Chaire de Physique Quantique-Cours 2014-2015 6^{ème} leçon - 14 Avril 2015

VI.

Impulsions ultra-courtes et lumière intense

La génération d'impulsions intenses femtosecondes de lumière proche IR (ou visible) ouvre un champ d'investigation très riche des phénomènes ultrarapides en physique atomique, moléculaire et des solides. En excitant à l'aide de ces impulsions des jets de gaz rares, on génère des pulses lumineux XUV de quelques dizaines d'attosecondes (1 attoseconde = 10⁻¹⁸s) et des faisceaux de photoélectrons énergiques. On utilise ces pulses XUV et ces faisceaux d'électrons, en conjonction avec les impulsions IR ou visibles qui les ont générés, pour sonder la matière aux temps ultracourts et sur des distances de l'ordre de l'Angström. Ces expériences sont réalisables avec des lasers de laboratoire, grâce à une méthode d'amplification de la lumière mise au point dans les années 1980. Des installations plus puissantes de grande dimension permettent d'atteindre des intensités ouvrant la voie à une physique de la lumière extrême (effets relativistes, physique nucléaire, QED non linéaire...etc).

Plan de la sixième leçon

VI-A. Puissance lumineuse et impulsions ultra-courtes: les progrès des cinquante dernières années

VI-B. Ionisation atomique au dessus du seuil et génération d'harmoniques d'ordre élevé

VI-C. Les impulsions lumineuses atto-seconde et leurs applications

VI-D. La lumière extrême

VI-A. Puissance lumineuse et impulsions ultra-courtes: les progrès des cinquante dernières années

10

10

102

10

10⁰

10-1

1970

Pulse duration (fs)



Évolution de la puissance crête des faisceaux lasers focalisés (W/cm²)

Evolution de la durée des impulsions (femtosecondes)

1990

1980

Corkum et

Krausz,

Nature

Physics,

2000

2007

2010

Les progrès pour augmenter la puissance crête des lasers et diminuer leur durée d'impulsions ont été corrélés au cours des 50 dernières années. Travaux pionniers de E.Ippen, C.Shank et A.Dienes (1972). Progrès révolutionnaires au cours des vingt dernières années.

Quelques ordres de grandeur

Champ électrique atomique (champ de Coulomb du proton à la distance d'un rayon de Bohr):

Le développement perturbatif (en puissances de E) de la réponse atomique cesse d'être valable pour $E_p/E_c \sim 1/25$ soit pour un flux de l'ordre de:

Flux lumineux correspondant à un champ électrique égal à E_c (ordre de grandeur du $P_c = \varepsilon_0 c E_c^2 \approx 7 \, 10^{16} W / cm^2$ flux ionisant un gaz neutre en plasma):

Energie pondéromotrice des électrons et ions libres dans le champ électrique de l'onde laser:

$$E_{pm}^{(m_e)} = \frac{e^2 E_o^2}{4m_e \omega^2} \quad ; \quad E_{pm}^{(M)} = \frac{e^2 E_o^2}{4M \omega^2}$$

L'énergie pondéromotrice des charges libres (électrons ou ions de masse M) données par ces expressions est celle de leur oscillation dans le champ laser à la limite non-relativiste. Dans un champ présentant un gradient d'intensité, les charges subissent une force les expulsant hors des champs forts.

$$E_c = \frac{e}{4\pi\varepsilon_a a_a^2} = 5.1 \ 10^9 V / cm$$

 $P_p \sim \varepsilon_0 c E_C^2 / 625$ $\sim 10^{14} W / cm^2$

Quelques ordres de grandeur (suite)

Flux lumineux (de pulsation $\omega \sim 3.10^{15}s^{-1}$) rendant un électron relativiste dans un plasma:

$$\frac{e^2 E_o^2}{4m_e \omega^2} \sim m_e c^2 \rightarrow E_o \sim 2m_e c \omega / e \sim 10^{11} V / cm$$
$$\rightarrow P_R^{(e)} = \varepsilon_o c E_o^2 = 2.10^{19} W / cm^2$$

