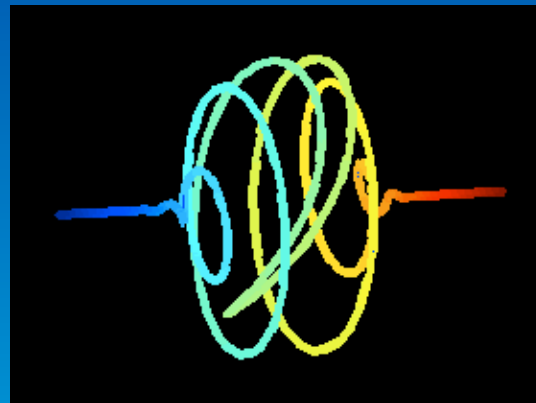


Génération et caractérisation d'impulsions VUV attosecondes



Amelle Zaïr

*Laboratoire CELIA-Université Bordeaux I
Groupe harmoniques et applications*

Motivation: expérience pompe-sonde

Femtochimie

5 fs-1 ps

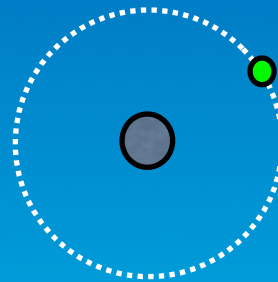
réaction chimique

Zewail, prix Nobel 1999

Attophysique

dynamique électronique

1^{ère} orbite de Bohr ~ 150 as



Impulsions laser les plus courtes

3.8 fs

Nécessite de développer des sources d'impulsions attosecondes

Impulsions VUV attosecondes

$$1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$$

$$\Delta t \Delta E = \text{constante}$$

$$100 \text{ as} \sim 20 \text{ eV}$$

spectre large
relation de phase



Plan des travaux de thèse

Source VUV:

La génération d'harmoniques d'ordres élevés

Contrôle de l'émission VUV:

Production d'impulsions laser sub-10fs

Confinement temporel du train d'impulsions attosecondes

Caractérisation de l'émission VUV:

Reconstruction temporelle des impulsions attosecondes => RABITT

regime 30 fs

regime sub-10fs

Conclusions et perspectives

Plan de la présentation

Source VUV:

La génération d'harmoniques d'ordres élevés

Contrôle de l'émission VUV:

Production d'impulsions laser sub-10fs

Confinement temporel du train d'impulsions attosecondes:

Caractérisation de l'émission VUV:

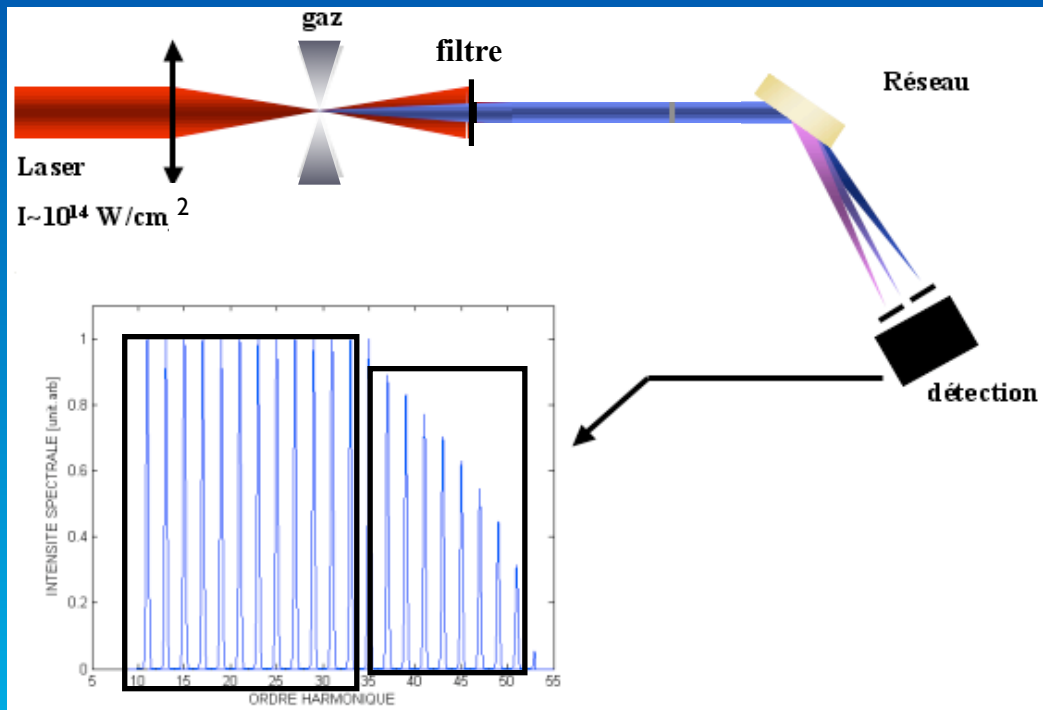
Reconstruction temporelle des impulsions attosecondes => RABITT

regime 30 fs

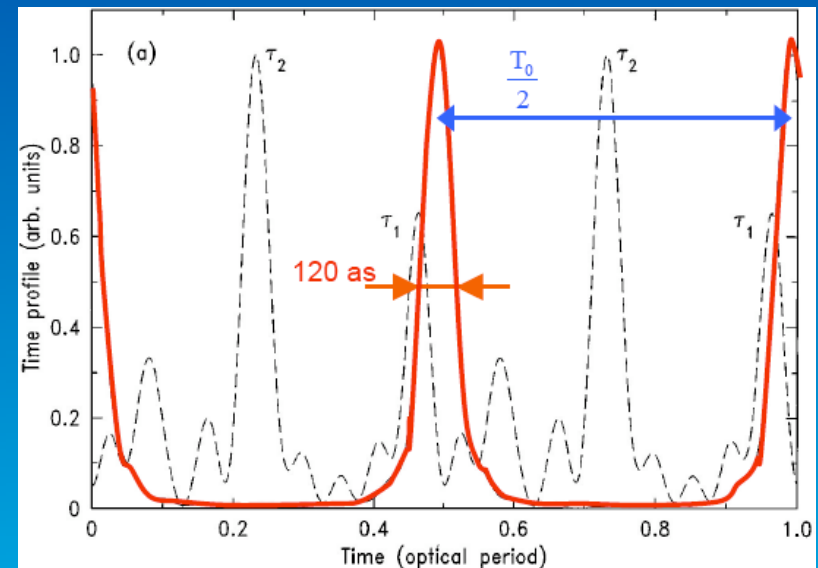
regime sub-10fs

Conclusions et perspectives

Caractéristiques de la source VUV harmonique



plateau coupure
"cut off"



train as

Caractéristiques de la source VUV harmonique

Spectre large [eV-100 eV]

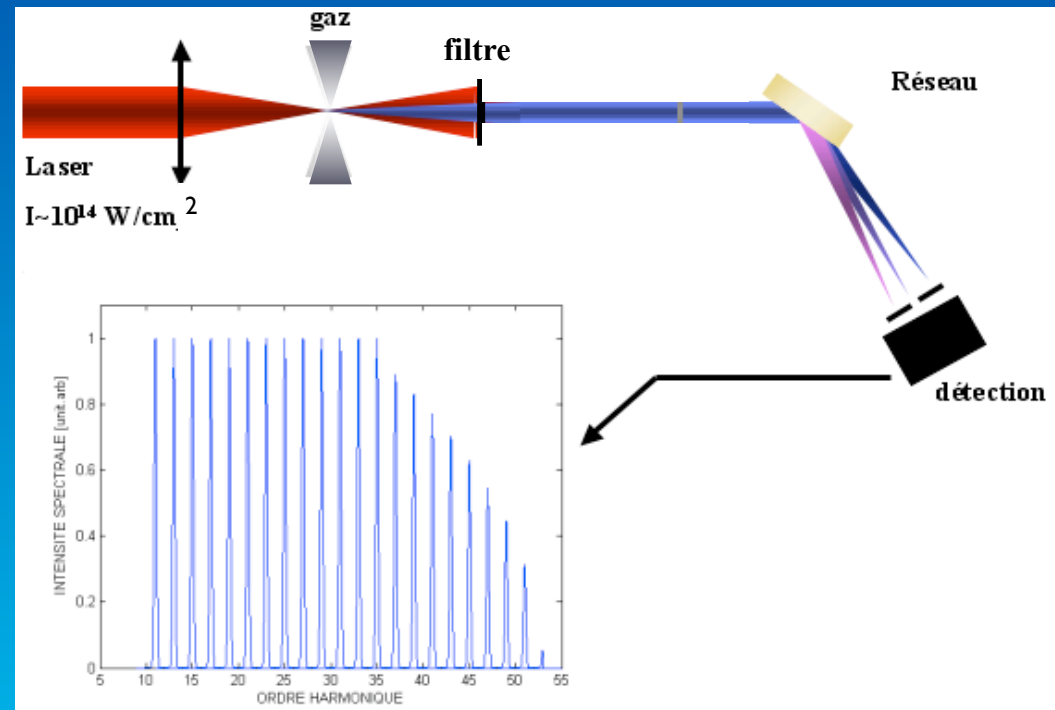
Efficacité (~ 40nm,Ar) 10^{-6}

Cohérence spatiale et temporelle

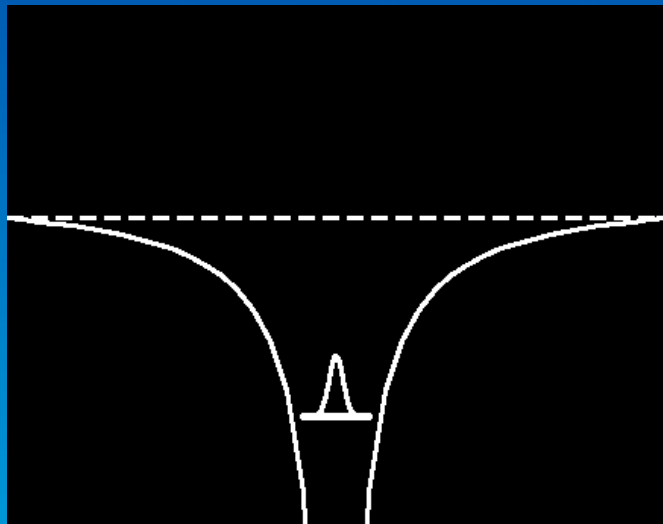
Récurrence (laser) kHz

Durée de l'enveloppe du train [fs]

Durée des impulsions dans le train [as]

