

Génération d'impulsions attosecondes isolées

E. Constant¹ et E. Mével¹

¹ CELIA, Université Bordeaux I, CNRS-CEA, 351 cours de la Libération, 33405 Talence, France

Résumé. Nous générons des harmoniques d'ordres élevés en utilisant une impulsion femtoseconde intense dont la polarisation est modulée temporellement. Cette évolution rapide de la polarisation nous permet de confiner l'émission XUV dans l'intervalle temporel où la polarisation de l'impulsion fondamentale est quasi-linéaire et de l'interdire partout ailleurs. En utilisant des impulsions ultracourtes dont la phase absolue est contrôlée, nous pouvons ainsi générer des impulsions attosecondes isolées accordables et de large bande spectrale.

1. INTRODUCTION

Les sources lumineuses ultracourtes permettent, via des expériences pompe-sonde, de suivre l'évolution temporelle de phénomènes ultrarapides avec une résolution qui est de l'ordre de la durée des impulsions utilisées. Les impulsions femtosecondes permettent ainsi de suivre des dynamiques d'atomes dans les molécules et même de certains paquets d'électrons lents dans les atomes. L'échelle typique des réorganisations électroniques est toutefois l'attoseconde ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) et l'observation de dynamiques électroniques requiert donc l'obtention de sources attosecondes [1]. La génération d'harmonique d'ordres élevés dans des gaz [2, 3], qui est à la base du travail présenté ici, permet d'obtenir des trains d'impulsions sub-femtosecondes [4] et même de générer des impulsions attosecondes isolées [5]. Dans cette présentation, nous décrirons les caractéristiques principales de cette source ainsi que les processus physiques qui sous tendent la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Nous nous focaliserons ensuite sur le domaine temporel pour comprendre comment l'émission XUV donne lieu à des trains d'impulsions sub-femtosecondes ou même des impulsions attosecondes isolées.

1.1 Schéma expérimental typique

Les harmoniques d'ordres élevés (HHG pour High order Harmonic Generation) considérées ici sont émises lors de l'interaction entre un laser intense ultracourt et des gaz. L'ensemble expérimental typique de l'HHG (Fig. 1) est constitué en un laser intense se propageant dans une chambre à vide et focalisé

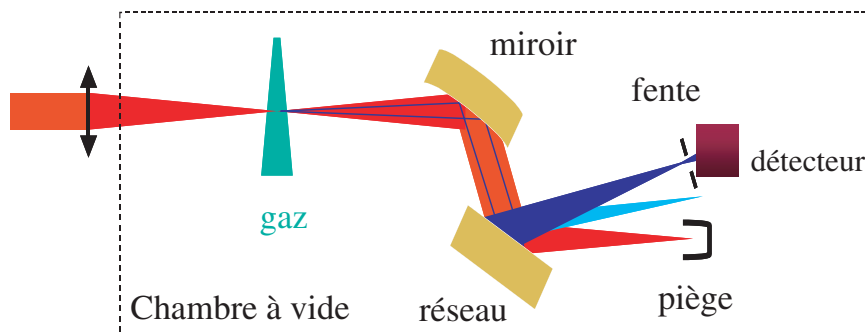


Figure 1. Montage expérimental typique de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Un laser ultracourt est focalisé sur un milieu gazeux et les radiations émises sont caractérisées par un spectromètre XUV.

sur un milieu gazeux (jet de gaz, cellule de gaz etc). A la sortie du milieu gazeux, le faisceau résultant contient non seulement la radiation fondamentale mais aussi des radiations XUV dont les fréquences sont des multiples impairs de la fréquence du fondamental. Ces radiations sont généralement analysées par un spectromètre XUV en incidence rasante (fig. 1) ou par un spectromètre en temps de vol (les radiations XUV étant utilisées pour ioniser un gaz et la mesure de l'énergie des photoélectrons émis permet de caractériser l'impulsions XUV incidente).