Flux lumineux (de pulsation $\omega \sim 3.10^{15}s^{-1}$) rendant des ions (de masse M~10⁴ m_e) relativistes dans un plasma:

 $P_R^{(M)} \sim 10^8 P_R^{(e)} \sim 10^{27} W / cm^2$

Champ électrique E_s permettant la création d'une paire électron-positron par «claquage du vide» (QED non-linéaire): $eE_s(h/mc) \sim mc^2 soit E_s \sim m^2c^3/eh \sim 2.10^{16} V/cm$:

$$P_{\rm s} = \varepsilon_{\rm o} c E_{\rm s}^2 \sim 10^{30} W / cm^2$$



Le principe des lasers à gain large bande et modes verrouillés (Ti-Saphir)

Voir leçon 5



Milieu amplificateur sur large bande spectrale ∆ lasant sur N modes séparés de δv= c/2Ln_i. Le nombre de modes est
N ~ 2Ln_i∆/c ~ 10⁵.

Modèle simple d'un spectre de gain rectangulaire (N modes d'intensité I). Si les modes ont des phases aléatoires, l'intensité moyenne totale est I_m =N.I. Si les modes sont verrouillés, le laser émet un train d'impulsions d'intensité I_p , N fois plus grande que I_m : I_p =N²I=NI_m. Les modes verrouillés saturent le milieu beaucoup plus que lorsqu'ils oscillent sans relation de phase. La



variation transversale de l'indice n_i(I) produit un effet de lentille ne focalisant la lumière que si les modes sont verrouillés. Un diaphragme favorise ce régime en bloquant la lumière sur les bords du faisceau quand les modes oscillent indépendamment (il y a d'autres mécanismes possibles de verrouillage).

Amplification par étalement et recompression des impulsions (CPA)



Le verrouillage des modes limitait dans les années 1980 le flux lumineux dans le laser à quelques GW/cm² à cause de la saturation du milieu amplificateur, soit ~10¹⁴ W/cm² après focalisation du faisceau dans le vide. La méthode CPA (chirped pulse amplification), inventée par Mourou et al, a permis de gagner plusieurs ordres de grandeur grâce à une optique étalant dans le

temps les composantes de fréquence et allongeant les pulses de qqs fs à qqs nanosecondes. Cela diminue leur intensité et permet de les amplifier sans saturation. Un 2nd système de réseaux recomprime ensuite les pulses amplifiés. Un énorme gain en intensité est réalisé. Avec les lasers Ti-Saphir modernes, on obtient des flux lumineux crête atteignant 10^{20-10²²} W/cm².

VI-B. Ionisation atomique au dessus du seuil et génération d'harmoniques d'ordres élevés



Expériences réalisées avec des impulsions laser femtoseconde intenses (10¹⁴ à 10¹⁷ W/cm²) sur des jets atomiques de gaz rares. Ionisation multiphotonique, ionisation au dessus du seuil et génération d'harmoniques d'ordres élevés sont des effets présentant des caractéristiques reliées.

Ionisation multiphotonique et ionisation au dessus du seuil

Commençons par décrire brièvement les expériences d'ionisation multiphotonique réalisées dans les années 1960-80 avec des lasers de puissance inférieure à 10¹⁴ W/cm², dont les effets non-linéaires pouvaient être traités de façon perturbative (en puissances du champ électrique).



Ionisation au dessus du seuil (ATI-above threshold ionization): effets non-perturbatifs



Spectre d'énergie des photoélectrons émis dans l'ATI: Argon excité par pulse laser de 40 fs avec flux croissant de (a) à (d). Après une décroissance initiale, le spectre présente un plateau. Le phénomène ne peut s'expliquer par la théorie des perturbation (Paulus et al, PRL, 72, 2851 (1994)).

