

## Source UVX cohérente et ultrabrève par génération d'harmoniques d'un laser intense

P. Salières, J.-F. Hergott, H. Merdji, L. Le Déroff et B. Carré

CEA, Service des Photons, Atomes et Molécules, Centre d'Études de Saclay,  
91191 Gif-sur-Yvette, France

**Résumé :** La génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz est une source de rayonnement UVX aux propriétés uniques notamment de cohérence spatiale et de courte durée. L'étude de la cohérence temporelle de l'émission est intéressante pour les applications, mais également du point de vue fondamental car elle donne des informations sur les mécanismes de la génération. Nous montrons que la phase intrinsèque du dipôle atomique induit un « chirp » de l'émission harmonique plus ou moins important suivant les conditions de génération.

### 1. INTRODUCTION

Lors de l'interaction d'une impulsion laser intense ( $\sim 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>) et brève ( $\sim 50$  fs) avec un jet de gaz rare (pression  $\sim 10$  Torr) sont générées les fréquences multiples de la fréquence laser, dites fréquences harmoniques, jusqu'à des ordres pouvant être très élevés. Contrairement au régime de champ faible, où l'efficacité de génération chute rapidement avec l'ordre de nonlinéarité, le spectre du rayonnement émis en champ fort présente un comportement caractéristique : un « plateau » où l'efficacité de génération reste à peu près constante, puis une « coupure » aux ordres élevés. Depuis les premières observations du phénomène en 1987 [1,2], beaucoup d'efforts ont été consacrés à augmenter l'étendue de ce plateau afin de générer efficacement des ordres toujours plus élevés. Grâce aux progrès de la technologie laser, et en particulier grâce à la réduction de la durée d'impulsion à quelques femtosecondes, des avancées considérables ont été faites durant ces dernières années, avec l'observation d'ordres harmoniques supérieurs à 200, étendant l'émission jusqu'à 500 eV [3,4].

*Du point de vue fondamental*, ces fortes nonlinéarités sont intéressantes pour comprendre le comportement d'atomes fortement perturbés par un champ laser intense. Des avancées théoriques ont été nécessaires pour décrire convenablement cette interaction. Dans un régime de champ fort et de basse fréquence (lasers infrarouges), l'émission harmonique peut être décrite schématiquement par un processus semi-classique en trois étapes [5,6]: sous l'effet du fort champ électrique du laser, la barrière du potentiel coulombien est abaissée permettant à l'électron (ou plutôt à une fraction de la fonction d'onde électronique) de passer par effet tunnel dans le continuum. Une fois libéré, l'électron oscille quasi librement dans le champ laser et gagne de l'énergie cinétique. Certaines trajectoires repassent près du noyau et peuvent donner lieu à une recombinaison sur le niveau fondamental avec émission d'un photon harmonique. C'est le gain d'énergie cinétique qui rend possible la génération d'ordres très élevés. Un modèle complètement quantique a été développé dans l'approximation des champs forts, qui permet de calculer les moments dipolaires harmoniques [7]. Insérés comme termes sources dans les équations de propagation des champs électriques dans le milieu générateur, ces dipôles ont permis de reproduire dans les simulations numériques les principales caractéristiques des spectres expérimentaux et ainsi d'en comprendre l'origine.

*Du point de vue appliqué*, le rayonnement harmonique constitue une nouvelle source de rayonnement UVX aux propriétés tout à fait uniques dans cette gamme de longueur d'onde. La caractérisation approfondie de ces propriétés a nettement progressé durant ces dernières années. Il a ainsi été démontré que les faisceaux harmoniques pouvaient présenter une très bonne qualité de faisceau ( $M^2 \sim 2$ ) [8] et un fort degré de cohérence spatiale ( $\gamma > 0.5$ ) [9,10]. Des mesures de durée d'impulsion ont mis en évidence le caractère ultrabref de l'émission harmonique (quelques dizaines de fs) [11,12]. La polarisation du rayonnement suit celle du laser excitateur (efficacité de génération optimale en polarisation linéaire, nulle en circulaire) [13]. Outre l'accordabilité partielle obtenue en changeant d'ordre harmonique, il est

possible d'ajuster finement la longueur d'onde en générant avec un laser chirpé [14], de haute intensité [15], ou mélangé à un OPA [16]. Pour finir, la source harmonique est naturellement synchronisée avec le laser générateur, ce qui implique un taux de répétition élevé (kHz), et présente une grande compacité (« table-top XUV source »).

