne, et l’autre Laguerre-Gaussienne. Ces deux sources génèrent chacune un spectre, et dans les bonnes conditions interfèrent spatialement. Dans les franges observées pour chaque harmonique, on voit une discontinuité dont l’ordre donne la différence de MAO entre les harmoniques générées par les deux sources. La source Gaussienne sert de référence, ce qui leur a permis de mesurer $\ell_{11} = 11$, $\ell_{13} = 13$, et $\ell_{15} = 15$.

Les deux expériences sont clairement contradictoires. Elles ont toutes deux été effectuées dans des conditions de focalisation usuelles, où l’approximation paraxiale est valable. On s’attend donc à ce que les termes non-dipolaires soient totalement

négligeables (voir section 8), et que le processus de GHOE ne soit pas modifié à l'échelle microscopique. On aura alors la phase usuelle des harmoniques en fonction de celle de l'infrarouge : $\phi_q(r,\theta) = q \times \phi_1(r,\theta) = q\ell_1\theta$. Des simulations numériques plus précises [Hernández-García et al., 2013] montrent également qu'en restant dans le cadre de la SFA, on obtient bien $\ell_q = q \times \ell_1$, ce qui est le résultat de Gariepy *et al.* Cette loi de transfert reflète la conservation du MAO : il faut q photons infrarouges pour générer un photon de l'harmonique q , qui doit donc porter $q \times \ell_1$ unités de MAO. Toutefois, le résultat de Zürch *et al.* a été obtenu dans des conditions de génération assez inhabituelles, avec un milieu long et une intensité élevée. Les auteurs expliquent l'écart aux prédictions théoriques en disant qu'initialement, les harmoniques portent bien un MAO de $q \times \ell_1$ mais qu'il est détruit par des effets de propagation, qui amènent à $\ell_q = 1$.

Si les conditions de génération sont si importantes dans la GHOE à partir de faisceaux de Laguerre-Gauss, il faut disposer de méthodes de caractérisation robustes. Les techniques utilisées dans ces deux travaux reposent sur l'imagerie de franges d'interférences. Bien que directes et élégantes, ces méthodes ont un inconvénient majeur : elles deviennent impossible à utiliser quand la longueur d'onde diminue. Par exemple, pour $q = 15$ les franges d'interférences de [Gariepy et al., 2014] deviennent déjà difficiles à analyser. À un âge de la physique attoseconde où la tendance est de toujours plus diminuer la longueur d'onde (jusqu'à l'angström, [Popmintchev et al., 2012]), il est souhaitable de caractériser le MAO de la lumière sans méthode de diffraction. Nous allons démontrer que c'est possible en étudiant une autre signature de la valeur du MAO : le profil radial annulaire dû à la singularité de phase.

11.2 Simulations numériques de la propagation de modes de Laguerre-Gauss

Dans la section 10.3.2, on a observé que les harmoniques étaient composées d'un unique anneau et avaient le même diamètre en champ lointain. Dans cette partie nous allons démontrer que ces résultats expérimentaux sont seulement compatibles avec les points suivants :

- (i) Les modes de Laguerre-Gauss qui constituent chaque harmonique d'ordre q ont un unique index azimutal ℓ_q .
- (ii) Parmis ces modes, celui d'index radial nul $\mathcal{LG}_{(\ell_q,0)}$ est très majoritaire.
- (iii) L'index azimutal de chaque harmonique vérifie $\ell_q = q \times \ell_1$.

11.2.1 Reformulation de l'intégrale de Huygens-Fresnel pour le calcul

Pour démontrer ces résultats nous calculerons le profil en champ lointain des harmoniques pour de nombreuses valeurs de (ℓ_q, p_q) . La propagation d'un champ au foyer vers le champ lointain, où l'on observe le spectre harmonique, est décrite par l'intégrale de Huygens-Fresnel [Born et Wolf, 1999], applicable dans l'approximation paraxiale pour tout z le long de l'axe optique :

$$E_{z,\lambda_q}(x,y) = \frac{e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z}(x^2+y^2)}}{i\lambda_q z} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} E_0(x_0, y_0) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z}(x_0^2+y_0^2)} e^{\frac{i2\pi(xx_0+yy_0)}{z\lambda_q}} dx_0 dy_0,$$

avec (x_0, y_0) et (x, y) les coordonnées Cartésiennes respectivement au foyer et à la position z , λ_q la longueur d'onde de l'harmonique considérée, et E_0 le champ électrique harmonique au foyer.

Dans le cas de lumière portant un moment angulaire orbital, cette intégrale peut être réécrite avantageusement en prenant en compte la symétrie du problème. Commençons par passer en coordonnées cylindriques (r, θ) pour le foyer et (R, ϕ) pour le champ lointain :

$$E_{z,\lambda_q}(R, \phi) = \frac{e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} R^2}}{i\lambda_q z} \int_0^{\infty} \int_0^{2\pi} E_0(r, \theta) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} r^2} e^{\frac{i2\pi Rr \cos(\theta-\phi)}{z\lambda_q}} r dr d\theta$$

Un champ portant un MAO défini s'écrit : $E_0(r, \theta) = U_0(r) e^{i\ell_q \theta}$. Ceci est valable pour un mode (ℓ_q, p) quelconque et même pour une superposition de modes $\sum_{i=1...N} (\ell_q, p_i)$. On obtient :

$$E_{z,\lambda_q}(R, \phi) = \frac{e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} R^2}}{i\lambda_q z} \int_0^{\infty} U_0(r) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} r^2} \int_0^{2\pi} e^{i\ell_q \theta} e^{\frac{i2\pi Rr \cos(\theta-\phi)}{z\lambda_q}} r dr d\theta$$

Le changement de variable $\theta' = \theta - \phi$ donne

$$E_{z,\lambda_q}(R, \phi) = \frac{e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} R^2}}{i\lambda_q z} e^{i\ell_q \phi} \int_0^{\infty} U_0(r) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} r^2} \int_0^{2\pi} e^{i\ell_q \theta'} e^{\frac{i2\pi Rr \cos(\theta')}{z\lambda_q}} r dr d\theta'$$

On utilise ensuite l'identité suivante [Wolf, 1979] :

$$\forall (n, x), J_n(x) = \frac{1}{2\pi i^n} \int_0^{2\pi} e^{ix \cos \alpha} e^{in\alpha} d\alpha,$$

où J_n est la fonction de Bessel d'ordre n de première espèce (voir la figure 7.1). Cette fonction est bien définie pour tout nombre complexe x si n est entier. En prenant

$n = \ell_q$ et $x = \frac{2\pi Rr}{z\lambda_q}$, n est bien entier et on obtient

$$E_{z,\lambda_q}(R,\phi) = 2\pi i^{\ell_q} \frac{e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} R^2}}{i\lambda_q z} e^{i\ell_q \phi} \int_0^\infty U_0(r) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} r^2} J_{\ell_q}\left(\frac{2\pi Rr}{z\lambda_q}\right) r dr$$

On mesure finalement l'intensité :

$$I_{z,\lambda_q}(R,\phi) = \left| \frac{2\pi}{\lambda_q z} \int_0^\infty U_0(r) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} r^2} J_{\ell_q}\left(\frac{2\pi Rr}{z\lambda_q}\right) r dr \right|^2 \quad (11.1)$$

Cette expression prend la forme d'une *transformée de Hankel*. La transformée de Hankel d'ordre ν d'une fonction $f(r)$ est définie par :

$$F_\nu(k) = \int_0^\infty f(r) J_\nu(kr) r dr$$

En prenant $f(r) = U_0(r) e^{i\frac{\pi}{\lambda_q z} r^2}$, l'équation 11.1 se réécrit :

$$I_{z,\lambda_q}(R,\phi) = \left| \frac{2\pi}{\lambda_q z} F_{\ell_q}\left(\frac{2\pi R}{z\lambda_q}\right) \right|^2 \quad (11.2)$$

La transformée de Hankel exprime une fonction $f(r)$ comme une somme infinie de fonctions de Bessel de première espèce. La transformée d'ordre 0 n'est autre qu'une transformée de Fourier à deux dimensions en coordonnées cylindriques. Elle est intéressante dans notre cas car elle réduit le calcul à une seule dimension. Numériquement, cette transformée doit être évaluée de manière discrète pour tout $z = z_0, \dots, z_f$. [Guizar-Sicairos et Gutiérrez-Vega \[2004\]](#) proposent un algorithme qui approxime ce calcul de manière très efficace. D'abord, une matrice de transformation est calculée à partir des zéros des fonctions de Bessel. Ces zéros peuvent être calculés une fois pour toute et stockés. À partir de cette matrice, la transformée de Hankel est réduite à une simple multiplication matrice-vecteur, opération très rapide qu'on effectue pour tout $z = z_0, \dots, z_f$.

11.2.2 Résultats des simulations numériques

Le premier point à démontrer (voir page 82) est que les modes qui constituent l'harmonique q sont tous d'indice ℓ_q . L'algorithme décrit ci-dessus a été implémenté sous Matlab et nous permet de vérifier ce point. On considère l'harmonique 11, de longueur d'onde $\lambda_{11} = 72$ nm. Par simplicité on suppose que les modes qui la constituent vérifient tous $p = 0$. On a donc $E_{11} = \mathcal{LG}(\ell_q^1, 0) + \dots + \mathcal{LG}(\ell_q^N, 0)$. L'expression 11.2 permet de calculer la propagation de chacun des modes $\mathcal{LG}(\ell_q^i, 0)$, qu'on pourra ensuite sommer pour obtenir le profil de l'harmonique.

Au foyer, le diamètre de l'anneau de l'harmonique 11 est le même que celui de l'infrarouge, que l'on choisit égal à 150 μm. Le faisceau diverge ensuite jusqu'au réseau

de diffraction, puis continue à diverger dans la direction verticale jusqu'au détecteur. On prendra une distance d'observation de $z_f = 500$ mm. La figure ?? donne le résultat de la propagation numérique de l'harmonique 11 dans ces conditions, si on suppose $\ell_{11} = 11$. Comme attendu, l'harmonique garde un profil annulaire le long

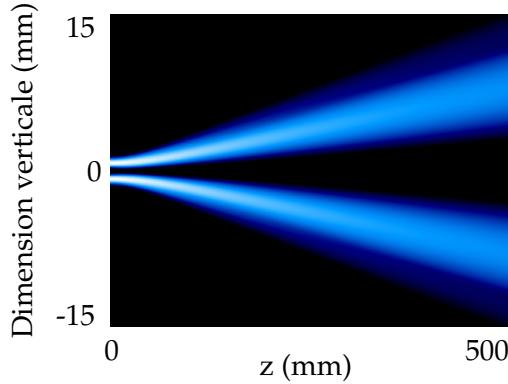


FIGURE 11.1 – Intensité normalisée de l'harmonique 11 avec $\ell_{11} = 11$ en fonction de z . La dimension verticale est la dimension spatiale, imagée sur le détecteur.

de sa propagation. Son diamètre dans le plan d'observation vaut 1.6 mm. Le calcul peut être répété en supposant différentes valeurs de ℓ_{11} . La figure 11.2 présente le profil obtenu en $z = z_f$ pour $\ell_{11} = 8 \dots 25$.

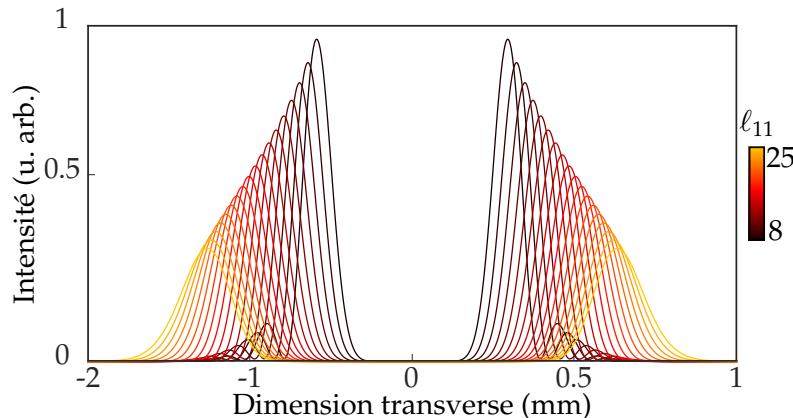


FIGURE 11.2 – Profil d'intensité en $z = z_f$ de l'harmonique 11 en supposant $\ell_{11} = 8 \dots 25$.