Ionisation par effet tunnel dans le potentiel instantané « Coulomb+champ laser »



Validité du régime tunnel quasi-statique

 $\frac{1}{\omega} \gg \tau_{tunnel} \rightarrow \mathcal{E}_{PM} = q^2 E_0^2 / 4m\omega^2 \gg E_I / 4$

Régime tunnel décrit correctement l'ionisation pour une énergie pondéromotrice plus grande que $E_I/2$. Pour $E_I \sim 10 \text{ eV}$ et $\omega \sim 3.10^{15} \text{s}^{-1}$, il faut $E_{PM} > 5 \text{eV}$, soit $P > 10^{14} \text{ W/cm}^2$

Le développement en puissances de la perturbation cesse d'être valable pour $E_0 \sim E_c/25$ (voir plus haut).



peut alors être diffusé une seconde fois sur le noyau en s'échappant sous forme de photo-électron, ou être re-capturé, l'énergie libérée apparaissant sous forme d'un photon XUV de grande énergie (voir plus loin).



Description qualitative de l'ATI



Pulses de 40 fs, fréquence $\omega/2\pi$ =470 THz (λ =630nm). L'énergie \mathcal{E}_{PM} de l'électron est de l'ordre de 4 à 5 eV, alors que E_{I} varie de 26eV (He) à 12 eV (Xe) (Paulus et al, ibid). Le traitement perturbatif reste gualitativement valable pour He $(E_{I} = 5 \epsilon_{PM})$, mais non pour les autres gaz qui ont un potentiel d'ionisation de l'ordre de 2 à 3 \mathcal{E}_{PM} . L'ionisation tunnel se manifeste pour eux par un spectre d'énergie électronique présentant une partie décroissante initiale *suivie d'un plateau*, puis d'une descente finale. La décroissance initiale (jusqu'à une énergie ~ 2 E_{PM}) correspond aux électrons créés à la fin du pulse, qui s'échappent avant que le champ n'ait pu les ramener jusqu'à l'ion. Le plateau correspond aux électrons ayant subi une recollision et ayant

rebondi en étant davantage accélérés par le champ laser, jusqu'à une énergie maximale de 10 E_{PM}, correspondant à la décroissance finale du spectre. *La recollision ne se produit que pour un laser polarisé linéairement. Pour une polarisation circulaire ou elliptique, il n'y a pas de recollision, donc pas de plateau.*

Génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG)

La photo-ionisation multiphotonique et l'ATI s'accompagnent d'un autre effet spectaculaire, la génération d'harmoniques d'ordre élevé convertissant les pulses infrarouges ou visibles en pulses XUV (High Harmonic Generation, HHG). Dans certaines conditions, ces pulses sont très brefs, dans le domaine des attosecondes. Comme pour la photo-ionisation, on peut distinguer le régime d'intensités faibles, décrit par une approche perturbative et un régime de forte intensité donnant lieu à un phénomène de plateau analogue à l'ATI. Nous nous limitons ici à une description qualitative du spectre d'harmoniques. Une étude temporelle du phénomène, expliquant la formation des pulses ultra-courts sera abordée plus loin.



Régime perturbatif: l'atome absorbe (2n+1) photons de fréquence vet émet un photon de fréquence (2n+1)v. L'intensité varie généralement en (I/I_0)²ⁿ⁺¹ et décroit avec n ($I < I_0$). C'est la généralisation du processus de doublage de fréquence (triplement dans un gaz) découvert par Franken en 1961. Régime "tunnel": l'efficacité de la génération d'harmonique décroît avec n, puis atteint un plateau. Le champ haute fréquence est émis par recombinaison électron-ion au moment de la recollision. Repris



ollision. Repris de Laser Focus (01-2012)

Ordres de grandeur des fréquences et des longueurs d'onde photoniques et électroniques

Fréquence maximale et longueur d'onde minimale des pulses XUV générés par HHG en fonction de l'intensité laser:

$$\hbar\omega_{XUV}^{\max} \sim E_I + 3E_{PM} \sim E_I + \frac{3e^2E_o^2}{4m\omega_{IR}^2} \sim E_I + \frac{3e^2P}{4\varepsilon_o mc\omega_{IR}^2}$$

 $\omega_{_{I\!R}} = 2,3.10^{^{15}} s^{^{-1}} (\hbar\omega_{_{I\!R}} \sim 1,4eV); E_{_I} = 15,7 \, eV (Argon); P = 2.10^{^{14}} W / cm^2 \rightarrow \hbar\omega_{_{XUV}}^{\text{max}} \sim 30 \, eV$

Un pulse laser de 2.10¹⁴ W/cm² génère jusqu'à l'harmonique 21 du champ IR La longueur d'onde du champ XUV est de l'ordre de 40 nm.