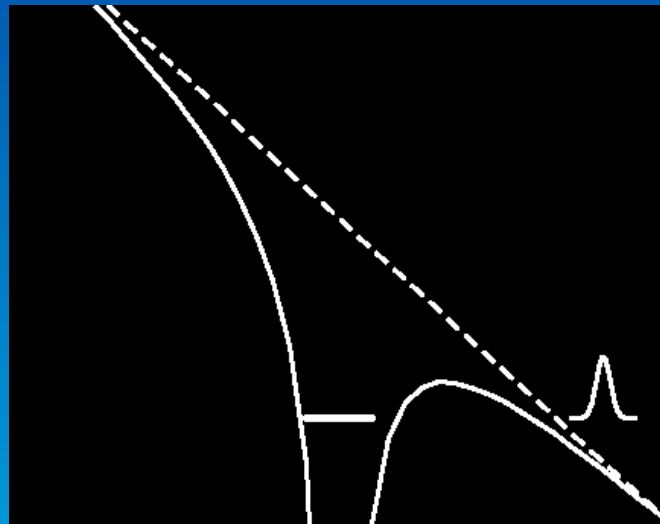


Modèle semi-classique en trois étapes



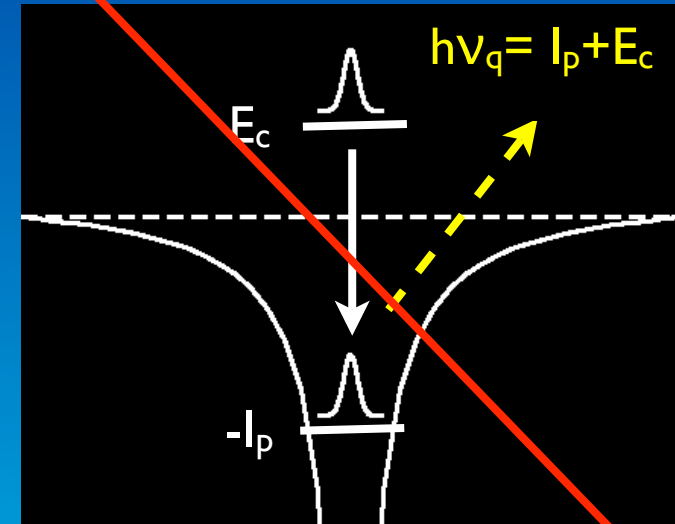
Ionisation par effet tunnel

périodicité $T_0/2$



Oscillation dans le champ

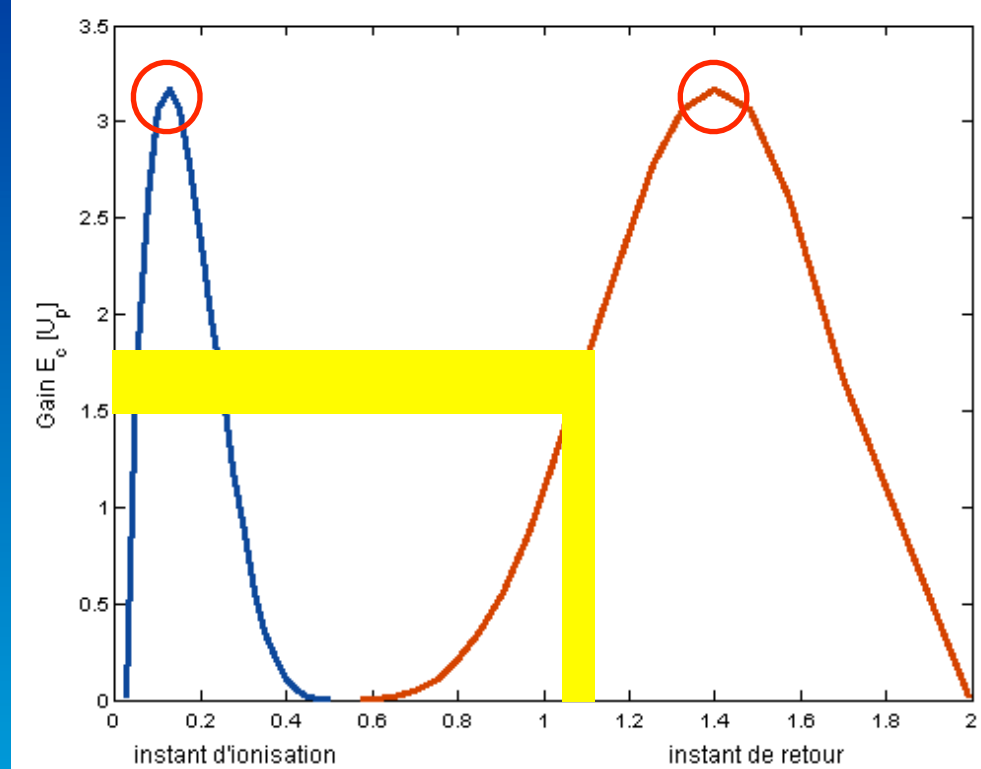
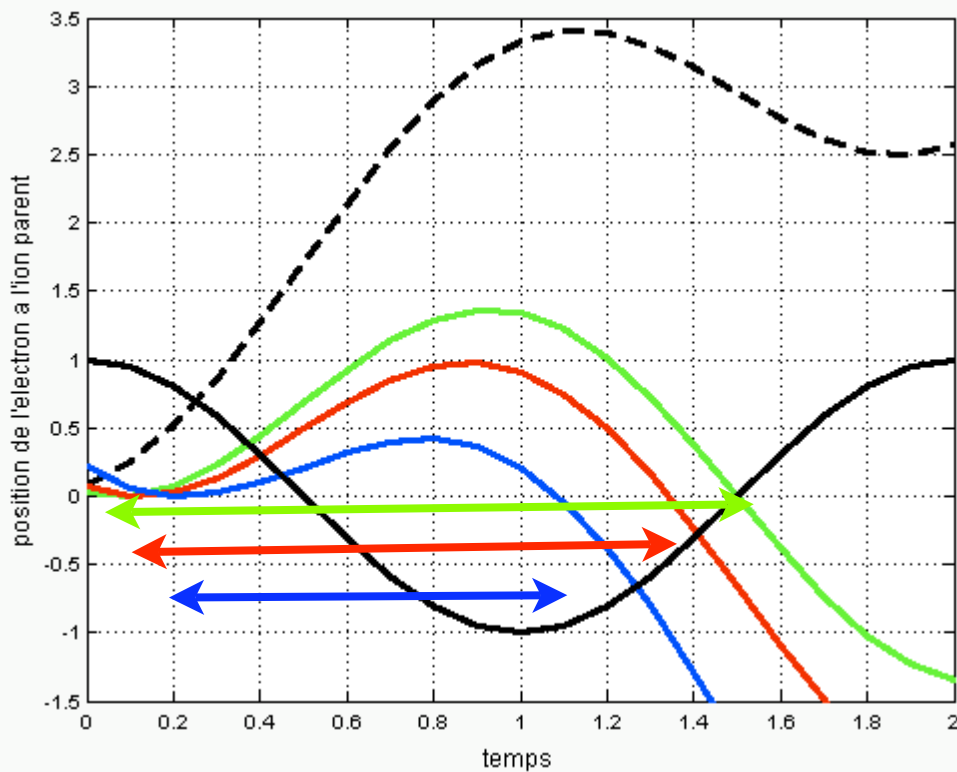
gain en énergie cinétique E_c



Recombinaison radiative

$h\nu_q = I_p + E_c \leq I_p + 3.17 U_p$

Trajectoires électroniques



trajectoire de la coupure : E_c max

Loi de la coupure: $h\nu_q = I_p + 3.17 U_p$

trajectoires "courtes"

trajectoires "longues"

Etat de l'art

Prédiction: train d'impulsions attosecondes produit à partir de la génération d'harmoniques d'ordres élevés

Farkas et al, 1992
Harris et al, 1993
Antoine et al, PRL 1996

Mesure temporelle de l'enveloppe harmonique Bouhal et al, PRA 1998 **10 fs**

Mesure de la durée moyenne des impulsions dans le train Paul et al, Science 2001 **250 as**

Mesure de la durée d'une unique impulsion attoseconde Hentschel et al, Nature 2001 **650 as**

Génération d'impulsion attoseconde unique:
impulsion laser 5 fs
sélection spectrale de la coupure

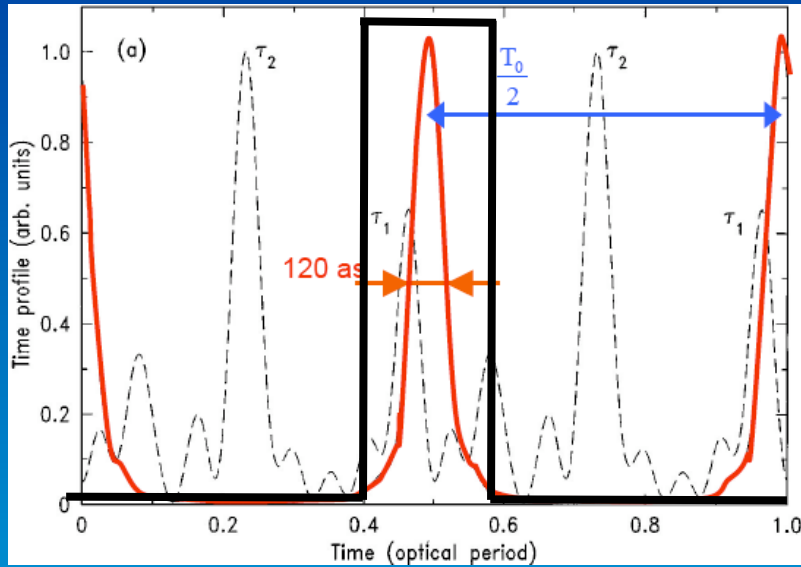
Impulsion attoseconde isolée

ALMOF (Amstredam)	30fs
LLC (Lund)	30fs-10fs
CELIA (Bordeaux)	30fs-10fs
MPQ (Viennes)	5fs
INFM (Milan)	5fs
IESL (Heraklion)	20fs
CEA-Saclay (Paris)	30fs -50fs
LOA (Paris)	30fs
Imperial College (Londres)	30fs
HILL (Szeged)	20fs
ETH (Zurich)	30fs - 5fs
NRC-Ottawa (Canada)	60fs - 30fs
FOCUS (Michigan)	30fs