1.2 Caractéristiques générales du rayonnement XUV émis

Le rayonnement XUV émis a de nombreuses caractéristiques uniques et très attractives :

- Il est émis sous forme d'impulsions ultracourtes synchronisées avec l'impulsion fondamentale.
- Ce rayonnement est cohérent et peu divergent, co-propageant avec le faisceau fondamental.
- Le spectre XUV est large et composé de fréquences multiples impaires de la fréquence du laser fondamental et présente un plateau (où les amplitudes des harmoniques sont relativement constantes) qui se termine brusquement au delà d'une fréquence de coupure (Fig. 2).

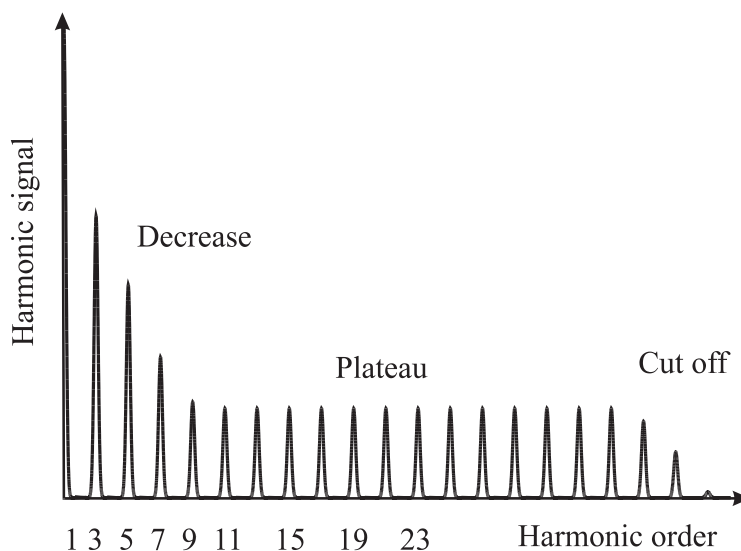


Figure 2. Spectre typique obtenu par génération d'harmoniques d'ordres élevés en utilisant des impulsions longues. Des raies discrètes sont observées à des fréquences harmoniques impaires de la fréquence fondamentale. Après une décroissance rapide pour les ordres bas (3, 5, 7 etc) l'amplitude des harmoniques est constante dans le plateau et décroît rapidement au delà de la fréquence de coupure (cut off).

2. ÉMISSION D'HARMONIQUES ET TRAINS D'IMPULSIONS ATTOSECONDES

2.1 Le modèle en trois étapes

De nombreuses propriétés de la génération d'harmoniques d'ordres élevés ont été comprises grâce au modèle semi classique [6] simulant la réponse d'un atome isolé soumis à l'excitation d'un champ laser intense. Ce modèle est constitué de trois étapes qui sont (1) l'ionisation de l'atome, (2) l'accélération classique de l'électron libéré à la première étape et (3) la recombinaison radiative de cet électron énergétique avec l'ion dont il est issu si cet électron est ramené à proximité de cet ion. Lors de cette recombinaison, l'énergie du photon émis est égale à la somme de l'énergie cinétique de l'électron

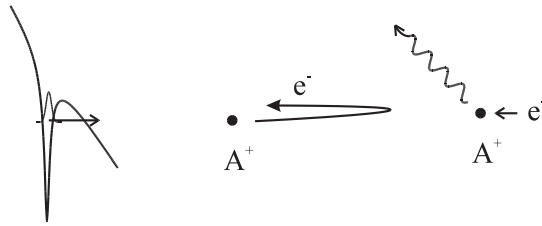


Figure 3. Les trois étapes de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. 1/ Ionisation par effet tunnel. 2/ Accélération dans le champ laser et gain d'énergie cinétique. 3/ recombinaison radiative.

au moment de la re-collision et du potentiel d'ionisation de l'atome. Cette vision purement classique permet de voir que lorsque l'électron est libéré à une phase égale à 18° (le maximum du champ étant à 0°), l'électron a une énergie cinétique maximale égale à $3.17 U_p$ à son retour (U_p étant l'énergie pondéromotrice qui représente l'énergie cinétique moyenne d'un électron oscillant dans un champ électrique laser) et que l'énergie des photons émis est alors de $I_p + 3.17U_p$ ce qui constitue la loi de coupure [7]. De plus ce modèle montre que l'émission ne peut avoir lieu que lorsque les électrons accélérés repassent à proximité de l'ion parent soit pendant un intervalle de temps très court devant la période optique. Cette période optique étant de 2.66 fs pour un laser centré à 800 nm, l'émission XUV ne peut avoir lieu que sous forme d'impulsions attosecondes.