On fait deux observations :

- Le diamètre augmente avec ℓ_{11} . Remarquons que la dépendance n'est pas forcément en $\sqrt{|\ell_{11}|}$. En effet, le diamètre du faisceau infrarouge reste constant et égal à celui du champ harmonique. Par conséquent, le waist de l'harmonique 11 $w_0^{11} = r_{\max} \sqrt{2/\ell_{11}}$ diminue quand ℓ_{11} augmente, et modifie le diamètre de l'anneau en champ lointain.
- Il est clair que les différents modes se recouvrent spatialement. Si tous ces modes contribuaient à l'harmonique 11, on observerait des interférences entre ces différents modes. La relation $\Delta\ell\Delta\theta > k$ nous donne la forme de

ces interférences : si plusieurs modes ℓ_{11} contribuent, on assistera à une localisation angulaire de l'émission. De plus, comme les anneaux n'ont pas le même diamètre, on aura également une modulation selon la coordonnée radiale.

Pour visualiser le profil obtenu si les modes interfèrent, il faut repasser à deux dimensions. On dispose du champ $U_{\ell_{11},z_f}(R)$, il suffit donc de rajouter une phase hélicoïdale et de faire une somme cohérente : $U_{tot} = \sum_{\ell_{11}} U_{\ell_{11},z_f}(R) e^{i\ell_{11}\theta}$. La figure 11.3 présente le résultat obtenu.

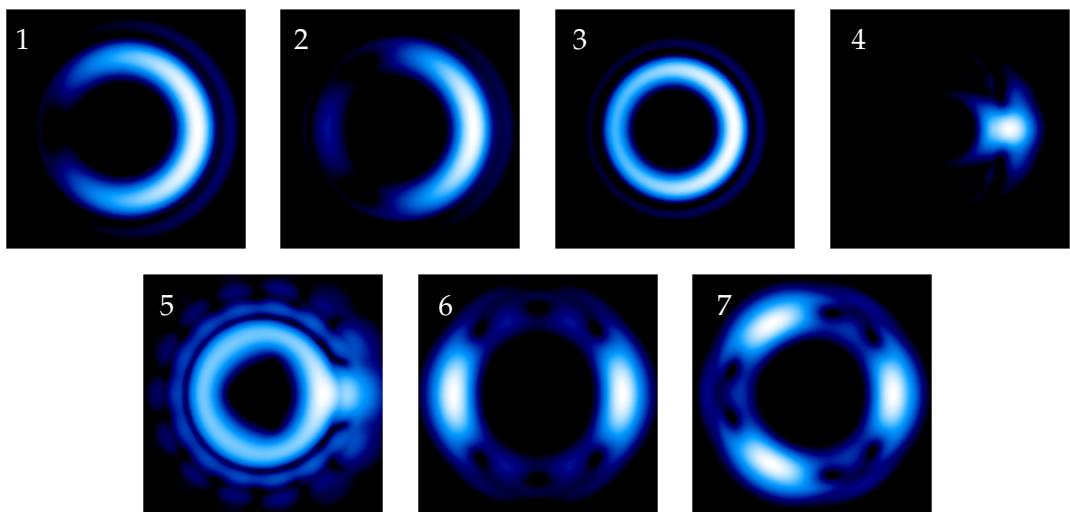


FIGURE 11.3 – Intensité en échelle logarithmique de la somme cohérente de modes de ℓ_{11} différents. De haut en bas et de gauche à droite, on note $\ell_{11} : a \cdot I + b \cdot J$ la somme cohérente du mode $\mathcal{LG}_{I,0}$ et $\mathcal{LG}_{J,0}$ avec les pondérations en intensité a et b .
 (1) $\ell_{11} : 10 + 11$, (2) $\ell_{11} : 10 + 11 + 12$, (3) $\ell_{11} : 0.1 \cdot 10 + 11 + 0.1 \cdot 12$, (4) $\ell_{11} : 8 + \dots + 25$,
 (5) $\ell_{11} : 11 + 0.1 \cdot [8 + \dots + 10 + 12 + \dots + 25]$, (6) $\ell_{11} : 9 + 11 + 13 + 15$, (7) $\ell_{11} : 8 + 11 + 14$

Les panneaux 1 et 2 montrent que dès que l'on rajoute plus d'un mode de LG, on assiste à une localisation angulaire de l'intensité. On voit également un second anneau, résultat de l'interaction entre des modes de diamètres différents. Le panneau 3 montre que même si les modes supplémentaires sont 10 fois plus faibles, l'effet est encore visible. Les panneaux 4 et 5 illustrent la même chose dans le cas de davantage de modes, ce qui conduit à une localisation plus piquée comme prévu par la relation d'incertitude. Enfin, les panneaux 6 et 7 présentent le cas particulier où l'écart entre les différents modes est respectivement de 2 ou 3. On observe alors 2 et 3 maxima d'intensité angulaires. Formellement, ceci s'explique de la même façon que la génération uniquement des harmoniques *impaires* dans la GHOE : si on multiplie la période d'une variable (ici, ℓ) par N , alors la période de sa variable conjuguée (θ) sera divisée par N .

L'expérience montre des anneaux simples et homogènes avec l'angle, nous ne

sommes donc dans aucun des cas présentés sur la figure 11.3. On conclut donc que chaque harmonique q est constituée uniquement de modes ayant le même ℓ_q . Il reste à étudier le contenu en modes p , le champ pouvant être une superposition de la forme $\sum_{i=1 \dots n} \mathcal{LG}(\ell_q, p_q^i)$.

ℓ_q étant maintenant fixé, les interférences entre différents modes seront uniquement radiales. La figure 11.4 présente les profils radiaux en champ lointain obtenus quand le champ est constitué d'un ou plusieurs modes d'indice p non nul. De façon similaire, la figure 11.5 présente l'évolution du profil radial en champ lointain quand on rajoute les modes p un à un.

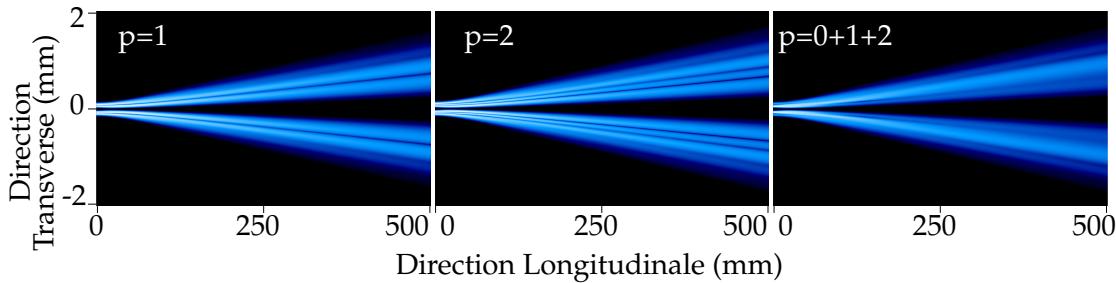


FIGURE 11.4 – Intensité normalisée de l'harmonique 11 pour une somme cohérente de modes de p_{11} différents. Le champ a un indice azimutal $\ell_{11} = 11$ et un indice radial valant de gauche à droite : (1) $p_{11} = 1$, (2) $p_{11} = 2$, (3) Somme cohérente de $p_{11} = 0, 1$ et 2 . Les autres paramètres sont les mêmes que ceux utilisés pour la figure 11.1.

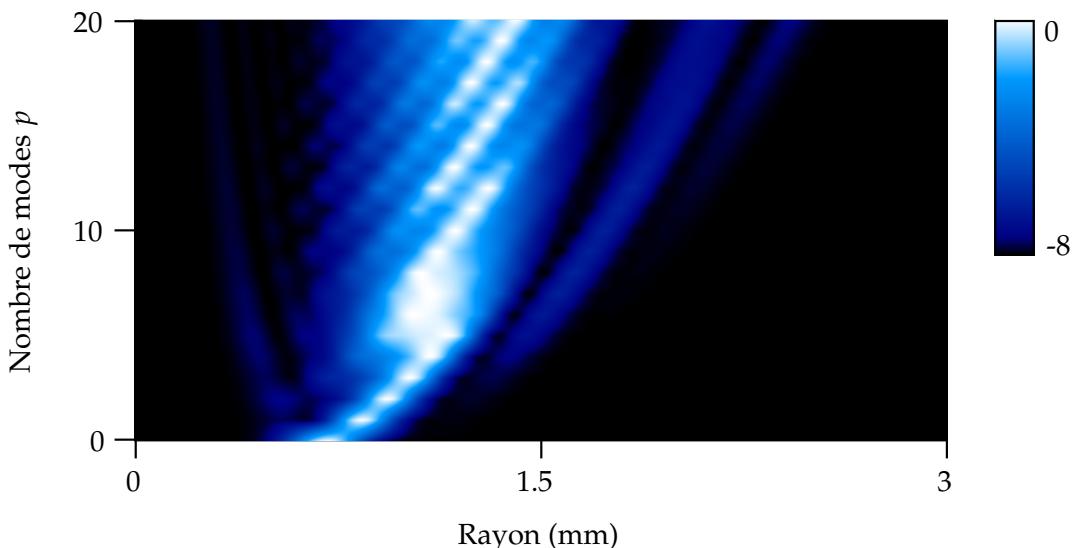


FIGURE 11.5 – Profil radial de l'intensité en échelle logarithmique de la somme cohérente de plusieurs modes p . Pour $N_p = 0 \dots 20$ on calcule le profil en champ lointain du champ $\sum_{p=0}^{N_p} \mathcal{LG}(11, p)$. L'intensité est normalisée pour chaque profil.

On voit dans tous les cas que le profil d'intensité en champ lointain présente plusieurs anneaux concentriques. Dans le cas d'une superposition de modes, les modes

interfèrent et viennent modifier ce profil. Nous concluons donc que les données expérimentales sont seulement consistantes avec un mode pur ($\ell_{1,0}$) dominant très largement le contenu modal de l'harmonique 11. Ceci étant vrai pour chaque harmonique, il ne reste à trouver les valeurs possibles de ℓ_q pour une valeur arbitraire de q , ce que nous allons faire de manière analytique.

11.3 Interprétation des résultats observés à partir de calculs analytiques

Nous sommes donc dans le cas simple d'une série d'harmoniques d'ordre q , chacune étant constituée d'un unique mode de Laguerre-Gauss. On sait également que ce mode est d'indice $p = 0$ et ne présente donc qu'un anneau unique. Expérimentalement, nous avons observé que le diamètre de l'anneau était constant en fonction de q . Trouvons alors les conditions sur ℓ_q imposées par cette propriété.

Pour un ordre q et une position z donnés, le rayon de l'anneau est :

$$\begin{aligned} r_{\max}(q,z) &= w(q,z) \sqrt{\left|\frac{\ell_q}{2}\right|} \\ &= w(q,0) \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \sqrt{\left|\frac{\ell_q}{2}\right|} \\ &= w(q,0) \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda_q}{\pi w(q,0)^2}\right)^2} \sqrt{\left|\frac{\ell_q}{2}\right|}, \end{aligned} \quad (11.3)$$

où $\lambda_q = \lambda_1/q$ est la longueur d'onde de l'ordre q . La GHOE se produit au foyer de la lentille de génération, en $z = 0$. De façon générale, en $z = 0$ l'intensité XUV est maximale là où l'intensité infrarouge l'est également. On a donc

$$\forall q, r_{\max}(q,0) = r_{\max}(1,0), \text{ soit}$$

$$w(q,0) \sqrt{\frac{\ell_q}{2}} = w(1,0) \sqrt{\frac{\ell_1}{2}}$$

On réinjecte dans 11.3 et on obtient

$$r_{\max}(q,z) = w(1,0) \sqrt{\left|\frac{\ell_1}{2}\right|} \sqrt{1 + \left(\frac{z\lambda_1}{\pi w(1,0)^2} \frac{\ell_q}{q\ell_1}\right)^2}$$

Le diamètre des anneaux est constant si r_{\max} est indépendant de q . Ceci est vérifié si et seulement si $\ell_q = q \times \ell_1$. De manière étonnante, l'augmentation du diamètre de l'anneau d'un mode de Laguerre-Gauss quand ℓ_q augmente est exactement compensée par la diffraction plus faible lorsque λ_q diminue. Ainsi, sous les hypothèses

effectuées plus haut, l'observation d'un spectre d'anneaux de taille constante est synonyme d'un MAO de $\ell_q = q \times \ell_1 \quad \forall q$. Au contraire, si $\ell_q = \ell_1$ comme mesuré par [Zürch et al., 2012], le diamètres des anneaux diminue avec q .

En conclusion, nous avons démontré qu'une condition suffisante à la relation $\forall q, \ell_q = q \times \ell_1$ était l'observation d'une série d'anneaux simples de diamètre constant avec q . Cette méthode ne nécessite qu'une simple mesure d'intensité en champ lointain et est suffisante pour caractériser le moment angulaire orbital porté par le faisceau harmonique. Dans la section suivante, nous allons étudier le contenu modal de cette émission plus en détail. Pour ce faire, il sera nécessaire d'effectuer des calculs précis de la GHOE.

11.4 Calculs SFA : une simulation complète de l'expérience réalisée

Jusqu'à présent nous avons adopté une description très simple où la GHOE est une "boîte noire". Les seuls arguments utilisés ont été le profil en champ lointain observé et le fait que les maxima d'intensité des harmoniques et de l'infrarouge coïncident au foyer.

