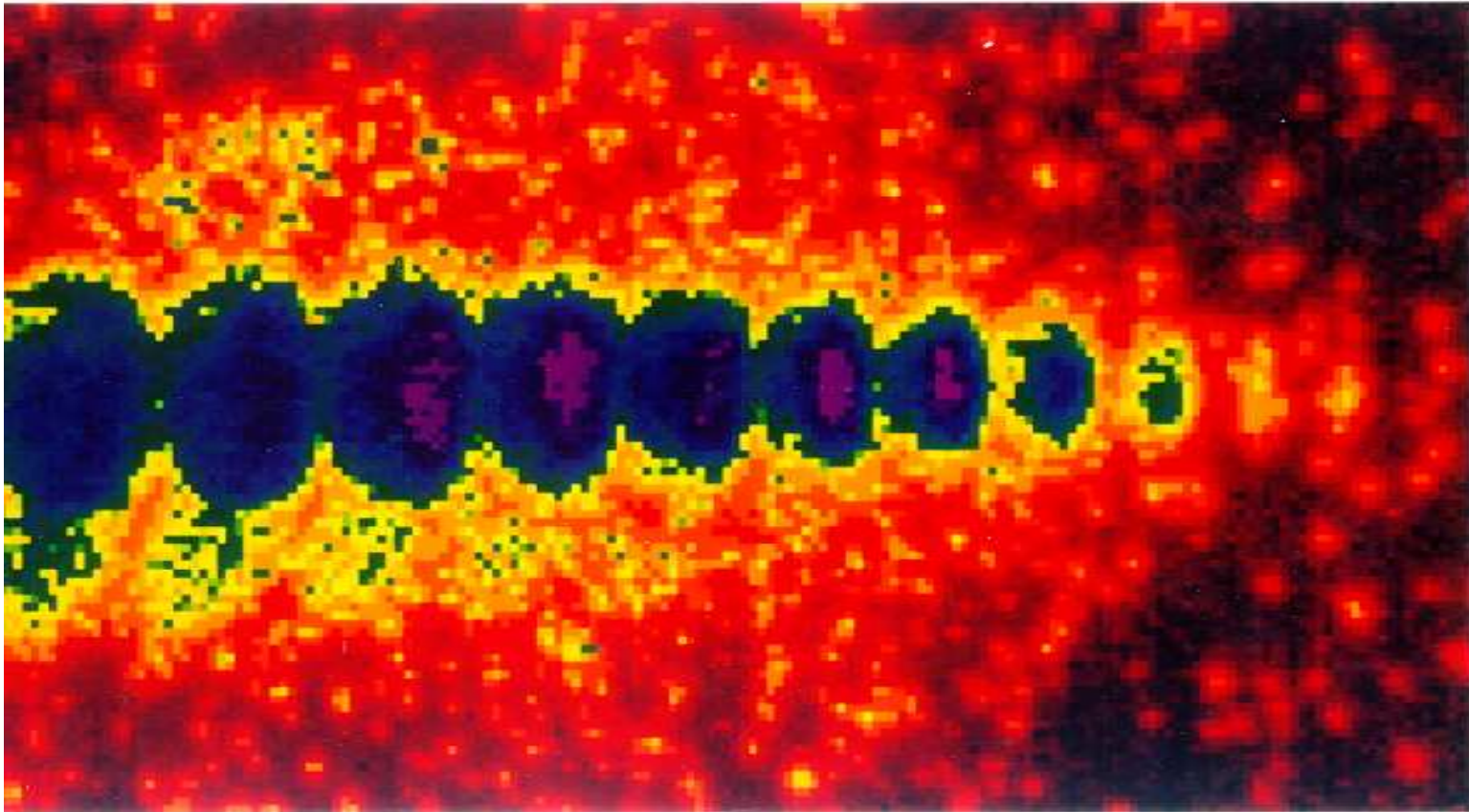


De la femtoseconde à l'attoseconde...

Impulsions UVX cohérentes et ultrabrèves
obtenues par génération d'harmoniques d'ordre élevé



Pascal Salières

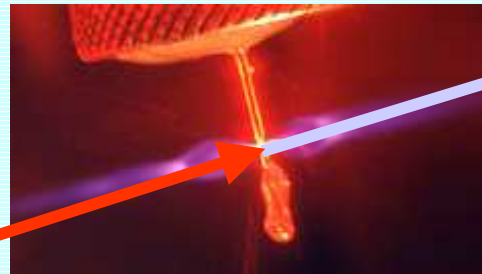
CEA-Saclay, SPAM

Domaine de recherche

Interaction laser-matière en champ intense

Génération d'harmoniques dans les gaz (New et Ward, 1967)

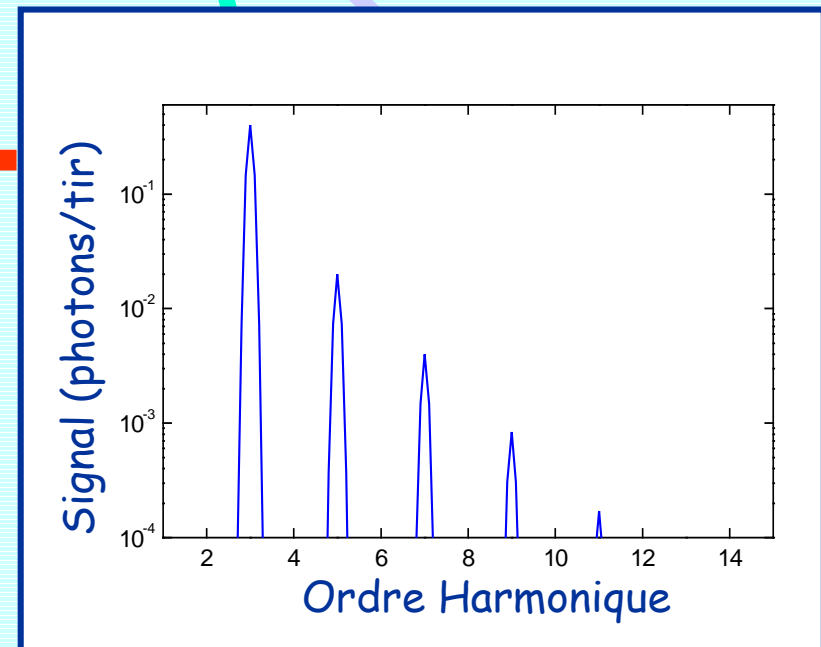
Jet de gaz



Laser

$I < 10^{13} \text{ W/cm}^2$

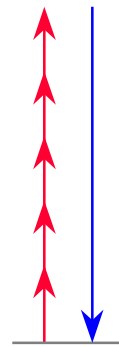
Réseau dispersif



- Régime de champ faible:

Processus multiphotonique

Décroissance perturbative

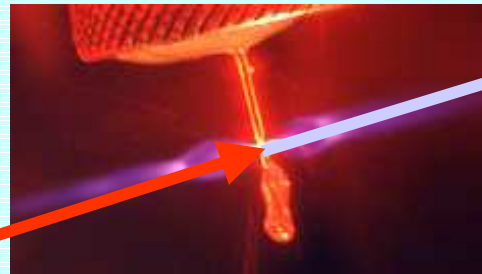


Domaine de recherche

Interaction laser-matière en champ intense

Génération d'harmoniques d'ordre élevé (Saclay et Chicago, 1988)

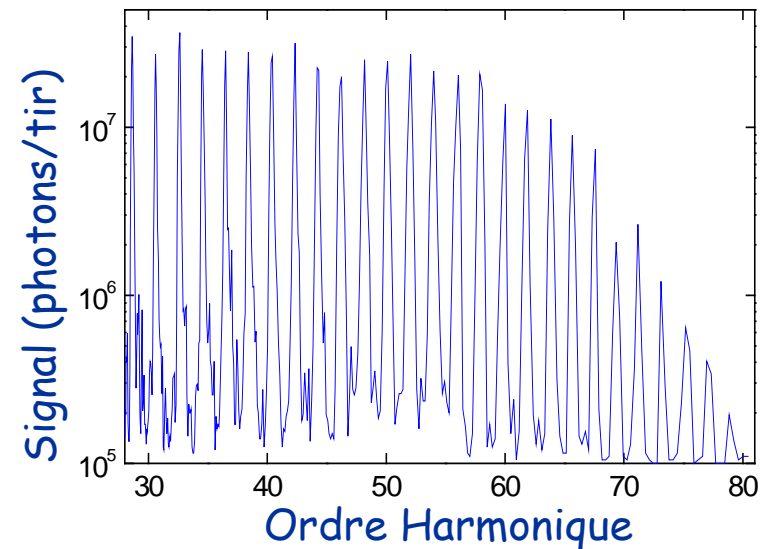
Jet de gaz



Laser 800 nm

10^{14} - 10^{15} W/cm²

Réseau dispersif



- Intérêt fondamental:

Origine de ce processus spectaculaire?
(ordres > 300 observés, $E_{\text{photon}} = 500$ eV)

- Intérêt appliqué:

Source UVX cohérente et ultrabrève
(femtoseconde (10^{-15} s) à attoseconde (10^{-18} s))

Evolution des thèmes de recherche

1

Etude du mécanisme de génération

- encore inconnu en 1992
- question centrale de la physique atomique en champ fort

2

Caractérisation du rayonnement

- cohérence, courte durée
- optimisation du nombre de photons

4

Génération d'impulsions attoseconde

- études théoriques jusqu'en 2001
- puis expérimentales

3

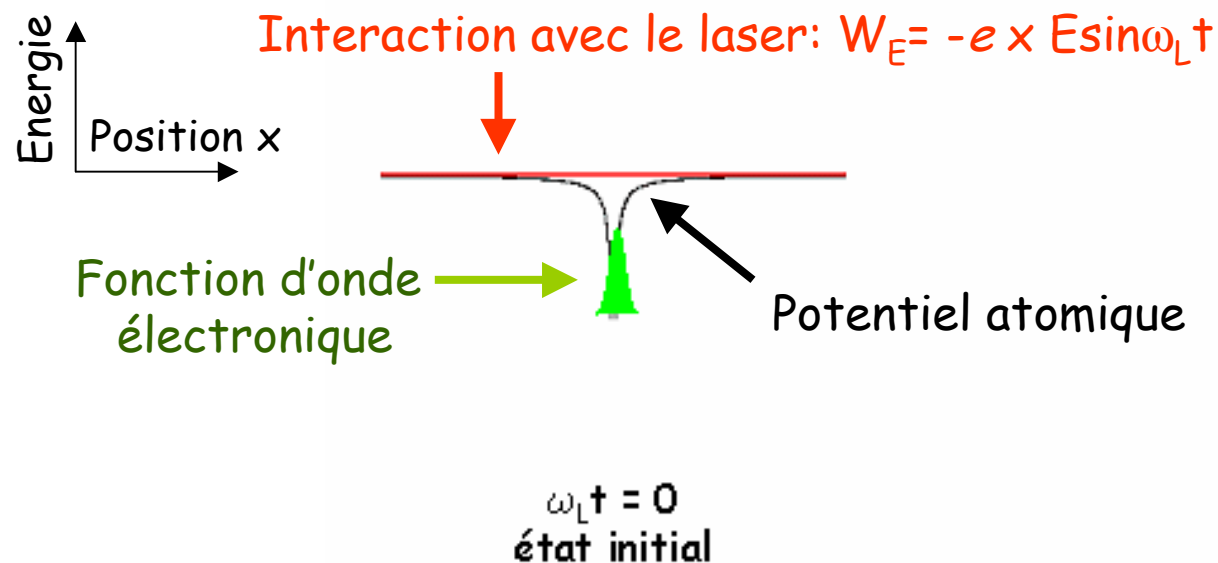
Applications

- spectroscopie atomique et moléculaire
- physique du solide et des plasmas

Mécanisme de la génération: Modèle semi-classique

Atome en interaction avec un champ laser intense de basse fréquence (IR):

Kulander 1993
Corkum



I_p : potentiel d'ionisation $\sim 10-20$ eV E_k : énergie cinétique ~ 200 eV @ 10^{15} W/cm²

- ▶ l'émission des ordres élevés s'explique par l'accélération dans le champ
- ▶ le processus s'inverse toutes les $\frac{1}{2}$ périodes: harmoniques impaires

Théorie quantique dans l'approximation des champs forts

- « Modèle de Lewenstein »:

Lewenstein et al. PRA 1994

- retrouve et justifie les hypothèses du modèle semi-classique
- permet de calculer amplitude et phase de l'émission de l'atome

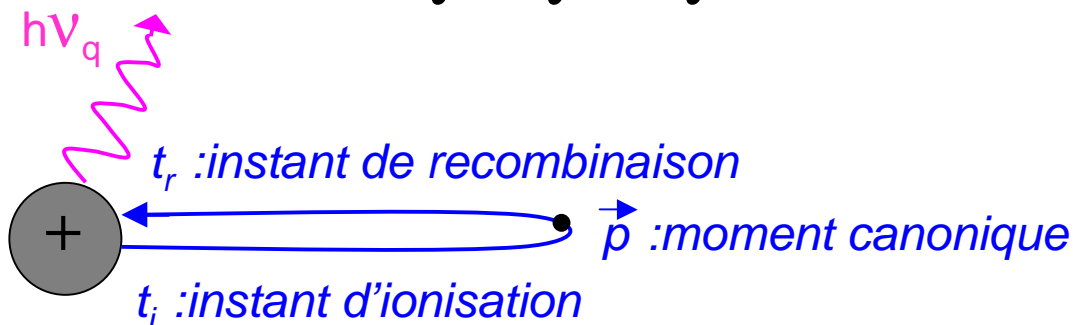
+ code de propagation des champs dans le milieu macroscopique



Outil remarquable pour la compréhension et l'optimisation du rayonnement

Moment dipolaire harmonique s'écrit comme une intégrale des chemins de Feynman:

$$\vec{x}_q = \int dt_i \int dt_r \int d^3 \vec{p} \ b(t_i, t_r, \vec{p}) \ e^{i \Phi_q(t_i, t_r, \vec{p})}$$



Φ_q donnée par l'action le long de la trajectoire électronique

Deux principales contributions au dipôle harmonique

- Principe d'action stationnaire => identification des principales trajectoires

$$x_q \approx \left| x_{q,1} \right| e^{i\Phi_{q,1}} + \left| x_{q,2} \right| e^{i\Phi_{q,2}}$$

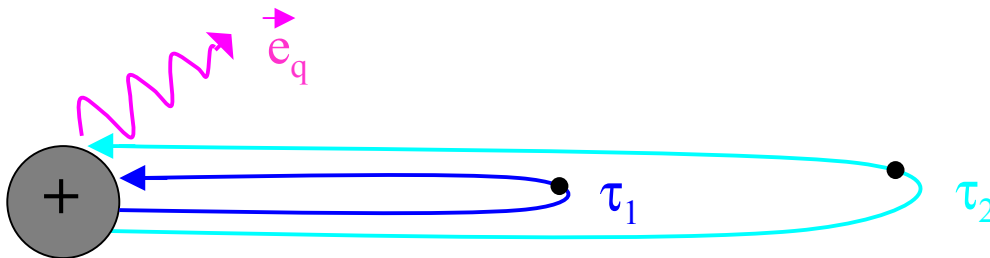
« courte »

« longue »

Temps d'excursion: $\tau_1 = t_r - t_i \sim T_L/2$

$\tau_2 \sim T_L$

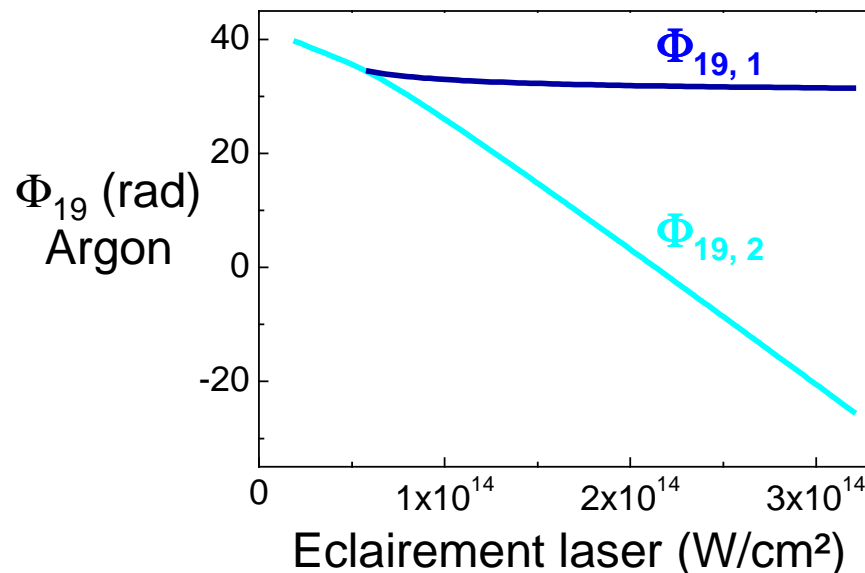
(T_L : période laser = 2.7 fs)