Ces propriétés rendent possibles de nombreuses applications originales dans des domaines très divers, applications qui commencent à voir le jour. En spectroscopie atomique [17] et moléculaire et en physique du solide [18,19], des expériences « pompe-sonde » utilisent la durée ultracourte pour étudier des dynamiques ultrarapides. Grâce à la bonne cohérence, des expériences d'interférométrie UVX ont été récemment réalisées pour sonder les densités électroniques élevées intervenant dans les plasmas denses [20,21]. Enfin, la grande brillance du rayonnement permet d'envisager de le refocaliser à des éclaircissements jamais atteints dans l'UVX, rendant possible l'observation de phénomènes nonlinéaires à ces courtes longueurs d'onde [22].

## 2. COHERENCE TEMPORELLE

Une propriété du rayonnement harmonique a été particulièrement discutée durant ces dernières années : il s'agit de la cohérence temporelle. D'un côté, des mesures de durée d'impulsion ont été effectuées, révélant le caractère ultrabref de l'émission, mais également la variation de la durée d'impulsion en fonction des conditions de génération : focalisation et éclaircissement laser [11,12]. D'un autre côté, des mesures de largeur spectrale du rayonnement ont montré des élargissements importants à fort éclaircissement, haute pression, ou en présence d'un chirp du laser générateur [23,24]. Ces observations soulèvent plusieurs questions fondamentales : l'émission harmonique est-elle cohérente temporellement, c'est-à-dire, est-elle limitée par la transformée de Fourier ? Le spectre de l'émission est-il aussi étroit que le permet la courte durée d'impulsion, dans les différentes conditions de génération ?

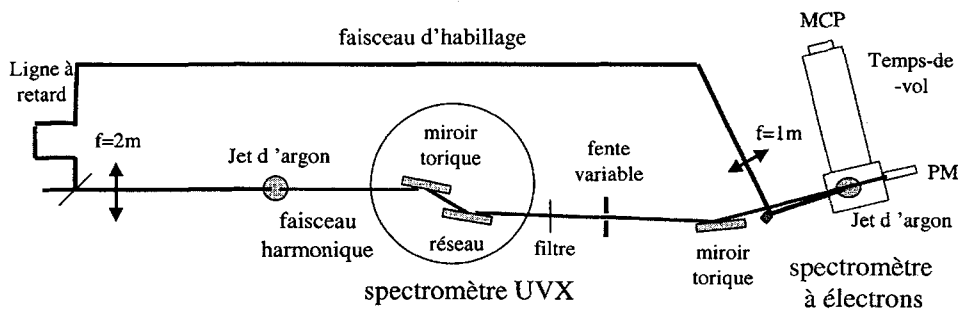
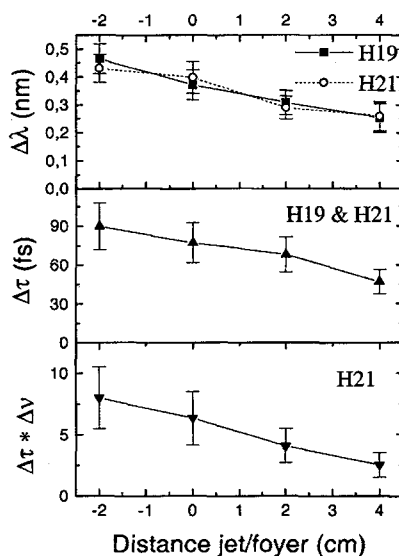


Figure 1 : Schéma expérimental pour la mesure croisée des profils temporel et spectral de l'émission harmonique.

Pour répondre à ces questions, il est nécessaire d'effectuer des mesures croisées des profils temporels et spectraux *dans les mêmes conditions de génération*. Ceci implique de coupler un spectromètre UVX, nécessaire à la mesure spectrale, et un spectromètre à électrons utilisé pour la mesure temporelle. Cette dernière est particulièrement délicate du fait du domaine spectral UVX et de la durée ultracourte qui ne peut être résolue par les caméras à balayage de fente (résolution de plusieurs centaines de fs). Le principe de cette mesure, proposée à l'origine par P. Agostini, est le suivant : l'impulsion UVX photoionise un gaz rare en présence d'un champ laser suffisamment intense ( $\sim 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>) qui « habille » le continuum. Dans le spectre d'énergie des photoélectrons apparaissent alors, autour de la bande correspondant à la différence d'énergie entre le photon UVX et le potentiel d'ionisation du gaz rare, des bandes latérales séparées par l'énergie d'un photon laser. En effet, lors du processus de photoionisation, l'atome peut absorber –ou réémettre– simultanément un ou plusieurs photons lasers. L'intensité de ces bandes latérales varie comme la corrélation croisée des impulsions laser et UVX, permettant ainsi la mesure de l'émission harmonique en faisant varier le délai entre les deux impulsions.