Impulsion attoseconde isolée

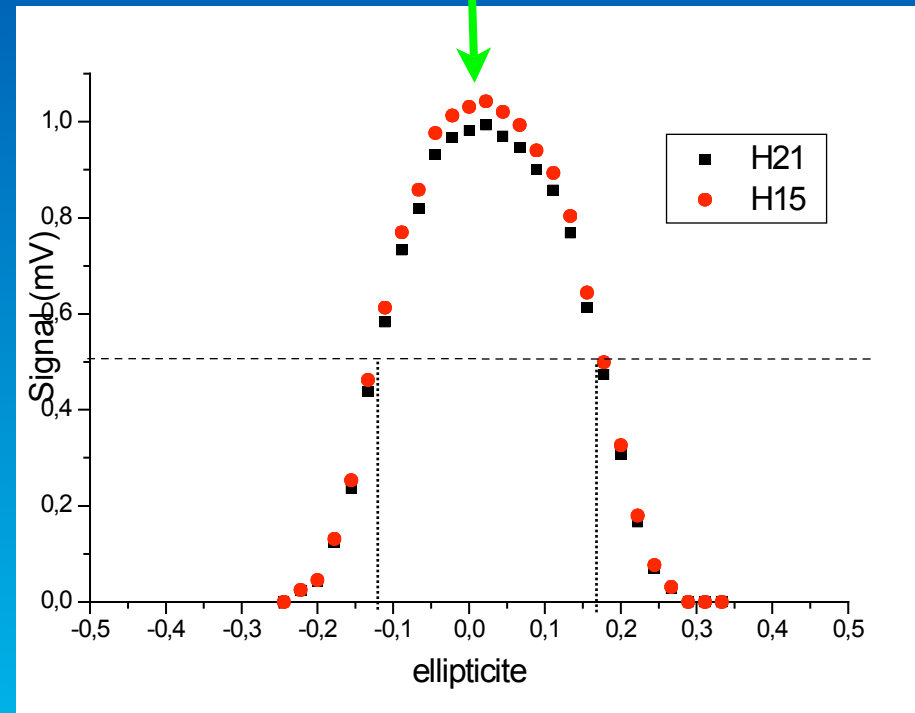
ALMOF (Amsterdam)	30fs
LLC (Lund)	30fs-10fs
CELIA (Bordeaux)	30fs-10fs
MPQ (Viennes)	5fs
INFM (Milan)	5fs
IESL (Heraklion)	20fs
CEA-Saclay (Paris)	30fs -50fs
LOA (Paris)	30fs
Imperial College (Londres)	30fs
HILL (Szeged)	20fs
ETH (Zurich)	30fs - 5fs
NRC-Ottawa (Canada)	60fs - 30fs
FOCUS (Michigan)	30fs

Impulsion attoseconde isolée



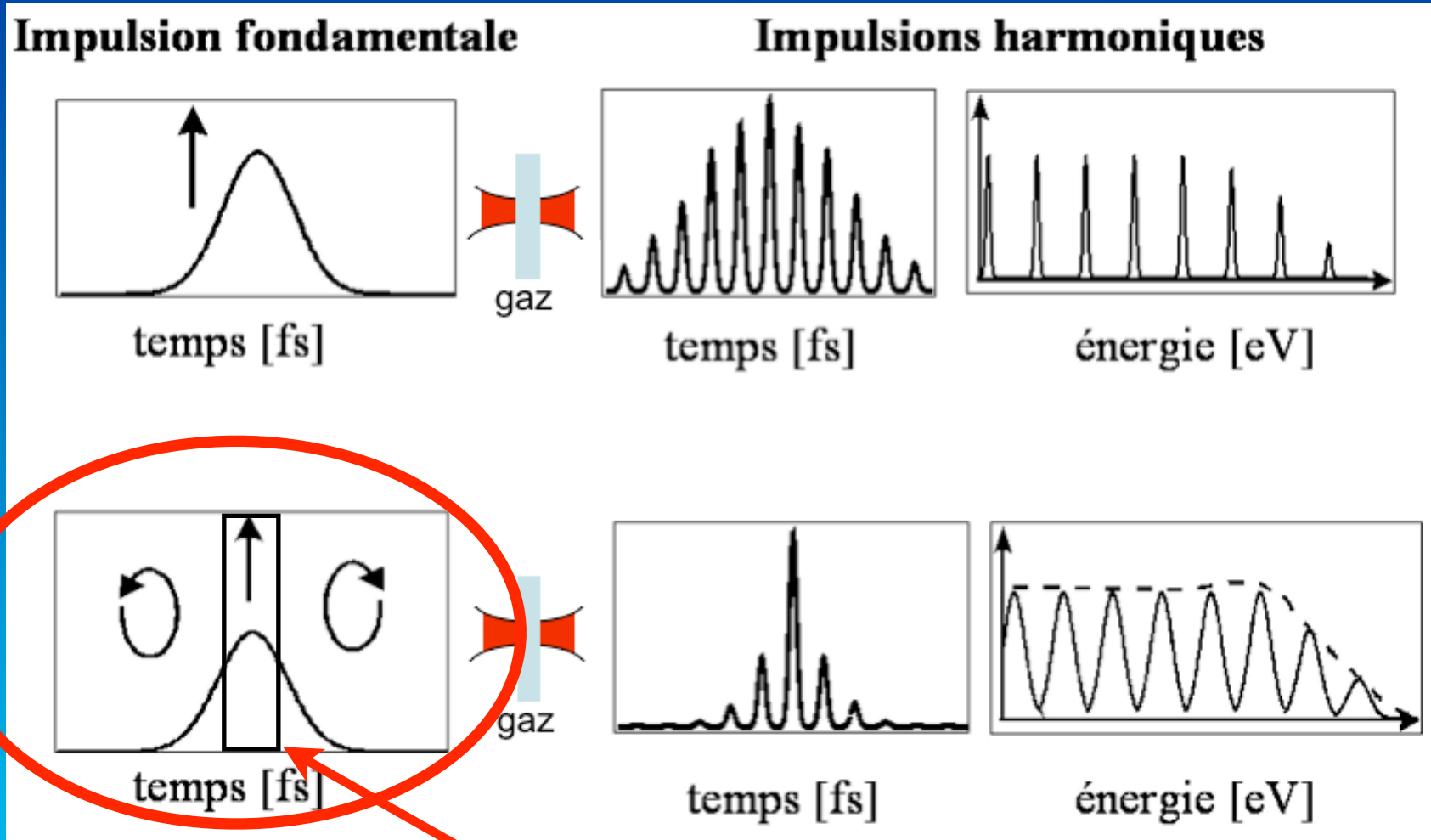
Antoine et al, PRL 1996

polarisation linéaire $\epsilon=0$



$\epsilon_c \sim 13\%$

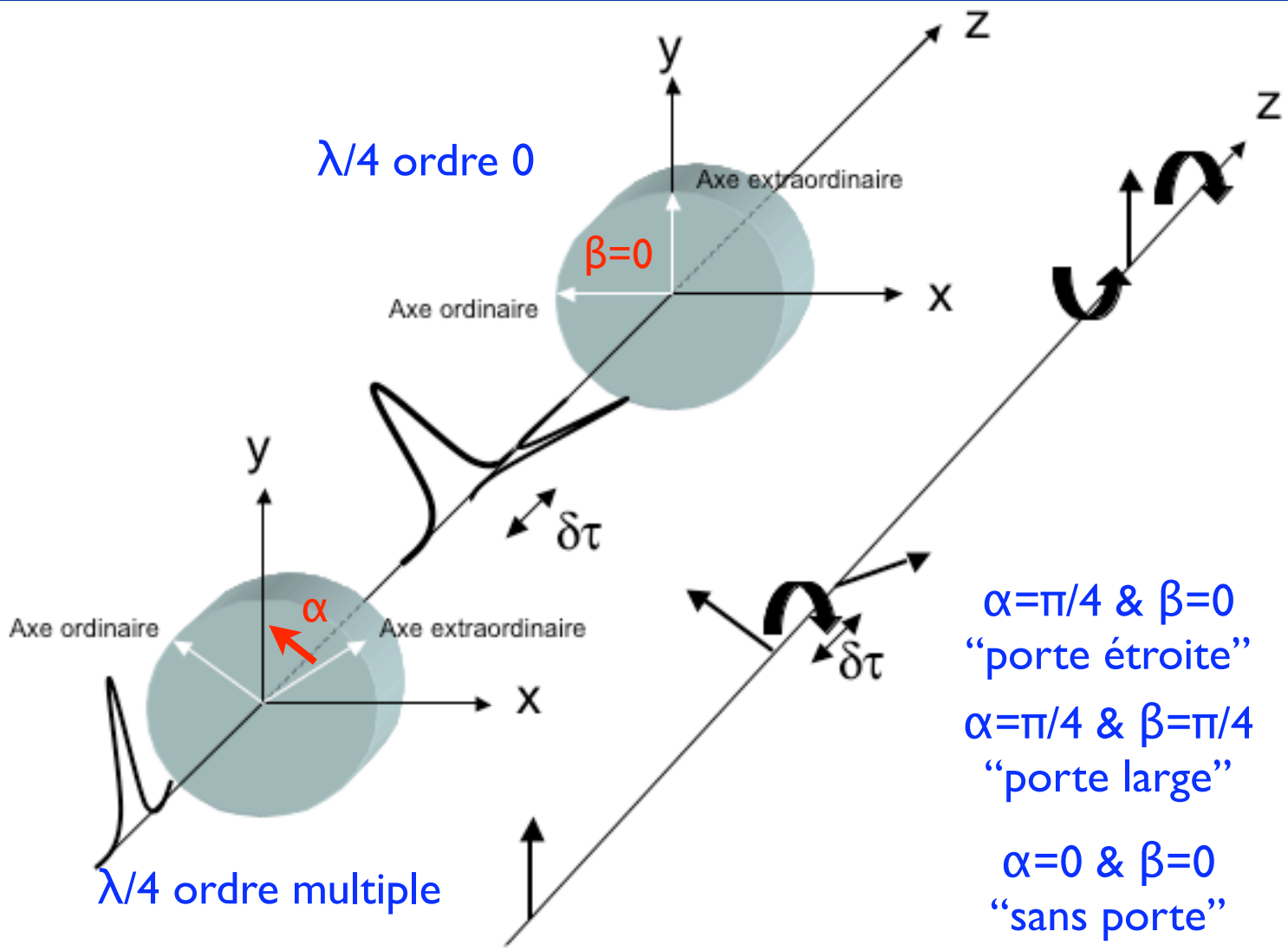
Principe du confinement temporel harmonique