Energie maximale de l'électron au moment de la recollision et longueur d'onde de de Broglie minimale associée:

$$E_{recol}^{\max} \sim 3E_{PM} \sim \frac{3e^2P}{4\varepsilon_0 mc\omega_{IR}^2} \sim 14eV (pour P = 2.10^{14} W / cm^2)$$
$$\lambda_{dB}^e \sim \frac{h}{\sqrt{2mE_{recol}}} \sim 0.3nm$$

L'onde électronique revenant sur l'ion a une longueur d'onde de l'ordre de l'Angström, beaucoup plus petite que celle de la lumière XUV. Elle peut servir de sonde pour reconstruire la fonction d'onde atomique ou moléculaire (voir plus loin).

VI-C. Les impulsions lumineuses atto-seconde et leurs applications



Un pulse laser de période T= $2\pi/\omega$ de l'ordre de 2-3 fs photoionise les atomes deux fois par période (aux moments où le champ est le plus intense) et produit au cours de la recollision une impulsion très courte de lumière XUV. Il se forme ansi un train de pulses XUV séparés de π/ω dont le

spectre est composé de raies séparées de ω/π (peigne de fréquences $(2n+1)\omega$). On retrouve le même spectre que celui donné par l'image perturbative. L'ionisation par effet tunnel suggère que les composantes spectrales du champ XUV doivent être verrouillées en phase, de façon à interférer constructivement pendant de très brefs instants, d'une fraction de femtoseconde. La durée temporelle des impulsions dépend du nombre de modes en phase. Dans les premières expériences, cette durée n'était pas mesurée directement mais inférée de la relation de phase entre les composantes spectrales voisines (voir page suivante). Dans une étape ultérieure, on a réalisé des expériences permettant d'isoler des pulses attosecondes individuels et de mesurer directement leur durée. (voir aussi dans la suite).



des valeurs de n successives (P.M.Paul et al, Science, 292, 1689 (2001)).

Isoler une impulsion attoseconde

Krausz et Ivanov, RMP,81, 164 (2009)



Un train de pulses femtosecondes IR intenses ultracourts (deux à trois oscillations du champ dans chaque pulse - voir leçon 5) est envoyé sur le jet d'Argon. Pour avoir une génération de pulse XUV reproductible il faut stabiliser la forme des impulsions IR en verrouillant la phase de la

porteuse à celle de l'enveloppe (réglage de l'offset du peigne comme décrit à la leçon 5). On obtient ainsi des impulsions régulières. On peut ajuster l'offset pour que le maximum d'amplitude de la porteuse corresponde au pic de l'enveloppe. Pour isoler une de ces impulsions des autres dans le cas où on souhaite préparer un seul pulse attoseconde, on utilise un contrôle par polarisation: le faisceau IR est polarisé circulairement, ce qui ne donne pas de génération HHG. Pour un pulse donné, on utilise un dispositif électro-optique rendant transitoirement la polarisation linéaire. Le photon XUV de plus grande énergie est créé par un électron libéré par effet tunnel au voisinage du maximum d'oscillation négatif précédent le pic central. Cet électron revient en collision avec l'ion au voisinage du zéro du champ après ce pic et une impulsion attoseconde est émise à cet instant. En filtrant la lumière XUV au cut-off du plateau, on isole ce pulse de celui moins énergique créé une demi-période IR plus tard.



