

Génération d'harmoniques d'ordres élevés à ultra haute cadence

E. Constant, J. Bouillet, S. Petit, B. Fabre, Y. Mairesse, E. Mével et E. Cormier

Centre Laser Intenses et Applications, Université de Bordeaux, Bordeaux 1 – CEA – CNRS,
351 cours de la Libération, 33405 Talence Cedex, France

Résumé. Dans cet article, nous présentons nos résultats concernant la génération d'harmoniques d'ordres élevés obtenus avec de très hauts taux de répétition accordables entre 100 kHz et 1 MHz. Le système laser utilisé, développé au CELIA, est un système laser compact, pompé diode et utilisant des fibres microstructures à double cœur dopées Ytterbium. L'ensemble de génération et détection d'harmoniques d'ordre élevés est lui aussi compact et nous a permis de détecter des harmoniques dans plusieurs gaz (Argon, Krypton et Xénon) à des cadences jamais obtenues auparavant avec un système laser.

1. INTRODUCTION

La génération d'harmoniques d'ordres élevés (HHG pour « High order Harmonic Generation ») dans les gaz, découverte en 1988 [1] a été largement développée car elle offre de nombreuses caractéristiques uniques et particulièrement attrayantes. Ce processus, qui a lieu lorsque l'on focalise une impulsion laser intense sur un milieu gazeux, permet l'émission d'impulsions XUV ultracourtes (femtosecondes ou attosecondes), synchronisées avec l'impulsion fondamentale, cohérentes et dans une large gamme spectrale partiellement contrôlable.

Grâce à ces 20 années de développement et aux progrès simultanés des sources laser intenses (principalement les sources laser Titane saphir), le processus a été bien compris, optimisé et contrôlé et les sources harmoniques sont maintenant utilisées comme source xuv ultracourtes au même titre que les synchrotrons. Toutefois, le taux de répétition de ces sources (typiquement du Hz à la dizaine de kHz) reste très faible devant la cadence des synchrotrons (supérieure au MHz) et cette cadence limitée apparaît maintenant comme une limitation importante pour certaines applications. En particulier, la détection corrélée de plusieurs fragments en coïncidence reste très problématique avec les sources harmoniques alors qu'elle est très courante (et particulièrement performante) sur les synchrotrons.

Cette cadence limitée des sources harmoniques est directement liée au faible rendement de ce processus (l'efficacité typique, définie comme le rapport entre l'énergie de l'impulsion fondamentale et celle contenue dans l'impulsion XUV pour une impulsion donnée, est de l'ordre de 10^{-5} à 10^{-8} suivant le gaz utilisé) qui impose d'utiliser des impulsions fondamentales dont l'énergie est de l'ordre du millijoule ou de la centaine de microjoule. Les lasers Titane Saphir délivrant des puissances moyennes de l'ordre du Watt, les taux de répétition utiles sont donc de l'ordre du kHz [2] ou moins.

De nouvelles sources laser femtosecondes sont toutefois en développement [3,4] et permettent de s'affranchir de certaines limitations associées aux systèmes Ti :Sapph. Les sources femtosecondes liées à l'ions Yb en particulier ont de nombreux avantages puisqu'elles peuvent être pompés par des diodes laser, et qu'elles peuvent être utilisées dans des géométries fibrées. De plus, l'utilisation de fibres spéciales microstructurées permet de travailler avec des faisceaux laser de plus gros diamètre et d'extraire des énergies par impulsions suffisante (plusieurs centaines de microJoules) à des puissances moyennes importantes de l'ordre de la centaine de Watt ou plus.

Potentiellement, ces fortes puissances moyennes sont une clef pour générer des sources harmoniques à très haute cadence et le but premier de ce travail est de prouver la faisabilité de cette approche.

2. LE SYSTÈME LASER

Le système laser utilisé dans cette expérience a été développé au CELIA et est un système femto seconde CPA (Chirped Pulse Amplification ou « amplification d'impulsions à dérive de fréquence ») utilisant un oscillateur commercial (Amplitude Systèmes) couplé à un système d'élargissement spectral, un étireur de Offner, un préamplificateur fibré, un amplificateur de puissance (tous deux pompé par diode) et un compresseur à réseau.