Phase de chaque contribution:

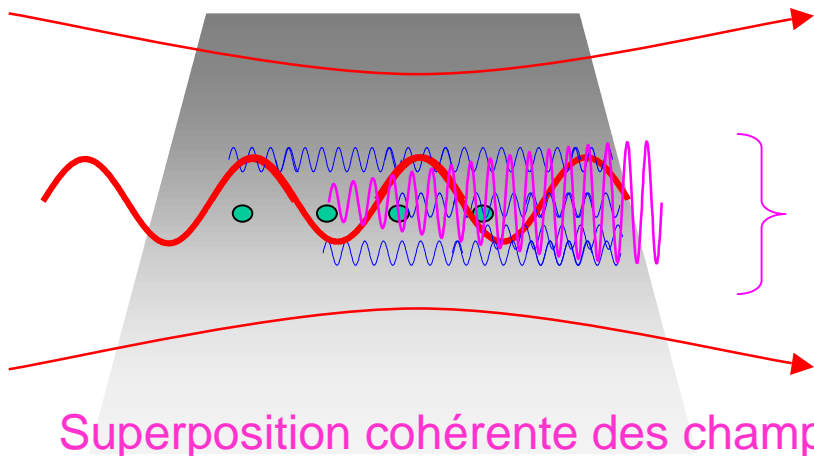
$$\Phi_{traj} = \frac{S_{traj}}{\hbar} \approx \frac{-U_p \tau_{traj}}{\hbar} \approx -\alpha_{traj} I_L$$

$$\alpha_1 < \alpha_2$$



Φ_q va déterminer les propriétés de cohérence du rayonnement

Emission macroscopique d'un jet de gaz



$$\vec{E}_q = \sum_{\text{atomes}} \vec{e}_q = |\vec{E}_q| e^{i\vec{k}_q \cdot \vec{r}}$$

Superposition cohérente des champs induits par la polarisation source:

$$P_q = N_a |x_q| e^{iq\vec{k}_1 \cdot \vec{r} + i\Phi_q}$$

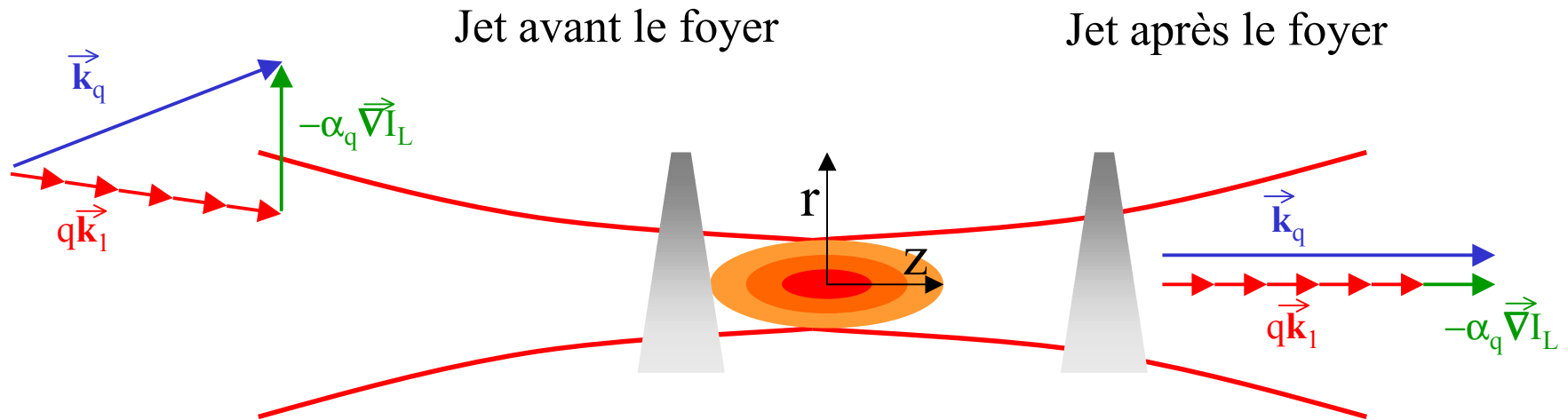
Transfert d'énergie efficace si bon accord de phase:

$$\Rightarrow v_\phi(E_q) = v_\phi(P_q) \rightarrow \vec{k}_q = q\vec{k}_1 + \vec{\nabla}\Phi_q = q\vec{k}_1 - \alpha_q \vec{\nabla}I_L$$

Focalisation, dispersion $\Rightarrow |\vec{k}_q| > |q\vec{k}_1|$

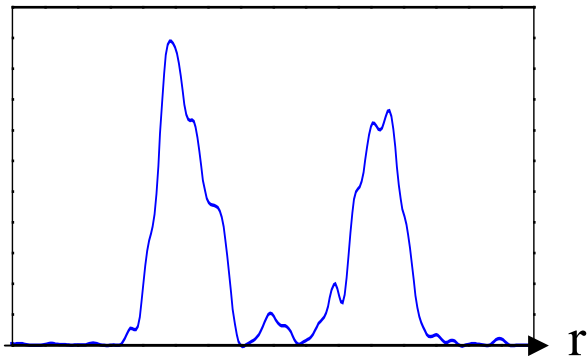
Accord de phase réalisé grâce à: $-\alpha_q \vec{\nabla}I_L$

Influence de la position relative jet/foyer

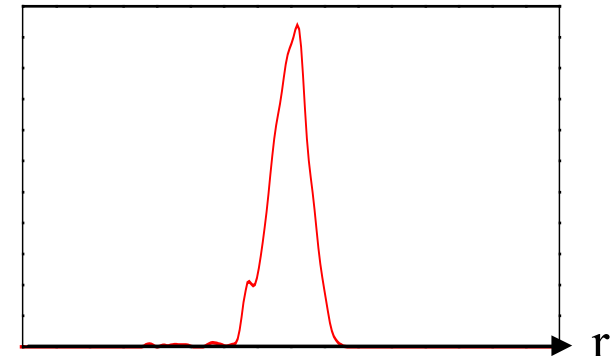


Accord de phase **hors axe**

Accord de phase **sur l'axe**



Profils d'émission

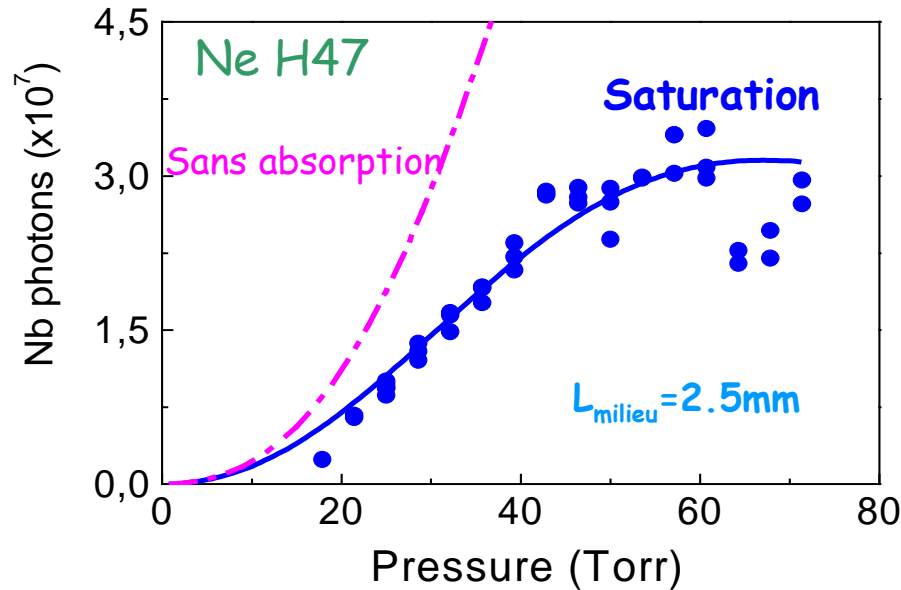


grand α nécessaire \Rightarrow traj. longue favorisée

faible α nécessaire \Rightarrow traj. courte favorisée

Optimisation de la génération

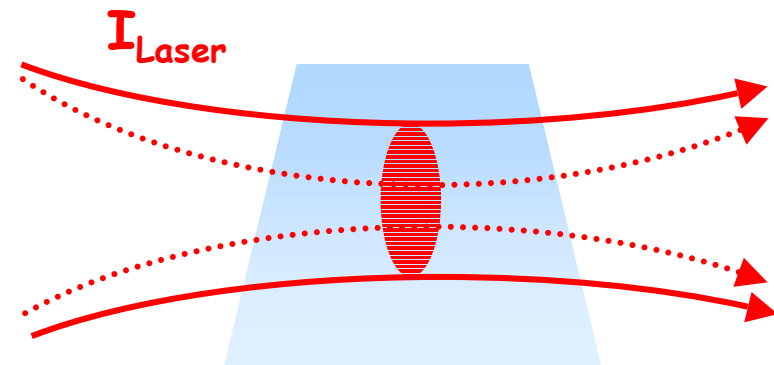
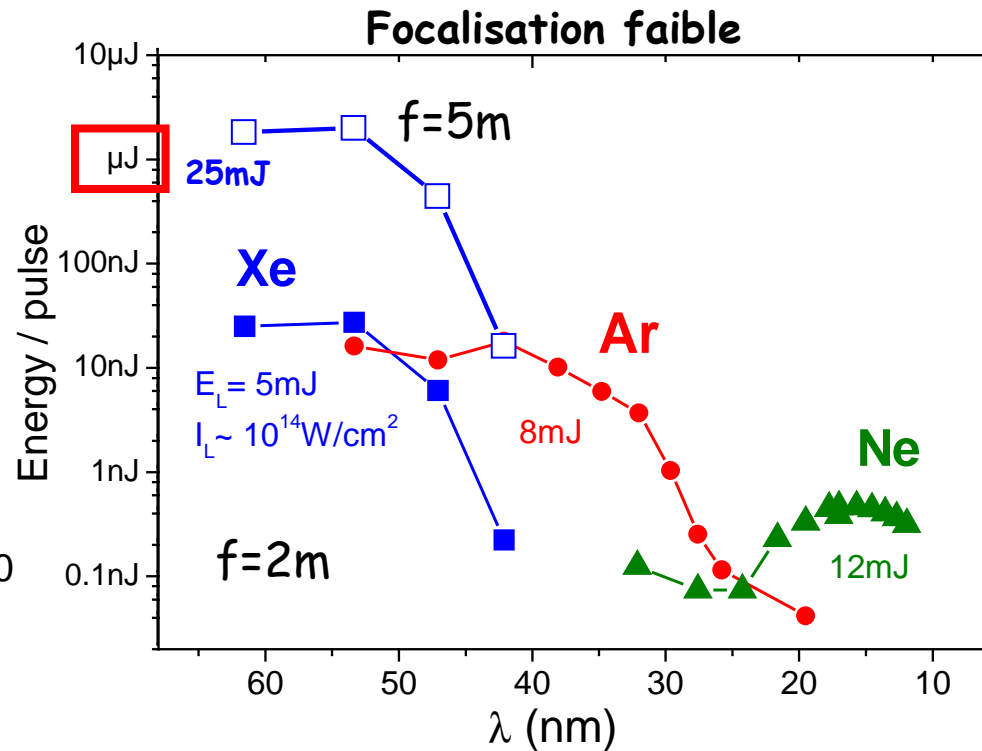
Emission limitée par l'absorption



L'absorption par le milieu générateur limite l'efficacité de génération ($E_{q\omega}/E_{\omega}$)

=> pour augmenter l'énergie harmonique, utilisation de lois d'échelle

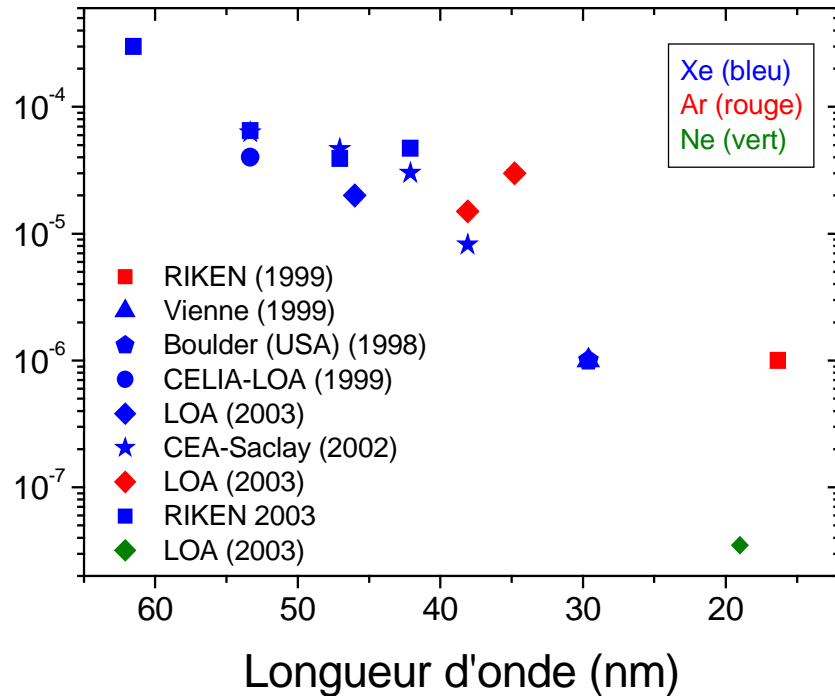
'Scaling' de l'énergie harmonique



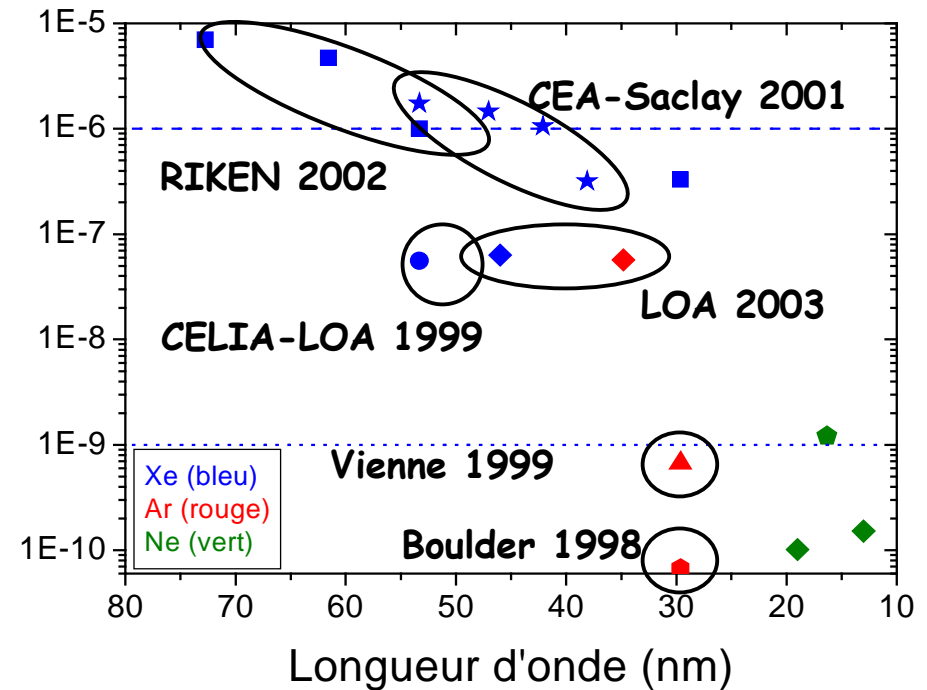
Hergott et al. PRA 2002

Panorama des sources harmoniques

Effacité



Énergie harmonique par tir (J)