Ici, nous nous intéressons au processus plus en détail. En particulier, nous aimeraisons comprendre l'influence de l'accord de phase et des effets de propagation dans le milieu de génération, [Zürch et al., 2012] utilisant ces effets pour expliquer leurs résultats. Les calculs ont été effectués par Thierry Auguste et s'attachent à reproduire numériquement l'expérience réalisée. Pour le faisceau infrarouge, l'intégralité du dispositif expérimental (voir figure 10.4) est prise en compte. On considère un faisceau spatialement et temporellement gaussien, de waist égal à 6.25 mm et de durée égale à 50 fs (largeur à mi-hauteur). Ce faisceau E_1 passe d'abord à travers la lame de phase en spirale, modélisée par $\phi(x,y) = \ell_1 \arctan(y/x)$, où (x,y) sont les coordonnées cartésiennes. E_1 est ensuite propagé à l'aide de l'intégrale de Huygens-Fresnel jusqu'à une lentille de focale 1 m, qui le focalise au milieu d'un jet d'argon de profil Lorentzien (largeur à mi-hauteur de 500 μm). Au foyer, on obtient un waist Gaussien équivalent de 40 μm , soit une distance de Rayleigh équivalente $z_R = 6.5$ mm. La pression de gaz maximale est de 10 mbar et l'intensité pic du laser vaut $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

La GHOE est calculée à partir de ces conditions. [L'Huillier et al., 1992] proposent d'utiliser un modèle microscopique de la GHOE, servant de terme source au champ harmonique macroscopique E_q . Nous suivons cette démarche, à la différence que l'utilisation d'un mode de Laguerre-Gauss, qui n'a pas la symétrie cylindrique d'un faisceau Gaussien, demande d'effectuer des calculs 4D (3D en espace + 1D en temps). Ce type de calcul a déjà été effectué pendant la thèse d'Antoine Camper

dans le cas de modes TEM_{01} (voir [Camper, 2014, Camper et al., 2014]).

Le milieu est supposé isotrope, homogène, diélectrique, non magnétique et globalement neutre. Le champ infrarouge induit une polarisation non-linéaire dans ce milieu, terme source du champ harmonique. Pour écrire les équations de propagations de E_1 et E_q , on se place dans les approximations paraxiale et d'enveloppe lentement variable. On suppose de plus que les harmoniques et l'infrarouge se propagent à la même vitesse de groupe $v_g \approx c$. Dans le référentiel se déplaçant à cette vitesse, les équations de propagation s'écrivent :

$$\begin{aligned} \nabla_{\perp}^2 E_1 + 2ik_1 \left(\frac{\partial E_1}{\partial z} \right) + 2k_1 \delta k_1(x,y,z,t) E_1 &= 0 \\ \nabla_{\perp}^2 E_q + 2ik_q \left(\frac{\partial E_q}{\partial z} \right) + 2k_q [\Delta k_q(x,y,z,t) + \delta k_q(x,y,z,t)] E_q &= \frac{-q^2 \omega_1^2}{\epsilon_0 c^2} P_q^{\text{NL}}(x,y,z,t), \end{aligned} \quad (11.4)$$

où ∇_{\perp}^2 est le laplacien transverse, k_q le vecteur d'onde de l'harmonique d'ordre q , ω_1 la pulsation du fondamental, Δk_q est le désaccord de phase atomique, et δk_q est le désaccord dû à la dispersion électronique. P_q^{NL} est la polarisation non-linéaire induite dont le calcul qui fait l'objet de nombreux modèles théoriques. Nous utilisons la formule Ammosov-Delone-Kraïnov (ADK) pour modéliser le taux d'ionisation dans le milieu [Ammosov et al., 1986], ainsi que l'approximation des champs forts (SFA) pour calculer les dipôles harmoniques [Lewenstein et al., 1994].

La simulation s'effectue de la façon suivante :

- (1) Le champ E_1 est calculé en premier en un point z_i en résolvant la première équation de 11.4.
- (2) Les termes $P_q^{\text{NL}}(x,y,z,t)$ et $\delta k_q(x,y,z,t)$ sont calculés en $z = z_i$.
- (3) Le champ harmonique est calculé en $z = z_i$ en utilisant la seconde équation de 11.4. Ce calcul est répété pour tout z et t pour obtenir les champs à la sortie du milieu de génération. Le résultat est présenté pour l'harmonique 15 sur la figure 11.6.

Comme attendu, on obtient un profil de phase hélicoïdal, effectuant $\ell_{15} = 15$ sauts de phase pour θ allant de 0 à 2π . Remarquons au passage que le profil d'intensité est un peu différent de ce qu'on a vu jusqu'à présent : il semble présenter une frange sombre au milieu de l'anneau principal. Ce point sera expliqué par la suite. Le champ au foyer peut ensuite être propagé jusqu'au champ lointain en calculant l'intégrale de Fresnel. On intègre ensuite temporellement pour imiter le comportement du détecteur. Pour une distance d'observation $z = z_f$, ceci s'écrit :

$$I(X,Y,z_f) = \int \left| \iint E_q(x,y,z=0,t) e^{-k_q \frac{Xx+Yy}{z_f}} dx dy \right|^2 dt,$$

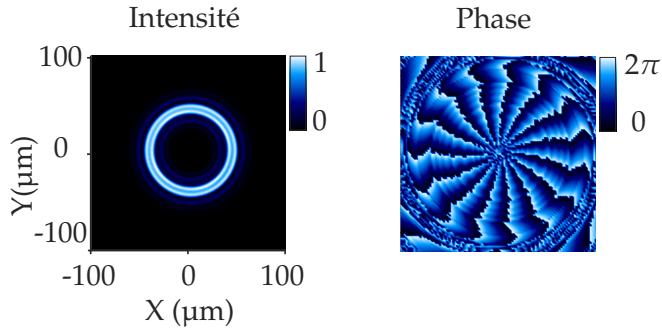


FIGURE 11.6 – Intensité et phase transverse de l’harmonique 15 au foyer quand l’infrarouge porte $\ell_1 = 1$, obtenues par la simulation 4D décrite ci-dessus.

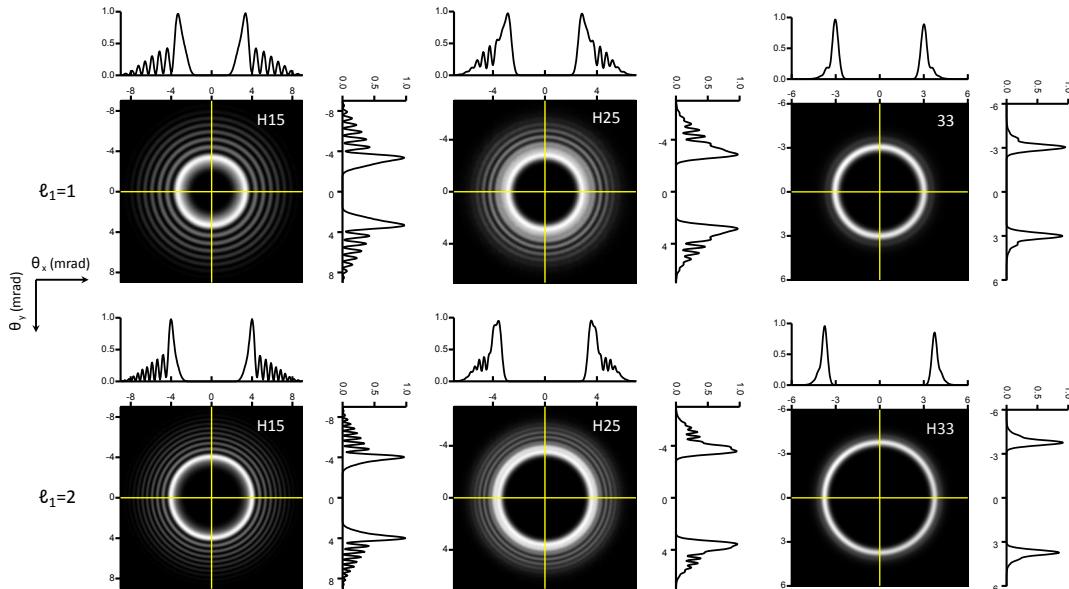


FIGURE 11.7 – Profil transverse d’intensité des harmoniques 15, 25 et 33 propagé 80 cm après le milieu de génération. Le laser infrarouge porte respectivement $\ell_1 = 1$ et 2 sur la ligne du haut et du bas. Des coupes des profils sont réalisées selon les lignes jaunes.

où (x,y) et (X,Y) sont respectivement les coordonnées cartésiennes en champ proche et en champ lointain. La figure 11.7 présente l’intensité obtenue pour les harmoniques 15, 25 et 33 avec $z_f = 80$ cm, pour $\ell_1 = 1, 2$.

Contrairement aux profils expérimentaux, ces images présentent une série d’anneaux concentriques autour d’un anneau central. Comme on le montrera, l’anneau le plus intense et central est généré par la trajectoire courte de la GHOE, tandis que les anneaux supplémentaires sont dus à la trajectoire longue. Dans l’expérience, on ne détecte que la contribution de la trajectoire courte, les conditions d’accord de phase étant apparemment défavorables à la génération de la longue. Comparons

donc les anneaux centraux obtenus par la simulation et ceux mesurés. La figure 11.8 présente l'évolution du diamètre des anneaux, paramètre identifié comme central.

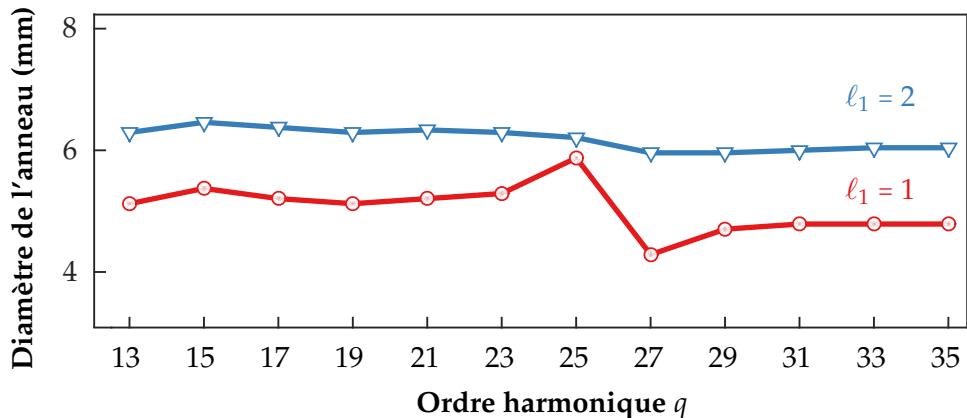


FIGURE 11.8 – Diamètre des anneaux harmonique en champ lointain pour $\ell_1 = 1$ (cercles rouges) et $\ell_1 = 2$ (triangles bleus).

Comme attendu, le diamètre est relativement constant sur tout le spectre, mis à part un saut vers l'harmonique 27. Ceci coïncide avec le domaine où les deux trajectoires quantiques commencent à fusionner : l'énergie de coupure est attendue à $I_c = I_p + 3.14U_p = 28.3 \times (\hbar\omega_{IR})$. Dans cette zone, les trajectoires peuvent interférer spatialement et modulent le profil spatial des harmoniques. Le saut est alors interprété comme le passage d'une frange d'interférence sur l'anneau central. Cet effet est bien connu dans la GHOE par faisceau Gaussien [Zaïr et al., 2008].

Lorsqu'on double le MAO du faisceau de génération, le diamètre des harmoniques augmente de $1.4 \approx \sqrt{2}$, ce qui est consistant avec la loi en $\sqrt{\ell_1}$ trouvée plus haut (11.3). Nous concluons que même en prenant en compte les effets de propagation et d'accord de phase, les résultats obtenus sont inchangés. Dans la section suivante, nous allons étudier plus en détail le rôle des trajectoires quantiques dans le problème, numériquement et expérimentalement.

RÔLE DES TRAJECTOIRES QUANTIQUES DANS LA GHOE À PARTIR DE FAISCEAUX DE LAGUERRE-GAUSS

12.1 Observation des contributions des différentes trajectoires quantiques à partir des calculs numériques

Nous avons déjà mentionné que la simulation montre deux contributions distinctes au profil en champ lointain. Pour étudier ce point plus en détail, on peut varier la position z_0 du foyer infrarouge par rapport au jet de gaz, qui contrôle le poids relatif des trajectoires. Pour la figure 11.7, nous avions $z_0 = 0$. La figure 12.1 (a-c) présente le profil obtenu en champ lointain lorsque le laser est focalisé en amont, au milieu, et en aval du jet. Quand $z_0 < 0$, c'est-à-dire que le laser est focalisé avant le jet, l'accord de phase favorise fortement la trajectoire courte. Dans ce cas, le profil en champ lointain ne présente qu'un seul anneau : comme dans l'expérience on génère un mode de Laguerre-Gauss quasiment pur. Au contraire si $z_0 > 0$, on observe plusieurs anneaux sur un profil qui rappelle un mode de LG avec $p \neq 0$. Dans le cas intermédiaire, le profil est beaucoup plus modulé à cause des interférences entre trajectoires quantiques. On vérifie cet effet en sélectionnant numériquement tour à tour une seule trajectoire. Les panneaux 12.1 (d,e) montrent que l'on retrouve bien un anneau presque pur pour la courte, et une série d'anneaux pour la longue.