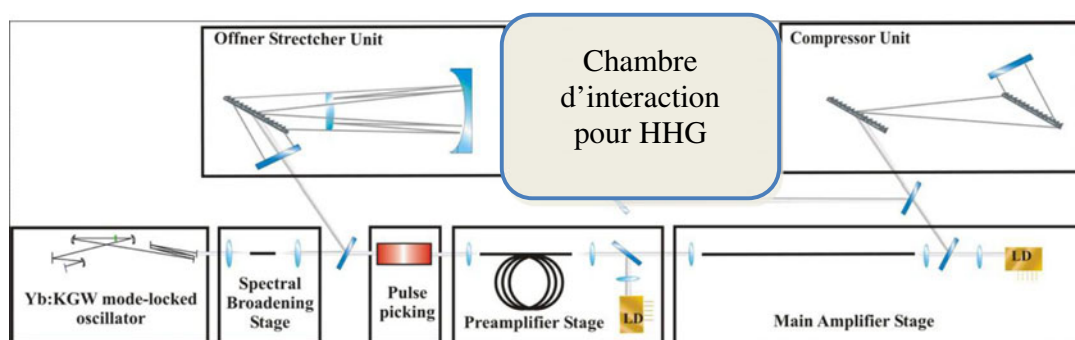


Figure 1. Schéma d'ensemble du système laser femtoseconde CPA fibré utilisé dans cette expérience. Ce système est constitué d'un oscillateur, d'un étage d'élargissement spectral, d'un étireur de Offner, d'un extracteur d'impulsions permettant de régler la cadence, d'un préamplificateur fibré (fibre microstructurée dopée Yb et pompée par diode), d'un amplificateur fibré (fibre rod-type) de puissance et d'un compresseur. Les impulsions sont ensuite envoyées dans une chambre d'interaction adaptée à la génération d'harmoniques d'ordres élevés.

Chacun des éléments constitutifs de cette chaîne a des caractéristiques spécifiques qui ont permis d'obtenir en sortie des impulsions femtosecondes (sub 300 fs) à forte puissance moyenne.

L'oscillateur commercial est un oscillateur femtoseconde de forte puissance (1.7 W), fonctionnant à une cadence de 10 MHz ce qui est notablement bas pour un oscillateur (qui fonctionnent généralement à des taux de répétition proche de 100 MHz) et limite l'amplification nécessaire en aval.

La largeur spectrale des impulsions sortant de l'oscillateur (2.5 nm à 1030 nm pour une durée initiale de 390 fs) étant plus faible que la largeur spectrale qui peut être amplifiée dans les amplificateurs du système, une étape d'élargissement spectral par automodulation de phase dans une fibre microstructurée permet d'augmenter la largeur spectrale à 9 nm.

Les impulsions sont alors étirées dans un étireur dit de Offner et leur durée passe à 600 ps ce qui permet de réduire les effets non linéaires lors de la propagation et l'amplification.

Un modulateur acousto-optique permet ensuite de régler la cadence du train d'impulsions dans la gamme 100 kHz à 1 MHz.

Ces impulsions sont ensuite amplifiées dans une première fibre microstructurée à double cœur, l'un (dopé à l'Ytterbium) permettant de guider de manière monomodale le faisceau femtoseconde étiré pendant son amplification et l'autre permettant de guider le faisceau laser de pompe (largement multimode) qui est absorbé dans le cœur amplificateur tout au long de sa propagation. Avec un pompage de 25 W, ce pré-amplificateur permet d'augmenter la puissance du faisceau femtoseconde à 1W (avec 1 mW en entrée).

Le second amplificateur de puissance utilise aussi une fibre microstructurée double cœur possédant un diamètre record de 80 microns et permettant quand même une propagation monomode. Grâce à

cette fibre spéciale développée au sein d'un consortium regroupant 2 laboratoires et 2 entreprises. Nous pouvons extraire une puissance de 60 W moyen.

Les impulsions sont enfin recomprimées dans un compresseur à réseau utilisant des réseaux en transmission très bien adaptés à la puissance moyenne. Au final, les impulsions ont une durée de moins de 300 fs (FWHM = 280 fs) avec des énergies par impulsion variant de 100 μJ (à 100 kHz) à 28 μJ (à 1 MHz) suivant la cadence utilisée.

