

## Impulsions attosecondes

E. Mével, O. Tcherbakoff, D. Descamps<sup>1</sup>, J. Plumridge<sup>2</sup> et E. Constant

CELIA, Université Bordeaux I, 351 cours de la Libération, 33405 Talence cedex, France

<sup>1</sup> Commissariat à l'Énergie Atomique, DSM/DRECAM/SPAM, CE-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup> Laboratoire d'Optique Appliquée, ENSTA, École Polytechnique, 91761 Palaiseau cedex, France

**Résumé :** Des expériences récentes ont démontré que les harmoniques d'ordres élevés sont émises sous la forme d'un train d'impulsion attosecondes [1]. Cette découverte ouvre une nouvelle ère en métrologie puisque les échelles de temps sub-femtosecondes auxquelles évoluent les électrons dans les atomes sont désormais accessibles. Cependant, les techniques de type pompe-sonde requièrent la sélection préalable d'une seule impulsion attoseconde. Dans cet article, nous présentons et testons une méthode expérimentale permettant de confiner l'émission harmonique en une seule impulsion attoseconde. Nous présentons ensuite quelques techniques de mesure d'impulsions XUV ultra-courtes puis nous suggérons des applications pour la mesure de processus ultra-rapides.

### 1. INTRODUCTION

Une nouvelle étape dans la course aux impulsions lumineuses courtes vient d'être franchie avec la mesure des premières impulsions attosecondes ( $1\text{as} = 10^{-18}\text{ s}$ ) [1, 2]. De même qu'en leur temps l'avènement des lasers subpicosecondes avaient permis l'observation de processus ultrarapides, comme par exemple, le mouvement des atomes dans les molécules [3], l'apparition des impulsions subfemtosecondes devrait permettre entre autre de résoudre le mouvement des électrons dans les atomes. Une nouvelle ère s'ouvre ainsi dans la métrologie des processus ultrarapides.

L'émission d'impulsions lumineuses attosecondes nécessite le blocage en phase de différentes fréquences, d'amplitude constante, réparties sur un large spectre. Il existe deux types de sources connus dont les spectres présentent les caractéristiques requises.

Le premier type de source repose sur la diffusion Raman stimulée. En excitant de façon cohérente les vibrations moléculaires avec une première impulsion laser (pompe), on peut induire une modulation temporelle de la phase d'une deuxième impulsion (sonde) se propageant dans le milieu Raman et ainsi élargir notablement son spectre. En contrôlant le délai entre les deux impulsions il est en principe possible de mettre en phase les composantes spectrales de l'impulsion sonde et de produire des impulsions subfemtosecondes. Les premiers tests expérimentaux de cette technique ont démontré l'émission à 400 nm d'un train d'impulsions de 6 fs [4] et la génération d'une seule impulsion de 4 fs [5].

Dans cet article, nous allons nous intéresser au deuxième type de source attoseconde basée sur la génération d'harmoniques d'ordres élevés qui fut découverte en 1987 [6, 7]. La génération d'harmoniques survient lors de l'interaction fortement non linéaire entre une impulsion laser courte et intense et un milieu gazeux. Les harmoniques sont émises dans l'axe du laser incident de fréquence  $\omega_0$  en un faisceau cohérent de faible divergence. Leur spectre consiste essentiellement en un peigne de fréquences harmoniques impaires régulièrement espacées de  $2\omega_0$  d'amplitude quasi constante pouvant s'étendre dans l'ultraviolet extrême (EUV) jusqu'à 3 nm. Dès les premières observations, il est apparu que ces spectres pouvaient se traduire dans le domaine temporel par des trains d'impulsions attosecondes, à condition que les différentes harmoniques soient bloquées en phase [8, 9]. La compréhension théorique du processus de génération a permis d'élaborer des modèles qui prédisent effectivement une émission harmonique sous forme d'un train d'impulsions attosecondes (de période  $T_0/2$  où  $T_0$  est la période optique du laser) ce qui suggère l'existence d'une relation de phase bien déterminée entre les harmoniques successives [10]. Une