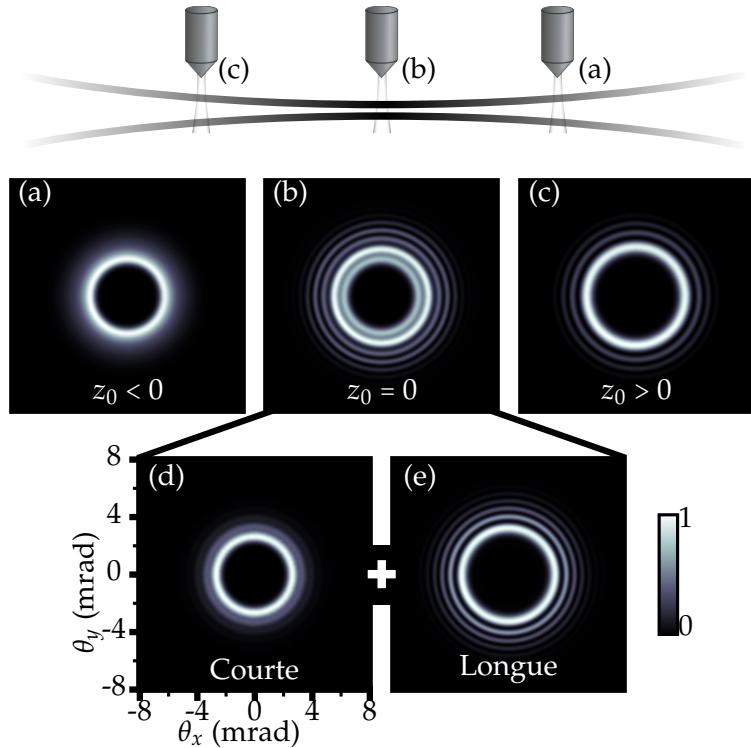


FIGURE 12.1 – Contributions des différentes trajectoires quantiques dans la GHOE par faisceau LG. Le profil d'intensité de l'harmonique 21 est présenté pour (a) $z_0 < 0$, (b) $z_0 = 0$, (c) $z_0 > 0$. La convention de signe est illustrée au-dessus. Les profils (d) et (e) sont calculés avec $z_0 = 0$ en ne prenant en compte que la contribution respectivement de la trajectoire courte ou longue.

12.2 Observation expérimentale de ces contributions

12.2.1 Modification du dispositif expérimental

Cherchons maintenant à observer des profils similaires de manière expérimentale. On s'attend à observer l'apparition d'anneaux supplémentaires plus divergents et moins intenses, il faut adapter notre dispositif en conséquence. En particulier, le réseau cylindrique de diffraction risque de distordre l'image trop fortement, nous avons donc cherché à construire un spectromètre donnant véritablement une image en coordonnées “spatiale-spatiale”. Nous avons repris le schéma proposé par Hartmut Ruf dans sa thèse [Ruf, 2012]. L'idée est d'illuminer aussi peu de traits du réseau que possible, de sorte à réduire la dispersion induite par le réseau. De plus, on cherche à utiliser un dispositif le moins astigmate possible, de sorte à éviter les effets de conversion $\mathcal{LG} \rightarrow \mathcal{HG}$. Pour ce faire, on utilise un réseau de diffraction à incidence quasi-normale. Pour réduire le nombre de traits illuminés, le faisceau est d'abord focalisé par un miroir sphérique, lui aussi en incidence quasi-normale. Le réseau est alors positionné juste avant le foyer du miroir de sorte à rester en

dessous du seuil de dommage. Bien sûr, l'incidence normale des optiques réduit fortement le flux dans l'UVX. Pour garantir une réflectivité correcte, le miroir sphérique est traité avec un revêtement de B_4C , qui réfléchit à 10-30 % jusqu'à l'ordre harmonique 19 avec un angle d'incidence de 10° (voir figure ??).

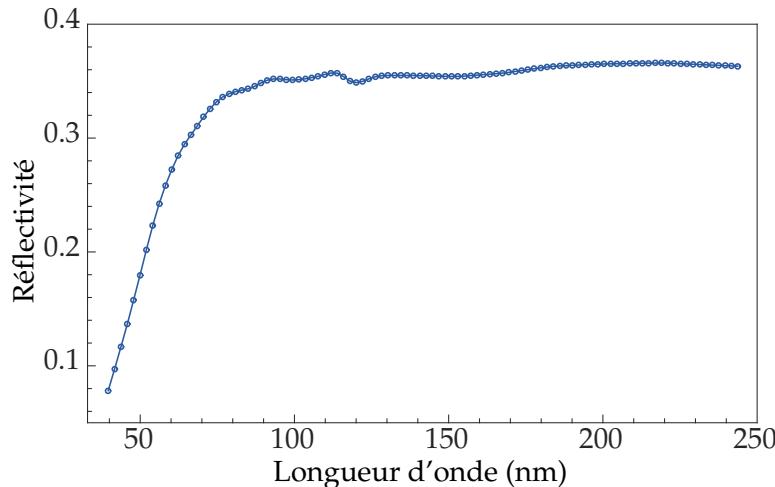


FIGURE 12.2 – Réflectivité mesurée du miroir avec revêtement de B_4C en fonction de la longueur d'onde. L'angle d'incidence est de 10° . Adapté de [Ruf, 2012].

Le réseau de diffraction (Spectrogron) dispose de $\sigma = 600$ grooves/mm, son principal avantage étant son faible coût (600€), à comparer avec le prix des réseau cylindriques habituels (de l'ordre de 10000€). Le dispositif complet est présenté sur la figure 12.3.

12.2.2 Calibration du spectromètre

Bien entendu, un réseau de diffraction aussi simple ne sera jamais aussi performant que ceux conçus et optimisés pour la gamme spectrale étudiée ([Kita et al., 1983]). En particulier, les différents ordres de diffraction et les différentes harmoniques sont mal séparés, ce qui demande de placer une fente au foyer. Un autre point délicat est la calibration du spectromètre : il est a priori difficile de distinguer les différents ordres de diffraction entre eux.

Pour calibrer le spectre, il faut pouvoir reconnaître plusieurs ordres de diffraction correspondant à la même longueur d'onde. Pour ce faire, nous choisissons d'utiliser une technique d'interférométrie à deux faisceaux, similaire à celle proposée par [Bertrand et al., 2011]. À l'aide d'un interféromètre, on rajoute un deuxième faisceau de perturbation à 800nm, non-colinéaire au premier. Au foyer, les deux faisceaux se croisent avec un angle et créent un réseau de diffraction dans la dimension verticale. Ainsi, il est possible d'absorber un photon venant du deuxième faisceau comme schématisé sur la figure 12.4. On observe donc deux pics venant de deux chemins quantiques différents : par exemple pour l'harmonique 11, on peut

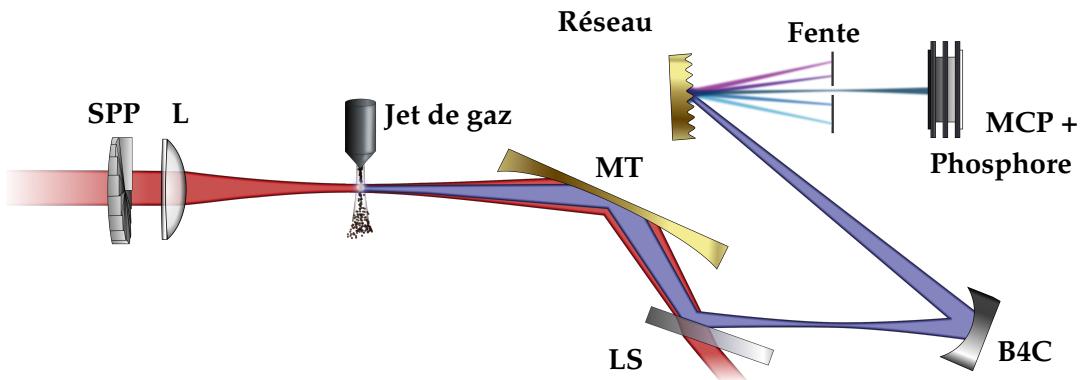


FIGURE 12.3 – Dispositif expérimental avec spectromètre peu dispersif. Le faisceau infrarouge est mis en forme par une lame de phase en spirale (SPP) et focalisé par une lentille (L) de $f = 1m$. Les harmoniques du fondamental sont générées dans le jet de gaz d'argon et réimagées par un ensemble miroir torique (MT) + lame de silice (LS). Le spectromètre est constitué d'un miroir sphérique en B_4C à 10° d'incidence et d'un réseau de diffraction à $\approx 6^\circ$ d'incidence. Au foyer, on place une fente permettant de sélectionner une unique和谐音, qui est ensuite imagee par l'ensemble MCP+écran de phosphore.

absorber 11 photons du faisceau principal et créer le pic habituel, ou bien absorber 10 photons du principal et 1 de la perturbation. La conservation des moments nous donne la position de ce nouveau pic, qui est diffracté dans la dimension verticale. Comme sa position dépend de la longueur d'onde de l'harmonique, la différence entre pic principal et diffracté permettent d'identifier les différents ordres de diffraction du réseau de diffraction. Notons qu'en pratique, on a des chemins quantiques d'ordre supérieur, ce qui amène à la génération de pics supplémentaires, éventuellement diffractés de l'autre côté du pic principal.

Le réseau de diffraction est monté sur une rotation motorisée de sorte à pouvoir scanner l'angle de réflexion. On sélectionne les harmoniques une par une grâce à la fente et reconstitue ainsi le spectre complet en fonction de l'angle du réseau. La figure 12.5 montre les profils obtenus. Mêmes si les profils spatiaux ne sont pas parfaits, on distingue clairement un ou plusieurs ordres de diffraction à côté d'un pic principal. Il reste à mesurer la distance entre les deux pics et à les tracer en fonction de l'angle, comme fait en bas de la figure 12.5. La mesure n'est pas extrêmement précise du fait des inhomogénéités des profils mais on trouve quand même 5 uniques valeurs d'écart entre les pics, à ± 1 pixel près. Ces valeurs reviennent 2 à 3 fois et correspondent chacune à une seule harmonique, on détecte donc les 5 premières harmoniques du fondamental diffractées jusqu'à l'ordre 3 par le réseau de diffraction. Dans l'argon, le premier ordre générée efficacement est le onzième, on observe donc les ordres allant de 11 à 19, ce qui est cohérent avec la réflectivité du miroir en

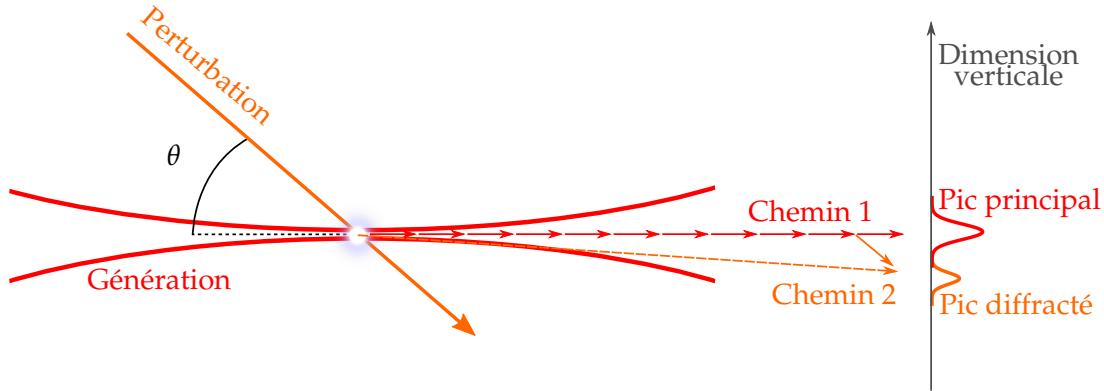


FIGURE 12.4 – Schéma de l’expérience de calibration à deux faisceau pour l’harmonique 11. Le faisceau principal (rouge) est plus intense que le faisceau de perturbation (orange). Ainsi, on a un pic central dominant dans lequel on a absorbé 11 photons de la génération, et un pic diffracté où on a absorbé un photon de la perturbation. La conservation des moments donne directement la direction d’émission de l’harmonique diffractée.