porte d'ellipticité

Conception de la porte d'ellipticité

$\lambda/4$ ordre 0



Constant these 1997

$\alpha = \pi/4$ fixé

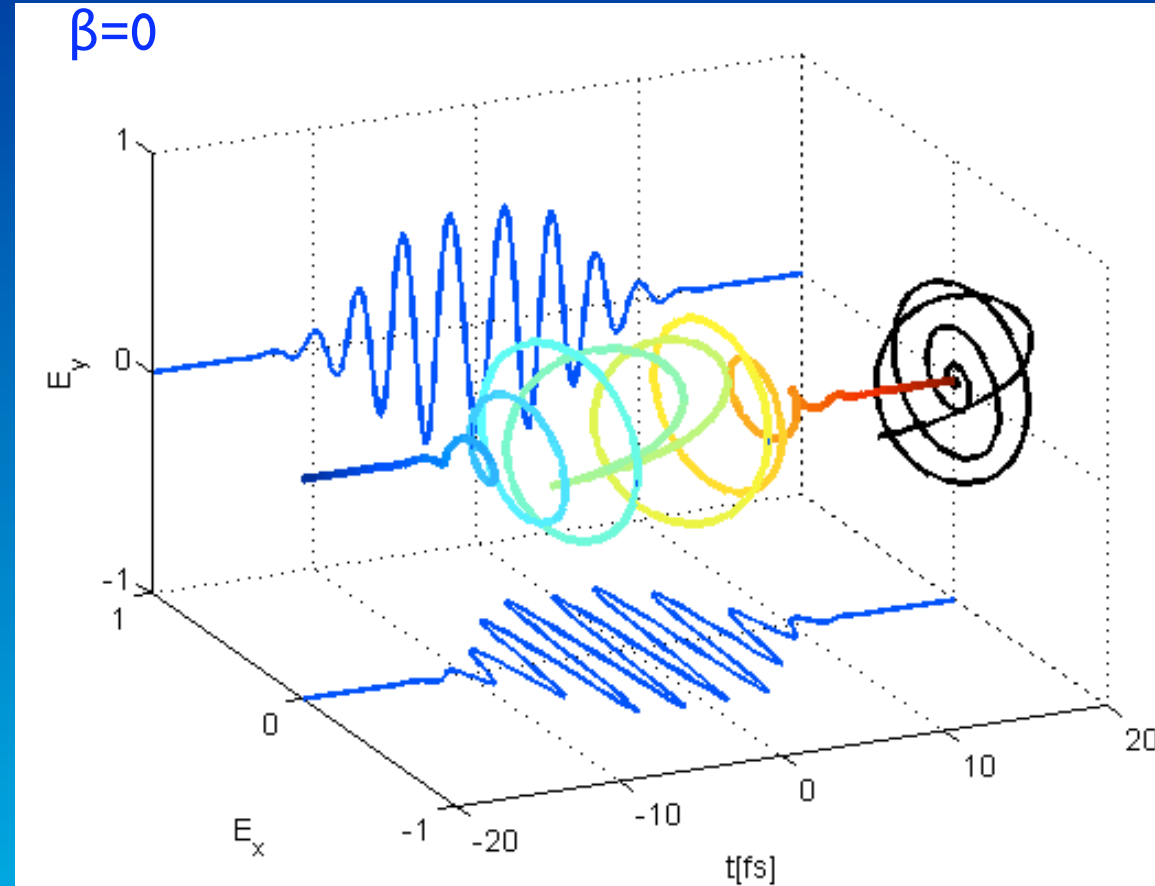
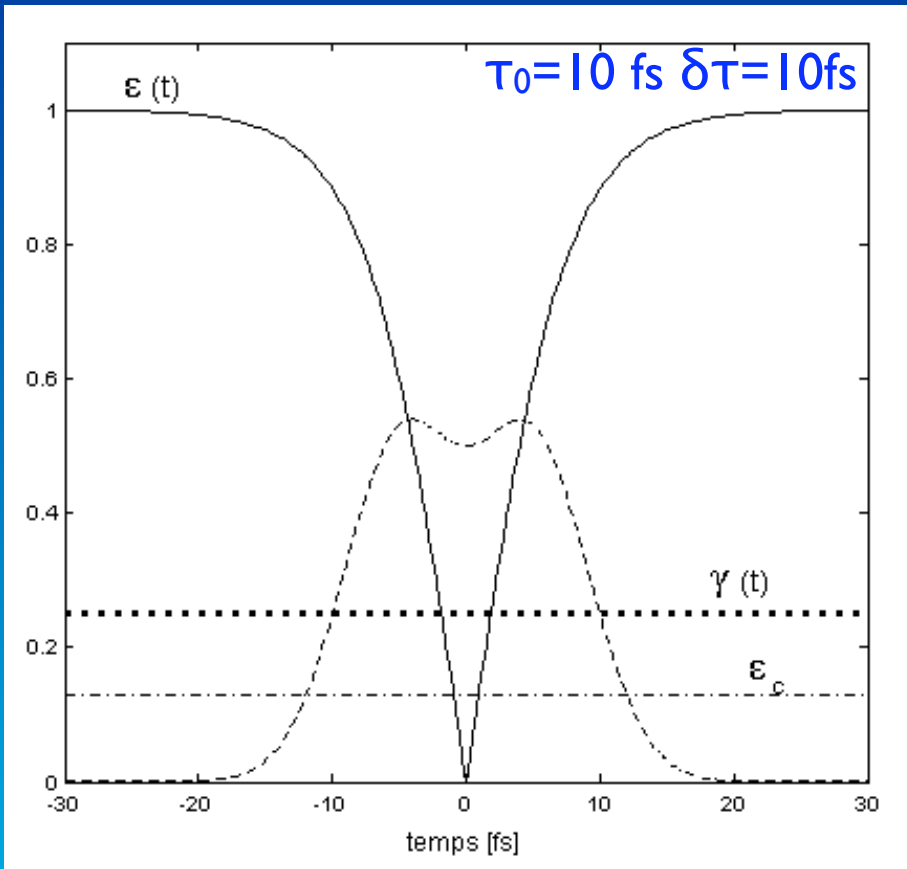
$\delta\tau$

β variable

Tcherbakoff et al, PRA 2003
 Etude spectrale et temporelle sur impulsions "longues" (30 fs)

Extension à sub-10fs
 => impulsion attoseconde isolée + étude spectrale et temporelle

Porte d'ellipticité: configuration étroite

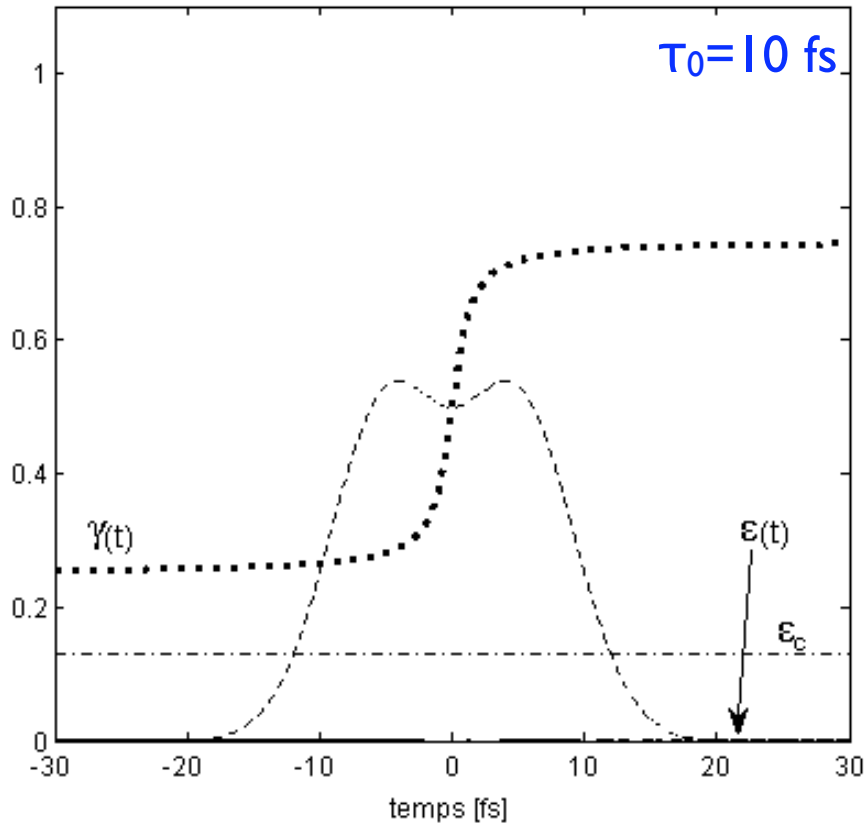


Porte d'ellipticité

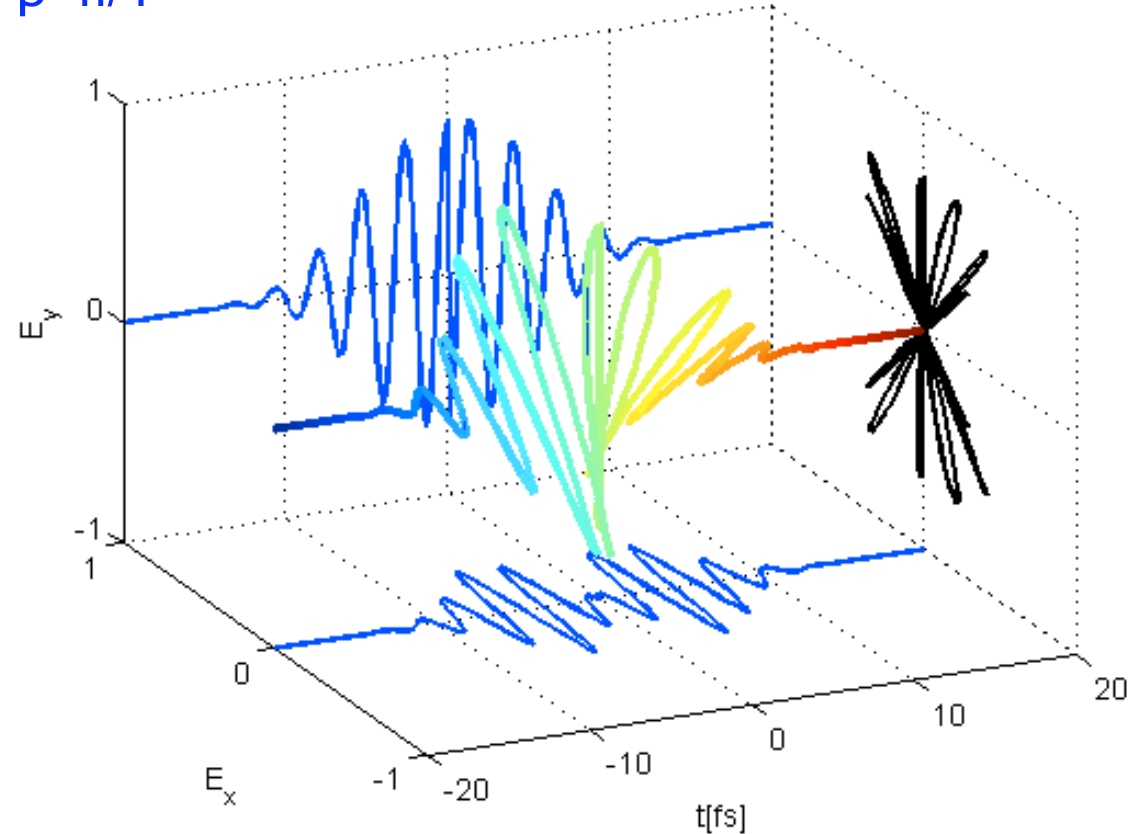
Critère d'ellipticité $\epsilon_c = 13\%$