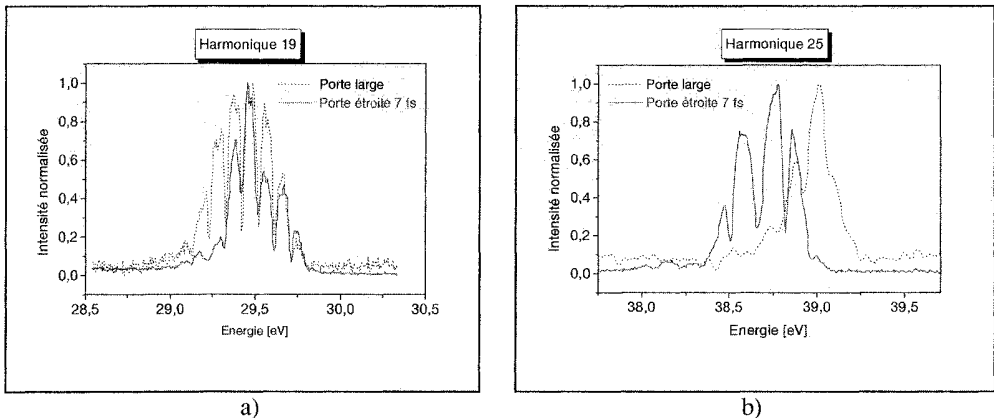
confirmation expérimentale de l'existence de trains d'impulsions a récemment été mise en évidence [1]. Mais la plupart des schémas expérimentaux basés sur des techniques de type pompe/sonde nécessitent une seule impulsion attoseconde.

Dans cet article nous allons d'abord décrire une méthode permettant de confiner temporellement la génération d'harmoniques et ainsi de sélectionner une seule impulsion attoseconde. Nous présenterons les résultats d'une étude expérimentale sur l'influence du confinement sur le spectre harmonique. Nous passerons ensuite en revue quelques techniques de mesures des impulsions XUV attosecondes. Enfin, nous suggérerons quelques expériences d'applications à la métrologie attoseconde.

## 2. SELECTION D'UNE IMPULSION ATTOSECONDE

Des efforts importants sont actuellement consacrés à sélectionner ou à ne produire qu'une seule impulsion attoseconde. Une méthode triviale consiste à utiliser une impulsion laser incidente de 5 fs et à sélectionner dans le spectre les harmoniques proches de la coupure car elles ne sont émises qu'au voisinage de l'intensité crête de l'impulsion [2, 11]. Une autre méthode compatible avec des impulsions standards « longues » de 35 fs tire parti de l'extrême sensibilité de la génération d'harmoniques à la polarisation et à l'intensité du laser. En modulant temporellement la polarisation au cours de l'impulsion laser on peut confiner l'émission harmonique [12, 13] sur une demi période optique et donc produire une impulsion attoseconde unique.

Deux méthodes simples et robustes ont été proposées qui permettent de faire varier continûment la largeur d'une porte temporelle de polarisation [14, 15] à l'intérieur de laquelle l'émission harmonique est confinée. Celle que nous avons utilisée fait uniquement appel à deux lames quart d'onde [15]. Après traversée des 2 lames, le profil d'intensité de l'impulsion laser correspond à une impulsion d'une durée totale à mi-hauteur de 67 fs et dont l'intensité crête reste constante pendant  $\sim 30$  fs. La polarisation varie continûment au cours de l'impulsion passant de circulaire (ellipticité  $\varepsilon = 1$ ) au tout début de l'impulsion à linéaire ( $\varepsilon = 0$ ) au sommet temporel puis redevenant circulaire à nouveau à la fin de l'impulsion. Or pour les harmoniques 17 à 29 qui ont été étudiées, l'efficacité de génération, maximale en polarisation linéaire, décroît en moyenne d'un facteur 2 pour  $\varepsilon = 13\%$ . La durée de la porte de polarisation pendant laquelle  $\varepsilon < 13\%$  est égale à  $\tau_{\text{laser}} / 5 \approx 7$  fs ce qui correspond à 4-5 impulsions attosecondes dans le train. En tournant les axes neutres de la deuxième lame, on peut faire varier la largeur de la porte de polarisation de l'infini à 7 fs tout en préservant le profil d'intensité de l'impulsion.



**Figure 1.** Variation de la largeur spectrale d'une harmonique du plateau (a) et de la coupure (b) avec (•) et sans (---) confinement. Spectres générés dans 30 mbar de xénon avec des impulsions de 2.5 mJ à 35 fs. Les modulations visibles dans les spectres sont dues à la grille portant le filtre d'aluminium protégeant le détecteur.

Nous avons étudié l'évolution de la largeur spectrale des harmoniques en fonction de la largeur temporelle de la porte de polarisation. Afin d'isoler au mieux la contribution du confinement aux modifications spectrales, nous avons pris soin d'éliminer toute dérive de fréquence, qu'elle soit présente dans l'impulsion infrarouge incidente ou induite par l'ionisation du gaz. Nous observons ainsi des comportements contrastés dans le plateau et la coupure. En effet, la largeur spectrale décroît pour les harmoniques du plateau et augmente pour celles de la coupure quand on réduit la durée de la porte de

