Mesures d'autocorrélation dans l'UVX avec des harmoniques d'ordre élevé

M. Kovacev, H. Merdji, E. Priori¹, P. Monchicourt, P. Salières, B. Carré, J. Norin²,
A. Persson², A. L'Huillier² et C.-G. Wahlström²

Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

¹ INFN, Dipartimento di Fisica, Politecnico, piazza Leonardo da Vinci 32, 20133 Milano, Italie

² Department of Physics, Lund Institute of Technology, P.O. Box 118, 22100 Lund, Suède

Résumé. Nous avons étudié les propriétés non linéaires de l'émission harmonique en utilisant une technique d'autocorrélation d'ordre supérieur du faisceau laser. Dans certaines conditions de génération (éclairage, pression, focalisation), les profils d'autocorrélation présentent un comportement inattendu. Nous utilisons ensuite la bonne stabilité mécanique de notre dispositif expérimental (quelques nm) afin de mesurer, pour la première fois, les traces d'autocorrélation du 1^{er} ordre des harmoniques d'ordre élevé.

1. INTRODUCTION

Ces dernières années, la génération d'harmoniques d'ordre élevé a attiré beaucoup d'attention, en particulier grâce à son potentiel de générer des impulsions subfemtosecondes (dites attosecondes). La caractérisation de telles impulsions, et en particulier la mesure de leur durée, est un véritable défi technique car leur grande bande spectrale interdit l'utilisation de tout élément dispersif ou absorbant. Pour caractériser les impulsions laser femtosecondes, on a souvent recours à l'autocorrélation interférométrique. L'impulsion laser est divisée en deux dans un interféromètre de type Michelson, puis recombinée avec un retard variable. Si on mesure le signal laser en fonction du retard directement après le Michelson, on observe des oscillations à la période laser dues aux interférences optiques ; on obtient ainsi une *autocorrélation du 1^{er} ordre du laser*. Il est bien connu que cette dernière ne contient qu'une information spectrale : sa transformée de Fourier donne en effet le spectre de puissance de l'impulsion. La caractérisation temporelle doit utiliser des *autocorrélations d'ordre supérieur*, ce qui implique l'utilisation d'un processus non linéaire. Pour cela, on recombine les deux faisceaux sortant du Michelson dans un cristal et l'on enregistre le signal de la 2^{ème} ou 3^{ème} harmonique ainsi générée. La connaissance des caractéristiques du processus non linéaire permet de remonter à la durée de l'impulsion laser initiale.

Ces techniques de caractérisation ne sont pas transposables directement aux harmoniques d'ordre élevé car la courte longueur d'onde empêche l'utilisation des lames séparatrices ou des cristaux non linéaires. Papadogiannis et al. [1] ont proposé une méthode pour éviter ces problèmes (cf. Fig.1): ils dédoublent l'impulsion laser *avant* la production des harmoniques et enregistrent le signal harmonique *total* sortant du jet de gaz rare. Celui-ci sert donc à la fois à générer les harmoniques et à produire le processus non linéaire de caractérisation. Le fait que la production et la caractérisation soient mélangées rend la mesure très indirecte, ce qui explique que la méthode soit très controversée.

Notre point de départ est la question du lien entre la structure temporelle de l'émission harmonique et la trace d'autocorrélation obtenue par Papadogiannis et al. Dans un premier temps, nous utilisons leur méthode mais sélectionnons une *seule* harmonique, effectuant ainsi une

autocorrélation d'ordre supérieur du laser. Dans un deuxième temps, nous modifions le dispositif afin d'enregistrer *l'autocorrélation du premier ordre des harmoniques*.

Figure 1. Dispositif expérimental proposé par Papadogiannis et al. Le détecteur enregistre toutes les harmoniques élevées produites dans le jet, après filtrage du laser.

2. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous utilisons le dispositif de la Fig. 1, mais sélectionnons après le jet une seule harmonique avec un spectromètre. Nous utilisons cette autocorrélation d'ordre supérieur du laser dans un but inhabituel : connaissant les caractéristiques du laser, nous voulons en déduire des informations sur le processus nonlinéaire. Le laser est l'installation LUCA du CEA-Saclay (800nm/50fs/20Hz/1TW). Les traces d'autocorrélation présentent les oscillations prévisibles à la période T_L du laser générateur, mais dans certaines conditions de génération (éclairage, pression, focalisation), les profils ont un comportement inattendu.

Figure 2. Traces d'autocorrélation du laser obtenues avec l'harmonique 19 à différentes pressions: a) 2.6×10^{-4} mbar, b) 5.4×10^{-4} mbar. Il faut noter que les pressions indiquées sont des pressions résiduelles dans l'enceinte et que la pression dans le jet de gaz est environ quatre ordres de grandeur plus élevée.