Conclusion:

- Phase du dipôle permet un contrôle de l'accord de phase
- Emission limitée par l'absorption => 1^{ère} mesure d'énergies μJ
- Lois d'échelle (Haute énergie (laser) + grande section)

Plan de l'exposé

1

Etude du mécanisme de génération

- encore inconnu en 1992
- question centrale de la physique atomique en champ fort

2

Caractérisation du rayonnement

- cohérence, courte durée
- optimisation du nombre de photons

4

Génération d'impulsions attoseconde

- études théoriques jusqu'en 2001
- puis expérimentales

3

Applications

- spectroscopie atomique et moléculaire
- physique du solide et des plasmas

Caractérisation approfondie du rayonnement

- Mesure absolue et optimisation du nombre de photons générés
Energie $>1 \mu\text{J}$

Hergott et al. PRA 2002

- Mesure de la durée d'impulsion
 $\Delta t \sim 10 \text{ fs}$

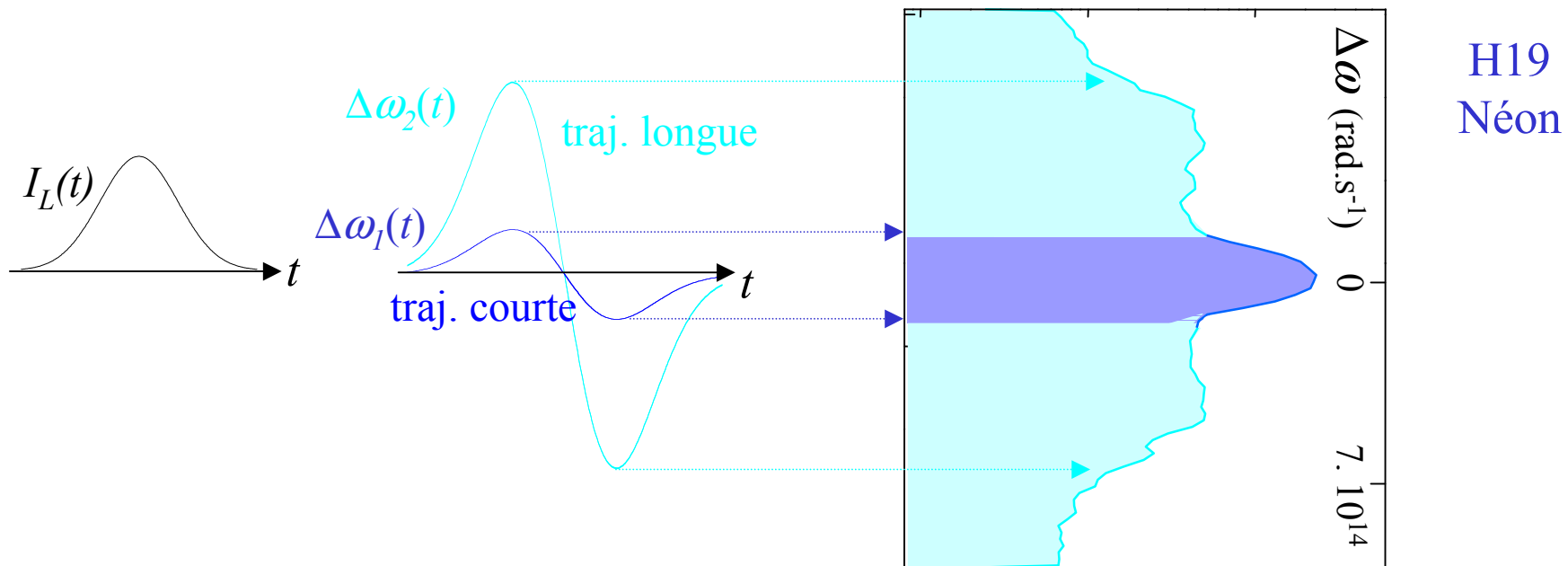
Bouhal et al. PRA 1998

- Mesure de la cohérence temporelle

Cohérence temporelle

Variation temporelle de la phase du dipôle: $\Phi_i(t) \approx -\alpha_i I_L(t)$

=> modulation de la fréquence d'émission: $\Delta\omega_i(t) = -\frac{\partial\Phi_i}{\partial t} \approx \alpha_i \frac{\partial I_L}{\partial t}$
 « chirp »



Mesure de la largeur spectrale (et de la durée d'impulsion) => α_1, α_2 => action

=> durée des trajectoires: $\tau_1 \sim 1.2$ fs $\tau_2 \sim 2.2$ fs

Accès à la dynamique électronique ultrarapide

Salières et al. Science 2001

Caractérisation approfondie du rayonnement

- Mesure absolue et optimisation du nombre de photons générés
Energie $>1 \mu\text{J}$

Hergott et al. PRA 2002

- Mesure de la durée d'impulsion
 $\Delta t \sim 10 \text{ fs}$

Bouhal et al. PRA 1998

- Mesure de la cohérence temporelle

Salières et al. Science 2001

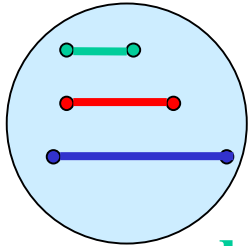
- Mesure de la cohérence spatiale

Thèse de Laurent Le Déroff (1999)

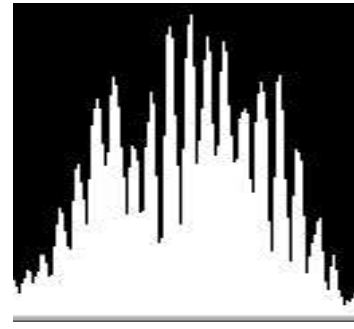
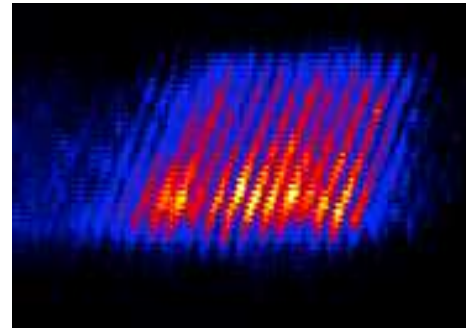
Cohérence spatiale

(Collab. IOTA)

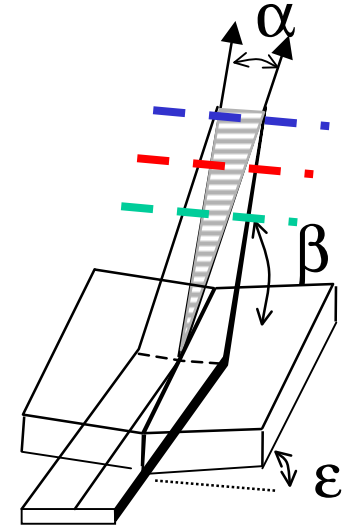
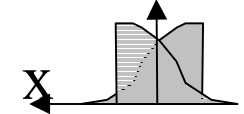
Xenon, H13



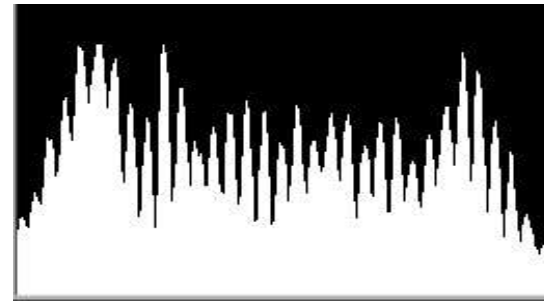
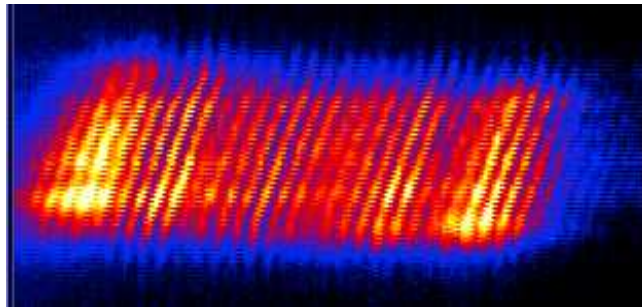
$d=1\text{mm}$



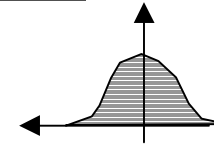
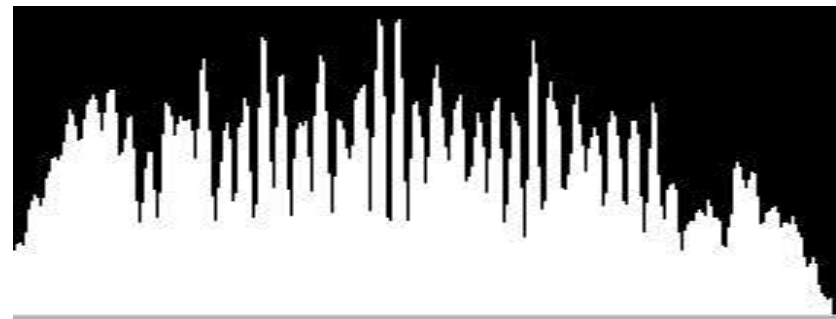
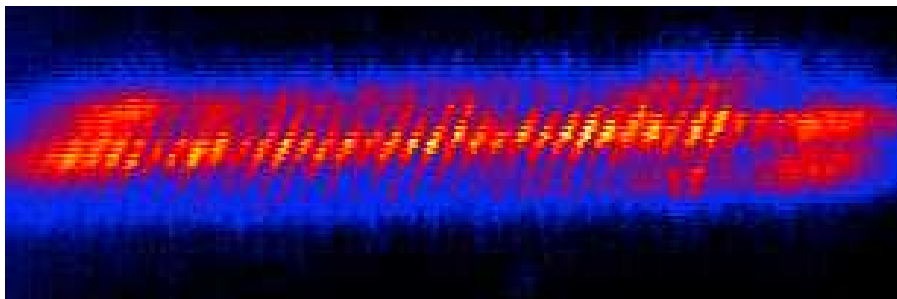
miroirs de Fresnel



$d=2\text{mm}$



$d=3\text{mm}$



Caractérisation approfondie du rayonnement

- Mesure absolue et optimisation du nombre de photons générés
Energie $>1 \mu\text{J}$

Hergott et al. PRA 2002

- Mesure de la durée d'impulsion
 $\Delta t \sim 10 \text{ fs}$

Bouhal et al. PRA 1998

- Mesure de la cohérence temporelle

Salières et al. Science 2001

- Mesure de la cohérence spatiale

Le Déroff et al. PRA 2000

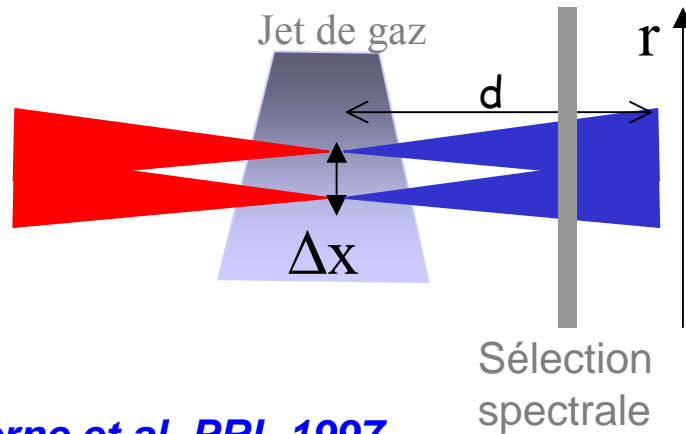
- Mesure de la qualité de faisceau
bonne refocalisabilité

Le Déroff et al. OL 1998

- Mesure de la cohérence mutuelle

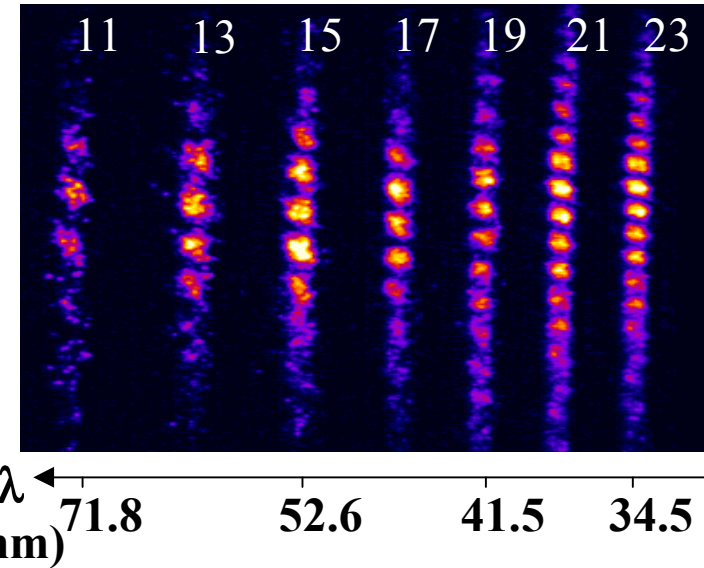
Cohérence mutuelle de deux sources harmoniques

Séparées spatialement



$$\Delta i = \frac{\lambda d}{\Delta x}$$

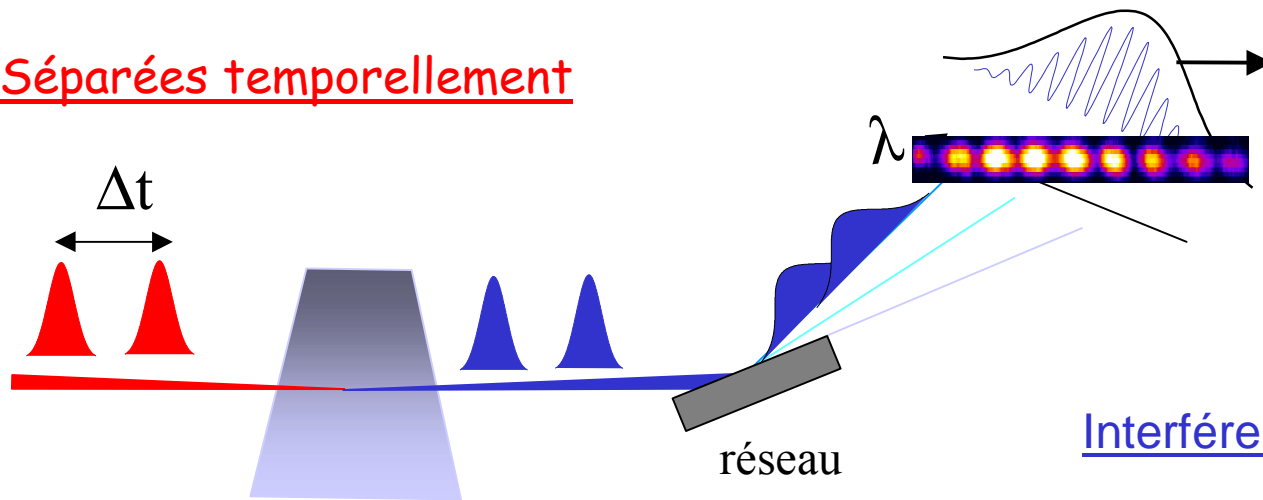
Interférences spatiales UVX



Zerne et al. PRL 1997

Hergott et al. LPB 2001

Séparées temporellement



$$\Delta i = \frac{\lambda^2}{c \Delta t}$$

Interférences spectrales UVX

Salières et al. PRL 1999

Caractérisation approfondie du rayonnement

- **Source UVX brillante, ultrabrève, cohérente, accordable, récurrente (kHz)**
 - **Ouverte aux utilisateurs européens dans le cadre de l'Infrastructure Laser SLIC (Saclay Laser-matter Interaction Center)**

- Mesure absolue et optimisation du nombre de photons générés
Energie $>1 \mu\text{J}$