polarisation. Cette différence de comportement peut s'expliquer par la contribution de la phase intrinsèque du dipôle atomique. Cette phase varie linéairement avec l'intensité et se traduit par un élargissement spectral si l'émission se produit à des intensités variables pendant la durée de l'impulsion. C'est le cas des harmoniques du plateau mais pas de celles de la coupure qui ne sont générées qu'au sommet de l'impulsion. En confinant l'émission dans une porte de polarisation de 7 fs pendant laquelle l'intensité demeure constante on supprime la dérive de fréquence pour les harmoniques du plateau, ce qui résulte principalement en un rétrécissement spectral. Au contraire, l'élargissement spectral des harmoniques de la coupure peut-être observé car la dérive de fréquence n'intervient plus pour masquer l'effet du confinement. Cette interprétation est consistante avec les résultats obtenus dans une expérience complémentaire effectuée en collaboration avec le CEA Saclay [16]. L'élargissement que nous observons est compatible avec un confinement de l'émission sur une durée de 5-7 fs [17]. L'émission harmonique se produisant périodiquement toutes les demi-périodes optiques ( $T_0/2 = 1.33$  fs à 800 nm), l'utilisation de cette technique de modulation d'ellipticité avec des impulsions sub-15 fs devrait en principe permettre la sélection d'une seule impulsion attoseconde. Les difficultés dans la sélection d'une impulsion unique pourraient provenir de la double structure des trains attosecondes associée aux trajectoires classiques qui contribuent aux harmoniques du plateau et de la phase absolue du champ laser qui n'est a priori pas fixée. Cependant les conditions d'accord de phase étant différentes pour les 2 trajectoires il est possible de favoriser une contribution en jouant sur la géométrie de focalisation du laser par rapport au milieu gazeux et ainsi de nettoyer le train d'impulsions attosecondes. Signalons enfin que le réglage variable de la durée de confinement permet d'étudier l'évolution d'un processus en fonction du nombre d'impulsions attosecondes dans le train.

### 3. MESURE D'IMPULSIONS ATTOSECONDES

Plusieurs méthodes expérimentales ont été proposées et récemment mises en œuvre pour mesurer la durée des impulsions attosecondes. Une première technique est la corrélation croisée. Elle consiste à mesurer un signal d'ionisation à 2 photons (harmonique + IR) en fonction du déphasage entre les 2 champs. Elle a permis de mesurer la relation de phase moyenne entre les harmoniques successives (11 - 19) et ainsi de reconstituer un train périodique d'impulsions de 250 as [1]. Cette technique nécessite de résoudre spectralement les harmoniques et n'est donc pas applicable à la mesure d'une impulsion attoseconde unique.

Pour y parvenir, il existe une première technique qui s'apparente au principe des caméras à balayage de fente. L'impulsion harmonique déclenche l'ionisation d'un gaz (qui joue le rôle de photocathode ici) en présence d'un champ laser infrarouge défecteur (analogue de la rampe de champ de déflexion). Le photoélectron acquiert alors une impulsion supplémentaire due à la présence du champ infrarouge qui varie en fonction de la phase à laquelle il est émis. En détectant les photoélectrons dans un large angle solide dans un spectromètre de temps de vol à électrons, on observe une modulation périodique de la largeur en énergie du pic de photoélectrons de période  $T_0/2$  à condition que la durée de l'impulsion harmonique ionisante soit inférieure à  $T_0/2$ . Dans ce cas, la profondeur de modulation permet de déterminer la durée d'impulsion attoseconde. Une mesure d'une impulsion harmonique d'une durée de 650 as a été ainsi réalisée [2]. Toutefois, l'existence d'une impulsion attoseconde unique est essentiellement déduite de l'observation du spectre harmonique quasi continu. En tout état de cause, cette expérience démontre qu'il est possible de réaliser une expérience pompe sonde de résolution subfemtoseconde avec une impulsion XUV attoseconde et une impulsion infrarouge femtoseconde.

Une autre méthode est l'autocorrélation XUV. Elle requiert un interféromètre de résolution attoseconde [18], et l'observation d'un processus non linéaire (par exemple : ionisation à deux photons harmoniques [19, 20]). Un interféromètre par division de front d'onde composé de 2 demi miroirs sphériques métalliques ou multicouches a été développé à CELIA [21]. En translatant l'un des miroirs à l'aide d'un cristal piézo électrique on peut décaler les deux impulsions avec une précision de 17 as pour un délai maximum de 67 fs. Le décalage des 2 foyers associés aux 2 demi impulsions est de 20  $\mu\text{m}$  maximum ce qui reste très faible devant le paramètre confocal. L'ionisation double du xénon, du krypton et de l'argon par deux photons harmoniques d'ordres supérieurs ou égal à 13 a été observée pour la première fois dans notre laboratoire. La contribution de l'ionisation double directe pourrait permettre de réaliser pour la première fois une autocorrélation pour des harmoniques aussi élevées.