Lorsque ce modèle est poussé plus avant, l'étape d'ionisation est une étape probabiliste qui implique qu'à tout instant l'atome a une certaine probabilité d'être ionisé. L'électron est une particule quantique ce qui implique qu'à tout instant une partie de la fonction d'onde électronique liée est libérée dans le continuum. L'émission de radiation est alors gouvernée par le recouvrement entre ce paquet d'onde accéléré et la fonction d'onde dans l'état fondamental ce qui fixe la phase de la radiation émise. Le processus est donc un processus cohérent qui se reproduit périodiquement (périodicité égale à T_0 et à un changement de signe près pseudo-périodicité égale à $T_0/2$). Ceci implique que seule les fréquences multiples impaires de la fréquence du fondamental peuvent être émises.

Pour les harmoniques du plateau, deux trains d'impulsions attosecondes peuvent être imbriqués mais des conditions spécifiques d'accord de phase [8,9] permettent de s'affranchir de l'un de ces trains et d'obtenir là encore un train d'impulsions attosecondes séparées de $T_0/2$.

3. GÉNÉRATION D'IMPULSIONS SUB-FEMTOSECONDES ISOLÉES

L'émission XUV a donc naturellement lieu sous forme d'impulsions attosecondes et la périodicité du processus implique que ces impulsions attosecondes sont séparées de $T_0/2$. Pour extraire une impulsion unique de ce train, il est nécessaire de briser la symétrie du processus afin de ne permettre l'émission XUV qu'à l'intérieur d'une demi période optique bien définie. Briser cette périodicité est possible en modulant rapidement les paramètres critiques qui définissent l'efficacité de cette émission. Parmi ces paramètres, il est possible de faire varier rapidement l'intensité de l'impulsion fondamentale en utilisant des impulsions ultracourtes (confinement par variation rapide de l'intensité) ou encore l'état de polarisation de l'impulsion fondamentale qui peut aussi changer très rapidement (confinement par variation rapide de la polarisation).

3.1 Confinement par variation rapide de l'intensité du fondamental

Lorsque l'impulsion fondamentale ne dure que quelques cycles optiques, l'émission d'harmoniques est naturellement confinées dans ces quelques cycles optiques. De plus, l'intensité du champ laser change alors significativement d'un demi cycle à l'autre. En particulier, les harmoniques de la coupure ne peuvent être émises qu'autour du maximum de l'impulsion et, dans certains cas, uniquement pendant

une demi période optique. En sélectionnant spectralement les radiations de la coupure, il est alors possible d'obtenir une impulsion sub-femtoseconde unique [5, 10].

Cette expérience a été réalisée [11] en utilisant des impulsions de 7 fs (2-3 cycles optiques à 800 nm) pour irradier des atomes de Néon. L'intensité de l'impulsion fondamentale avait été choisie pour que la fréquence de coupure soit légèrement au dessus du seuil de transmission d'un filtre de Zirconium (~ 80 eV). En refocalisant ces harmoniques grâce à un miroir multicouche ne réfléchissant que les longueurs d'ondes autour de 90 eV, il était possible de sélectionner une gamme spectrale proche de la coupure. L'impulsion XUV sélectionnée fut alors caractérisée comme une impulsion sub-femtoseconde (de durée 650 as) isolée.