Hergott et al. PRA 2002

- Mesure de la durée d'impulsion
 $\Delta t \sim 10 \text{ fs}$

Bouhal et al. PRA 1998

- Mesure de la cohérence temporelle

Salières et al. Science 2001

- Mesure de la cohérence spatiale

Le Déroff et al. PRA 2000

- Mesure de la qualité de faisceau
bonne refocalisabilité

Le Déroff et al. OL 1998

- Mesure de la cohérence mutuelle

Hergott et al. LPB 2001
Salières et al. PRL 1999

Plan de l'exposé

1

Etude du mécanisme de génération

- encore inconnu en 1992
- question centrale de la physique atomique en champ fort

2

Caractérisation du rayonnement

- cohérence, courte durée
- optimisation du nombre de photons

4

Génération d'impulsions attoseconde

- études théoriques jusqu'en 2001
- puis expérimentales

3

Applications

- spectroscopie atomique et moléculaire
- physique du solide et des plasmas

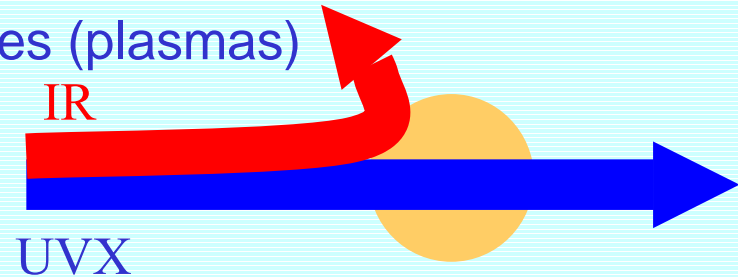
Panorama des applications de la source harmonique

- Durée ultracourte (fs) => études pompe-sonde de dynamiques ultrarapides
 - => physique du solide:
 - Spectroscopie et dynamique d'états de surface Haight et al. PRL 70, 3979 (1993)
 - Relaxation électronique dans les isolants Quéré et al. PRB 61, 9883 (2000)
 - Chimie de surface Bauer et al. PRL 87, 25501 (2001)
 - => spectroscopie atomique et moléculaire:
 - Fluorescence X femtoseconde Schnürer et al. PRL 85, 3392 (2000)
 - Spectroscopie d'états excités de He Larsson et al. J.Phys.B 28, L53 (1995)
 - Gisselbrecht et al. PRL 82, 4607 (1999)
 - Etude d'états prédissociatifs Sorensen et al. J.Chem.Phys. 112, 8038 (2000)
 - Nugent-Glandorf et al. PRL 87, 193002 (2001)
 - => physique des plasmas:
 - Spectroscopie d'absorption Theobald et al. PRL 77, 298 (1996)
- Fort éclairement => étude de processus nonlinéaires dans l'UVX
 - Kobayashi et al. OL 23, 64 (1998)
 - Papadogiannis et al. PRL 90, 133902 (2003)
- Forte cohérence => interférométrie UVX: sonde d'objets déphasants ultrabrefs
 - => spectroscopie interférométrique (Fourier)

Diagnostic de plasma par interférométrie UVX

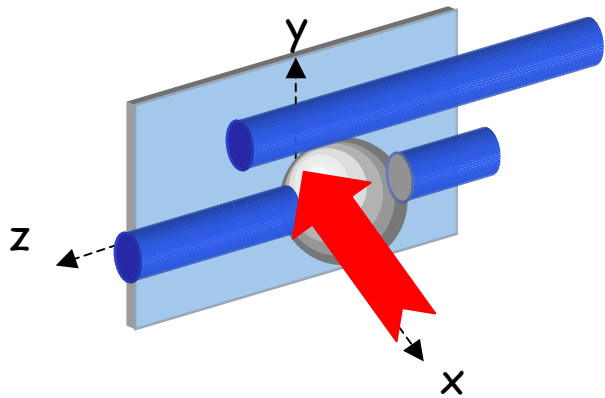
Intérêt des harmoniques pour l'interférométrie:

- cohérence mutuelle: division du faisceau dans l'IR (optiques efficaces) au lieu d'une division du faisceau dans l'UVX (optiques inefficaces)
- UVX: possibilité de sonder des milieux denses (plasmas) opaques à l'IR



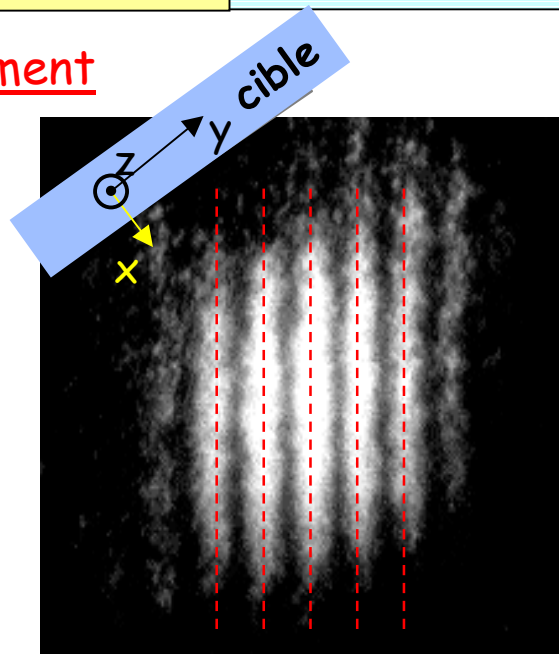
Thèse de Jean-François Hergott (2001)

2 sources séparées spatialement

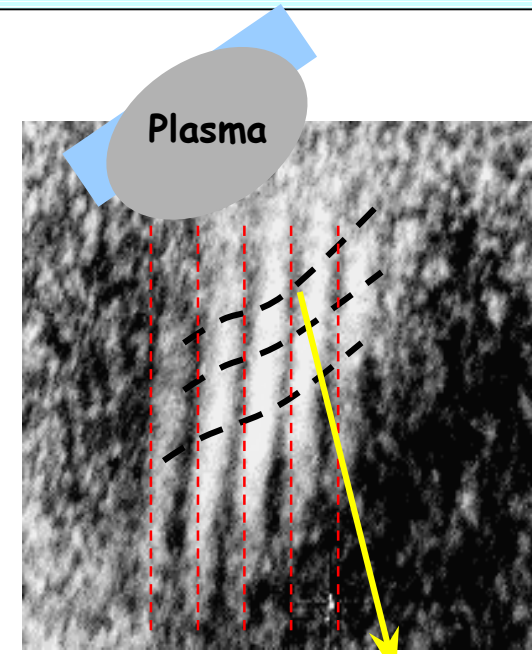


Cartographie 2D de la densité électronique

Descamps et al. OL 2000 (Collab. Lund)



Sans plasma

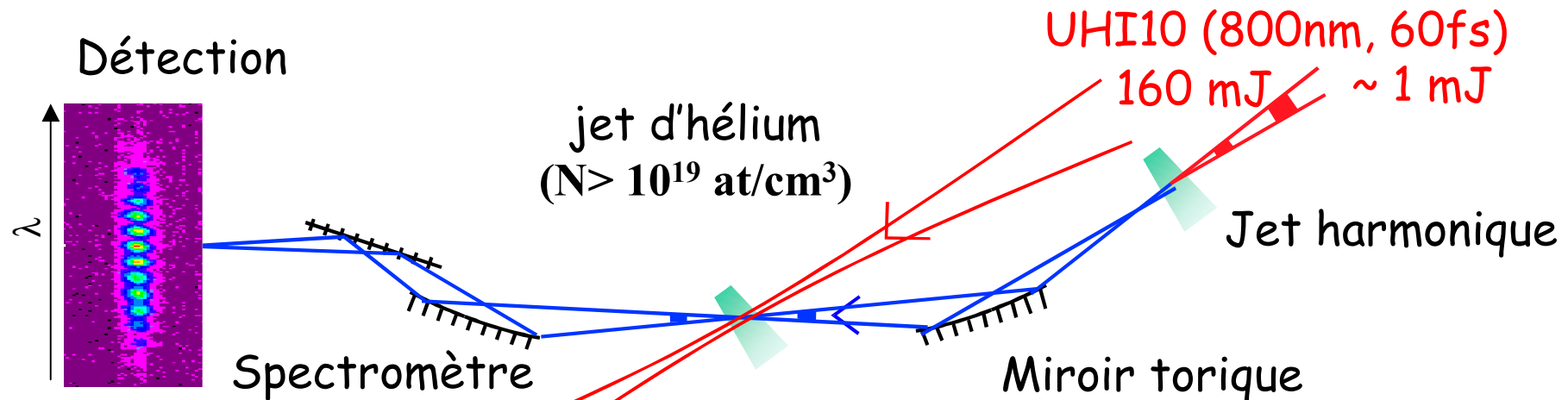


$$\bar{N}_e = 2.5 \cdot 10^{20} \text{ e}^-/\text{cm}^3$$

Diagnostic fs de l'ionisation d'un jet d'Hélium

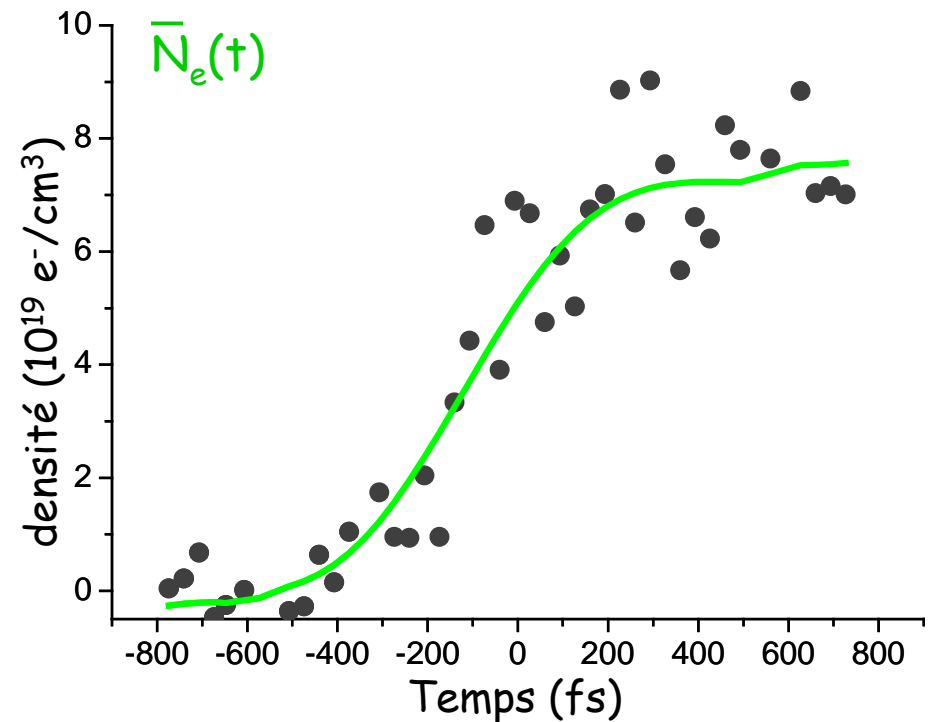
(Collab. UHI)

2 sources séparées temporellement



Résolution temporelle ~ 200 fs

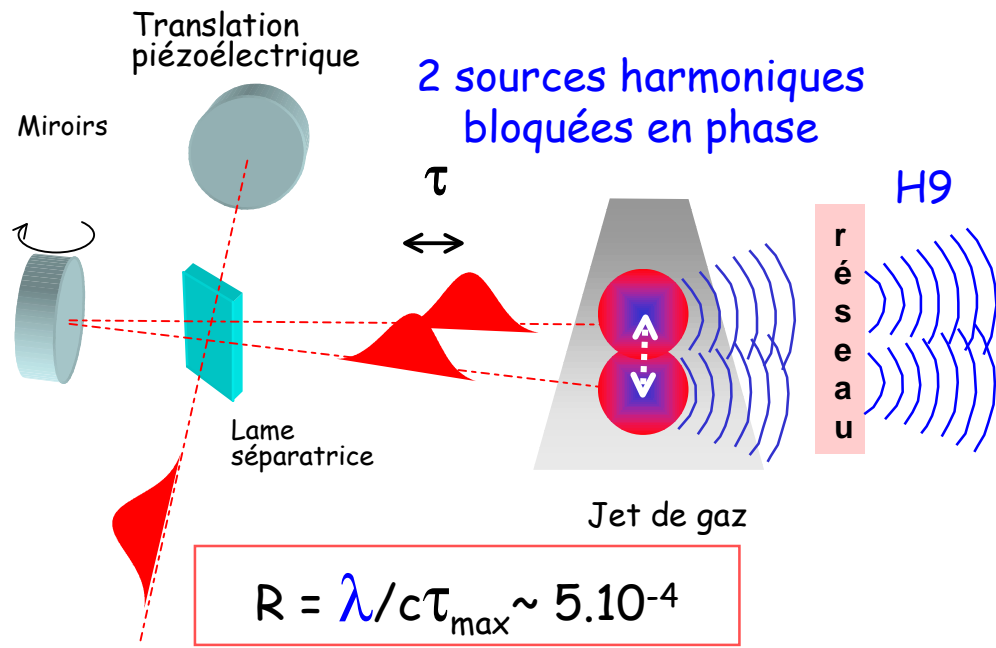
*1^{ère} expérience d'interférométrie UVX
résolue à l'échelle femtoseconde*



Salières et al. PRL 1999

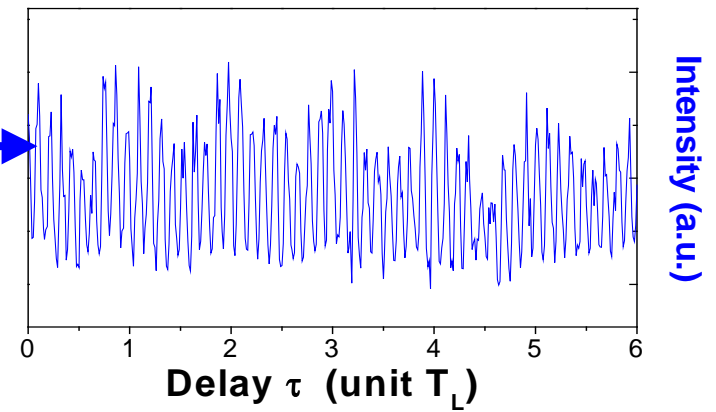
Spectroscopie par Transformée de Fourier dans l'UVX

Thèse de Milutin Kovacev (2003)

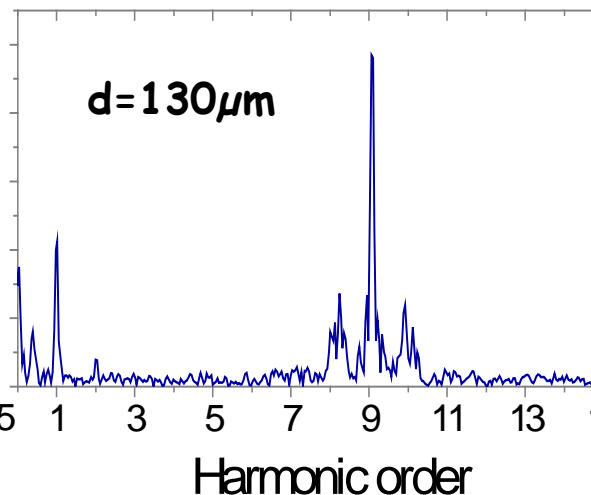
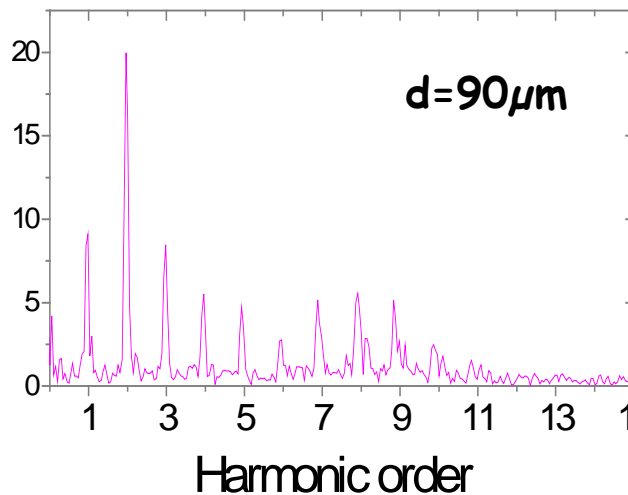