$$\tau_G = \frac{\tau_0^2 \epsilon_c}{\ln 2 \cdot \delta\tau |\cos(2\beta)|}$$

Porte d'ellipticité: configuration large



$$\beta = \pi/4$$

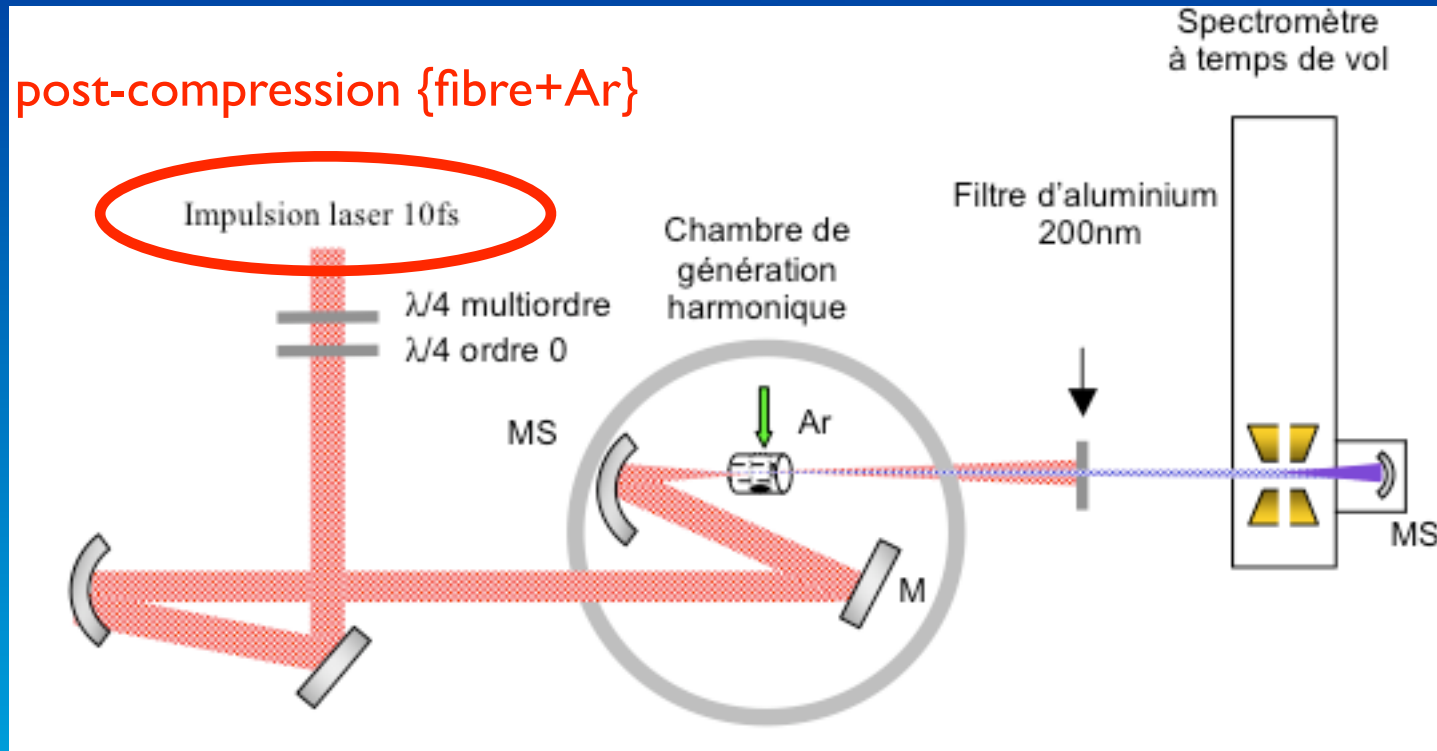


L'impulsion est **linéairement polarisée** pendant toute sa durée: $\epsilon(t) = 0$

L'orientation de l'axe de polarisation tourne de $\pi/2$

Durée de la porte: $\tau_G \sim 2\tau_0 = 20$ fs

Confinement temporel harmonique: étude spectrale



$$\tau_0 = 10\text{fs} \quad \delta\tau = 10\text{fs}$$

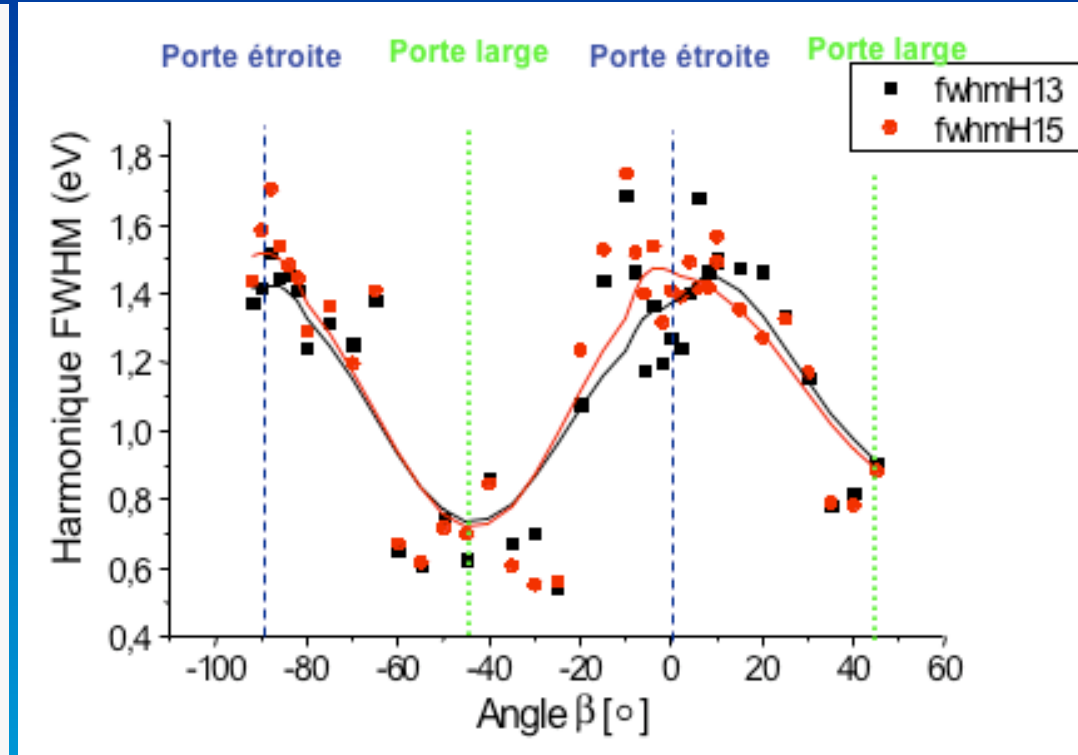
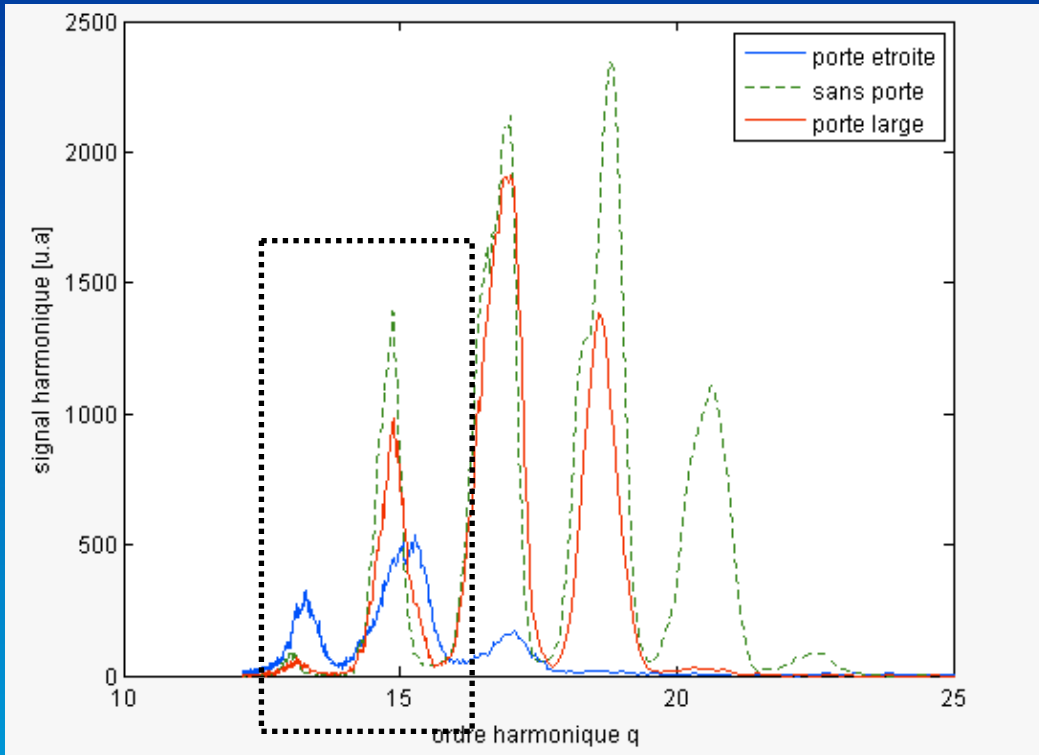
$$\tau_G = 1.87\text{fs} > 1.33\text{fs}$$