Des raffinements supplémentaires ont ensuite permis de générer des impulsions sub-fs encore plus courtes avec cette technique. En particulier, le contrôle de la phase absolue [12] de l'impulsion fondamentale s'est avéré primordial pour sélectionner une impulsion sub-fs unique. En effet, les résultats diffèrent suivant que le champ fondamental oscille dans son enveloppe comme un sinus ou un cosinus. Dans le cas d'un champ en cosinus (avec $t = 0$ au maximum de l'enveloppe de l'impulsion) le champ maximum ne peut être atteint qu'une seule fois pendant l'impulsion alors que dans le cas d'un sinus (phase absolue = $\pi/2$), le champ fondamental atteint sa valeur maximale deux fois durant chaque impulsion ce qui peut conduire à l'émission de deux impulsions attosecondes. Des techniques de contrôle de la phase absolue ont donc été développées et ce contrôle a permis de générer une impulsion de 250 as isolée [5].

La difficulté expérimentale principale de cette approche repose sur le contrôle et la stabilité du laser fondamental. A ce jour, un seul laboratoire (Laboratoire de F. Krausz, Vienne, Autriche) a pu obtenir ces résultats malgré les nombreux efforts fournis par les autres laboratoires. Par ailleurs la nécessité de sélectionner les harmoniques de la coupure impose que la largeur spectrale utilisable est de l'ordre de 10 eV ce qui interdit de générer des impulsions plus courtes que 100 as.

3.2 Confinement par modulation de polarisation du fondamental

La toute première technique qui fut proposée pour générer des impulsions attosecondes isolées via la génération d'harmoniques d'ordres élevés [13] était basée sur l'extrême sensibilité de cette émission XUV par rapport à l'état de polarisation de l'impulsion fondamentale. Cette émission XUV, maximale en polarisation linéaire, décroît très rapidement avec l'ellipticité du fondamental (typiquement cette décroissance est de 50% lorsque l'on passe d'une polarisation linéaire à une polarisation elliptique ayant une ellipticité de 13%). En modulant temporellement l'ellipticité du champ fondamental, il est possible de confiner l'émission d'harmonique autour des instants où la polarisation est linéaire (figure 4). Lorsque cette modulation est rapide, il est possible d'isoler une seule impulsion attoseconde. Le grand intérêt de cette seconde technique est qu'il est possible de confiner temporellement l'émission XUV dans une grande gamme spectrale puisque toutes les harmoniques évoluent de manière similaire en fonction de la polarisation de l'impulsion fondamentale. Potentiellement cette technique doit permettre de générer des impulsions sub-100 as.

3.3 Technique de modulation de polarisation

Différentes techniques ont été proposées pour moduler la polarisation d'une impulsion ultracourte. Par exemple, il est possible de recombinaison deux impulsions ayant des fréquences centrales légèrement décalées ce qui donne un champ dont la polarisation est modulée [13]. Comme illustré sur la figure 5, Il est aussi possible de moduler cette polarisation en utilisant des optiques biréfringentes [14] et cette technique nous a permis de confiner l'émission XUV de manière continue.

Le principe du système de modulation de polarisation que nous avons développé est le suivant. Une impulsion initialement polarisée linéairement est transmise au travers d'une lame biréfringente épaisse ayant ses axes à 45° de la polarisation incidente. Cette lame décompose l'impulsion incidente en deux