Principe de la métrologie attoseconde



Les pulses IR et XUV sont focalisés sur le jet d'atomes cibles avec un délai ajustable. Le pulse XUV ionise les atomes avec un taux d'émission de photoélectrons dépendant du temps, reproduisant le profil de son intensité.

Les photoélectrons sont accélérés dans le champ IR. Leur énergie est modifiée par une quantité qui dépend de façon monotone du potentiel vecteur du champ IR au moment où les photons ont été éjectés. L'analyse de la distribution finale de l'énergie des électrons permet de remonter à la variation temporelle des deux champs IR et XUV (voir pages suivantes). Le champ IR joue le rôle du potentiel électrique balayé dans le temps d'une *caméra à balayage de fente (« streak camera»)* qui transforme un signal lumineux très rapide en une distribution spatiale (ou énergétique) des photoélectrons générés par ce signal.



La variation de vitesse des photoélectrons produite par le champ IR après le passage du pulse ($A_x(t)=0$) est donc:

$$\Delta v_x = \frac{q}{m} A_x(t_0)$$

La variation de la distribution de vitesse des électrons induite par le pulse IR permet de reconstruire la variation temporelle du pulse XUV. La résolution temporelle est $\Delta T/(S/B)$ où $\Delta T \sim 1,2$ fs est la demi période du pulse IR et S/B le rapport signal-bruit de la détection électronique.

Mesures d'impulsions attoseconde double et

а Final electron energy [eV] $\Delta W(t) = -v_0 A_{\rm L}(t)$ 85 ≈ 1.2 fs 75 65 Time dN/dW Final electron b $\Delta W(t) = -v_0 A_L(t)$ energy [eV] 85 75 W 65 Time dN/dW Final electror energy [eV] С 85 dN/dW

Krausz et Ivanov, RMP,81, 164 (2009)

simple

Figure a: Lorsque la porteuse et l'enveloppe du pulse IR ne coïncident pas, deux pulses XUV sont générés à deux instants t_1 et t_2 , séparés par ΔT = 1,2 fs. La distribution de vitesse (et d'énergie des photoélectrons) présente alors deux pics traduisant les variations de vitesses proportionnelles à $A(t_1)$ et $A(t_2)$ induites par le pulse IR. Le signal de photoélectrons permet de calibrer la mesure des temps (ici, une variation de 20 eV de l'énergie électronique correspond à 1,2 fs).

Figure b: un pulse femtoseconde « centré » produit une seule impulsion XUV que la distribution des photoélectrons émis permet de mesurer: durée de l'impulsion de ~ 400 attosecondes.

Figure c: pour référence, distribution d'énergie des photoélectrons en absence de pulse IR



En variant le délai entre les pulses IR et XUV, on balaie t_0 . La variation de l'énergie des photoélectrons permet de reconstruire A(t) et par dérivation E(t). Il faut un ensemble de pulses identiques pour reconstruire le champ IR.



Tomographie de l'orbitale électronique de la molécule N₂

Principe de l'expérience: un premier pulse laser aligne l'axe de la molécule selon sa direction. Après un délai ajustable, l'axe a tourné et un second pulse IR génère par HHG des harmoniques d'ordre élevé. Le spectre de ces harmoniques, qui dépend de l'angle entre l'axe moléculaire et le champ laser IR, permet de remonter par analyse tomographique à la fonction d'onde des électrons externes de la molécule N_2 . L'onde électronique de recollision joue le rôle de « sonde » permettant de reconstruire la fonction d'onde des.



La science de l'attoseconde et de l'Angström

La génération de pulses XUV à partir de pulses femtosecondes IR (ou visibles) intenses a ouvert un champ immense à l'étude des processus ultrarapides dans les molécules et les solides. Les champs intenses et de durée très courte, dont l'ordre de grandeur est comparable ou plus grand que celui des champs moléculaires internes, permettent de modifier de façon contrôlée des processus dynamiques se déroulant à l'échelle de quelques attosecondes, donnant des outils précieux pour étudier des processus quantiques ultrarapides en physique et en chimie.