=> Etude en fonction de la durée de la porte

$$20\text{fs} > \tau_G > 1.87\text{fs}$$

$$7.5\text{ cycles} > \tau_G > 0.7\text{ cycle}$$

Etude spectrale: résultats



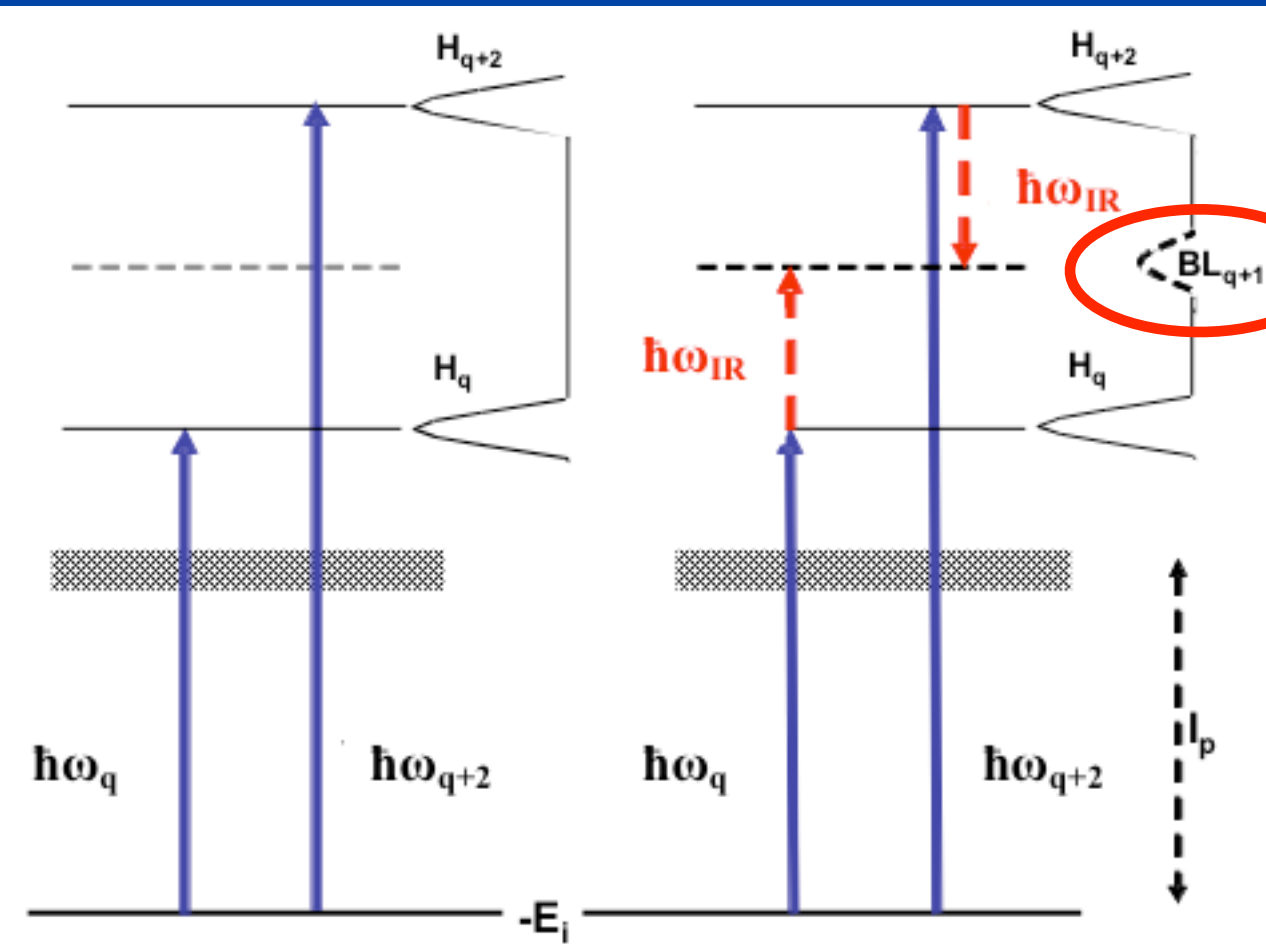
Elargissement spectral observable

Contrôle continu de l'élargissement spectral

Signature spectrale compatible avec des impulsions 10 fs

Compatibilité => confinement temporel?

Etude temporelle: technique de corrélation croisée



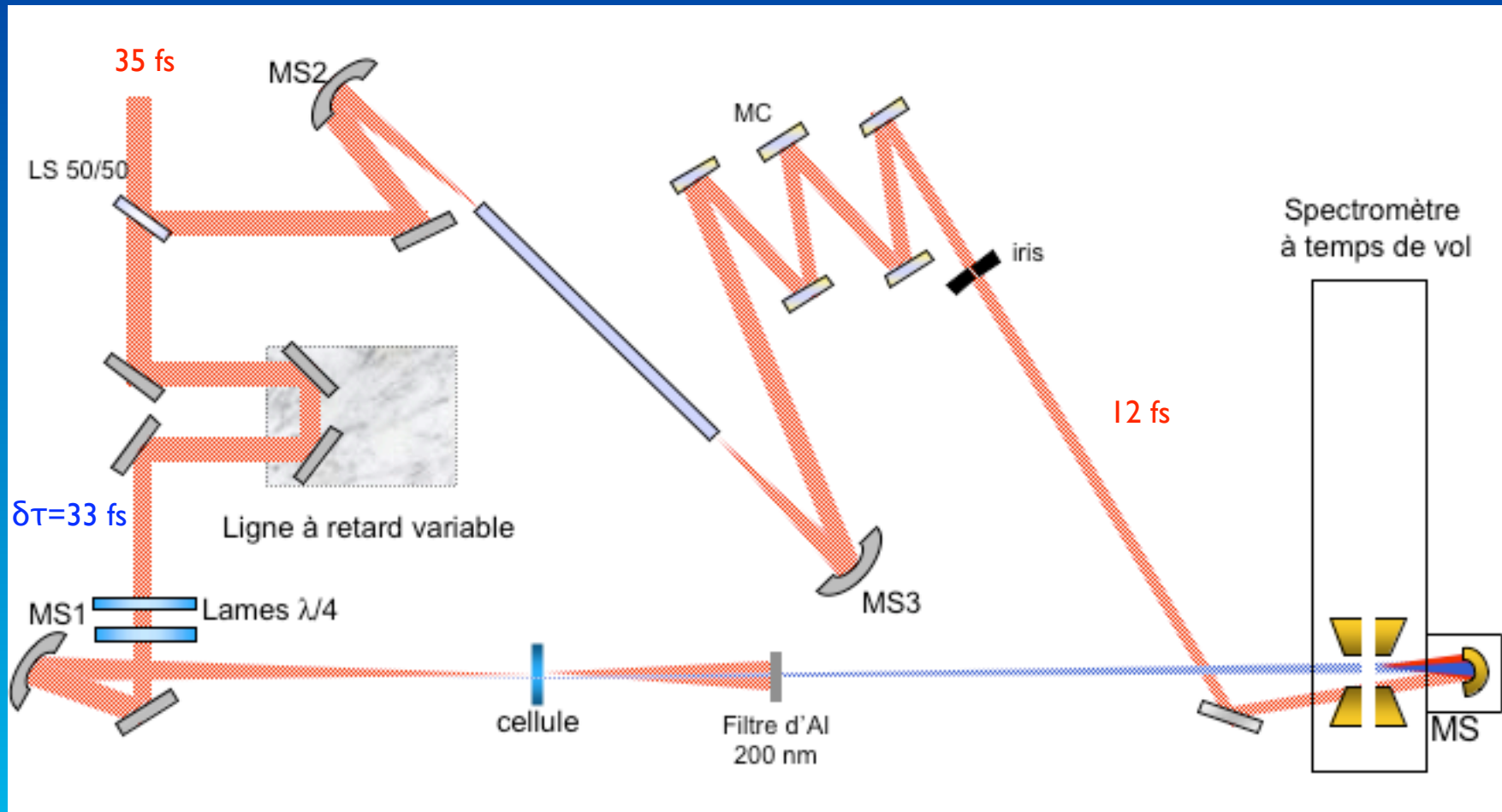
$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{VUV}(t) \cdot I_{IR}(t - \tau) dt$$