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé pour mesurer quasi-simultanément les profils temporel et spectral de l'émission harmonique est schématisé en Figure 1. Le faisceau laser est divisé en deux : la plus grande partie de l'énergie est focalisée dans un jet d'argon pour générer les harmoniques, qui sont ensuite analysées avec un spectromètre (miroir torique + réseau plan) et détectées derrière une fente par un photomultiplicateur (PM) : on obtient ainsi le profil spectral de l'émission en balayant le réseau. Du fait de l'analyse spectrale, le profil temporel de l'impulsion harmonique après le réseau est très élargi (d'une quantité égale au produit de la période harmonique par le nombre de traits vus par le faisceau, de l'ordre de quelques ps). Pour effectuer la mesure temporelle, le réseau est placé dans l'ordre 0 (où il ne produit pas d'allongement) et la fente est ouverte afin de laisser passer tout le faisceau harmonique qui vient photoioniser des atomes d'argon dans le spectromètre à électrons. La deuxième partie du faisceau laser est focalisée avec un retard variable dans ce même jet, produisant l'habillage. Les photoélectrons ainsi générés sont analysés en énergie dans un temps de vol et détectés par des galettes de microcanaux (MCP).



**Figure 2 :** Influence de la position du jet de gaz par rapport au foyer laser sur, successivement, la largeur spectrale  $\Delta\lambda$  des harmoniques 19 et 21, la durée d'impulsion  $\Delta\tau$  des mêmes harmoniques, et le produit  $\Delta\tau * \Delta\nu$  pour H21.

Le résultat de ces mesures est représenté en Figure 2 en fonction de la position du milieu générateur par rapport au foyer du laser ( $z > 0$  dans le sens de propagation du laser). Il apparaît clairement que lorsque le jet est déplacé de quelques cm après le foyer ( $z = 4$ ) à quelques cm avant le foyer ( $z = -2$ ), sa largeur spectrale est presque multipliée par 2. Si l'impulsion harmonique restait limitée par la transformée de Fourier, sa largeur temporelle devrait diminuer dans le même rapport. Or c'est une évolution inverse que l'on observe puisque la durée de l'émission augmente elle aussi presque d'un facteur 2. Au final, le produit des largeurs temporelle et spectrale augmente de 2.5 à 8 lorsque le jet est déplacé. Ceci démontre l'existence d'une modulation de la phase de l'émission harmonique –un « chirp »– qui induit une déviation à la limite de Fourier plus ou moins importante suivant les conditions de génération.

Une première explication serait l'influence de l'ionisation du gaz provoquée par le fort éclaircissement lorsque le jet est positionné près du foyer laser. En effet, la dispersion due aux électrons libres générés au cours de l'impulsion peut induire une modulation temporelle de la phase du champ laser qui est transmise au champ harmonique généré. Cependant, les éclaircissements étant symétriques par rapport au foyer laser, ce phénomène devrait résulter en une déviation à la limite de Fourier symétrique par rapport à  $z = 0$ , ce qui n'est clairement pas le cas.

Par contre, il a été prévu théoriquement que, dans ce régime de champ fort, la phase du dipole atomique dépend quasi-linéairement de l'éclaircissement laser et peut induire un chirp de l'émission harmonique [25]. Cette phase intrinsèque influence la façon dont se construit le champ harmonique dans le milieu générateur et résulte dans des conditions d'accord de phase très différentes de part et d'autre du

foyer laser : accord sur l'axe pour  $z > 0$  (profils d'émission centrés), et accord hors axe pour  $z < 0$  (profils annulaires). Cette dissymétrie apparaît également dans le chirp de l'émission qui est nettement plus important pour les  $z < 0$ .