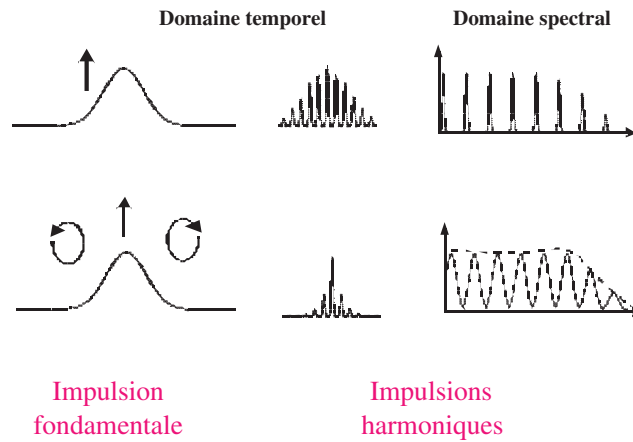


Figure 4. Illustration du confinement de l'émission XUV par modulation de polarisation. Lorsque l'impulsion fondamentale est polarisée linéairement, l'émission XUV est efficace pendant toute l'impulsion et se traduit par l'émission d'un train d'impulsions attosecondes et dans le domaine spectral par des harmoniques bien définies. Lorsque la polarisation est modulée au cours de l'impulsion (de manière à être circulaire dans le front montant puis linéaire au centre de l'impulsion puis circulaire dans le front descendant), l'émission XUV est inefficace partout où la polarisation n'est pas linéaire et est donc confinée autour du centre de l'impulsion. Le train d'impulsion attoseconde est donc confiné et les harmoniques sont élargies jusqu'à la limite où le spectre devient continu si une seule impulsion attoseconde est émise.

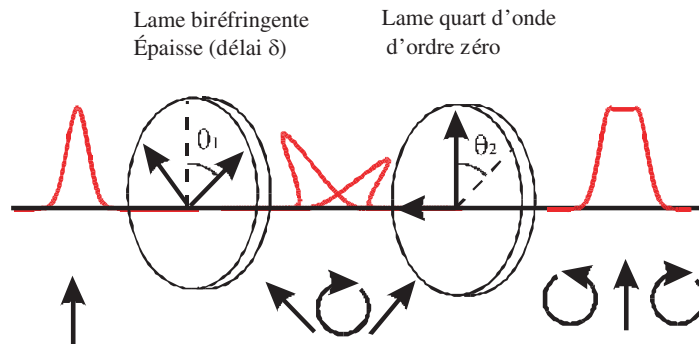


Figure 5. Illustration du système utilisé pour moduler la polarisation d'une impulsion ultracourte. Une première lame biréfringente épaisse sépare l'impulsion incidente en deux impulsions séparées par un délai δ et polarisées perpendiculairement. Une seconde lame $\lambda/4$ d'ordre zéro les transforme en deux impulsions polarisées circulairement, l'une étant circulaire droite l'autre circulaire gauche. Lorsque ces deux impulsions ont la même amplitude (au centre du profil d'intensité) la polarisation résultante est linéaire alors qu'elle reste elliptique ou circulaire ailleurs. L'impulsion sortante a donc une polarisation modulée temporellement.

impulsions polarisées perpendiculairement, l'une se propageant suivant l'axe lent et l'autre suivant l'axe rapide. A la sortie de la première lame on a donc deux impulsions polarisées perpendiculairement et séparées d'un délai τ . Si de plus cette première lame est $\lambda/4$ à la longueur d'onde centrale de l'impulsion le champ résultant est polarisé circulairement au centre de l'impulsion (et polarisé linéairement en début et fin d'impulsion). Cette impulsion est ensuite transmise par une lame $\lambda/4$ d'ordre zéro qui, lorsque ces axes sont à 45° des axes de la première lame (i. e. $\beta = 0^\circ$ ou β est l'angle entre les axes de cette lame et la direction de la polarisation de l'impulsion avant la première lame), transforme la polarisation linéaire en circulaire et vice-versa. A la sortie de ces deux lames, la polarisation résultante est donc circulaire en début et fin d'impulsion et linéaire au centre. Par ailleurs, lorsque cette lame est orientée à un angle différent de 0° , une polarisation linéaire est transformée en polarisation elliptique alors qu'une polarisation circulaire reste transformée en linéaire. Dans ce cas l'impulsion résultante aura une polarisation elliptique en début et fin d'impulsion et linéaire au centre ce qui se traduira par une modulation plus lente de l'ellipticité du champ que pour $\beta = 0^\circ$. Choisir l'orientation de la seconde lame permet donc de contrôler la rapidité d'évolution de l'ellipticité et en retour le confinement de l'émission XUV [14].