$$\tau_{VUV} = \sqrt{\tau_{BL}^2 - \tau_{IR}^2 - \tau_{geo}^2}$$

Information accessible:
durée moyenne des harmoniques q et q+2

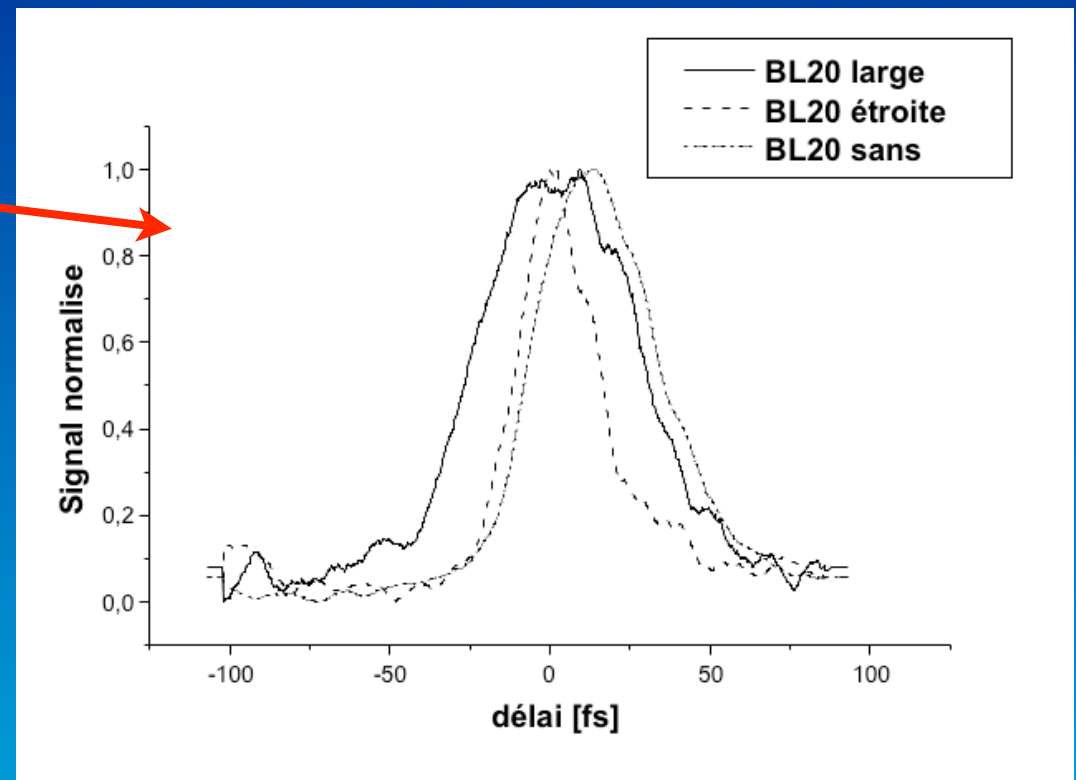
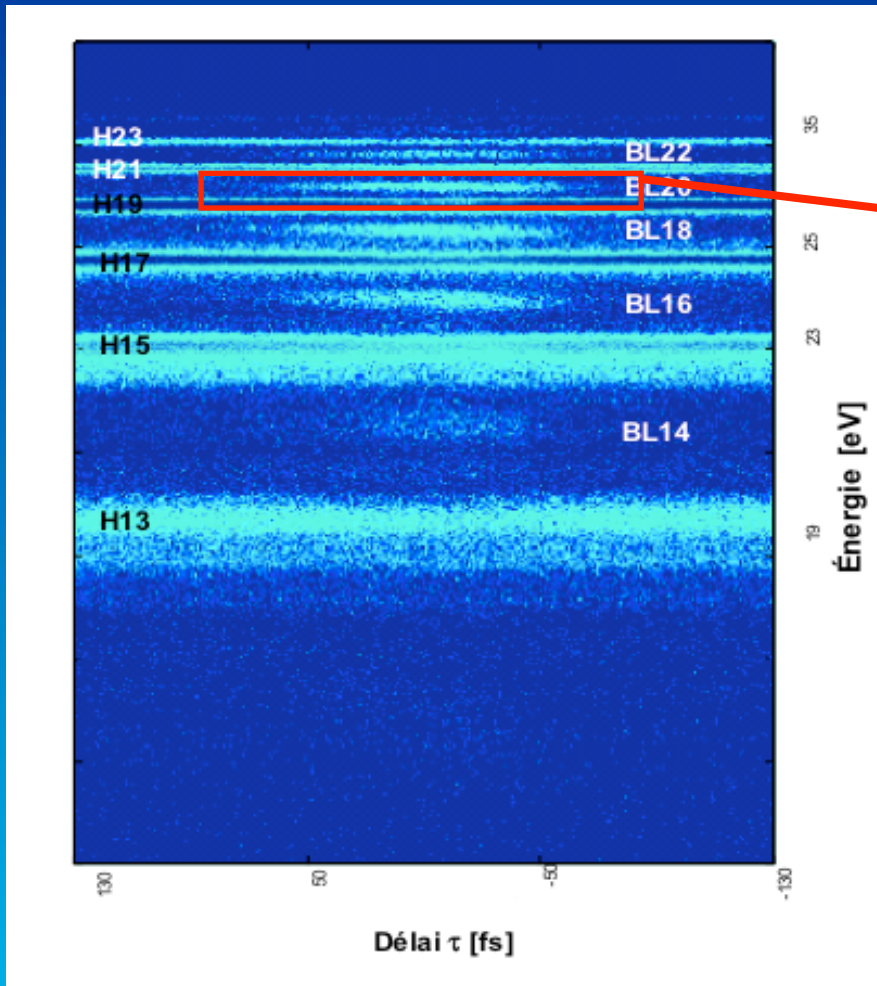
Veniard et al, PRA 1996

Dispositif de corrélation croisée



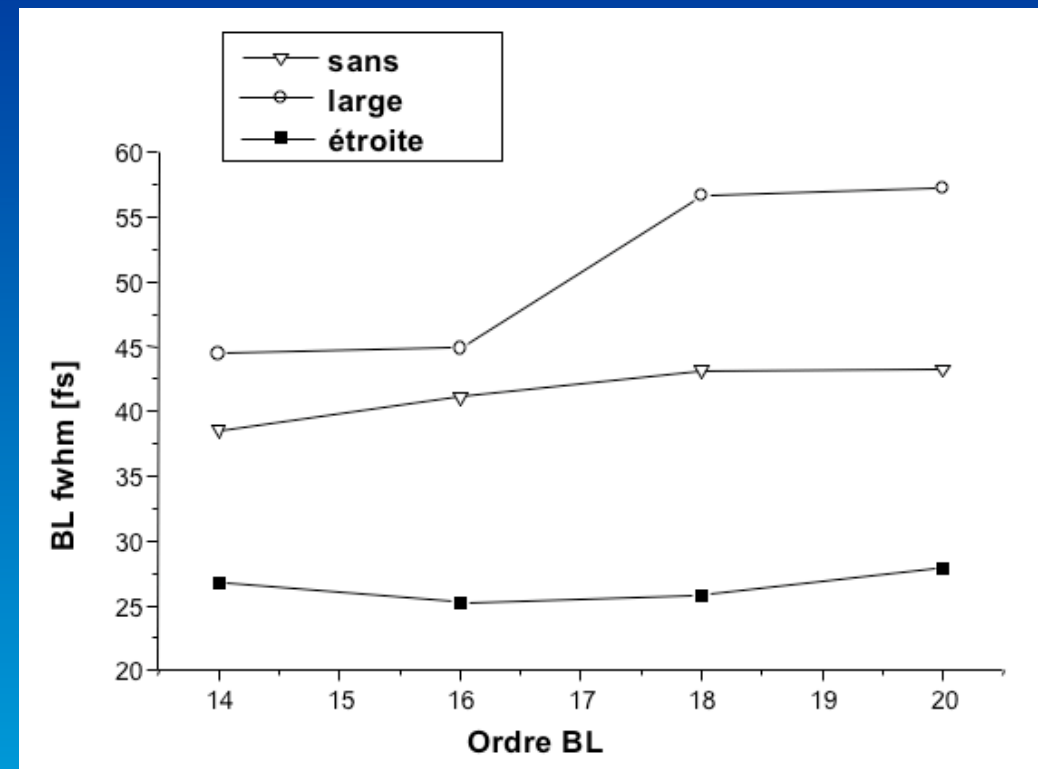
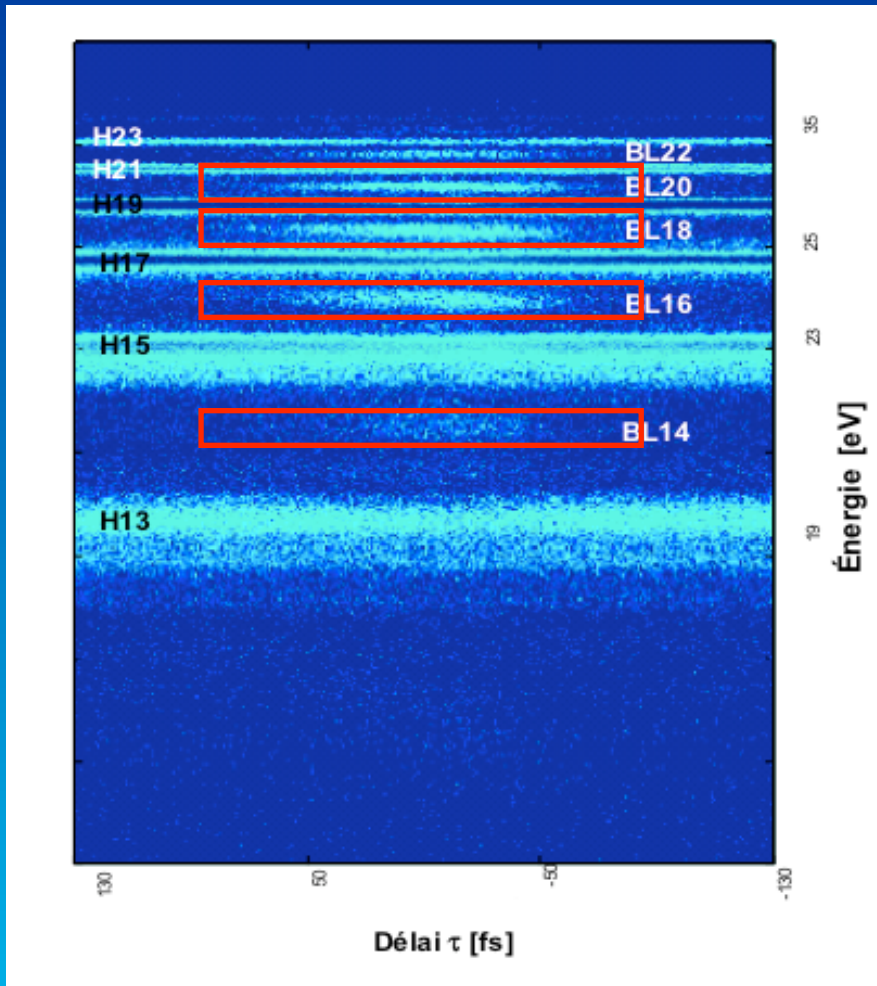
Interféromètre type Mach-Zehnder