B_4C (voir figure 12.2).

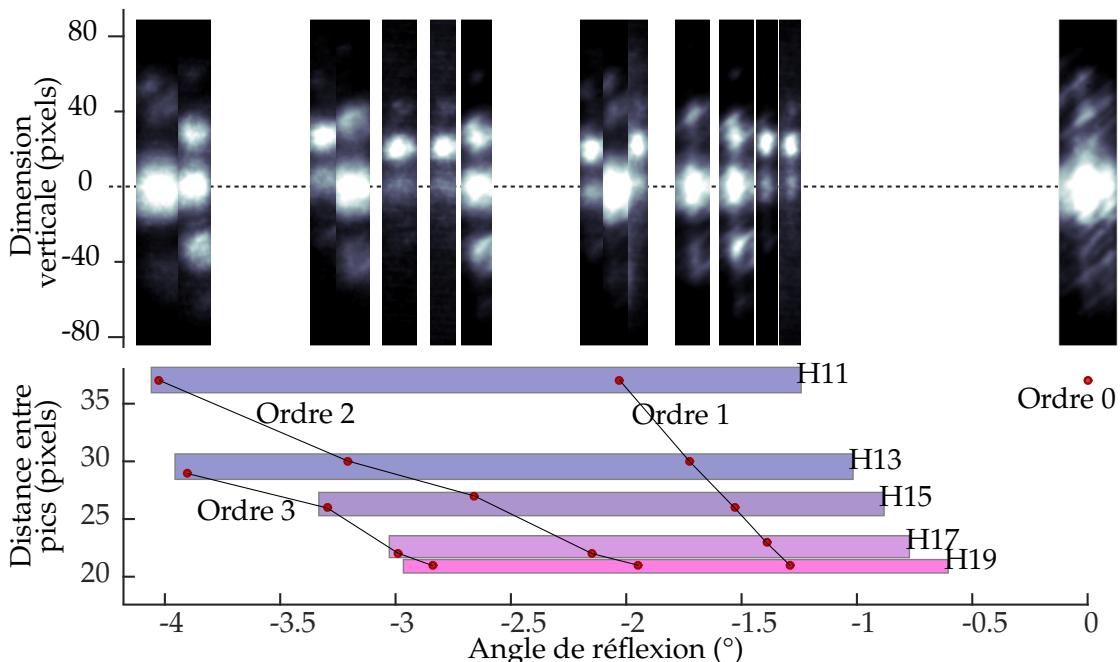


FIGURE 12.5 – Calibration du spectromètre. Un second faisceau infrarouge vient perturber la génération et créer un pic satellite, dont la position dépend de la longueur d’onde. En haut, profil spatial des harmoniques détectées en fonction de l’angle du réseau. En bas, les points rouges représentent la distance entre les deux pics pour les harmoniques correspondantes. À ± 1 pixel près, on retrouve 5 valeurs qui permettent d’identifier 5 harmoniques (rectangles colorés). Les traits noirs relient les ordres de diffraction du réseau.

Le spectre maintenant calibré, on procède à des mesures de spectres harmoniques. Comme précédemment, on varie z_0 pour changer le poids relatif des trajectoires quantiques. La figure ?? présente les spectres obtenus. Notons que la définition de $z_0 = 0$ est ici presque arbitraire : il est très difficile de connaître expérimentalement la véritable valeur de z_0 , on ne peut donc que définir $z_0 = 0$ pour reproduire la simulation (figure 12.1).

Ajouter figure !

On observe des séries d'anneaux parfaitement ronds et très homogènes, signe que l'on observe bien le profil "spatial-spatial" des harmoniques, et non pas une convolution spatio-spectrale. Comme prédit théoriquement, quand z_0 augmente, des anneaux dus à la trajectoire longue commencent à apparaître. Nous allons maintenant interpréter ce résultat en terme d'indice p des modes de LG.

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

12.3.1 Sens physique de l'indice radial

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

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

Il est donc intéressant de chercher à produire et à contrôler les modes p dans l'extrême ultra-violet, au lieu de les voir comme un effet parasite. Pour créer des modes $p \neq 0$, on pourrait modifier directement le mode infrarouge. Cependant, dû à la forte non-linéarité de la GHOE, il est probable que les anneaux extérieurs ne contribuent pas à la génération. Une autre approche est de chercher dans le processus de GHOE lui-même, une variable permettant d'augmenter le mode radial. Comme dit plus haut, p est une variable quantique valable, elle est valeur propre d'un opérateur qui vérifie $\hat{N}|\mathcal{LG}(\ell,p)(r,\theta,z)\rangle = p|\mathcal{LG}(\ell,p)(r,\theta,z)\rangle$. La dérivation de cet opérateur est donnée par [Plick et Krenn, 2015] et [Karimi et Santamato, 2012]. On sait que le moment linéaire est relié à la translation, le moment angulaire à la rotation, et ces travaux démontrent que p est lui relié à la *dilatation* selon la coordonnée radiale. Tout effet créant une forme de dilatation radiale du faisceau modifiera donc le contenu en mode p du champ.

Nous avons déjà vu qu'au foyer le faisceau infrarouge est bien décrit par un mode $\mathcal{LG}(\ell,p=0)$ (voir section 10.2.3). Dans la GHOE, on identifie deux effets menant à une modification radiale du champ :

- (i) La non-linéarité de la GHOE : si un processus a une non-linéarité d'ordre n , alors le champ obtenu sera $E_2 = E_1^n$. Un profil Laguerre-Gaussien sera donc modifié en profil plus piqué autour de ses maxima.
- (ii) La phase du moment dipolaire atomique : dans le modèle à trois étapes, l'électron acquiert une phase au cours de sa propagation qui dépend de l'intensité infrarouge locale. Le rayonnement émis présente donc une phase non uniforme spatialement spatiale. Dans le plateau, cette phase est approximativement linéaire avec l'intensité [Salieres et al., 1995]. Elle s'écrit $\phi^{at}(r,\theta) = \alpha_{traj} I_{IR}(r,\theta)$, où α_{traj} est un coefficient de proportionnalité dépendant de la trajectoire quantique en question. Ici, $I_{IR}(r,\theta)$ est un mode de Laguerre-Gauss, cette phase spatiale peut donc modifier le mode et créer une forme de dilatation.

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

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

Pour étudier ces effets, une description simple du processus est suffisante. On ne prendra pas en compte les effets liés à la propagation du champ ni les effets de dispersion et de déplétion dans le milieu. On considère donc un plan d'atomes infiniment fin placé en $z = 0$. On se place dans les conditions expérimentales pour calculer la propagation du champ infrarouge jusqu'au foyer, et on obtient le champ déjà présenté en figure 10.16. On utilise ensuite la formule ADK [Ammosov et al., 1986] et le modèle SFA [Lewenstein et al., 1994] pour calculer le dipôle harmonique

qui donne directement le champ émis. Les deux effets mentionnés plus haut sont alors simples à identifier : la non-linéarité est contrôlée par l'intensité du champ infrarouge, tandis que la phase atomique varie à la fois avec l'intensité et avec la valeur de α_{traj} , qui dépend de la trajectoire considérée.

Trajectoire courte Commençons par sélectionner uniquement la trajectoire courte de la GHOE, ce qui est équivalent expérimentalement à modifier la position du foyer par rapport au jet. Pour cette trajectoire, α_{courte} est de l'ordre de $1 \times 10^{-14} \text{ cm/W}$. On aura donc une courbure relativement faible, et donc un très faible effet de la phase atomique. La figure 12.6 (a) présente le champ harmonique obtenu en $z = 0$ pour l'harmonique 19.

On voit bien l'effet de ϕ^{at} sur la phase spatiale, avec une légère courbure le long de l'anneau. On effectue ensuite une décomposition en modes de Laguerre-Gauss de ce champ, qui est présentée sur le panneau (b) de la figure 12.6. Le champ est donc composé à 98,9% du mode $(\ell, p) = (0, 0)$. De manière surprenante, ce mode est encore plus pur que le champ infrarouge utilisé pour le générer. C'est un effet de la non-linéarité du processus, qui ne fait contribuer que les parties les plus intenses du faisceau infrarouge et gomme les reliquats dus au vignetage et aux imperfections de la lame de phase. En conclusion, on voit que l'effet (i) et l'effet (ii) avec une valeur faible de α_{traj} ne perturbent aucunement le contenu du mode et ne sont pas responsables des anneaux observés en champ lointain. On peut illustrer ce point en propageant numériquement ce champ jusqu'au détecteur, ce qui est montré sur la figure 12.6 (c), qui ne présente bien qu'un anneau unique.

Trajectoire longue Effectuons maintenant le même calcul dans le cas de la trajectoire longue. La figure 12.7 présente les résultats obtenus. Dans ce cas, $\alpha_{longue} \approx 20 \times 10^{-14} \text{ cm/W}$, valeur 20 fois plus élevée que pour la trajectoire courte. Comme on le voit sur la phase spatiale, la courbure de phase est ici beaucoup plus importante. Quand on effectue la décomposition sur la base de Laguerre-Gauss, on obtient une superposition d'un assez grand nombre de modes ayant $\ell_{19} = 19$ et p allant de 0 à ≈ 30 . Le mode $(0, 0)$ domine toujours, mais ne compte que pour 52% de l'émission¹.

Comme le montre le calcul de propagation, en champ lointain ces modes interfèrent et créent une série d'anneaux concentriques similaires à ceux observés expérimentalement. Pour que cet effet soit possible, il faut que la phase relative entre les différents modes change. En effet, au foyer les modes p interfèrent pour créer un unique anneau, ce qui leur impose une phase relative donnée. Pour que plusieurs anneaux apparaissent, cette phase doit changer. En regardant l'expression d'un mode de Laguerre-Gauss, on voit que le seul terme responsable est la phase

1. La figure 12.7 (b) donne les coefficients $|c_{\ell, p}|$. La normalisation du champ s'écrit $\sum_{\ell, p} |c_{\ell, p}|^2 = 1$, c'est donc bien $|c_{\ell, p}|^2$ qui donne la contribution du mode (ℓ, p) en pourcentage.

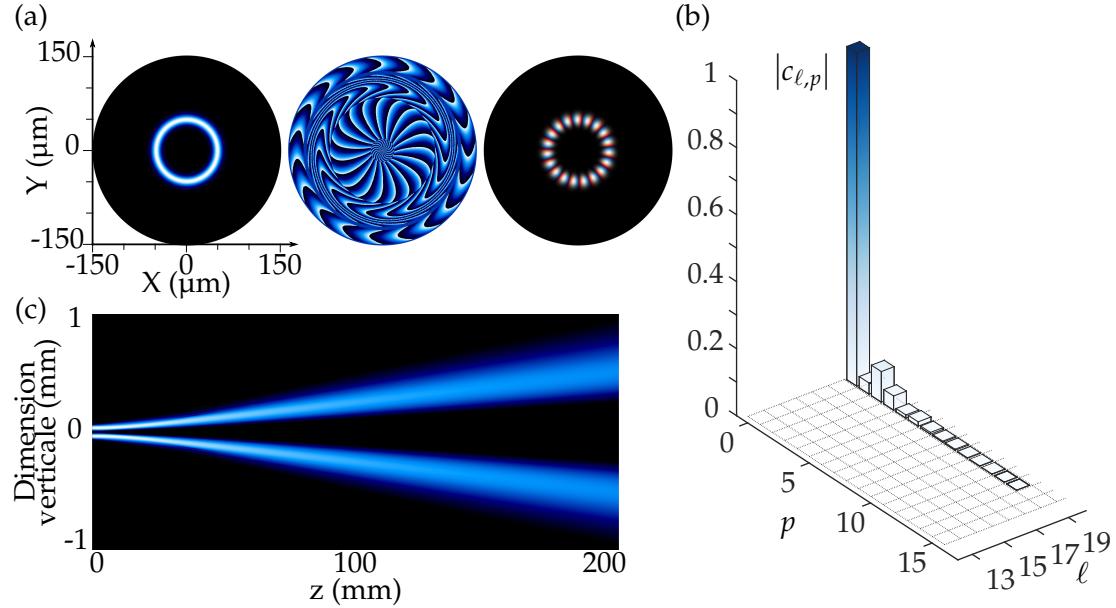


FIGURE 12.6 – Profil de l’harmonique 19 généré par la trajectoire courte. (a) Champ au foyer. De gauche à droite, intensité spatiale, phase spatiale, et représentation mixte où la couleur donne la phase et la luminosité l’intensité. (b) Module des coefficients de la décomposition du champ sur la base de Laguerre-Gauss. Les coefficients de module inférieurs à 1×10^{-4} sont ignorés. (c) Intensité en fonction de z obtenue par propagation du champ présenté en (a).