Lorsque l'on considère que l'émission XUV est contrôlée uniquement par l'ellipticité du champ (ce qui est le cas si l'intensité du fondamental est quasi constante et si l'atome utilisé est peu ionisé), l'amplitude du signal XUV est divisée par deux lorsque l'ellipticité est égale à ce que nous définissons comme l'ellipticité critique ε_c (typiquement $\varepsilon_c = 13\%$). La largeur à mi-hauteur de l'enveloppe du signal XUV suit alors une loi analytique trouvée par V. Strelkov [15] :

$$\tau_G = \frac{\varepsilon_c \tau^2}{\ln(2)\delta \cos(2\beta)} \quad (1)$$

4. RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

Nous avons testé cette possibilité de confinement temporel de l'émission XUV en modulant la polarisation d'impulsions ultracourtes et en utilisant ces impulsions pour générer des impulsions XUV. Grâce à un système d'inter-corrélation [16, 17], nous avons clairement pu observer que l'émission XUV est confinée par la modulation de polarisation. De plus, nous avons pu valider expérimentalement la loi précédente.

Ayant validé cette technique de confinement temporel de l'émission XUV par modulation de polarisation, nous avons ensuite défini les conditions optimales pour l'émission d'impulsions attosecondes isolées. Ceci requiert de générer une porte de polarisation dont la durée est inférieure à $T_0/2$ ce qui peut être réalisé en considérant la formule (1) en choisissant un délai δ adapté à la

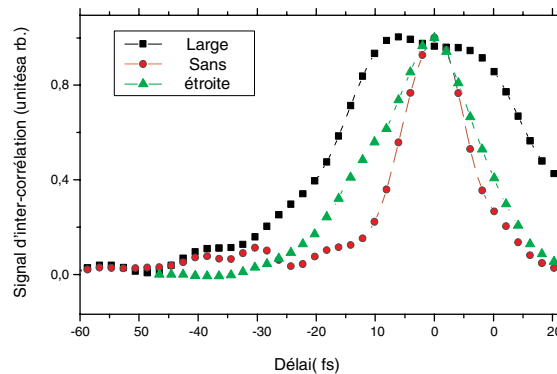


Figure 6. Signal d'inter corrélation entre les impulsions XUV et une impulsion sonde de 9 fs. Le signal est clairement confiné lorsque la polarisation est modulée temporellement (cercle).

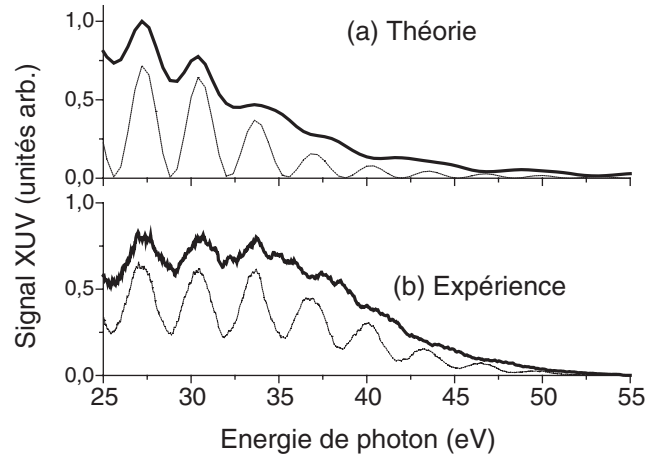


Figure 7. Spectres expérimentaux et simulés obtenus en modulant la polarisation d'une impulsion ultracourte (paramètres $\tau = 5$ fs, $\delta = 6.2$ fs, $\beta = 0^\circ$).