Trace d'autocorrélation de H9

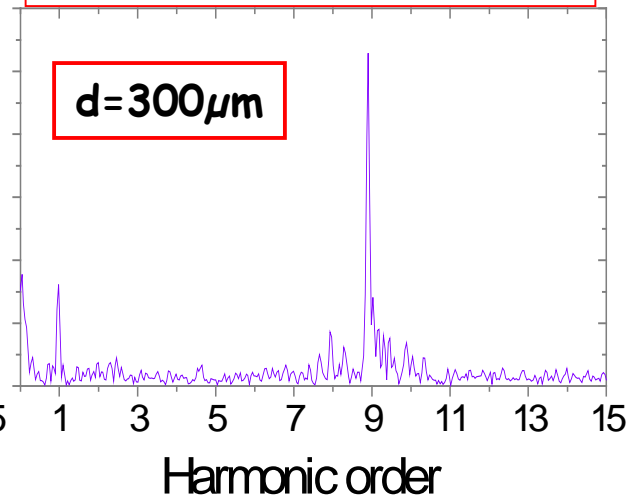
$$I_q(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} |E_q(t) + E_q(t - \tau)|^2 dt$$



Transformée de Fourier



Spectre de puissance



Plan de l'exposé

1

Etude du mécanisme de génération

- encore inconnu en 1992
- question centrale de la physique atomique en champ fort

2

Caractérisation du rayonnement

- cohérence, courte durée
- optimisation du nombre de photons

4

Génération d'impulsions attoseconde

- études théoriques jusqu'en 2001
- puis expérimentales

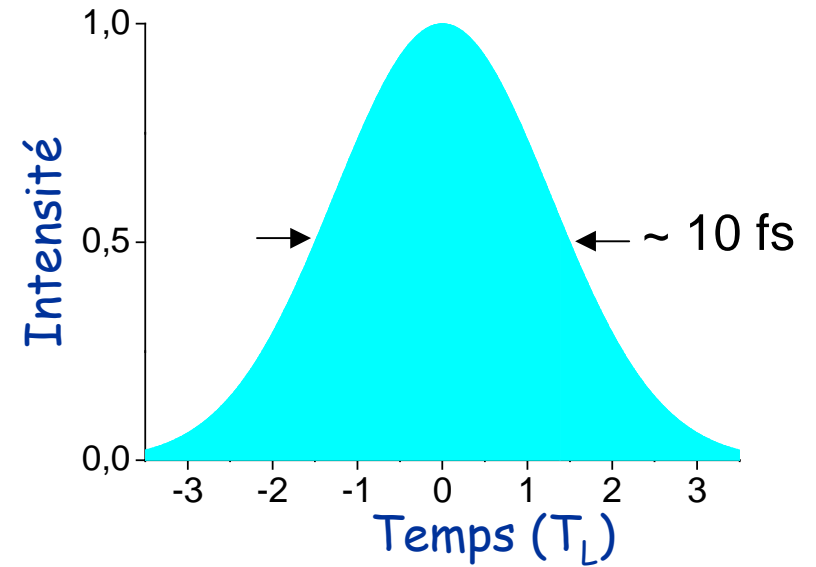
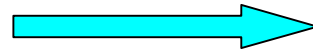
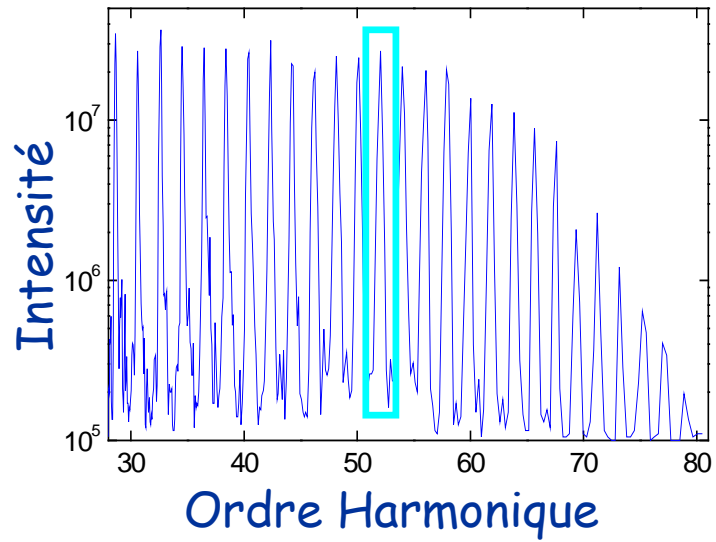
3

Applications

- spectroscopie atomique et moléculaire
- physique du solide et des plasmas

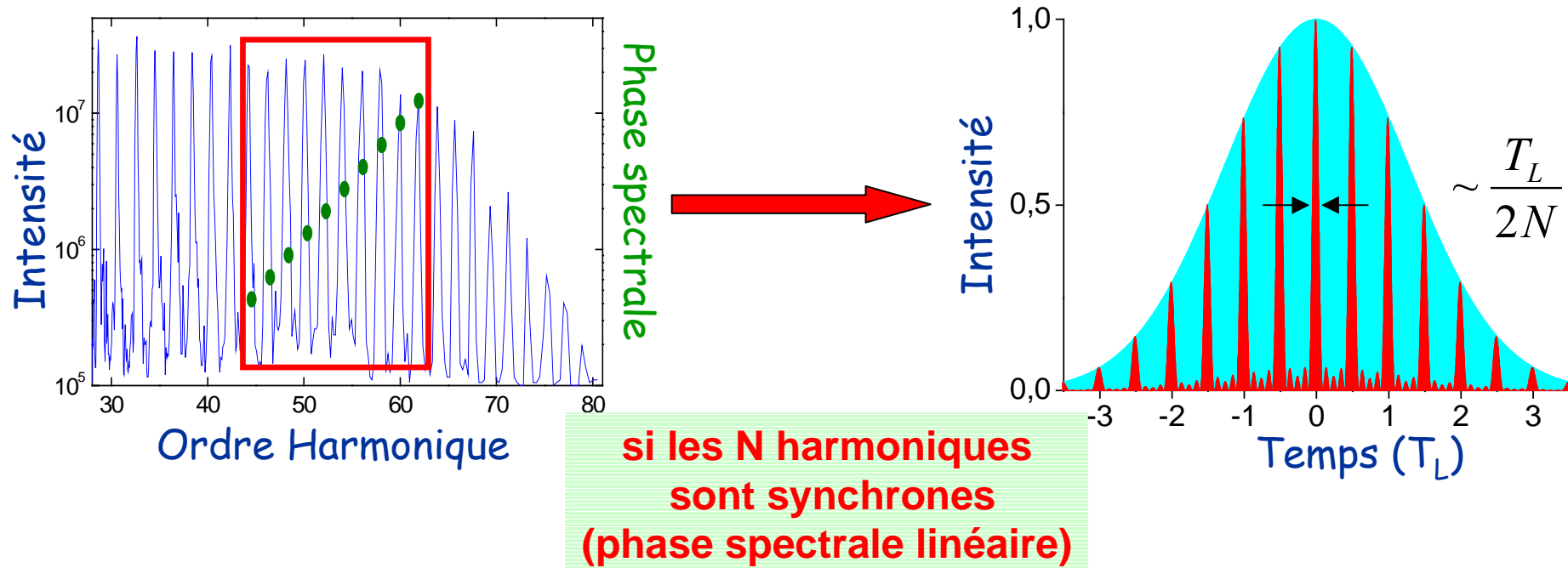
Génération d'impulsions attosecondes

Profil temporel d'une harmonique



Génération d'impulsions attosecondes

Profil temporel d'un groupe d'harmoniques?

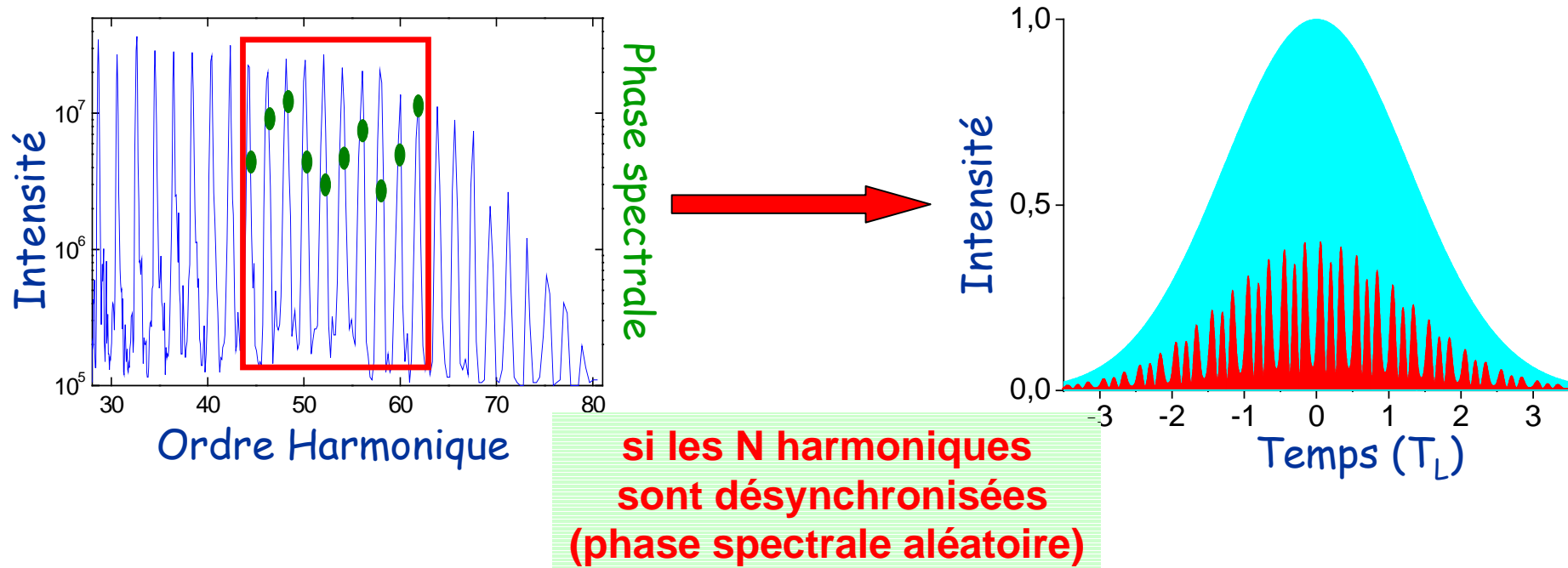


=> train d'impulsions ultrabrèves: $N=5 \Rightarrow \frac{T_L}{2N} \sim 250 \text{ as}$

=> temps d'émission (« timing ») donné par le délai de groupe : $t_e = \frac{\partial \varphi}{\partial \omega} = \text{cste}$

Génération d'impulsions attosecondes

Profil temporel d'un groupe d'harmoniques?



Pour générer des impulsions attosecondes, il faut:

- une grande largeur spectrale ($\Delta\omega > 3$ eV)
- une bonne synchronisation des fréquences

=> avant 2001, impulsions les plus brèves ~ 4 fs ($\Delta\omega < 1$ eV)

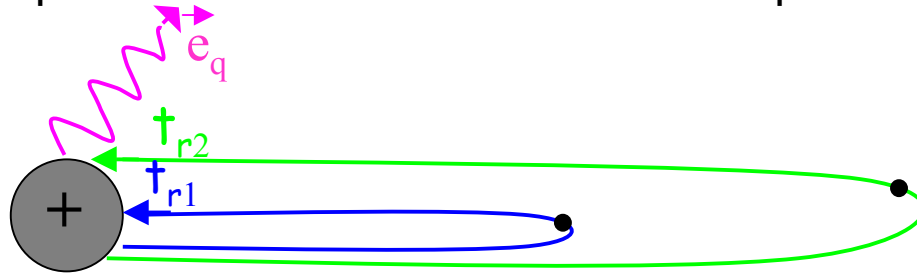
Y a-t-il une synchronisation attoseconde des harmoniques élevées?

Prévisions théoriques

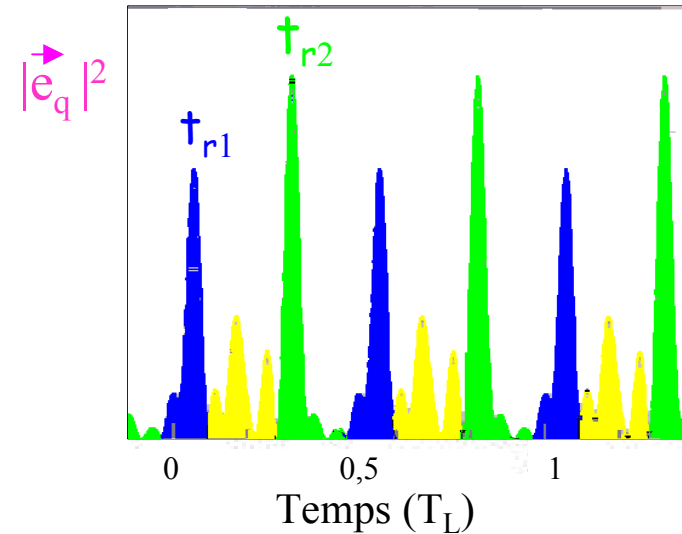
Antoine et al. PRL 1996

Réponse d'un atome unique:

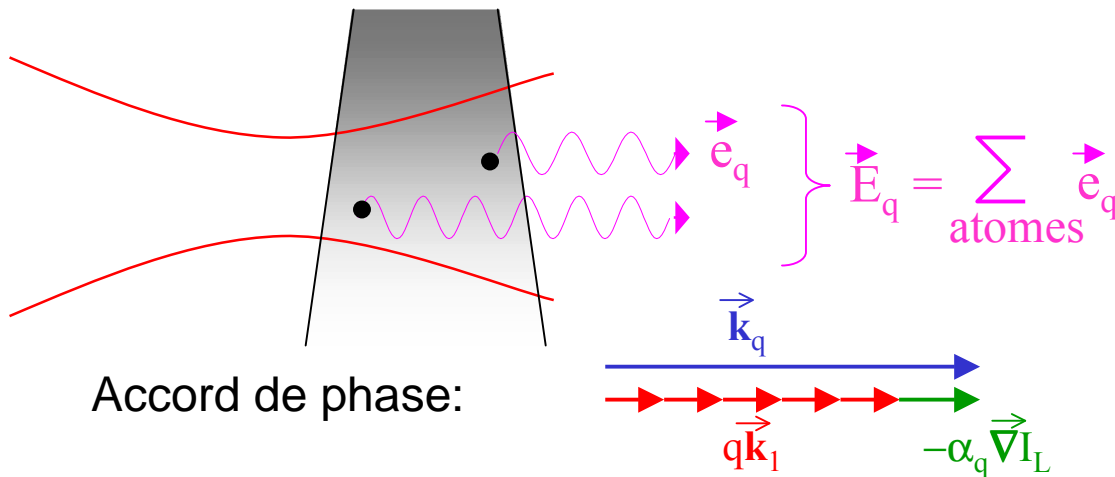
Impulsions ultrabrèves émises à chaque recollision (chaque 1/2 période):



Mais plusieurs trajectoires contribuent à l'émission
=> ~ 2 impulsions par demi-cycle

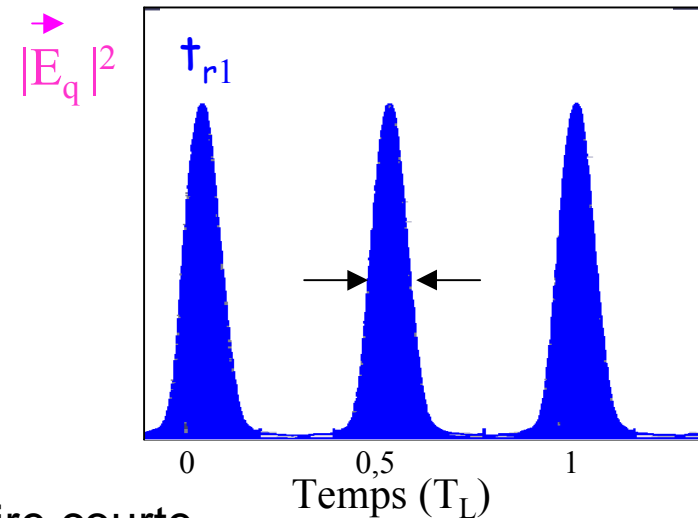


Emission macroscopique :