Même pour les impulsions d'énergie minimale de 30 μJ et des durées de 300 fs, les caractéristiques du faisceau laser (en particulier la très bonne qualité du faisceau) permettent facilement d'obtenir des intensités proches de 10^{14} W/cm^2 qui sont les intensités typiques nécessaires pour la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Cette expérience montre, pour la première fois, que la technologie des lasers à fibre a atteint la maturité suffisante pour permettre les études d'interaction dans le régime des champs forts.

3. GÉNÉRATION D'HARMONIQUES D'ORDRES ÉLEVÉS

3.1. Spécificités induites par la longueur d'onde centrale atypique (1030 nm)

Il faut généralement des intensités de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 pour générer des harmoniques car une intensité minimale, dite intensité d'apparition, est nécessaire pour pouvoir générer une harmonique donnée.

En effet, seules les harmoniques localisées dans le plateau ou dans la coupure peuvent être observables et la limite de ce plateau est donnée par $h\nu = I_p + 3.17 U_p$ ou U_p est l'énergie pondéromotrice. Cette énergie pondéromotrice, proportionnelle à l'intensité, est de $10 \text{ eV}/10^{14} \text{ W/cm}^2$ à 1030 nm et de $6 \text{ eV}/10^{14} \text{ W/cm}^2$ à 800 nm.

Concrètement, ceci implique, lorsque l'on veut générer des photons de 30 eV dans le Kr par exemple, d'utiliser une intensité supérieure à l'intensité d'apparition, I_{app} , qui remplit la condition:

$$30 \text{ eV} = I_p + 3.17 U_p(I_{app}) \quad (1)$$

L'intensité d'apparition est alors de $8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ pour un laser centré à 800 nm mais n'est que de $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ à 1030 nm.

Cette différence, qui peut sembler minime, a néanmoins de très fortes répercussions sur la génération d'harmoniques et son efficacité. En effet, le taux d'ionisation des atomes est très non linéaire et seuls les atomes non ionisés peuvent efficacement émettre des harmoniques. Dans ces conditions, plus l'intensité d'apparition d'une harmonique donnée est basse plus l'harmonique considérée pourra être émise sans ioniser l'atome. De plus, si l'on peut générer une harmonique sans ioniser l'atome de manière significative, il devient plus avantageux d'utiliser une impulsion de 300 fs que d'utiliser une impulsion de 30 fs à la même intensité ce qui n'est pas le cas lorsque l'intensité d'apparition est plus importante car, la plupart du temps, l'atome est alors ionisé très rapidement et il devient inutile d'utiliser des impulsions longues.

Cette longueur d'onde centrale de 1030 nm est donc suffisamment différente de celle du Titane Saphir (800 nm) pour modifier les conditions de génération via l'intensité d'apparition d'une fréquence donnée. Elle en est aussi suffisamment proche, ce qui est un autre avantage car au niveau de la réponse de l'atome unique, l'efficacité varie comme l'inverse de la puissance 5 de la longueur d'onde du fondamental. Cette longueur d'onde est donc un compromis très intéressant entre les longueurs d'ondes accessibles directement par les systèmes Ti :Sapph (800nm et 400 nm) et les OPA qui permettent d'obtenir des impulsions femtosecondes avec des longueurs d'ondes centrales de 2 μm par exemple.

3.2. Génération et détection des harmoniques d'ordres élevés

Obtenir des intensités de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 nécessite de focaliser le faisceau laser sur un waist de 8 μm ce qui, dans le domaine de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, correspond à

des conditions de forte focalisation. Ces conditions de forte focalisation sont généralement assez défavorables pour l'efficacité du processus car elles sont associées à de mauvaises conditions d'accord de phase et en tant que processus cohérent, l'émission d'harmoniques d'ordres élevés est très influencée par l'accord de phase. Pour limiter l'influence de cet accord de phase, nous avons choisi d'utiliser un milieu gazeux très fin produit par un jet de $140\ \mu\text{m}$ d'ouverture (capillaire creux laissant continuellement échapper le gaz dans la chambre à vide).

Dans ces conditions de forte focalisation où le faisceau fondamental est très divergent après le foyer, les harmoniques émises sont elles aussi très divergentes et donc difficiles à caractériser. De plus, la puissance moyenne du fondamental étant très élevée, il est facile de brûler les optiques réfléchives utilisées pour l'XUV avec le faisceau IR.