de Gouy, qui s’écrit

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

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

En conclusion, nous avons relié la présence de modes p dans la GHOE à la phase $\phi^{at}(r, \theta)$. Cette phase dépend à la fois de la trajectoire considérée et de l’intensité infrarouge. La figure ?? présente l’évolution du contenu modal lorsque l’intensité infrarouge varie entre 0.5 et 2.5 W/cm. (A FAIRE : CODE DE CELINE)

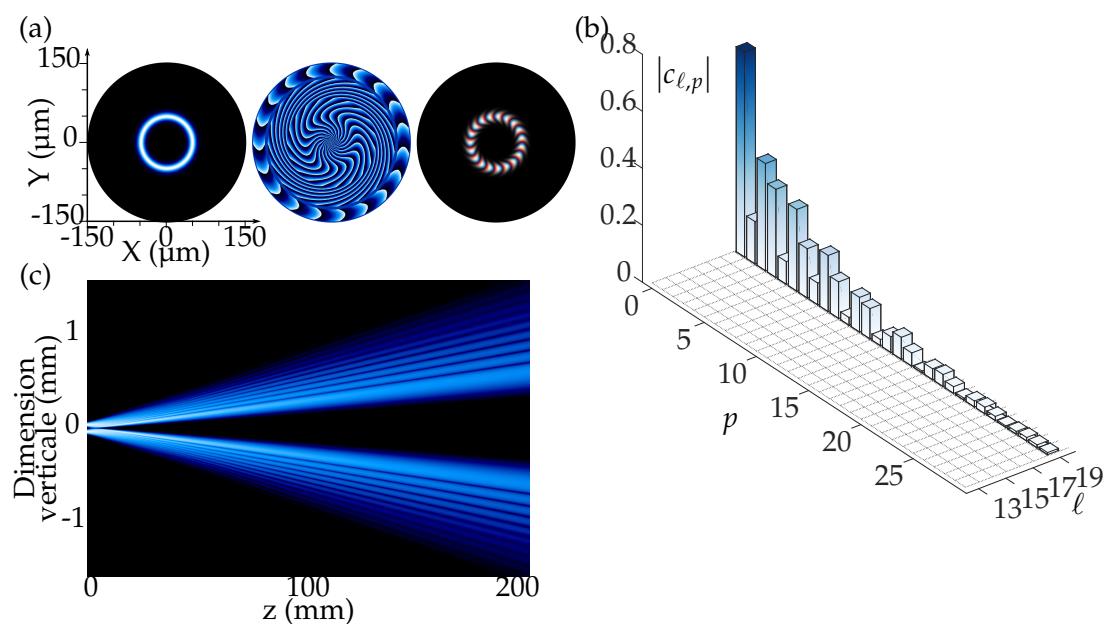


FIGURE 12.7 – Profil de l'harmonique 19 généré par la trajectoire longue. (a) Champ au foyer. De gauche à droite, intensité spatiale, phase spatiale, et représentation mixte où la couleur donne la phase et la luminosité l'intensité. (b) Module des coefficients de la décomposition du champ sur la base de Laguerre-Gauss. Les coefficients de module inférieur à 1×10^{-4} sont ignorés. (c) Intensité en fonction de z obtenue par propagation du champ présenté en (a).

LE PROFIL SPATIO-TEMPOREL DES IMPULSIONS GÉNÉRÉES : LES *light springs*

Jusqu'à présent nous nous sommes intéressés au moment angulaire orbital du faisceau et donc à ses propriétés spatiales. Une des propriétés remarquables de la GHOE est qu'elle permet de générer des impulsions extrêmement courtes, le record actuel étant de 67×10^{-15} s = 67 as (attosecondes). Dans cette partie nous étudions les propriétés temporelles des impulsions générées par un faisceau de LG, obtenues lorsqu'on considère la totalité du spectre harmonique.

13.1 Mesure de la phase spectrale de l'impulsion à partir de la technique RABBIT

Pour obtenir des informations temporelles, on cherche à mesurer à la fois l'intensité et la phase spectrale de l'impulsion. Nous disposons déjà de l'intensité spectrale, mesurée optiquement à l'aide du spectromètre. Pour la phase spectrale, nous choisissons d'appliquer la technique RABBIT décrite dans la partie ??.

Le dispositif expérimental utilisé est similaire à celui décrit par [Mairesse et al., 2003] et utilisé à de maintes reprises par la suite [Boutu et al., 2008, Diveki et al., 2012, 2013, Haessler et al., 2013]. Pour effectuer une mesure RABBIT, le faisceau laser est séparé en deux parties dans un interféromètre de Mach-Zender, où la séparation et la recombinaison sont effectuées par des miroirs troués. Le délai entre les deux bras est contrôlé par une ligne à retard piézoélectrique de précision attoseconde. La partie centrale sert de faisceau d'habillage tandis que la partie annulaire est utilisée comme faisceau de génération : au foyer, ce faisceau annulaire présente un profil d'Airy dont le lobe central génère des harmoniques qui seront émises sur

l'axe [Peatross et al., 1994]. En champ lointain, le faisceau redevient annulaire et est donc spatialement séparé des harmoniques et du faisceau d'habillage. Ainsi, un simple iris permet de filtrer l'infrarouge de génération pour ne garder que le rayonnement harmonique et l'infrarouge d'habillage. Ces deux rayonnements sont focalisés par le miroir torique (voir figure 10.4) au foyer duquel on place un spectromètre à temps de vol d'électrons à bouteille magnétique (TOF pour *Time Of Flight*). Dans ce spectromètre, des photoélectrons sont créés par le rayonnement harmonique dans un second jet de gaz d'argon. Un électroaimant à pièces polaires trouées impose un champ magnétique initial d'environ 1Tesla, à l'endroit de la photoionisation. Une fois collectés, les électrons sont guidés dans un champ magnétique faible sur une longueur d'1m jusqu'à une galette de micro-canaux. Les temps d'arrivée sur le détecteur sont discrétisés avec un pas d'une nanoseconde. Ce détecteur procure une résolution de 100 meV pour les électrons lents.

Dans notre cas, le faisceau de génération et ses différentes harmoniques sont des modes de Laguerre-Gauss. Commençons par vérifier qu'après réflexion sur un miroir troué, le mode de LG n'est pas perturbé. On image simplement le foyer de la lentille de génération :

Le foyer est donc une convolution entre une fonction d'Airy et le foyer sans miroir troué. Encore une fois, les rebonds extérieurs ne modifieront aucunement la GHOE ; le miroir troué ne pose donc aucun autre problème à part de diminuer l'énergie disponible. La deuxième question est celle de la photoionisation du gaz de détection par des faisceaux portant du MAO. Les conditions de focalisation étant très douces, l'approximation paraxiale est tout à fait vérifiée. Par conséquent, comme montré dans la partie 8, les règles de sélection ne sont pas du tout modifiée par la présence de MAO : au niveau microscopique, la théorie habituelle du RABBIT s'applique. Au niveau macroscopique, le gaz d'atomes forme un volume fin selon la dimension longitudinale et plus grand que le faisceau dans la dimension transverse. Ainsi, le signal mesuré sur une sideband est une moyenne spatiale des contributions de chaque électron émis dans la région d'interaction. Considérons la composante oscillante de la sideband $q+1$ en fonction du retard génération-habillage τ . Un point (r,θ) dans la région d'interaction y contribue selon la loi suivante (voir partie ??) :

$$SB_{q+1}(\tau, r, \theta) = \cos[2\omega(\tau - \tau_0) + \varphi_{q+2} - \varphi_q + \Phi_{q+2}(r, \theta) - \Phi_q(r, \theta) - 2\Phi_{hab}(r, \theta)],$$

où on a négligé les phases atomiques et où on a noté ω la pulsation de l'infrarouge, τ_0 l'origine des temps, φ_q et $\Phi_q(r, \theta)$ les phases spectrales et spatiales de l'harmonique q , et $\Phi_{hab}(r, \theta)$ la phase spatiale du faisceau d'habillage. Or, on sait que $\Phi_q(r, \theta) = \ell_q \theta = q \times \ell_1 \theta$. Le signal intégré est donc donné par :

$$SB_{q+1}(\tau) = \iint_{r, \theta} \cos[2\omega(\tau - \tau_0) + \varphi_{q+2} - \varphi_q + (\ell_{q+2} - \ell_q)\theta - 2\Phi_{hab}(r, \theta)] r dr d\theta.$$

Pour que l'intégration selon θ du cosinus donne un résultat non nul, il faut que $(\ell_{q+2} - \ell_q)\theta - 2\Phi_{hab}(r, \theta)$ s'annule. On obtient donc la condition pour observer une

trace RABBIT :

$$\Phi_{hab}(r,\theta) = (\ell_{q+2} - \ell_q) \theta / 2 = \ell_1 \theta.$$

Il est donc nécessaire que le faisceau d'habillage porte le même MAO que le faisceau de génération. Expérimentalement, on déplace simplement le masque de phase en spirale avec l'interféromètre de Mach-Zender. Notons pour finir qu'on peut effectuer le raisonnement dans l'autre sens : si on ne connaît pas le MAO harmonique ℓ_q , et qu'on observe des sidebands oscillantes avec $\Phi_{hab}(r,\theta) = \ell_1 \theta$, alors $(\ell_{q+2} - \ell_q) = 2\ell_1 \theta$. L'observation d'oscillations est alors vue comme une preuve que le rayonnement harmonique est bien accordé sur le faisceau d'habillage connu. Nous avons essayé de pousser ce raisonnement pour effectuer des mesures RABBIT résolues spatialement pour un faisceau quelconque en modulant le faisceau d'habillage. Ce fut le sujet d'une campagne d'expériences dans le groupe du professeur L. DiMauro à Columbus, Ohio qui n'a pour l'instant pas été conclue.

Avec le faisceau d'habillage adéquat, nous avons pu mesurer la trace RABBIT présentée sur la figure 13.1 quand les deux faisceaux infrarouges portaient $\ell_1 = 1$.

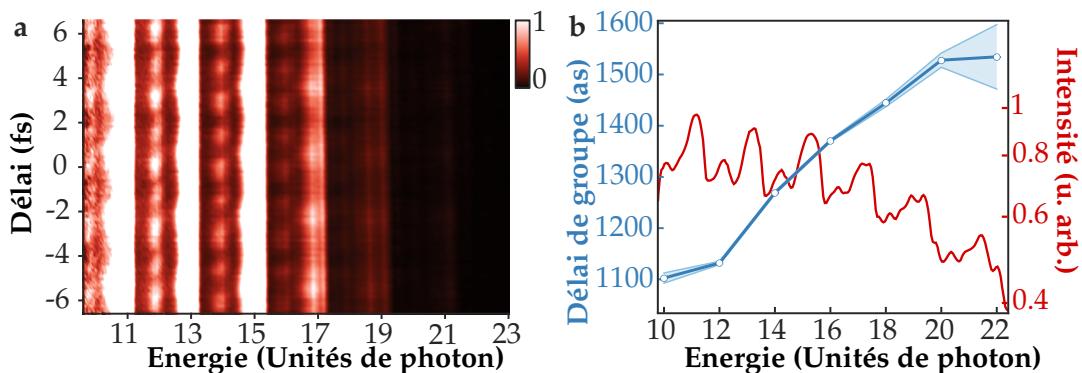


FIGURE 13.1 – Trace RABBIT avec faisceau portant du MAO. (a) Spectrogramme de la photoionisation à deux couleurs et à deux photons de l'argon, le champ générateur portant $\ell_1 = 1$. Les lignes brillantes correspondent aux harmoniques impaires, tandis que les lignes plus faible et oscillantes, de périodicité $T=1.33$ fs et 2.7 fs, sont les sidebands. (b) Spectre moyen sur le délai en échelle logarithmique (rouge) et délai de groupe de l'impulsion attoseconde (cercles bleus, la surface bleu clair représentant la barre d'erreur d'analyse numérique à 3σ).

On observe clairement des sidebands oscillant à 2ω (période de 2.7 fs). Elles présentent également une autre composante à ω , effet inévitable dans notre schéma. En effet, le faisceau d'habillage se propage à travers le milieu de génération et module le rendement de génération harmonique à la fréquence ω . Comme expliqué, la présence d'oscillations à 2ω confirme une fois de plus la conservation du moment angulaire orbital dans le processus. On cherche ensuite la phase de l'oscillation à 2ω , et on obtient le délai de groupe présenté en 13.1 (b) : il s'agit de la dérivée de la phase spectrale de l'impulsion attoseconde. Un fit linéaire de cette courbe donne une pente de 103 ± 9 as, ce qui est exactement la même valeur que celle obtenue avec

un faisceau Gaussien à la même longueur d'onde et à la même intensité de génération [Mairesse et al., 2003]. Les processus de GHOE et de photoionisation n'étant pas changés à l'échelle microscopique, le MAO ne peut pas modifier les phases induites par ces processus, ce qui explique qu'on retrouve la même valeur.