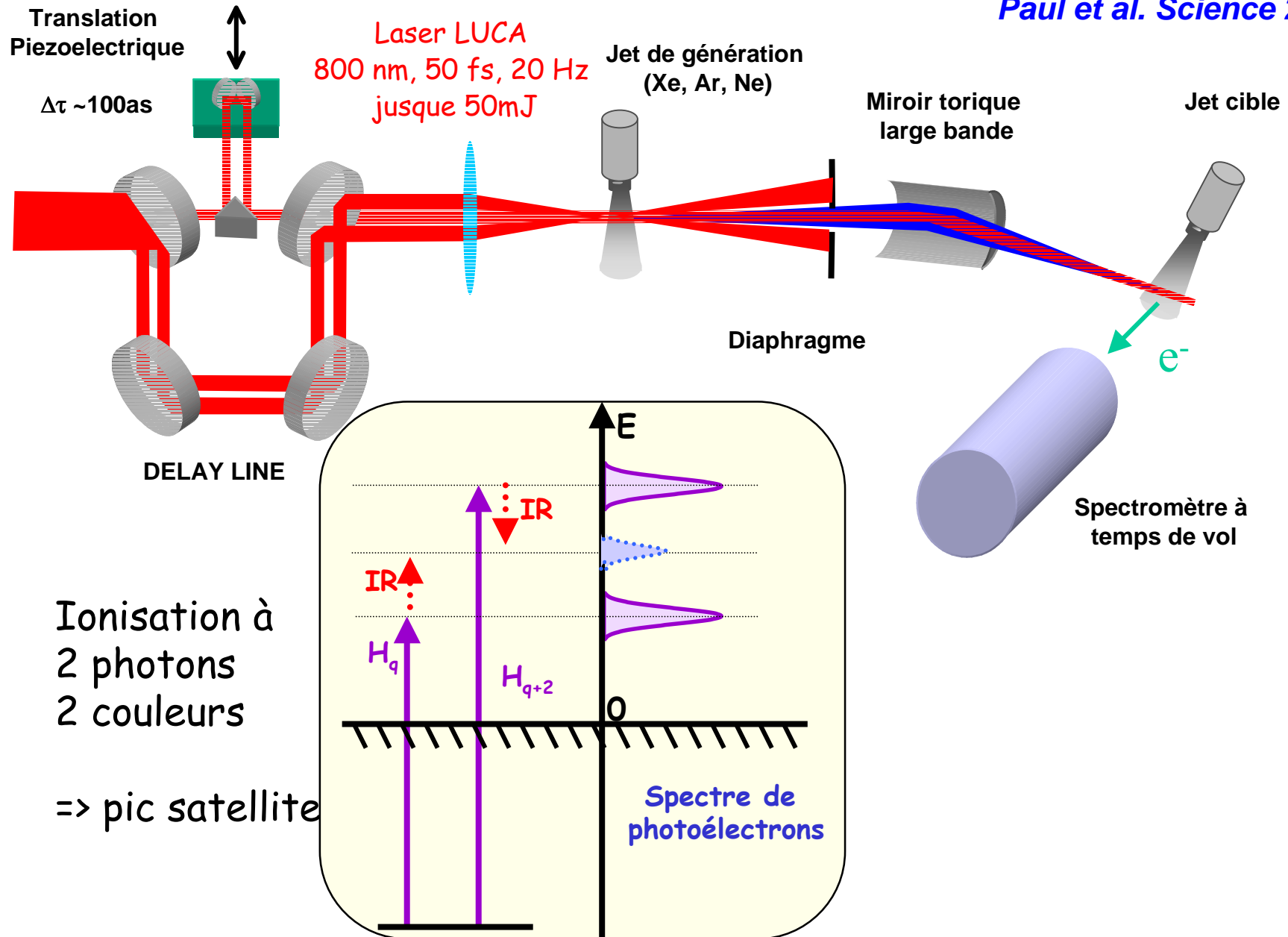
Accord de phase:

Focalisation avant le jet => sélection de la trajectoire courte



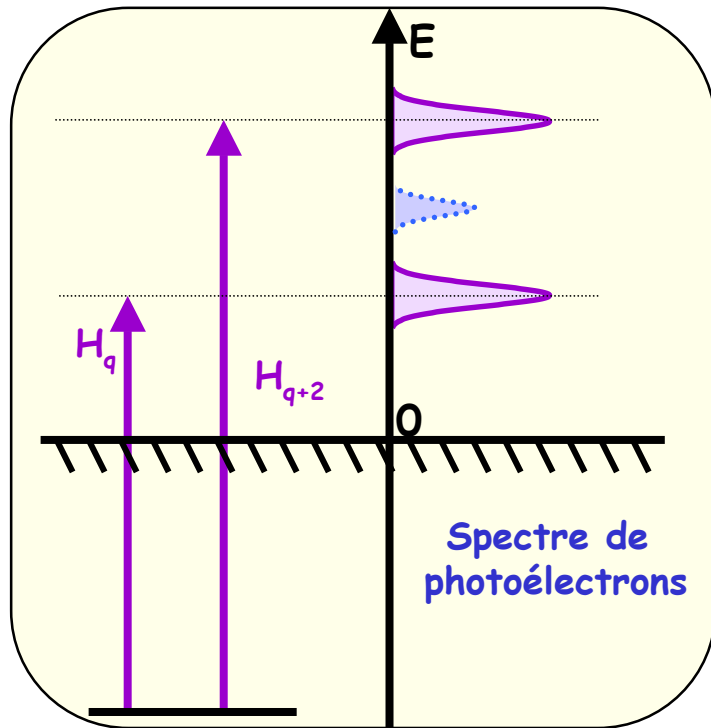
Méthode de mesure de la synchronisation

Paul et al. Science 2001



Obtention des temps d'émission

Véniard et al., PRA 1996



Amplitude du pic satellite $q+1$:

$$S_{q+1} = C_{q0} + S_{q0} \cos(2\omega_0\tau + \Delta\varphi^{\text{at}} + \varphi_q - \varphi_{q+2})$$

Oscillations à $2\omega_0$

$\Delta\varphi^{\text{at}}$ est une faible correction, calculée

La phase de l'oscillation donne t_e

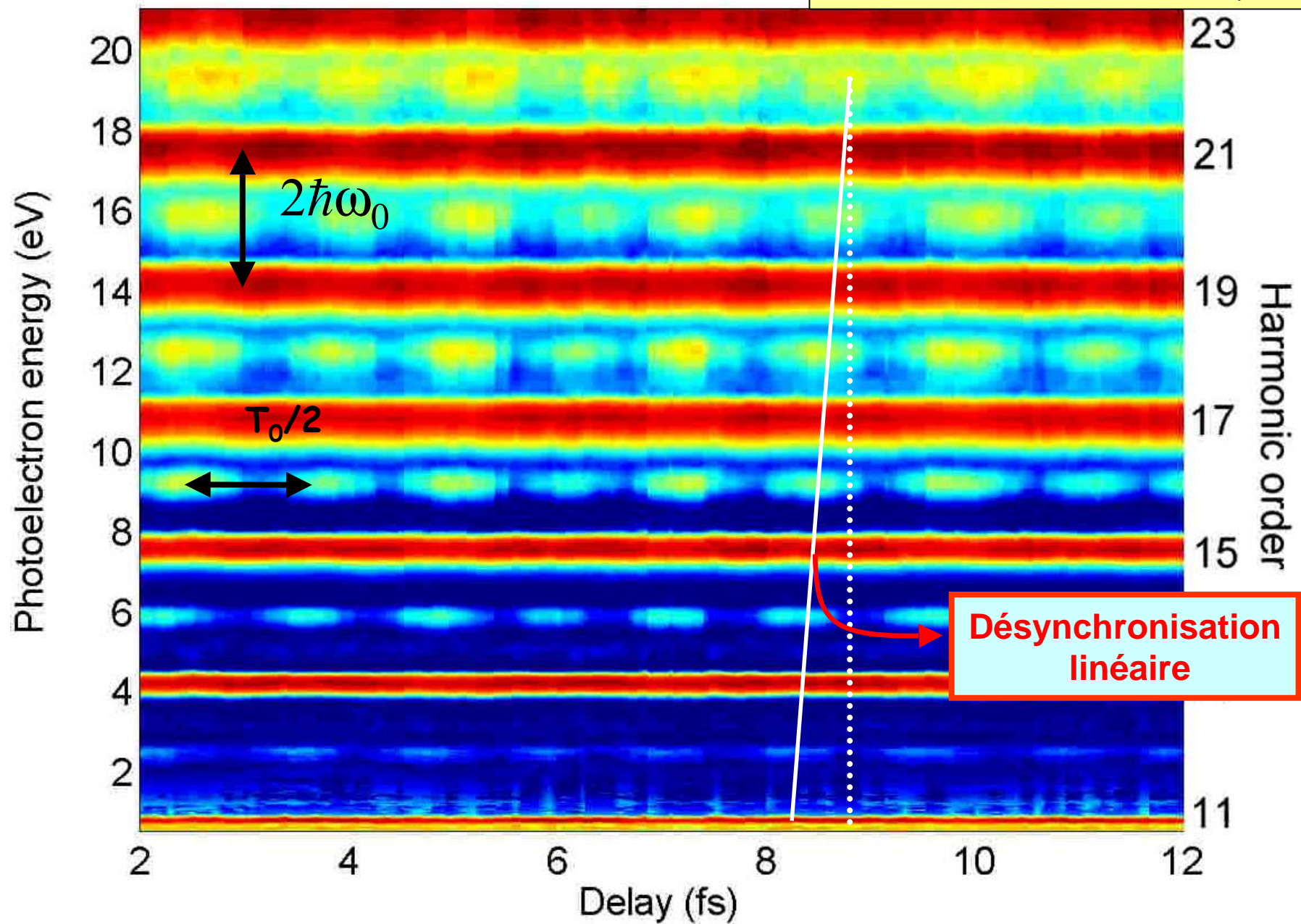
$$\varphi_{q+2} - \varphi_q \approx 2\omega_0 \frac{\partial \varphi}{\partial \omega}(\omega_{q+1}) = 2\omega_0 t_e(\omega_{q+1})$$

Paul et al. Science 2001: première mesure pour 5 harmoniques consécutives
 => temps d'émission ~ constant => impulsions TF de 250 as

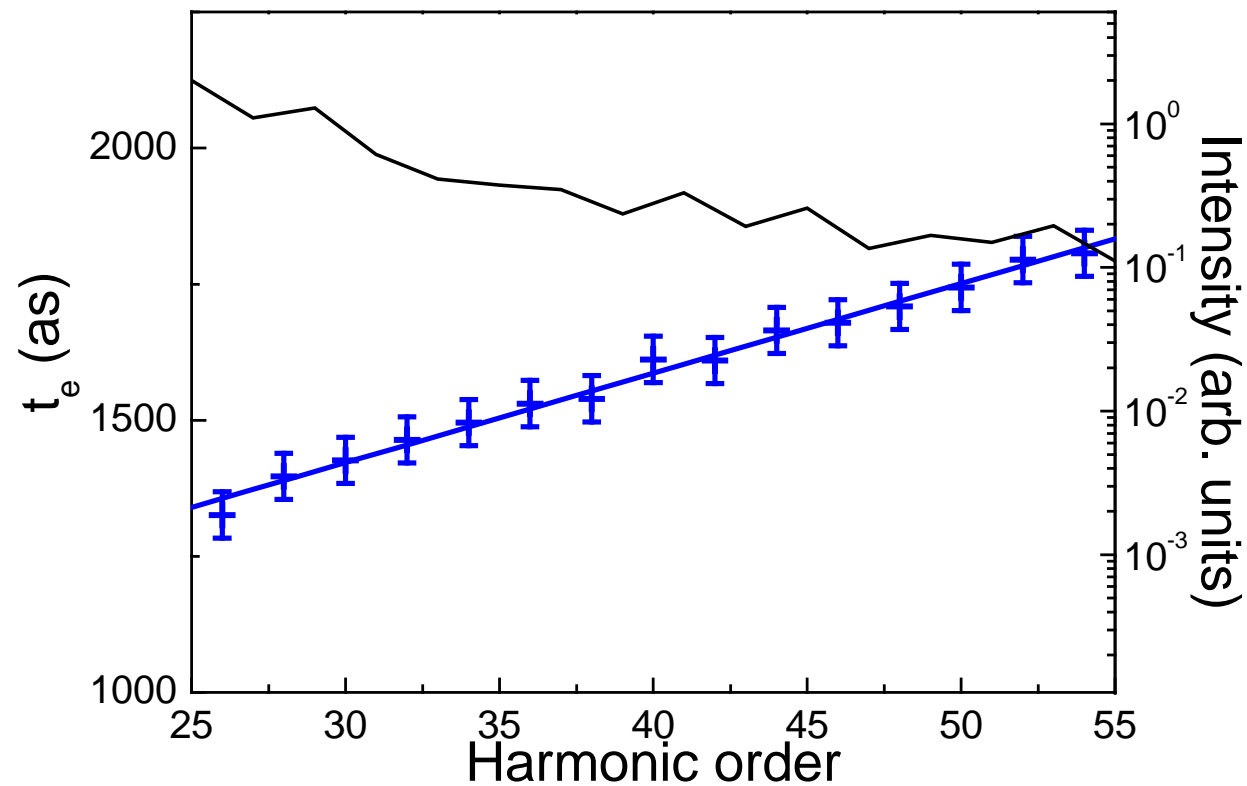
Une durée < 10 as serait elle possible en groupant 300 harmoniques?

Spectrogramme typique (spectre photo-é vs. délai)

Thèse de Yann Mairesse (2005)



Temps d'émission mesurés dans le Néon



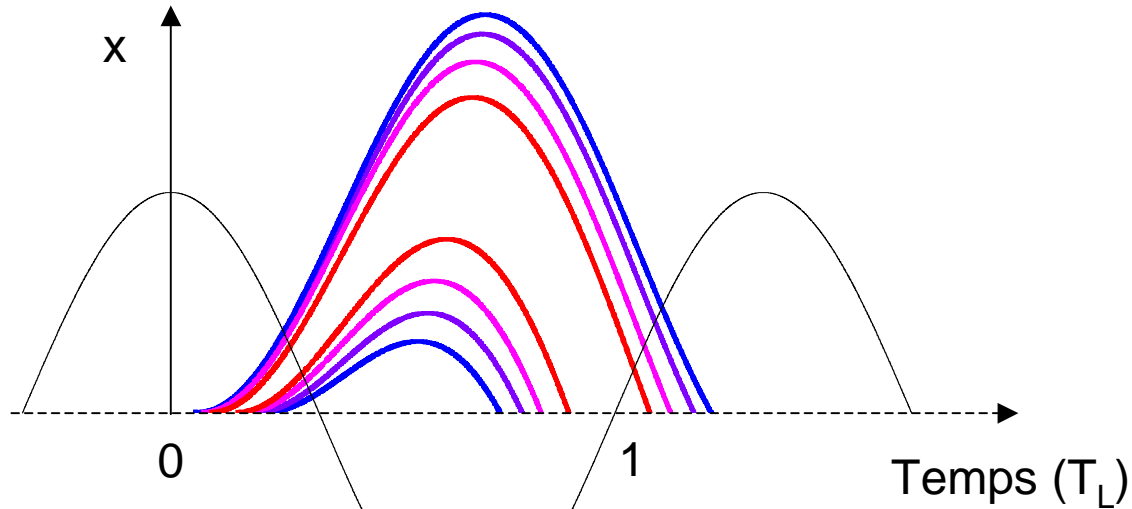
Temps d'émission linéaire
=> Chirp linéaire (dérive de fréquence)
↔ Phase spectrale quadratique

Les harmoniques ne sont pas synchronisées à une échelle attoseconde!