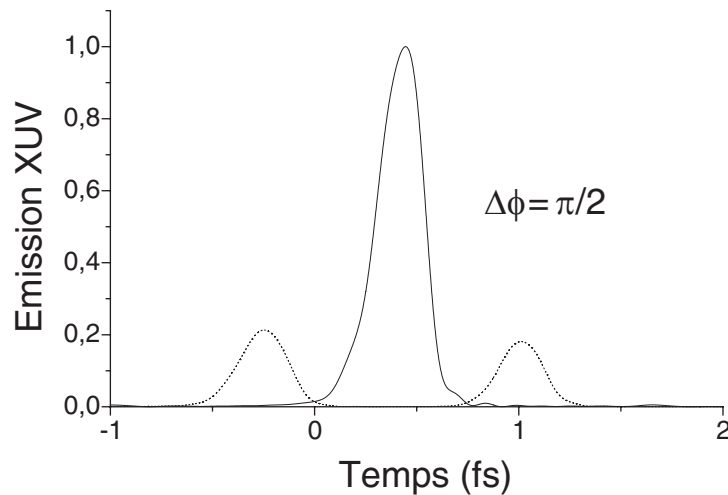


Figure 8. Simulation du profil temporel de l'impulsion XUV (en sélectionnant les photons XUV d'énergie supérieure à 18 eV) pour deux phases absolues différent de $\pi/2$. Pour certaines phases absolues, une impulsion attoseconde unique est émise (trait plein) alors que pour d'autres deux impulsions attosecondes peuvent être émises (pointillés).

durée des impulsions utilisées. Par ailleurs, pour maximiser l'efficacité de l'émission dans la porte, il est nécessaire que l'intensité y soit maximale ce qui impose $\delta \sim \tau$. En combinant ces deux relations et en utilisant une ellipticité seuil typique de 13%, il apparaît que des impulsions dont la durée est inférieure à 7 fs sont optimales pour générer des impulsions attosecondes isolées. Nous avons aussi pu montrer [15] qu'il ne suffisait pas de réaliser une porte vérifiant $\tau_g < T_0/2$ pour émettre une impulsion sub-femtoseconde isolée. En effet, il apparaît que suivant la phase absolue du champ (qui conditionne la manière dont le champ électrique varie sous son enveloppe) on peut isoler une ou deux impulsions même avec une porte aussi courte. Ceci est dû au fait que la position de la porte n'est imposée que par le profil d'intensité alors que les instants d'émission XUV sont fixes par rapport au champ laser. Changer la phase absolue d'une impulsion dont la polarisation est temporellement modulée revient à amener ces instants d'émission possible à l'intérieur ou à l'extérieur de la porte.

Nous avons pu tester ceci en collaboration avec le groupe du Pr M. Nisoli (Milan, Italy) qui dispose d'un laser intense délivrant des impulsions de 5 fs et dont la phase absolue est contrôlée. En modulant la polarisation de ces impulsions de manière à obtenir une porte $\tau_g < T_0/2$, nous avons clairement pu observer que le spectre XUV émis changeait périodiquement avec la phase absolue [18]. Le spectre observé était un spectre continu pour certaines phases absolues (spectre caractéristique de l'émission d'une impulsion attoseconde isolée) et devenait, après avoir changé la phase absolue de $\pi/2$, un spectre présentant des structures harmoniques bien définies mais très larges (largeur de 1.6 eV par harmoniques). Les spectres obtenus étaient en bon accord avec nos simulations [18, 19] qui montrent que dans le domaine temporel, l'émission XUV est alors constitué soit d'une impulsion attoseconde unique (spectre continu) soit de deux impulsions attosecondes (spectre présentant des structures harmoniques dont la largeur est de 1.6 eV par harmoniques).

Des résultats similaires ont été obtenus lorsque les radiations XUV étaient générées dans le Néon. La encore la signature spectrale de l'émission d'impulsions attosecondes isolées ont pu être observé et ce dans d'autres domaine d'énergie (spectre continu observé de 40 à 70 eV et de 50 à 100 eV suivant l'intensité utilisée). Nos simulations montrent que dans ce cas des impulsions attosecondes chirpées sont émises et après compensation du chirp, des impulsions sub-50 as pourraient être obtenues.

5. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

La technique de contrôle de l'émission XUV présentée dans cet article ouvre de nombreuses perspectives en raison de la robustesse du principe sur lequel elle repose. Le seul effet utilisé est l'extrême sensibilité de la génération d'harmoniques à l'état de polarisation du fondamental. Cet effet est très marqué dans tous les atomes et molécules communément utilisés et rend cette technique utilisable dans une large gamme de longueur d'onde. De plus, la sensibilité à l'ellipticité ne change que faiblement avec les longueurs d'onde utilisées ce qui permet de confiner l'émission sur une large gamme spectrale ce qui est une condition nécessaire pour obtenir des impulsions attosecondes très courtes. Au vu des largeurs spectrales qui peuvent être obtenues aujourd'hui avec la génération d'harmoniques d'ordres élevés (des spectres allant jusqu'au keV ont récemment été observés [20]), ou même des développements prochain attendus en utilisant des impulsions fondamentales de plus grande longueur d'onde, il devient envisageable de générer des impulsions sub-10 as.

La grande largeur spectrale des impulsions attosecondes que l'on peut obtenir avec cette technique ouvre aussi des perspectives pour la nouvelle physique attoseconde [21] où les paquets d'onde électroniques sont directement utilisés comme par exemple pour la tomographie moléculaire. Ces techniques permettent d'observer des structures moléculaires stationnaires simplement en utilisant le spectre des harmoniques générées avec ces molécules. Utiliser des impulsions attosecondes isolées de large bande spectrale permettrait de conférer une résolution temporelle à cette technique et ainsi d'imager des fonctions d'ondes moléculaires non stationnaires.

Plus généralement, ces résultats prouvent qu'il est possible de contrôler des dynamiques électroniques au niveau sub-femtoseconde même avec des impulsions de 5 fs et notre approche peut donc être utilisable pour étudier de nombreux phénomènes qui sont gouvernés par des dynamiques électroniques ultra-rapides comme par exemple l'ionisation par impact.

Remerciements

Nous remercions la région aquitaine et la communauté européenne (via laserlab RII3-CT-2003-506350 et XTRA MRTN-CT-2003-505138) qui ont grandement contribuées au financement de ces recherches.

Références

- [1] P. Agostini and L. F. DiMauro, *The physics of attosecond light pulses*. Reports on progress in physics, Institute of physics publishing **67**, 813 (2004).
- [2] Mc Pherson *et al.*, J. Opt. Soc. Am. B **4**, p 595 (1987).
- [3] M. Ferray *et al.*, J. Phys. B. **21**, L31 (1988).
- [4] P. M. Paul *et al.*, Science, **292**, 1689 (2001).
- [5] R. Kienberger *et al.*, Nature **427**, 817 (2004).
- [6] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett., **71**, 1994 (1993).
- [7] M. Lewenstein *et al.*, Phys. Rev. A **49** 2117 (1994).
- [8] Ph Antoine *et al.*, Phys. Rev. Lett. **77**, 1234 (1996).
- [9] P. Salières, A. L'Huillier, and M. Lewenstein, Phys. Rev. Lett., **74**, 3776 (1995).
- [10] I. P. Christov *et al.*, Phys. Rev. Lett., **78**, 1251 (1997).
- [11] M. Hentschel *et al.*, Nature, **414**, 509 (2001)
- [12] A. Baltuska *et al.*, Nature, **421**, 611 (2003).
- [13] P. B. Corkum, N. H. Burnett and M. Y Ivanov, Opt. Lett. **19**, 1870 (1994)
- [14] O. Tcherbakoff *et al.*, Phys. Rev. A **68**, 043804 (2003).
- [15] V. Strelkov *et al.*, J. Phys. B **38**, L161 (2005).
- [16] R. Lopez-martens *et al.*, Phys. Rev. A **69**, 053811 (2004).
- [17] I. Sola *et al.*, Phys. Rev. A **74**, 013810 (2006).
- [18] I. Sola *et al.*, Nature, Phys. **2**, 319 (2006).
- [19] V. Strelkov *et al.*, Phys. Rev. A **74**, 013405 (2006).
- [20] J. Seres *et al.*, Nature, **433**, 596 (2005).
- [21] J. Itatani *et al.*, Nature, **432**, 867 (2004).