La technique choisie pour s'affranchir de ces problèmes est simplement d'utiliser une fente pour sélectionner une partie du faisceau XUV après une distance de propagation de 40 cm environ. Cette fente permet d'assurer que le faisceau XUV transmis est peu divergent mais aussi qu'une faible fraction de la puissance infrarouge est transmise ce qui évite d'endommager les optiques.

Pour caractériser le faisceau XUV, les harmoniques sont ensuite diffractées par un réseau plan et détectées par des galettes de micro-canaux couplées à un écran phosphore qui est observé avec une caméra CCD à haute dynamique.

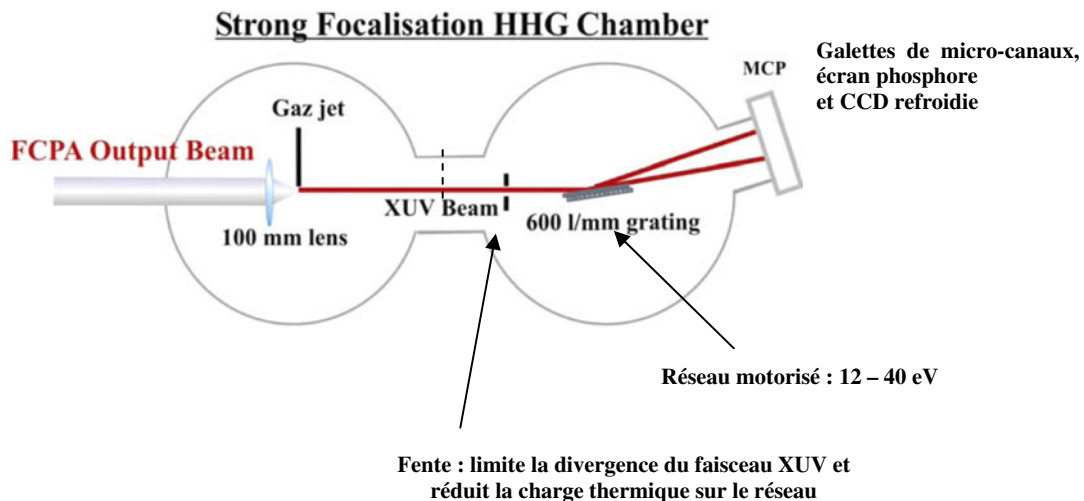


Figure 2. Schéma d'ensemble du système de génération d'harmoniques d'ordres élevés et de caractérisation du faisceau XUV émis. Le laser femtoseconde précédemment décrit est focalisé sous vide par une lentille de focale $f = 10\ \text{cm}$. Un jet gazeux est positionné à proximité du foyer et après ce jet le fondamental diverge et est co-propageant avec les harmoniques émises. Une fente limite ensuite la divergence du faisceau qui est ensuite diffracté par un réseau plan. Les radiations diffractées sont ensuite observées grâce à un détecteur approprié (galettes de micro-canaux sensibles à l'XUV couplées à un écran phosphore et imagées par une caméra).

Ces conditions de génération nous ont permis d'observer l'émission de radiations XUV et d'observer clairement que ces radiations étaient constituées d'harmoniques d'ordres élevés du fondamental [5]. Ceci est illustré sur la figure 3 qui représente le signal XUV détecté pour un taux de répétition de 100 kHz et pour une énergie par impulsion de $80\ \mu\text{J}$ (puissance moyenne 8 W). Les harmoniques observées sont les harmoniques d'ordre 19, 21, 23, 25 et 27.

Les ordres observés dépendent beaucoup des conditions de génération et les résultats obtenus sont résumés dans la table 1 qui indique les ordres maximaux observés pour les différents gaz utilisés (l'ordre minimum observable étant l'ordre 11 dans tous les cas).