13.2 Reconstruction du profil spatio-temporel de l'émission

Nous disposons désormais d'informations d'intensité et de phase spatiales et spectrales, à partir desquels on va reconstruire le profil spatio-temporel de l'émission attoseconde. Nos impulsions infrarouges de 50 fs comportent de nombreux cycles, on néglige donc les effets d'enveloppe et on écrit en $z = 0$:

$$I_{\text{atto}}(r, \theta, t) = \sum_{q=11}^{23} \sqrt{I_q(r, \theta)} \cdot \exp(i[\Phi_q(r, \theta) + \phi_q + \omega_q t]).$$

On effectue alors l'hypothèse que la phase spatiale des harmoniques $\Phi_q(r, \theta)$ est celle d'un mode de Laguerre-Gauss parfait : $\Phi_q(r, \theta) = \ell_q \theta$. La phase spectrale ϕ_q est donnée par la mesure RABBIT, tandis que l'intensité $I_q(r, \theta)$ est donné par la mesure optique. On obtient alors l'intensité représentée sur la figure 13.2, où l'on a tracé une isosurface pour pouvoir la visualiser.

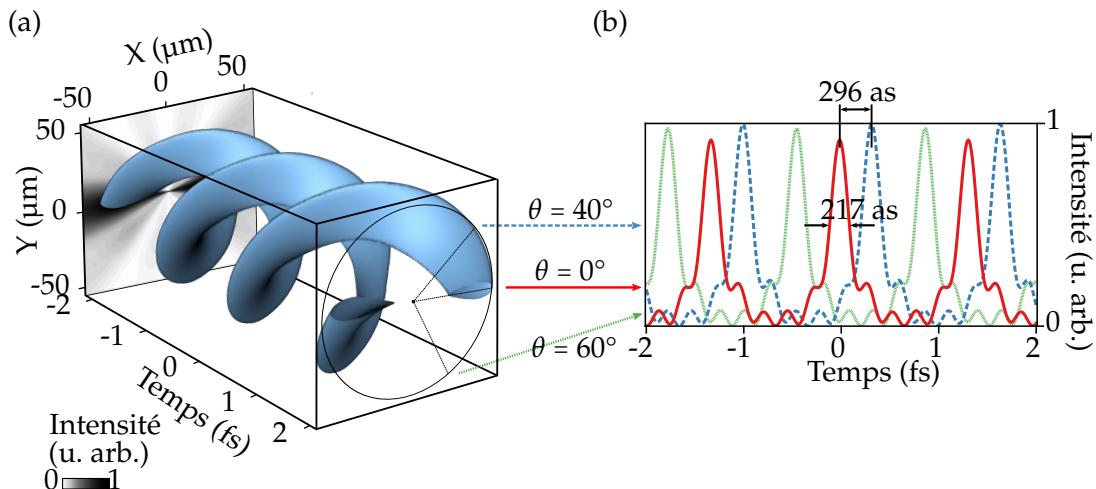


FIGURE 13.2 – Profil spatio-temporel de l'émission. (a) Iso-surface d'intensité de l'impulsion attoseconde à 80% de sa valeur maximale. Le panneau noir et blanc est une projection de cette intensité dans le plan $t = -2$ fs. (b) Coupes temporelles pour trois différents angles dans l'impulsion attoseconde $\theta = 0^\circ$ (rouge), $\theta = 40^\circ$ (bleu pointillé) et $\theta = -60^\circ$ (vert).

On obtient donc une structure en tire-bouchon, déjà prédite théoriquement par [Hernández-García et al., 2013] puis décrite par [Pariente et Quéré, 2015], qui l'ont nommée *light springs* (ressort optique en français). Ici, on trouve deux ressorts entrelacés, conséquence de la présence des harmoniques impaires seulement. En effet,

dans un plan t donné, on somme plusieurs harmoniques séparées de $\Delta\ell = 2$. Une périodicité doublée dans un espace impose une périodicité de moitié dans l'espace réciproque, donc $\Delta\theta = \pi$: on trouve bien deux lobes d'intensité dans chaque plan t donné. Le profil temporel quant à lui possède bien une structure de train d'impulsions attoseconde, où chaque impulsion dure environ 200 as. Cette structure présente un couplage spatio-temporel particulièrement intéressant : comme illustré sur la droite de la figure 13.2, si on change l'angle auquel on regarde le train d'impulsions, on observe le même train, mais retardé. Par exemple, entre $\theta = 0^\circ$ et $\theta = 40^\circ$, on obtient un retard de 296 as. En 180° , on effectue une demi-période du laser infrarouge de génération (1330 as), la pente est donc de $7.4 \text{ as}/^\circ$. Comme démontré dans ??, la structure de light spring existe toujours dans le cas d'une impulsion attoseconde unique. Nous pensons donc que ce type d'impulsion constitue une sonde particulièrement pratique pour des expériences de spectroscopie d'absorption transitoires : en effet, ces expériences nécessitent de réaliser et de contrôler des délai pompe-sonde de l'ordre de l'attoseconde. Ici, on peut mapper le délai attoseconde sur la coordonnée angulaire en un seul tir laser, rendant l'expérience insensible aux instabilités. Dans une expérience pompe-sonde, l'autre paramètre est la gamme dynamique : elle est ici de 1.33 fs, i.e. le demi-cycle optique infrarouge. Cette gamme peut être facilement augmentée en augmentant la longueur d'onde de génération ou encore en brisant la symétrie du processus, de sorte à générer des harmoniques paires.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

En conclusion, nous avons détaillé dans ce chapitre comment générer des harmoniques d'ordre élevé à partir d'un faisceau de Laguerre-Gauss. Nous avons mis en évidence les difficultés supplémentaires et les différences par rapport au cas Gausien habituel. Grâce à des calculs numériques, nous avons démontré qu'une simple observation de l'intensité harmonique en champ lointain permet de caractériser le moment angulaire orbital porté par le rayonnement. Dans notre cas, nous avons pu vérifier la conservation du moment angulaire orbital dans la GHOE. Nous avons ensuite réalisé des simulations numériques SFA, qui ont mis en évidence l'importance des trajectoires quantiques dans le processus. Ces trajectoires quantiques ont été observées expérimentalement et reliées à l'indice radial des modes de Laguerre-Gauss. Enfin, nous avons mesuré le profil spatio-temporel du train d'impulsions attosecondes et démontré qu'il a la forme d'un *light spring*.

Nous disposons désormais d'une source de lumière unique : nous pouvons générer un rayonnement dans l'XUV portant du moment angulaire orbital, et temporellement extrêmement bref. Pour améliorer encore la flexibilité de la source, il serait intéressant de dévier de la loi $\ell_q = q \times \ell_1$ et de pouvoir accorder le MAO de chaque harmonique. Des expériences à cet effet sont en cours à Saclay et en collaboration avec le groupe du professeur G. De Ninno à l'université de Nova Gorica (Slovénie). Enfin, nous avons également participé aux premières expériences visant à transférer du MAO dans un laser à électron libre selon le principe proposé par [Rebernik-Ribič et al., 2014]. Les premiers essais ont été réalisés sur le laser à électron libre Fermi à Trieste (Italie).

Ces développements nous amènent à réfléchir aux applications à donner à ces sources de lumière uniques. D'un point de vue fondamental, il serait très intéressant d'observer un effet du MAO dans la photoionisation, c'est-à-dire d'identifier des contributions quadripolaires où plus d'une unité de ℓ est échangée. Comme on l'a observé dans l'expérience de RABBIT, un atome est un système bien trop petit

par rapport à λ pour espérer voir un tel effet. Au contraire, il est probable que des systèmes plus gros tels que de grosses molécules ou des solides soient plus intéressants. Parmi les rares études théoriques du sujet disponible, on trouve quand même quelques prédictions d'effets remarquables, comme le *dichroïsme hélicoïdal* [van Veenendaal et McNulty, 2007]. D'un point de vue plus pratique, la structure d'intensité et de phase d'un champ de Laguerre-Gauss peut être directement utilisée. Par exemple, les développements de microscopie par faisceau de LG dans le domaine visible [Fürhapter et al., 2005] pourraient être avantageusement transférés dans le domaine XUV. La diffraction cohérente, une autre technique d'imagerie, peut également bénéficier de l'utilisation de modes de LG [Wang et al., 2009]. Enfin, les couplages spatio-temporels mis en évidence plus haut peuvent être mis à profit dans de nombreux expériences résolues en temps, en utilisant le mapping angulaire du délai temporel. [Pariente et Quéré, 2015] présente également des applications en accélération laser-plasma.

Quatrième partie

Polarisation circulaire, molécules chirales et harmoniques d'ordre élevé

CHAPITRE 15

GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ POLARISÉE ELLIPTIQUEMENT

15.1 Difficulté intrinsèque au mécanisme

15.2 Solutions existantes

15.3 Génération résonante

CHAPITRE 16

POLARISATION CIRCULAIRE ET CHIRALITÉ

16.1 Définitions de la chiralité

16.2 Dichroïsme circulaire et activité optique

16.3 Dichroïsme circulaire de photoélectron (PECD)

MESURES DE PECD AVEC UNE SOURCE D'HARMONIQUES D'ORDRE ÉLEVÉ

17.1 Mesures de PECD dans la fenchone

17.2 Caractérisation de l'état de polarisation des harmoniques par le PECD

MESURES CHIROPTIQUES À L'ÉCHELLE FEMTOSECONDE

18.1 Le PECD en régime multiphotonique

**18.2 Crédit et mesure résolue en temps de densités
chirales**

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 27 et 28.]
- Ammosov M, Delone N, et Krainov V. *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field.* Soviet Physics - JETP **64**, 1191–4 (1986). [Cité pages 90 et 99.]
- Arora RK et Lu Z. *Graphical study of laguerre-gaussian beam modes.* IEE Proceedings - Microwaves, Antennas and Propagation **141**, 145–150 (1994). [Cité page 25.]
- Aspect A et Grangier P. *Optique quantique 2 : Photons.* (2005). [Cité page 43.]
- Babiker M, Bennett C, Andrews D, et Romero LD. *Orbital angular momentum exchange in the interaction of twisted light with molecules.* Physical review letters **89**, 143601 (2002). [Cité page 53.]
- Barron LD. *Molecular light scattering and optical activity.* Cambridge University Press (2004). [Cité page 52.]
- Bazhenov VY. *Laser beams with screw dislocations in their wavefronts.* Jopt Lett **52**, 429–431 (1990). [Cité page 71.]
- Beijersbergen M, Allen L, van der Veen H, et Woerdman J. *Astigmatic laser mode converters and transfer of orbital angular momentum.* Optics Communications **96**, 123 – 132 (1993). [Cité page 67.]
- Beijersbergen M, Coerwinkel R, Kristensen M, et Woerdman J. *Helical-wavefront laser beams produced with a spiral phaseplate.* Optics Communications **112**, 321 – 327 (1994). [Cité pages 68, 69, et 70.]
- Berestetskii V, Lifshitz E, et Pitaevski L. *Quantum Electrodynamics.* vol. 4 of Course of Theoretical Physics. Butterworth-Heinemann (1982). ISBN 9780750633710. [Cité page 52.]
- Berkhout GC et Beijersbergen MW. *Method for probing the orbital angular momentum of optical vortices in electromagnetic waves from astronomical objects.* Physical review letters **101**, 100801 (2008). [Cité page 72.]
- Bertrand J, Wörner H, Bandulet HC, Bisson E, Spanner M, Kieffer JC, Villeneuve D, et Corkum P. *Ultrahigh-order wave mixing in noncollinear high harmonic generation.* Physical Review Letters **106**, 023001 (2011). [Cité page 95.]
- Beth RA. *Mechanical detection and measurement of the angular momentum of light.* Phys. Rev. **50**, 115–125 (1936). [Cité pages 16 et 20.]
- Bonner WA. *Parity violation and the evolution of biomolecular homochirality.* Chirality **12**, 114–126 (2000). [Cité page 33.]
- Born M et Wolf E. *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light.* Cambridge University Press, 7th edition (1999). [Cité page 83.]
- Boutu W, Haessler S, Merdji H, Breger P, Waters G, Stankiewicz M, Frasinski LJ, Taieb R, Caillat J, Maquet A, Monchicourt P, Carre B, et Salieres P. *Coherent control of attosecond emission from aligned molecules.* Nat Phys **4**, 545–549 (2008). [Cité page 103.]
- 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 90.]