### 3. CONCLUSION

Nous avons montré pour la première fois sans ambiguïté que l'émission harmonique présente un chirp intrinsèque dont l'importance varie suivant les conditions de génération. Ceci a été rendu possible par la mesure quasi-simultanée des profils temporel et spectral de l'impulsion harmonique dans les mêmes conditions de génération. Nos conclusions sont en accord avec les résultats expérimentaux rapportés récemment [24], et en particulier avec les mesures de temps de cohérence effectuées par Bellini *et al.* [26].

### Références

1. A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. McIntyre, K. Boyer, C. K. Rhodes, J. Opt. Soc. Am. B **4**, 595 (1987).
2. M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, J. Phys. B **21**, L31 (1988).
3. Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. Murnane, H. Kapteyn, Phys. Rev. Lett. **79**, 2967 (1997).
4. M. Schnürer, Ch. Spielmann, P. Wobrauschek, C. Strelt, N. H. Burnett, C. Kan, K. Ferencz, R. Koppitsch, Z. Cheng, T. Brabec, F. Krausz, Phys. Rev. Lett. **80**, 3236 (1998).
5. P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).
6. K. C. Kulander, K. J. Schafer, J. L. Krause, in *Super-Intense Laser-Atom Physics*, edited by B. Piraux, Anne L'Huillier, and K. Rzaczewski (Plenum Press, New York, NATO ASI Series B 316, 1993).
7. M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier, P. Corkum, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).
8. L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, Opt. Lett. **23**, 1544 (1998).
9. T. Ditmire, E. T. Grumbell, R. A. Smith, J. W. G. Tisch, D. D. Meyerhofer, M. H. R. Hutchinson, Phys. Rev. Lett. **77**, 4756 (1996).
10. L. Le Déroff, P. Salières, B. Carré, Phys. Rev. A **61**, 043802 (2000).
11. T. E. Glover, R. W. Shoenlein, A. H. Chin, C. V. Shank, Phys. Rev. Lett. **76**, 2468 (1996).
12. A. Bouhal, P. Salières, P. Breger, P. Agostini, G. Hamoniaux, A. Mysyrowicz, A. Antonetti, R. Constantinescu, H. G. Muller, Phys. Rev. A **58**, 389 (1998).
13. Ph. Antoine, B. Carré, A. L'Huillier, M. Lewenstein, Phys. Rev. A **55**, 1314 (1997).
14. J. Zhou, J. Peatross, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, I. P. Christov, Phys. Rev. Lett. **76**, 752 (1996).
15. H. J. Shin, D. G. Lee, Y. H. Cha, K. H. Hong, C. H. Nam, Phys. Rev. Lett. **83**, 2544 (2000).
16. M. B. Gaarde, Ph. Antoine, A. Persson, B. Carré, A. L'Huillier, C.-G. Wahlström, J. Phys. B **29**, L163 (1996).
17. M. Gisselbrecht, D. Descamps, C. Lynga, A. L'Huillier, C.-G. Wahlström, M. Meyer, Phys. Rev. Lett. **82**, 4607 (1999).
18. R. Haight, D. R. Peale, Phys. Rev. Lett. **70**, 3979 (1993).
19. F. Quéré, S. Guizard, Ph. Martin, G. Petite, H. Merdji, B. Carré, J.-F. Hergott, L. Le Déroff, Phys. Rev. B **61**, 9883 (2000).
20. D. Descamps, J.-F. Hergott, H. Merdji, P. Salières, C. Lynga, J. Norin, M. Bellini, T. W. Hänsch, A. L'Huillier, C.-G. Wahlström, Opt. Lett. **25**, 135 (2000).
21. P. Salières, L. Le Déroff, T. Auguste, P. Monot, P. d'Oliveira, D. Campo, J.-F. Hergott, H. Merdji, B. Carré, Phys. Rev. Lett. **83**, 5483 (1999).
22. Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa, S. Watanabe, Opt. Lett. **23**, 64 (1998).
23. C.-G. Wahlström, J. Larsson, A. Persson, T. Starczewski, S. Svanberg, P. Salières, Ph. Balcou, A. L'Huillier, Phys. Rev. A **48**, 4709 (1993).
24. Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, I. Christov, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, Phys. Rev. A **58**, R30 (1998).
25. P. Salières, A. L'Huillier, M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett. **74**, 3776 (1995).
26. M. Bellini, C. Lyngå, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hänsch, A. L'Huillier, C.-G. Wahlström, Phys. Rev. Lett. **81**, 297 (1998).