A très basse pression, on obtient une trace très régulière indiquant une non linéarité effective du processus de génération très faible, de l'ordre de 2.5 compatible avec le fait que l'harmonique considérée se trouve dans le plateau du spectre [2]. Lorsqu'on augmente la pression (Fig. 2a), l'enveloppe de la trace devient « carrée » montrant l'existence d'une saturation de l'émission. A haute pression (Fig. 2b), on observe une distorsion à la fois de l'enveloppe mais aussi des franges d'interférence qui présentent des pics très marqués. Ces phénomènes pourraient être liés à une forte défocalisation du laser générateur par les gradients de densité électronique résultant de l'ionisation du gaz. Nous avons en effet observé qu'à haute pression, l'efficacité de génération harmonique (par une seule impulsion laser) chute brutalement à fort éclaircissement, ce qui expliquerait, en Fig. 2b), la

diminution du signal harmonique à 0 délai où pourtant l'éclairement est maximum. Des simulations sont en cours pour valider cette interprétation.

Nous avons ensuite modifié le dispositif expérimental afin d'enregistrer l'autocorrélation du premier ordre des harmoniques (cf. Fig. 3). Nous utilisons une propriété intéressante de la génération d'harmonique qui est de pouvoir produire deux sources harmoniques spatialement séparées mais mutuellement cohérentes en focalisant les deux faisceaux laser sortant du Michelson à deux endroits distincts du jet de gaz. Les deux faisceaux harmoniques qui en résultent sont comme les deux répliques d'un même faisceau obtenues après un Michelson (UVX). Après diffraction, ces faisceaux se recouvrent et interfèrent en champ lointain. En variant finement le délai dans le Michelson (laser) à l'aide d'une translation piézoélectrique, on fait défiler les franges devant une fente et on enregistre ainsi une trace d'autocorrélation du premier ordre des harmoniques.

Figure 3. Dispositif expérimental pour mesurer l'autocorrélation du premier ordre des harmoniques. Un filtre en aluminium est utilisé pour bloquer le laser et les harmoniques d'ordre faible.

Nous avons mesuré les traces pour les harmoniques 9 à 17 sélectionnées à l'aide d'un spectromètre. Le signal harmonique oscille avec une période correspondant à l'ordre de non linéarité comme le fait clairement apparaître la transformée de Fourier (cf. Fig. 4 pour l'harmonique 9). Ces traces démontrent la haute stabilité mécanique de l'ensemble de notre dispositif (meilleure que 10 nm), qui nous permet d'effectuer des mesures avec une précision attoseconde (30 as).

Figure 4. (a) Détail de l'autocorrélation du 1^{er} ordre de l'harmonique 9 (~ 89 nm) du Xénon. (b) Transformée de Fourier de la trace d'autocorrélation.

Lorsqu'on ne sélectionne pas une harmonique donnée et qu'on enregistre tous les ordres passant au travers d'un filtre d'aluminium, on obtient l'autocorrélation d'une superposition de plusieurs harmoniques (Fig. 5). La trace présente des battements chaque demi période du fondamental ($T_1/2$), correspondant bien à la transformée de Fourier d'un spectre présentant

plusieurs pics harmoniques (9 à 17). Ces battements sont très similaires à ceux observés par Papadogiannis et al. dans la configuration colinéaire de la Fig. 1. Cependant, lorsque nous superposons les foyers des deux faisceaux laser, nous n'observons plus ce battement à la demi période du laser générateur mais plutôt un battement à la période laser (Fig. 6). Des études complémentaires sont en cours.

Figure 5. a) Trace d'autocorrélation des harmoniques transmises par un filtre d'aluminium. b) Transformée de Fourier de cette trace.

3. CONCLUSION

Nous avons utilisé un dispositif d'autocorrélation interférométrique pour étudier les propriétés non linéaires de la génération d'harmoniques d'ordre élevé. La distorsion des traces observée à haute pression semble indiquer une forte défocalisation du laser générateur se traduisant par une chute du rendement harmonique à fort éclairement. Nous avons ensuite montré comment ce dispositif pouvait être modifié pour mesurer l'autocorrélation du 1^{er} ordre des harmoniques élevées. Cette dernière est rendue possible grâce à une stabilité mécanique nanométrique de l'ensemble du dispositif permettant des expériences à l'échelle attoseconde.

Figure 6. Trace d'autocorrélation d'une superposition de plusieurs harmoniques obtenue avec le dispositif colinéaire de la Fig. 1.

Références

- [1] Papadogiannis N.A. et al., *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999) 4289.
 Tempea G. et al., *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 109401-1
 Papadogiannis N.A. et al., *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 109402-1
- [2] Wahlström C.-G. et al., *Phys. Rev. A* **48** (1993) 4709