- 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 90.]
- Cohen-Tannoudji C, Diu B, et Laloë F. *Mécanique quantique*. Hermann (1973). [Cité pages 36, 37, et 42.]
- Cohen-Tannoudji C, Dupont-Roc J, et Grynberg G. *Photons and Atoms : Introduction to Quantum Electrodynamics (Wiley Professional)*. Wiley-VCH (1997). ISBN 0471184330. [Cité page 40.]
- Davis LW. *Theory of electromagnetic beams*. Phys. Rev. A **19**, 1177–1179 (1979). [Cité page 22.]
- Delannoy G, Emile O, et Le Floch A. *Direct observation of a photon spin-induced constant acceleration in macroscopic systems*. Applied Physics Letters **86** :081109 (2005). [Cité page 16.]
- Dholakia K, Simpson NB, Padgett MJ, et Allen L. *Second-harmonic generation and the orbital angular momentum of light*. Phys. Rev. A **54**, 3742 (1996). [Cité page 72.]
- Diveki Z, Camper A, Haessler S, Auguste T, Ruchon T, Carré B, Salieres P, Guichard R, Caillat J, Maquet A, et al. *Spectrally resolved multi-channel contributions to the harmonic emission in n2*. New Journal of Physics **14**, 023062 (2012). [Cité page 103.]
- Diveki Z, Guichard R, Caillat J, Camper A, Haessler S, Auguste T, Ruchon T, Carré B, Maquet A, Taïeb R, et al. *Molecular orbital tomography from multi-channel harmonic emission in n 2*. Chemical Physics **414**, 121–129 (2013). [Cité page 103.]
- Fürhapter S, Jesacher A, Bernet S, et Ritsch-Marte M. *Spiral interferometry*. Opt. Lett. **30**, 1953–1955 (2005). [Cité page 110.]
- 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 81 et 82.]
- Ghai DP, Senthilkumaran P, et Sirohi R. *Single-slit diffraction of an optical beam with phase singularity*. Optics and Lasers in Engineering **47**, 123–126 (2009). [Cité page 71.]
- Goldstein H, Poole CP, et Safko JL. *Classical mechanics*. Addison-Wesley, 3rd edition (2001). [Cité page 12.]
- Goodman JW. *Introduction to Fourier optics*. Roberts, Englewood (Colorado) (2005). ISBN 0-9747077-2-4. [Cité page 62.]
- Guizar-Sicairos M et Gutiérrez-Vega JC. *Computation of quasi-discrete hankel transforms of integer order for propagating optical wave fields*. J. Opt. Soc. Am. A **21**, 53–58 (2004). [Cité page 84.]
- Haessler S, Strelkov V, Bom LE, Khokhlova M, Gobert O, Hergott JE, Lepetit F, Perdrix M, Ozaki T, et Salieres P. *Phase distortions of attosecond pulses produced by resonance-enhanced high harmonic generation*. New Journal of Physics **15**, 013051 (2013). [Cité page 103.]
- He H, Friese M, Heckenberg N, et Rubinsztein-Dunlop H. *Direct observation of transfer of angular momentum to absorptive particles from a laser beam with a phase singularity*. Physical Review Letters **75**, 826 (1995). [Cité pages 29 et 54.]
- Hecht E. *Optics (4th Edition)*. Addison Wesley, 4 edition (2001). ISBN 0805385665. [Cité page 16.]
- Henke B, Gullikson E, et Davis J. *X-ray interactions : Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at e = 50-30,000 ev, z = 1-92*. Atomic Data and Nuclear Data Tables **54**, 181 – 342 (1993). [Cité page 64.]
- 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 82 et 106.]
- Hickmann J, Fonseca E, Soares W, et Chávez-Cerda S. *Unveiling a truncated optical lattice associated with a triangular aperture using light's orbital angular momentum*. Physical review letters **105**, 053904 (2010). [Cité page 72.]
- Jackson JD. *Classical electrodynamics*. Wiley (1999). [Cité page 15.]

- Karimi E et Santamato E. *Radial coherent and intelligent states of paraxial wave equation*. Opt. Lett. **37**, 2484–2486 (2012). [Cité page 99.]
- Karimi E, Boyd RW, de la Hoz P, de Guise H, Řeháček J, Hradil Z, Aiello A, Leuchs G, et Sánchez-Soto LL. *Radial quantum number of laguerre-gauss modes*. Phys. Rev. A **89**, 063813 (2014)a. [Cité page 98.]
- Karimi E, Giovannini D, Bolduc E, Bent N, Miatto FM, Padgett MJ, et Boyd RW. *Exploring the quantum nature of the radial degree of freedom of a photon via hong-ou-mandel interference*. Phys. Rev. A **89**, 013829 (2014)b. [Cité page 98.]
- Kita T, Harada T, Nakano N, et Kuroda H. *Mechanically ruled aberration-corrected concave gratings for a flat-field grazing-incidence spectrograph*. Appl. Opt. **22**, 512–513 (1983). [Cité pages 64, 76, et 95.]
- Krenn M, Huber M, Fickler R, Lapkiewicz R, Ramelow S, et Zeilinger A. *Generation and confirmation of a (100×100)-dimensional entangled quantum system*. Proceedings of the National Academy of Sciences **111**, 6243–6247 (2014). [Cité page 98.]
- Lax M, Louisell WH, et McKnight WB. *From maxwell to paraxial wave optics*. Phys. Rev. A **11**, 1365–1370 (1975). [Cité page 25.]
- Leach J, Yao E, et Padgett MJ. *Observation of the vortex structure of a non-integer vortex beam*. New Journal of Physics **6**, 71 (2004). [Cité page 69.]
- Leach J, Keen S, Padgett MJ, Saunter C, et Love GD. *Direct measurement of the skew angle of the poynting vector in a helically phased beam*. Opt. Express **14**, 11919–11924 (2006). [Cité page 29.]
- Leach J, Jack B, Romero J, Jha AK, Yao AM, Franke-Arnold S, Ireland DG, Boyd RW, Barnett SM, et Padgett MJ. *Quantum correlations in optical angle-orbital angular momentum variables*. Science **329**, 662–665 (2010). [Cité page 72.]
- Lenstra D et Mandel L. *Angular momentum of the quantized electromagnetic field with periodic boundary conditions*. Phys. Rev. A **26**, 3428–3437 (1982). [Cité page 44.]
- 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 pages 90 et 99.]
- L’Huillier A, Balcou P, Candel S, Schafer KJ, et Kulander KC. *Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm*. Physical Review A **46**, 2778 (1992). [Cité page 89.]
- Mahieu B, Gauthier D, Perdrix M, Ge X, Boutu W, Lepetit F, Wang F, Carré B, Auguste T, Merdji H, Garzella D, et Gobert O. *Spatial quality improvement of a ti :sapphire laser beam by modal filtering*. Applied Physics B **118**, 47–60 (2015). [Cité page 61.]
- 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 72.]
- Mairesse Y. *Generation and characterization of attosecond pulses*. Thèses, Université Paris Sud - Paris XI, (2005). URL <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00011620>. [Cité pages 63 et 64.]
- 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 103 et 106.]
- Mansuripur M. *Angular momentum of circularly polarized light in dielectric media*. Opt. Express **13**, 5315–5324 (2005). [Cité page 21.]
- Mendoza-Hernández J, Arroyo-Carrasco ML, Iturbe-Castillo MD, et Chávez-Cerda S. *Laguerre-gauss beams versus bessel beams showdown : Peer comparison*. Opt. Lett. **40**, 3739–3742 (2015). [Cité page 98.]
- Mondal PK, Deb B, et Majumder S. *Angular momentum transfer in interaction of laguerre-gaussian beams with atoms and molecules*. Physical Review A **89**, 063418 (2014). [Cité page 55.]
- Muthukrishnan A et Stroud Jr C. *Entanglement of internal and external angular momenta of a single atom*. Journal of Optics B : Quantum and Semiclassical Optics **4**, S73 (2002). [Cité page 55.]

- Oemrawsingh SSR, van Houwelingen JAW, Eliel ER, Woerdman JP, Verstegen EJK, Kloosterboer JG, et 't Hooft GW. *Production and characterization of spiral phase plates for optical wavelengths*. Appl. Opt. **43**, 688–694 (2004). [Cité page 69.]
- Padgett M et Allen L. *The poynting vector in laguerre-gaussian laser modes*. Optics Communications **121**, 36 – 40 (1995). [Cité page 29.]
- Padgett MJ et Allen L. *The angular momentum of light : optical spanners and the rotational frequency shift*. Optical and Quantum Electronics **31**, 1–12 (1999). [Cité page 68.]
- Pariente G et Quéré F. *Spatio-temporal light springs : extended encoding of orbital angular momentum in ultrashort pulses*. Opt. Lett. **40**, 2037–2040 (2015). [Cité pages 106 et 110.]
- Peatross J, Chaloupka J, et Meyerhofer D. *High-order harmonic generation with an annular laser beam*. Optics letters **19**, 942–944 (1994). [Cité page 104.]
- 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 55.]
- Plick WN et Krenn M. *Physical meaning of the radial index of laguerre-gauss beams*. Phys. Rev. A **92**, 063841 (2015). [Cité pages 98 et 99.]
- Poincaré H. *La théorie de lorentz et le principe de réaction*. Archives néerlandaises des sciences exactes et naturelles **5**, 252–276 (1900). [Cité page 16.]
- Popmintchev T, Chen MC, Popmintchev D, Arpin P, Brown S, Ališauskas S, Andriukaitis G, Balčiunas T, Mücke OD, Pugzlys A, et al. *Bright coherent ultrahigh harmonics in the kev x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers*. science **336**, 1287–1291 (2012). [Cité page 82.]
- Poynting JH. *On the transfer of energy in the electromagnetic field*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London **175**, 343–361 (1884). [Cité page 14.]
- Poynting JH. *The pressure of light*. The Inquirer pages 195–196 (1903). [Cité page 16.]
- Poynting JH. *The wave motion of a revolving shaft, and a suggestion as to the angular momentum in a beam of circularly polarised light*. Proc. Roy. Soc. Lond. Series A **82**, 560–567 (1909). [Cité page 16.]
- Rebernig-Ribić 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 109.]
- Ruf H. *Dynamique moléculaire par imagerie attoseconde*. Thèses, Bordeaux 1, (2012). URL <http://www.theses.fr/2012BOR14651>. [Cité pages 94 et 95.]
- Salakhutdinov VD, Eliel ER, et Löffler W. *Full-field quantum correlations of spatially entangled photons*. Phys. Rev. Lett. **108**, 173604 (2012). [Cité page 98.]
- Salieres P, L'Huillier A, et Lewenstein M. *Coherence control of high-order harmonics*. Physical Review Letters **74**, 3776 (1995). [Cité page 99.]
- Schmiegelow CT, Schulz J, Kaufmann H, Ruster T, Poschinger UG, et Schmidt-Kaler F. *Excitation of an atomic transition with a vortex laser beam*. arXiv preprint arXiv:1511.07206 (2015). [Cité pages 55 et 56.]
- Stewart AM. *Angular momentum of the electromagnetic field : the plane wave paradox resolved*. European Journal of Physics **26**, 635 (2005). [Cité page 21.]
- Sueda K, Miyaji G, Miyanaga N, et Nakatsuka M. *Laguerre-gaussian beam generated with a multilevel spiral phase plate for high intensity laser pulses*. Opt. Express **12**, 3548–3553 (2004). [Cité page 70.]
- Sztul H et Alfano R. *Double-slit interference with laguerre-gaussian beams*. Optics letters **31**, 999–1001 (2006). [Cité page 72.]
- T. Auguste, O. Gobert BC. *Numerical study on high-order harmonic generation by a bessel-gauss laser beam*. Phys. Rev. A **78**, 033411 (2008). [Cité page 59.]
- Tan S. *453.701 Linear Systems*, chapter 7 - Wave propagation and Fourier optics, pages 1–17. The University of Auckland. [Cité page 62.]

- Vaity P, Banerji J, et Singh R. *Measuring the topological charge of an optical vortex by using a tilted convex lens.* Physics Letters A **377**, 1154–1156 (2013). [Cité page 76.]
- 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 pages 43, 44, 45, et 47.]
- 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 110.]
- 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 15.]
- Wang F, Yangjian C, et Korotkiva O. *Partially coherent standard and elegant laguerre-gaussian beams of all orders.* Optics Express **17**, 22366–22379 (2009). [Cité page 110.]
- Wolf K. *Integral Transforms in Science and Engineering.* Mathematical Concepts and Methods in Science and Engineering Series. Basic Books (1979). ISBN 9780306392511. [Cité page 83.]
- Yamagata Y. *A hypothesis for the asymmetric appearance of biomolecules on earth.* Journal of Theoretical Biology **11**, 495–498 (1966). [Cité page 33.]
- Yao AM et Padgett MJ. *Orbital angular momentum : origins, behavior and applications.* Adv. Opt. Photon. **3**, 161–204 (2011). [Cité page 69.]
- Zaïr A, Holler M, Guandalini A, Schapper F, Biegert J, Gallmann L, Keller U, Wyatt AS, Monmayrant A, Walmsley IA, Cormier E, Auguste T, Caumes JP, et Salières P. *Quantum path interferences in high-order harmonic generation.* Phys. Rev. Lett. **100**, 143902 (2008). [Cité page 92.]
- 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 pages 81 et 89.]