Les pulses XUV permettent d'exciter de façon résolue dans le temps un électron dans un atome ou une molécule et on peut ensuite suivre son évolution sous l'effet de la perturbation apportée par le pulse IR (ou visible) servant de sonde. On peut également utiliser l'onde électronique de recollision comme une sonde dont les états finals de collision sur l'ion parent fournissent des renseignements spatiaux, avec la résolution de l'Angström, sur la structure des atomes, des molécules ou des solides étudiés (tomographie et holographie quantique). Les flux lumineux nécessaires sont généralement de l'ordre de 10¹⁴-10¹⁶ W/cm². D'autres possibilités fascinantes sont ouvertes par des flux encore plus intenses (page suivante).



Une application prometteuse: accélération des électrons dans le champ de sillage d'un plasma excité par laser (wake-field)



Un pulse laser intense (10¹⁸-10¹⁹ W/cm²) traversant un gaz de H ou He crée un plasma. La pression pondéromotrice du pulse laser sépare transitoirement les électrons légers des ions lourds et crée une onde plasma longitudinale qui accompagne le champ laser dans son sillage.

Un paquet d'électrons piégé dans la vague voit un gradient de champ électrique gigantesque (10¹⁰-10¹¹ V/m) qui l'accélère sur quelques millimètres à des énergies relativistes (centaines de MeV). L'effet pondéromoteur du laser, amplifié par l'onde de plasma, transforme la force électrique transversale en une énorme force longitudinale accélératrice. Expériences prometteuses pour des accélérateurs compacts à applications dans les domaines biologique ou médical par exemple.

Proposition initiale de Tajima et Dawson, PRL 43, 267 (1979)

Quelques références sur la physique des impulsions ultracourtes et la lumière extrême

G.Mourou, C.P.J Barry et M.D Perry, « Ultrahigh-Intensity Lasers: Physics of the extreme on a Tabletop », Physics Today, 51, 22 (1998).

A.Zewail: « Femtochemistry: Atomic scale dynamics of the chemical bond using ultrafast lasers », Nobel lectures in chemistry, World Scientific (2003)

G.Mourou, T.Tajima et S.Bulanov, « Optics in the relativistic regime », Rev.Mod.Phys. 78, 309 (2006)

H.Niikura et P.Corkum, «Attoecond and Angström Science», Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics, 54, 511 (2007)

P.Corkum et F.Krausz, « Attosecond Science », Nature Physics, 3, 381 (2007).

F. Krausz et M. Ivanov, «Attosecond Physics», Rev.Mod.Phys. 81, 163 (2009)

Références sur la spectroscopie de haute résolution et la mesure du temps (5^{ème} leçon):

-C.Audoin et B.Guinot, « Les Fondements de la mesure du temps », Masson (1998);

« The Measurement of time », Cambridge U.Press (2001)

-F.Riehle, « Frequency Standards », Wiley-VCH, (2004)

-T.W.Hänsch, « Passion for Precision (Nobel Lecture) », Rev.Mod.Phys. 78, 1297 (2006).

-Jun Ye et S.T. Cundiff (éditeurs) « Femtosecond optical frequency comb technology », Springer (2010).

-A.Derevianko et H.Katori, « Physics of Optical Lattice Clocks », Rev.Mod.Phys. 83, 331 (2011).

-A.Ludlow, M.M.Boyd, Jun Ye, E.Peik et P.O.Schmidt, « Optical Atomic clocks », Rev.Mod.Phys., accepté le 15 Mars 2015.

Références sur le contrôle des particules quantiques et l'information quantique (4^{ème} leçon):

Voir cours des années antérieures de la chaire de physique quantique, en particulier le cours 2012-2013 « Contrôle de particules quantiques isolées ».

Références sur le refroidissement laser des atomes et les gaz quantiques (2^{ème} et 3^{ème} leçon):

Claude Cohen-Tannoudji et D. Guery-Odelin, « Advances in Atomic Physics: an overview », World Scientific, 2011 (plusieurs chapitres sur les atomes froids et multiples références utiles pour d'autres aspects du cours de cette année).