Origine de la désynchronisation

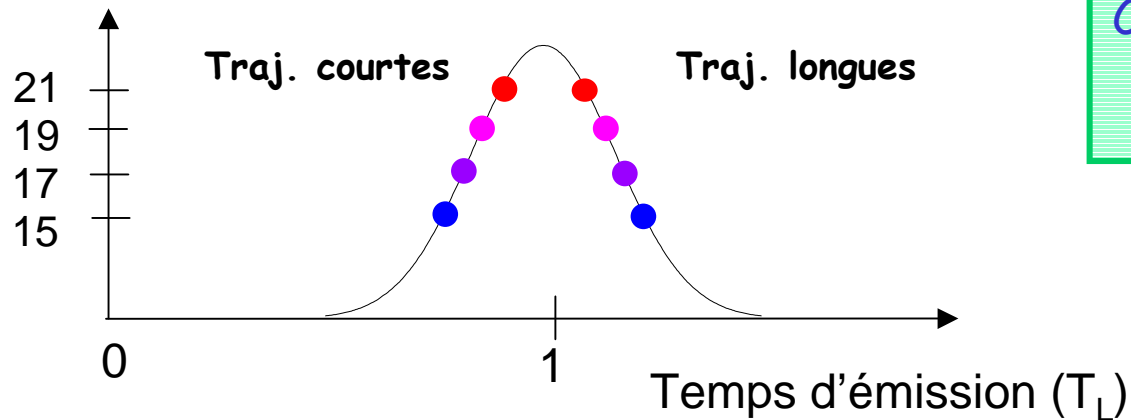
Calcul des trajectoires classiques dans l'Argon à 10^{14} W/cm²

Position
de l'électron



Différentes harmoniques
⇒ traj. différentes
⇒ te différents

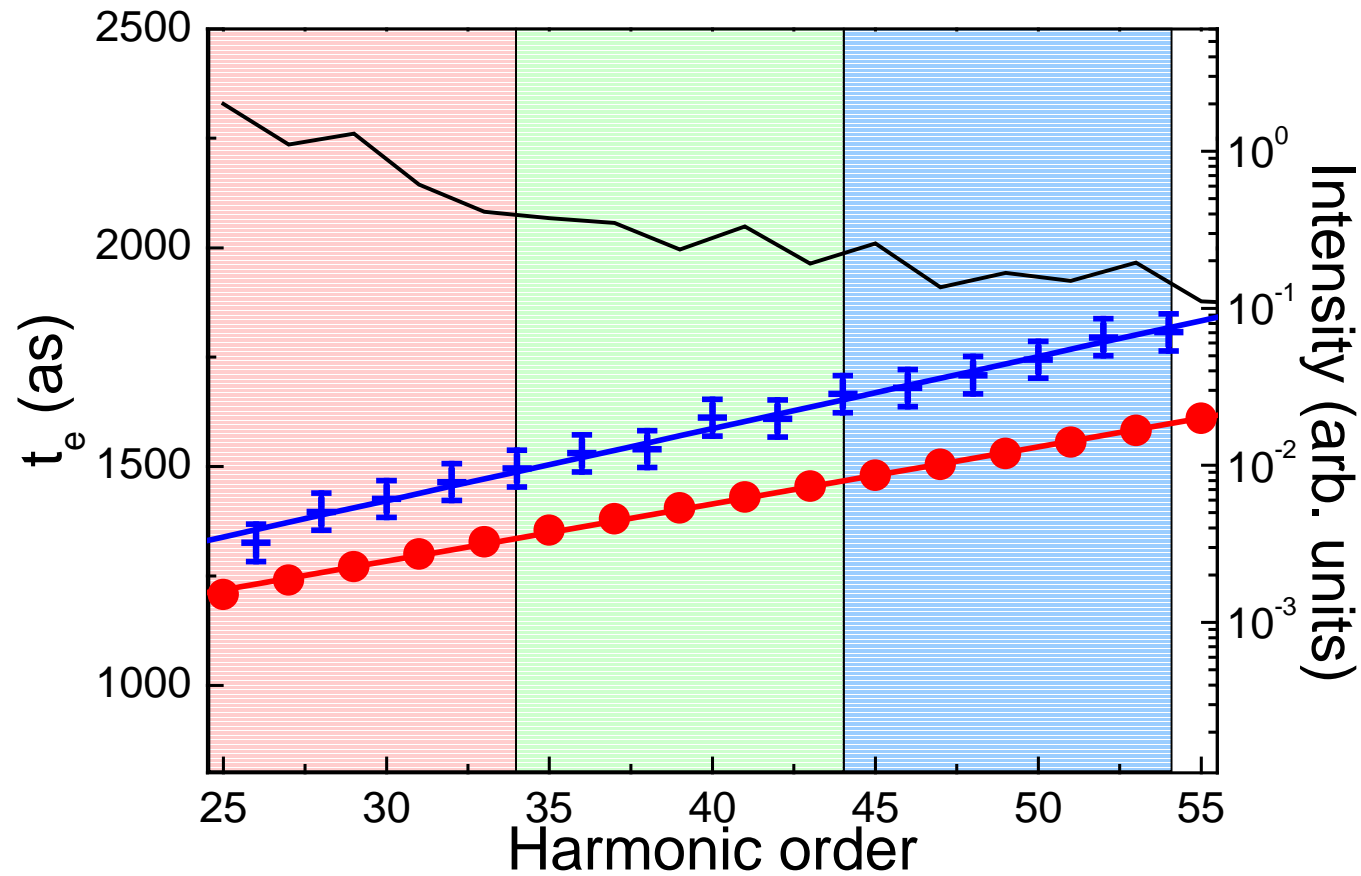
Ordre
harmonique



Chirp linéaire

> 0 pour traj. courte
< 0 pour traj. longue

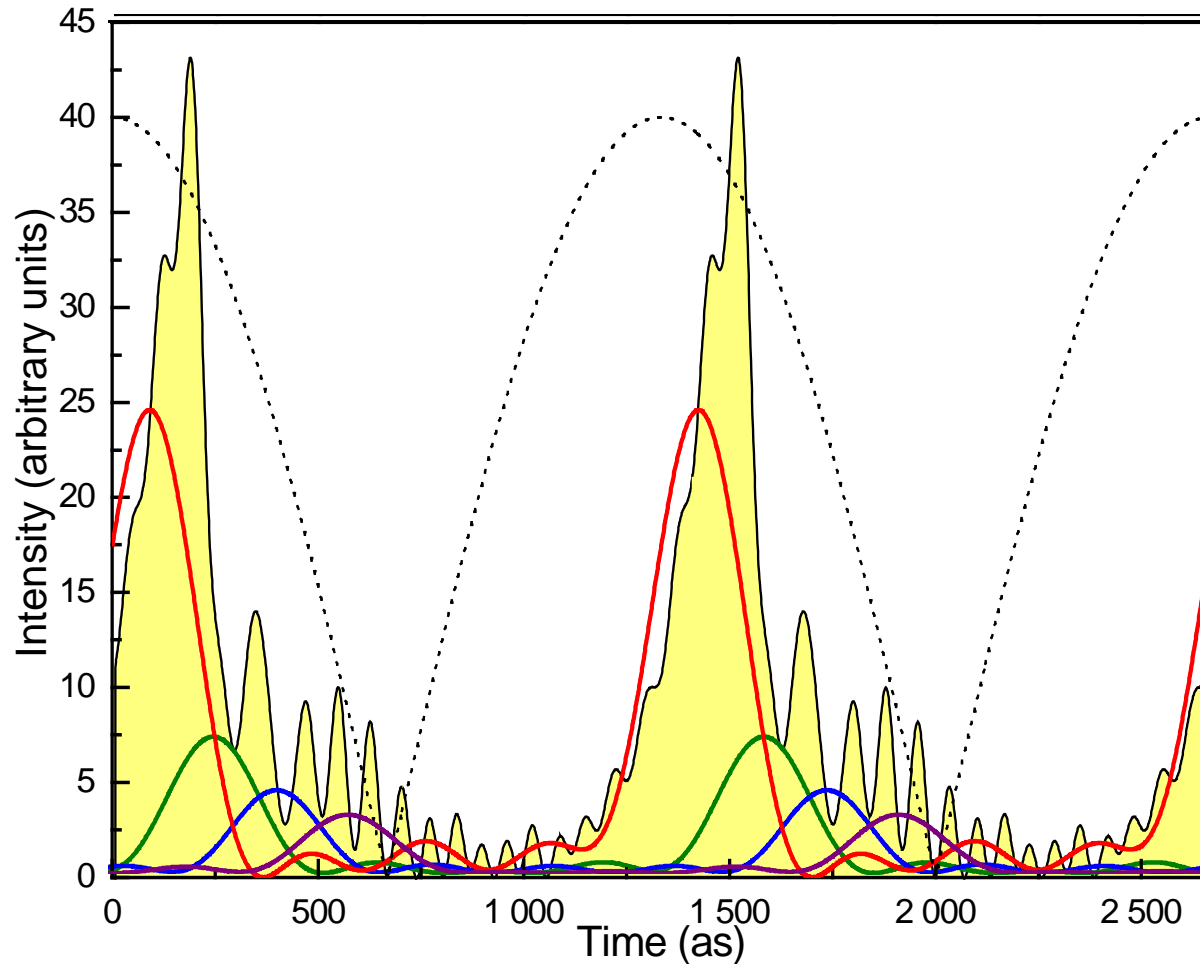
Simulation des trajectoires complexes



=> Bon accord théorie-expérience

=> Reconstruction des profils d'émission par groupes de 5 harmoniques

Visualisation des trajectoires électroniques



H25-33 (5 ordres)

H35-43

H45-53

H55-63

Mairesse et al. Science 2003

Temps entre deux groupes consécutifs d'harmoniques : $5\Delta t_e \approx 150$ as

Vérification directe du modèle semi-classique

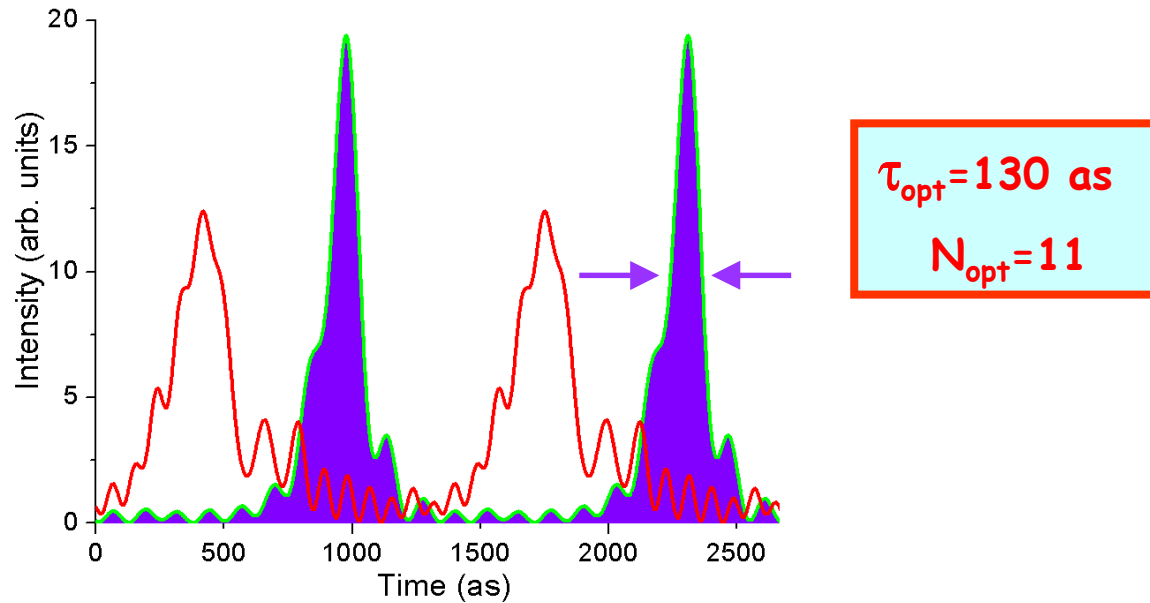
H25-69 (23)



$\tau=149$ as ($\tau_{TF}=50$ as)

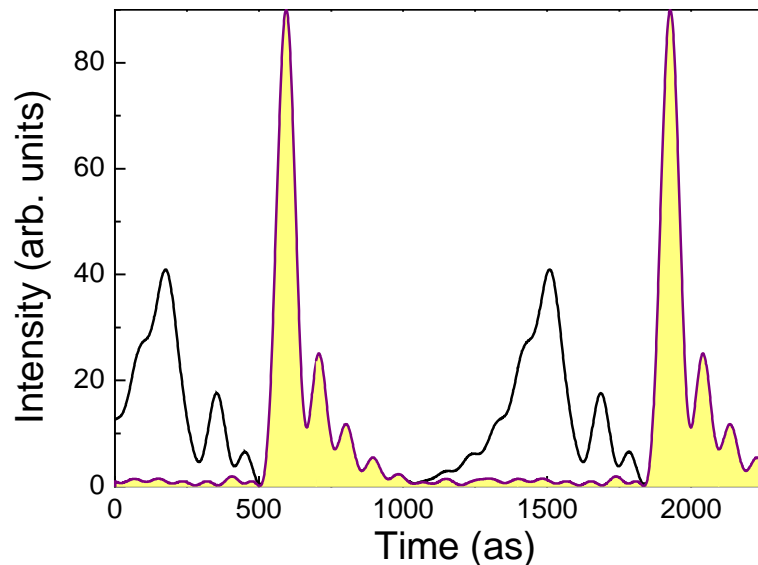
Amélioration de la synchronisation

Optimisation de la génération (éclairage laser, gaz générateur):



Mairesse et al. PRL 2004

Compression optique: post compensation du chirp:



Simulations:

Utilisation de la dispersion électronique d'un plasma

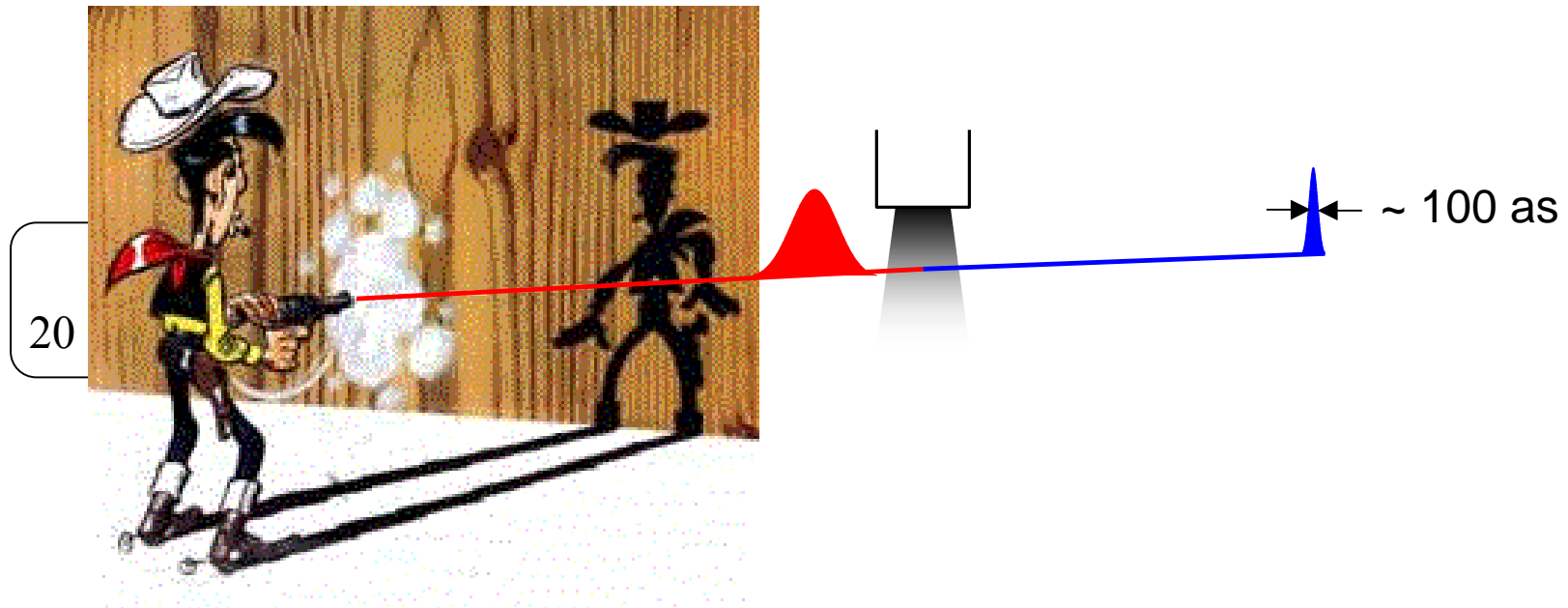
H_{25} à H_{55} --> impulsion comprimée à 75 as

Expériences (Lund):

Utilisation de la dispersion de filtres aluminium

Lopez-Martens et al. PRL 2005

Conclusion: le laser LUCA tire plus vite que son ombre!