#### 4. APPLICATIONS DES IMPULSIONS ATTOSECONDES

La démonstration de techniques viables pour la réalisation d'expériences pompe/sonde à l'échelle attoseconde ouvre de nouvelles perspectives : il devient envisageable de résoudre des processus ultracourts mettant en jeu des relaxations électroniques en couche interne comme l'effet Auger [22] ou l'ionisation double de l'hélium sans relaxation. Nous nous proposons aussi de visualiser en temps réel l'oscillation de paquets d'ondes vibrationnels dans l'hydrogène moléculaire [23]. Notre interféromètre à 2 demi miroirs et la technique de modulation de polarisation nous offrent la possibilité de réaliser une expérience pompe-sonde harmonique/harmonique avec une résolution subfemtoseconde. Une première impulsion attoseconde vient sélectivement exciter  $H_2$  vers l'état fondamental de  $H_2^+$  et crée un paquet d'onde vibrationnel de période d'oscillation 14 fs. Une seconde impulsion ionise  $H_2^+$  qui se dissocie sous l'effet de la répulsion Coulombienne. Les deux protons acquièrent alors une énergie cinétique qui dépend de la distance internucléaire à laquelle s'est produite l'ionisation, c'est à dire, de la position de la fonction d'onde vibrationnelle. En mesurant l'énergie cinétique des protons en fonction du délai entre les deux impulsions harmoniques il est en principe possible de résoudre l'oscillation du paquet d'onde.

#### Remerciements

Les auteurs remercient pour leur soutien l'Union Européenne par l'intermédiaire du réseau ATTO (contrat n°HPRN-2000-00133) ainsi que la Région Aquitaine.

#### Références

- [1] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Berger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini, *Science* **292**, (2001) 1689
- [2] M. Hentschel, R. Klenberger, Ch. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher and F. Krausz, *Nature* **414**, (2001) 509
- [3] A. H. Zewail, *Faraday Discuss. Chem. Soc.* **91**, (1991) 207
- [4] M. Wittmann, A. Nazarkin, and G. Korn, *Opt. Lett.* **26**, (2001) 298
- [5] N. Zhavoronkov and G. Korn, *Phys. Rev. Lett.* **88**, (2002). 203901
- [6] A. Mc Pherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. Mc Intyre, K. Boyer and C. K. Rhodes, *J. Opt. Soc. Am. B* **4**, (1987) 595
- [7] M. Ferray, A. L'Huillier, K. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray and C. Manus, *J. Phys. B* **21**, (1988) L31
- [8] G. Farkas and C. Toth, *Phys. Lett. A* **168**, (1992) 447
- [9] S. E. Harris, J. J. Macklin and T. W. Hansch, *Opt. Comm.* **100**, (1993) 487
- [10] Ph. Antoine, A. L'Huillier and M. Lewenstein, *Phys. Rev. Lett.* **77**, (1996) 1234
- [11] I. P. Christov, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn, *Phys. Rev. Lett.* **78**, (1997) 1251
- [12] P. B. Corkum, N. H. Burnett, and M. Y. Ivanov, *Opt. Lett.* **19**, (1994) 1870
- [13] M. Y. Ivanov, P. B. Corkum, T. Zuo, and A. Bandrauk, *Phys. Rev. Lett.* **74**, (1995) 2933
- [14] V. T. Platonenko and V. V. Strelkov, *J. Opt. Soc. Am. B* **16**, (1999) 435
- [15] E. Constant, Ph. D. Thesis.
- [16] Y. Mairesse, M. Kovacev, E. Priori, A. Merdji, P. Salières, B. Carré, P. Breger, P. Monchicourt, O. Tcherbakoff, E. Constant, E. Mével, and P. Agostini, *Ultrafast* (2002).
- [17] E. Constant, O. Tcherbakoff, J. Plumridge, D. Descamps, E. Mével and F. Salin, ATTO workshop Milan (2001). O. Tcherbakoff, J. Plumridge, D. Descamps, E. Mével, F. Salin and E. Constant, "Confinement temporel de la génération d'harmoniques d'ordres élevés", U VX 2002, Ile d'Oléron 11-14 Juin 2002, Edité par J. Stevefelt, EDP sciences 2002.
- [18] E. Constant, E. Mével, A. Zaïr, V. Bagnoud and F. Salin., *J. Phys IV France* **11**, (2001) 537
- [19] Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, and S. Watanabe, *Opt. Lett.* **23**, (1998) 64
- [20] D. Descamps, L. Roos, C. Delfin, A. L'Huillier, and C.-G. Wahlström, *Phys. Rev. A* **64**, (2001) 031404 (R)
- [21] E. Constant, E. Mével, A. Zaïr, V. Bagnoud, and F. Salin, XRL 2000, St Malo France, 19-23 juin 2000, *J. Phys. IV France* **11** (2001) Pr2-537, EDP Sciences
- [22] F. Krausz, *Optics & Photonics News* **13**, (2002) 62
- [23] A. D. Bandrauk and S. Chelkowski, *Phys. Rev. Lett.* **87**, (2001) 273004-1