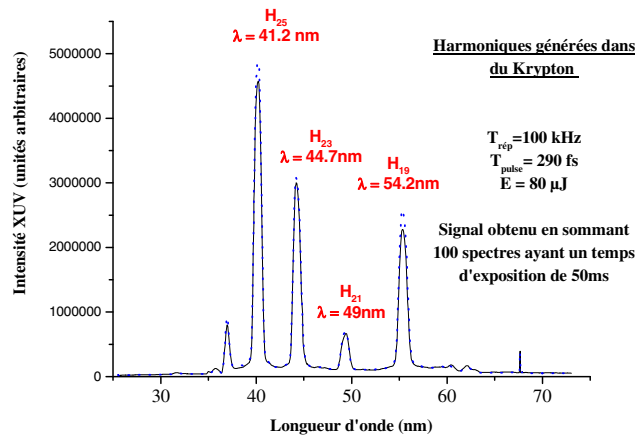


Figure 3. Spectre XUV obtenu en générant des harmoniques dans du krypton à un taux de répétition de 100 kHz. Le spectre observé est constitué d'harmoniques impaires de la fréquence du fondamental et les ordres 19 à 27 sont visibles.

Tableau 1. Récapitulatif des conditions de génération (cadence du laser, énergie par impulsion et puissance moyenne) et des ordres harmoniques maximum observés pour les différents gaz utilisés.

Cadence	100 kHz	300 kHz	500 kHz	1 MHz
Energie par impulsion	100 μJ	83 μJ	50 μJ	28 μJ
Puissance moyenne	10 W	25 W	25 W	28 W
Gaz utilisé (ordre maximal observé)	Ar (H31), Kr (H27) Xe (H23)	Kr (H25) Xe (H23)	Kr (H23) Xe (H17)	Xe (H15)

4. PERSPECTIVES ET CONCLUSION

Nous avons donc pu montrer qu'il est maintenant possible de générer des harmoniques d'ordres élevés à des cadences aussi haute que 1 MHz [5] ce qui n'avait auparavant jamais été fait avec un système laser amplifié. De plus, nous avons pu montrer qu'il est possible d'adapter le taux de répétition du système et le gaz utilisé pour générer une harmonique donnée jusqu'à l'ordre maximum de 31.

Après cette première preuve de faisabilité, ces travaux vont maintenant être poursuivis de manière à maximiser le nombre de photons émis [6] et à développer une configuration expérimentale permettant d'utiliser ces photons pour des expériences résolues en temps et à haut taux de répétition.

Tous ces progrès ont été rendus possibles grâce au développement de nouvelles sources laser fibrés. De nombreuses évolutions sont encore en cours sur ces systèmes comme par exemple l'augmentation de la puissance moyenne ou la réduction de la durée de ces sources [7]. Il semble que ces nouvelles approches vont donner naissance à une nouvelle génération de sources XUV alliant des fortes puissances moyennes XUV, des hautes récurrences et permettant de réaliser des expériences résolues en temps avec une résolution temporelle femtoseconde.

Remerciements

Les auteurs remercient le Conseil Régional d'Aquitaine pour son support à ce projet à travers les projets « Femto+ » et « Source laser à très haute récurrence » ainsi que l'ANR (projets « Attowave » et « Hypoliff ») et la Communauté Européenne (projets Aladin et Happie, Laserlab 2).

Références

- [1] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F Li, L. A. Lompre, G. Mainfray and C. Manus, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** (1988) L31-L35.
- [2] F. Lindner, W. Stremme, M. G. Schätzel, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Hartmann, and L. Strüder, *Phys. Rev. A* **68**, (2003) 013814.
- [3] F. Röser, T. Eidam, J. Rothhardt, O. Schmidt, D. N. Schimpf, J. Limpert, and A. Tünnermann, *Opt. Lett.* **32**, (2007) 3495-3497.
- [4] Y. Zaouter, J. Boullet, E. Mottay, and E. Cormier, *Opt. Lett.* **33**, (2008) 107.
- [5] J. Boullet, Y. Zaouter, J. Limpert, S. Petit, Y. Mairesse, B. Fabre, J. Higuët, E. Mével, E. Constant and E. Cormier, *Opt. Lett.* **34** (2009) 1489-1491.
- [6] E. Constant, D. Garzella, P. Berger, E. Mével, CH. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin and P. Agostini, *Phys. Rev. Lett.* **82** (1989) 1668.
- [7] S. Hadrich, J. Rothhardt, M. Krebs, F. Tavella, A. Willner, J. Limpert and A. Tünnermann, *Opt. Expr.* **18** (2010) 20242.