Conclusion

La structure attoseconde de l'émission harmonique reflète la dynamique électronique

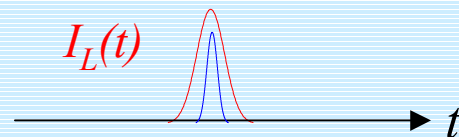
=> Pas de synchronisation parfaite des harmoniques émises par un atome

Mais possibilité de synchroniser l'émission macroscopique

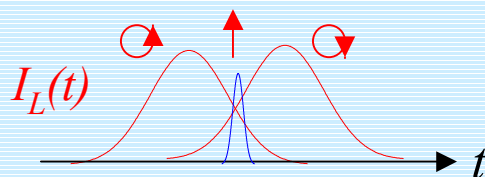
=> trains d'impulsions de ~100 as

Possibilité de générer des impulsions attosecondes isolées:

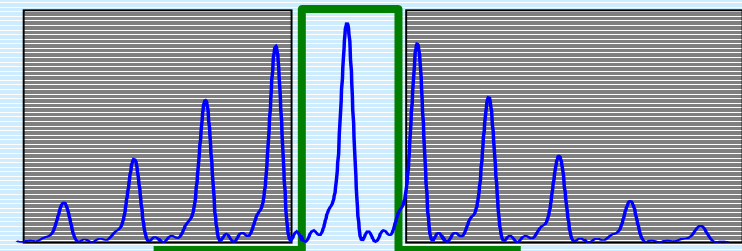
- porte d'éclairement (laser 5fs) Vienne



- porte de polarisation Bordeaux, Lund



Porte temporelle



Perspectives

Contrôle du mécanisme de génération

- mise en forme du rayonnement harmonique
- génération dans les molécules

Optimisation du rayonnement

- génération à haute énergie laser
 $E_L > 100 \text{ mJ}$ pour atteindre $E_X > 10 \mu\text{J}$

Harmoniques: source d'injection

- ▶ lasers à électrons libres 4^{ème} génération
- ▶ plasmas de lasers X

Applications

- femtochimie
- physique du solide et des plasmas

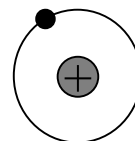
Génération d'impulsions attoseconde

- caractérisation complète du train
- extraction d'une impulsion du train



Nouveau domaine: l'attophysique

Sonde de dynamiques électroniques ultrarapides au cœur des atomes et des molécules



1^{ère} orbite de Bohr: $T=150 \text{ as}$

Perspectives d'applications des impulsions attosecondes

Dynamiques électroniques (Atomes/Molécules):

Mesure en temps réel de relaxations de type Auger, Coster-Kronig...

→ Durée de vie de lacunes M dans le Krypton

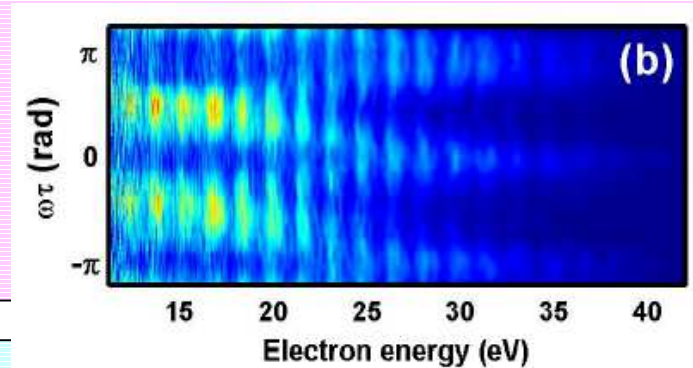
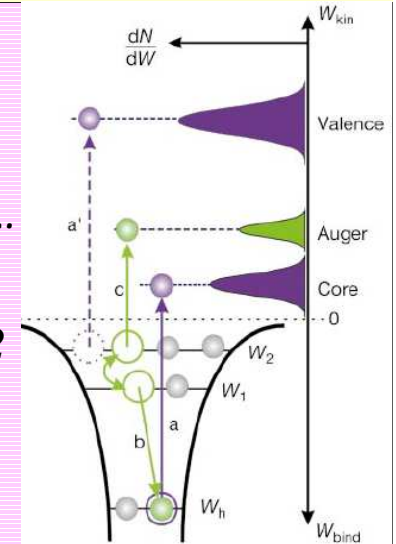
Drescher et al, Nature 2002

Etude de processus nonlinéaires en champ fort (ATI, HHG, NSI)

Création de paquets d'onde attosecondes dans le continuum

Collab. Lund, Bâton Rouge

Johnsson et al, soumis à PRL



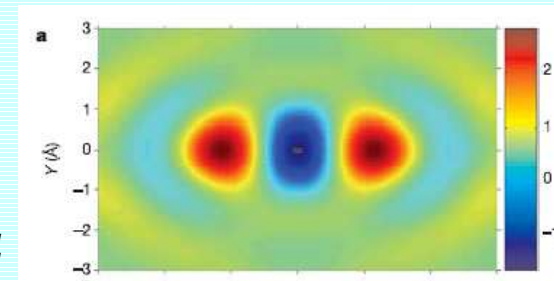
Dynamiques moléculaires:

Photofragmentation fs/as: $AB^* \rightarrow A^+ + B$

→ Étude pompe-sonde des fragments

→ Imagerie tomographique des orbitales HOMO

Itatani et al, Nature 2004



Groupe Attophysique:

Y. Mairesse

M. Kovacev

J.-F. Hergott

L. Le Déroff

E. Priori

Ph. Antoine

A. de Bohan

H. Merdji

P. Monchicourt

P. Breger

P. Agostini

P. Salières

B. Carré

Collaborations:

P. Monot

P. d'Oliveira

T. Auguste

D. Joyeux

D. Phalippou

D. Descamps

A. L'Huillier

C.-G. Wahlström

M. Bellini

T. Hänsch

F. Grasbon

G. Paulus

H. Walther

A. Sanpera

M. Lewenstein

E. Constant

E. Mével

UHI, Saclay

IOTA, Orsay

LLC, Lund

LENS, Florence

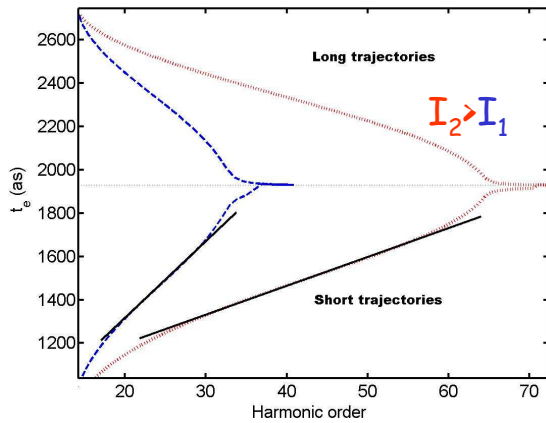
MPQ, Garching

ITP, Hannover

CELIA, Bordeaux



Improvement of the synchronization in emission

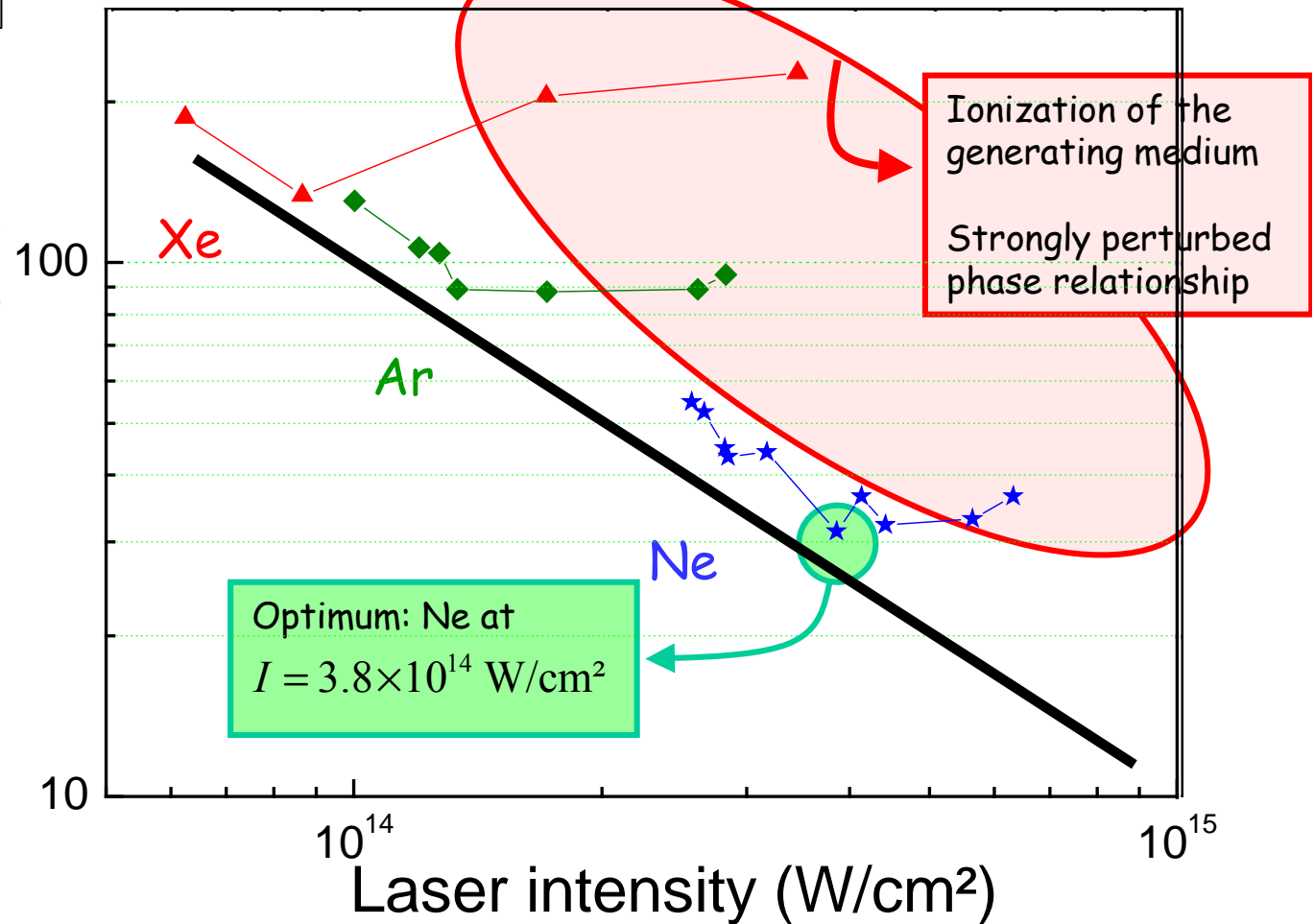


$$\Delta t_e \propto \frac{\omega_0}{U_p} \quad \text{with} \quad U_p = \frac{I_{IR}}{4\omega_0^2}$$

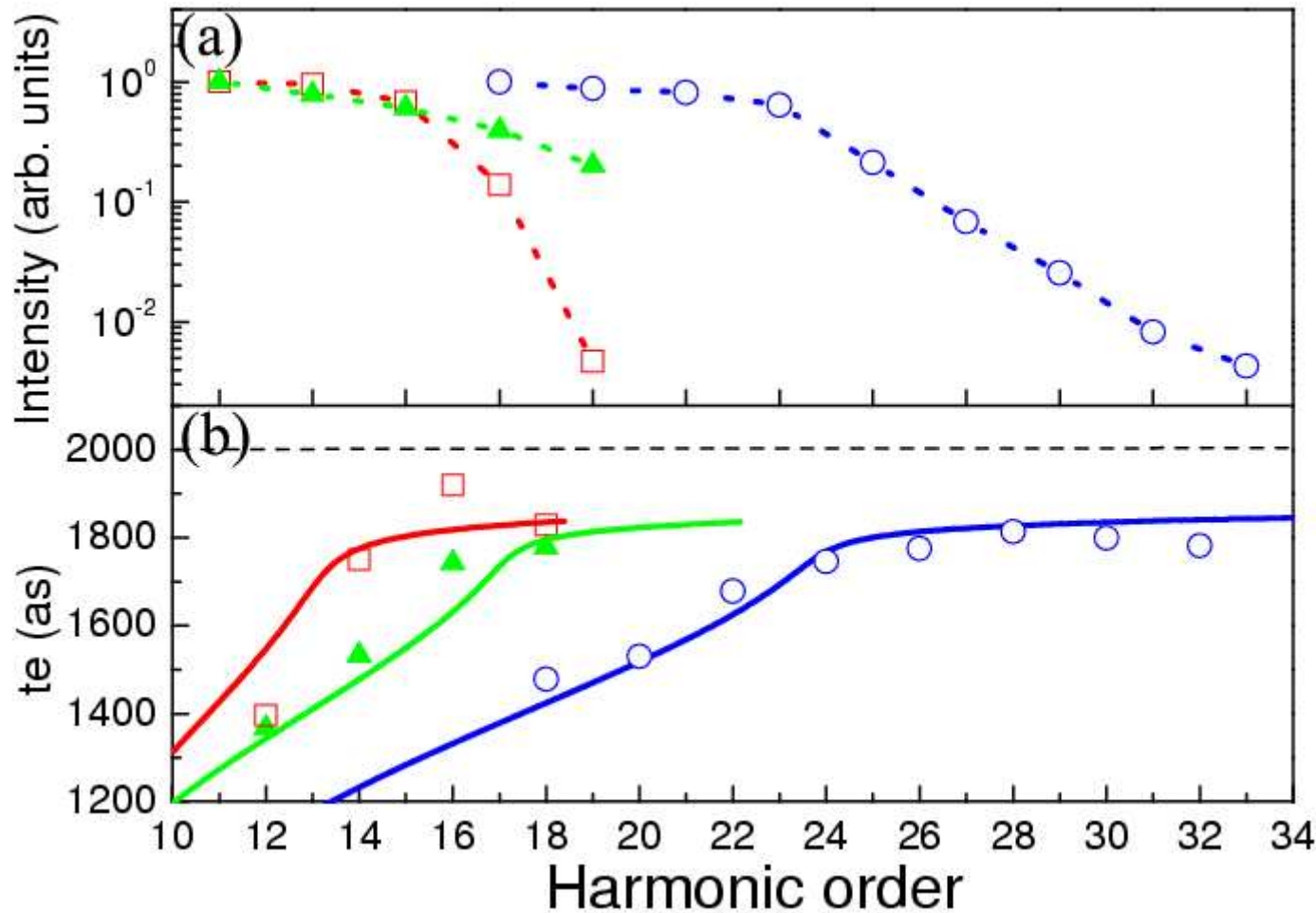
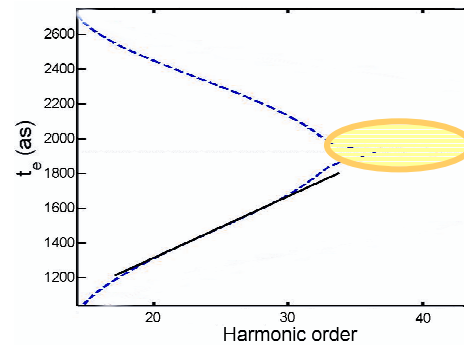
- Good agreement theory-experiment
- Systematic experimental upshift
Single atom response = limit

M. Gaarde, K. J. Schafer,
Phys. Rev. Lett. **89**,
213901 (2002)

Time shift Δt (as)



Synchronization in the cutoff region



$|E_L|=0$

Cutoff Harmonics
are synchronized
and emitted
~200 as before
 $|E_L|=0$