

Concepts et applications de la génération d'harmoniques d'ordre élevé

S. Beaulieu, V. Blanchet, A. Comby, B. Fabre, A. Ferré, E. Mével, B. Pons et Y. Mairesse

CELIA – Université de Bordeaux – CNRS – CEA, 351 cours de la libération 33405 Talence

Lorsqu'une cible atomique ou moléculaire est soumise à un champ laser intense et court, un électron est arraché au système; une partie de la fonction d'onde électronique est ainsi éjectée dans le continuum. Sous l'action du champ laser, ce paquet d'onde électronique s'éloigne dans un premier temps de l'ion parent avant d'y être ramené lors du demi-cycle laser suivant, *i.e.* en un temps extrêmement court, de l'ordre de quelques centaines d'attosecondes (10^{-18} s). Cette propagation dans le continuum s'accompagne d'une augmentation de l'énergie cinétique de l'électron qui peut atteindre plusieurs centaines d'électron-Volts. La longueur d'onde de De Broglie associée à cet électron, inversement proportionnelle à l'énergie cinétique, est alors de l'ordre de l'angström. Enfin, l'électron ramené sur l'ion se recombine dans un état lié; il émet alors une radiation VUV (Ultraviolet du vide) de façon à respecter le principe de conservation de l'énergie totale. Ce processus d'émission radiative est connu sous le nom de génération d'harmoniques d'ordre élevé [1].

Il a récemment été remarqué que la radiation VUV émise encode les informations liées au milieu générateur; en effet, le processus de recombinaison à la source de la génération d'harmoniques dépend non seulement du paquet d'onde électronique décrivant le retour de l'électron sur l'ion, mais aussi de la fonction d'onde liée sur laquelle l'électron vient finalement se recombinaison. Cela a conduit à l'émergence de la spectroscopie dite de génération d'harmoniques qui vise à révéler la structure et la dynamique de systèmes atomiques et moléculaires avec une résolution spatiale et temporelle inégalée jusqu'ici (voir, e.g., [2,3]). En ce sens, un ensemble d'outils expérimentaux novateurs, inspirés des techniques conventionnelles utilisées en spectroscopie non-linéaire, ont été développés pour imager les comportements électronique et nucléaire de systèmes allant de l'atome aux réactions chimiques [4,5].

Cependant la complexité et la variété des informations obtenues au cours de ces études rendent leurs interprétations délicates et font émerger de nouvelles interrogations quant à la modélisation du processus de génération. Nous reviendrons alors sur les concepts fondamentaux inhérents à cette modélisation, et plus particulièrement sur la pertinence des approximations les plus couramment utilisées pour décrire la génération d'harmoniques. Nous présenterons enfin un des derniers résultats marquants obtenu au CELIA en collaboration avec des collègues du laboratoire LIDyL (CEA-Saclay), à savoir la génération d'harmoniques fortement elliptiques et l'utilisation de ces dernières pour des études de dichroïsme circulaire dans des molécules chirales [6].

[1] P. B. Corkum, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)

[2] J. Itatani, *et al.*, *Tomographic imaging of molecular orbitals*, Nature **432**, 867 (2004)

[3] S. Haessler, *et al.*, *Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets*, Nat. Phys. **6**, 200 (2010)

[4] Y. Mairesse, *et al.*, *High Harmonic Spectroscopy of Multichannel Dynamics in Strong-Field Ionization*, Phys. Rev. Lett. **104**, 213601 (2010)

[5] H.J. Wörner, *et al.*, *Conical Intersection Dynamics in NO₂ Probed by Homodyne High-Harmonic Spectroscopy*, Science **334**, 208 (2011)

[6] A. Ferré, *et al.*, *A table-top ultrashort light source in the extreme-ultraviolet for time-resolved circular dichroism experiments*, Nat. Phot. **9**, 93 (2015)