Corrélation croisée: résultats



Large: 57 fs
Étroite: 28 fs
Sans :43 fs

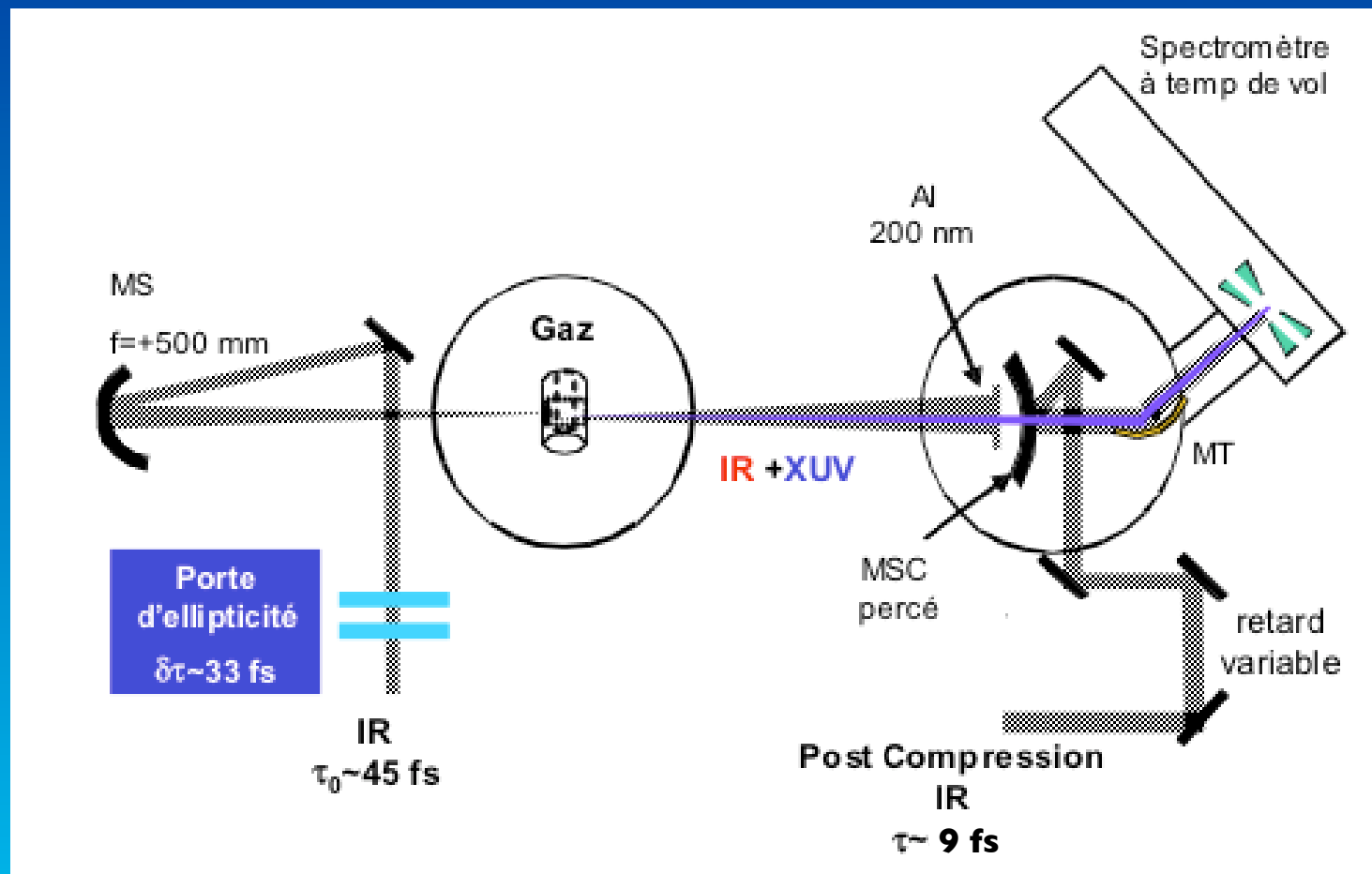
Corrélation croisée: résultats



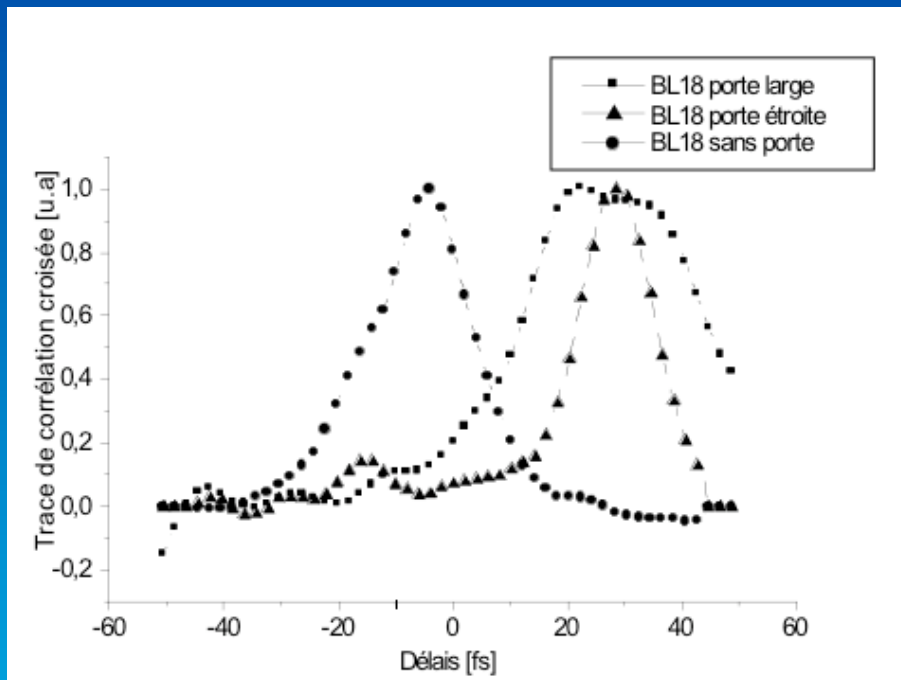
Confinement temporel: facteur 2 visible

$$\tau_G = 7\text{fs}$$

Corrélation croisée colinéaire: sonde 9fs



Corrélation croisée colinéaire: sonde 9fs



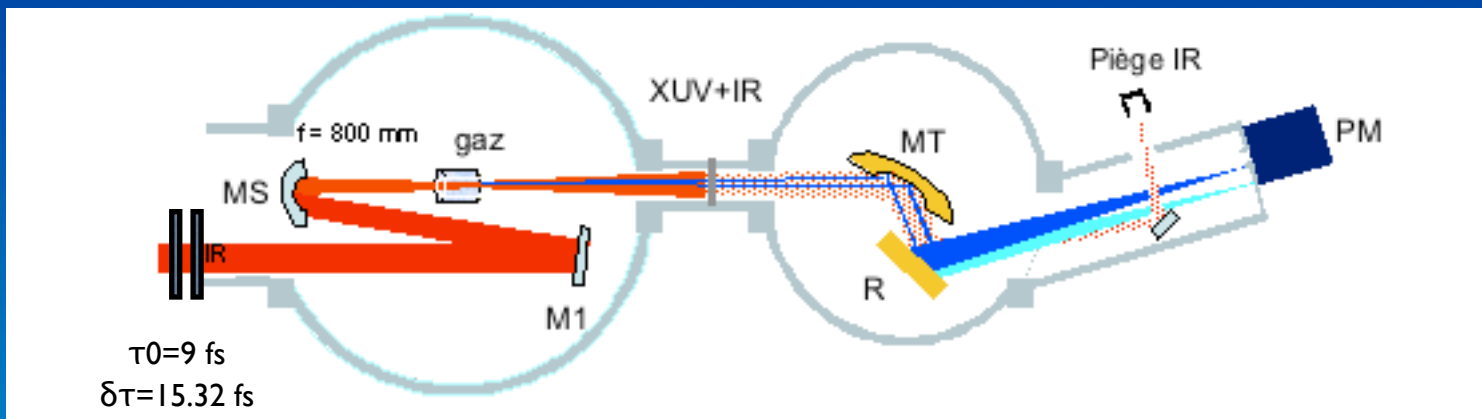
Large: 34 fs
Étroite: 11.5 fs
Sans : 18 fs

$\tau_G = 11.4 \text{ fs}$

Étroite 11.5 fs

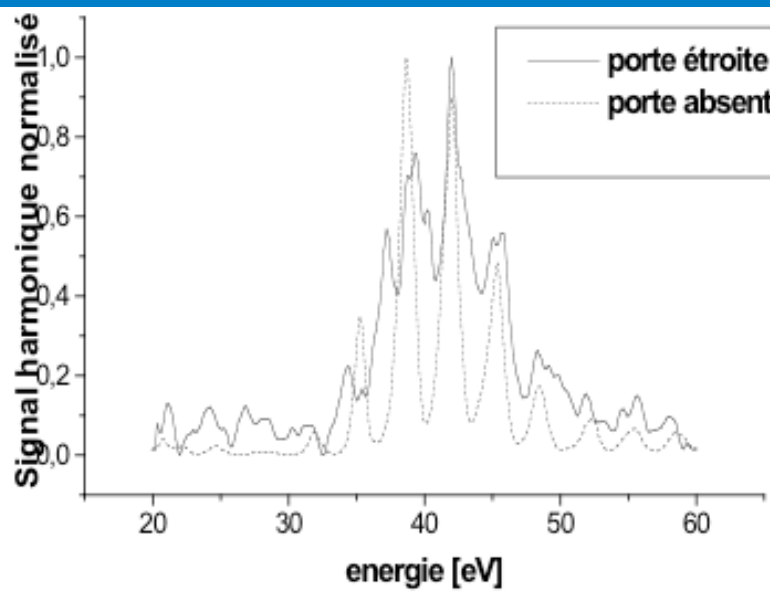
Première mesure de la porte d'ellipticité

Impulsion attoseconde isolée: étude spectrale



$$\tau_G = 1.22 \text{ fs}$$

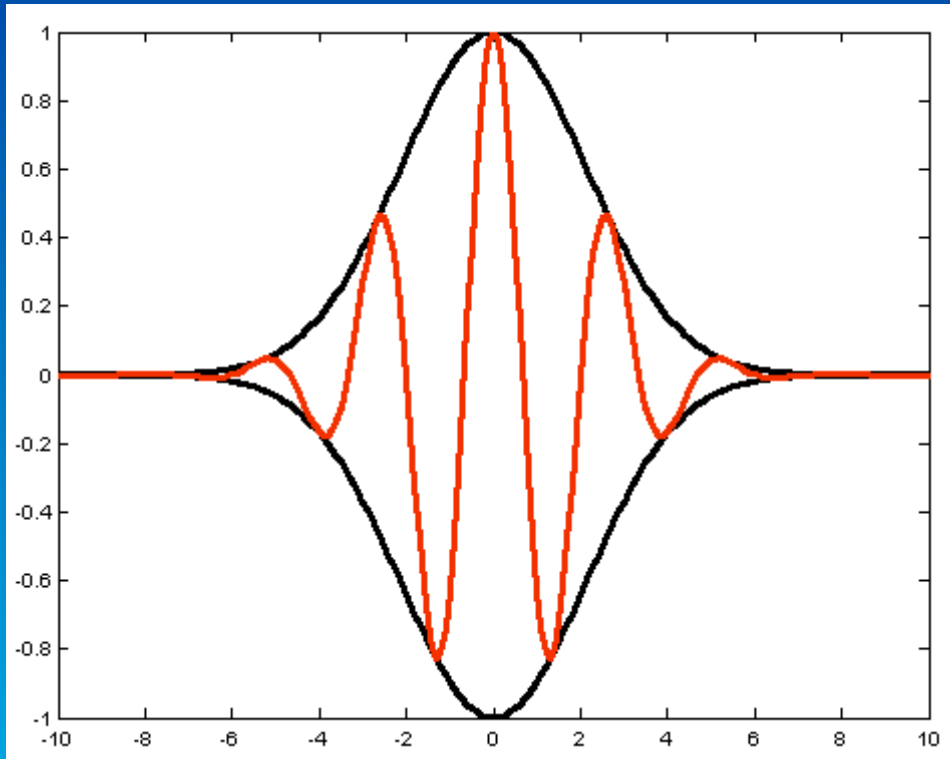
$\sim 0.46 \text{ cycle}$



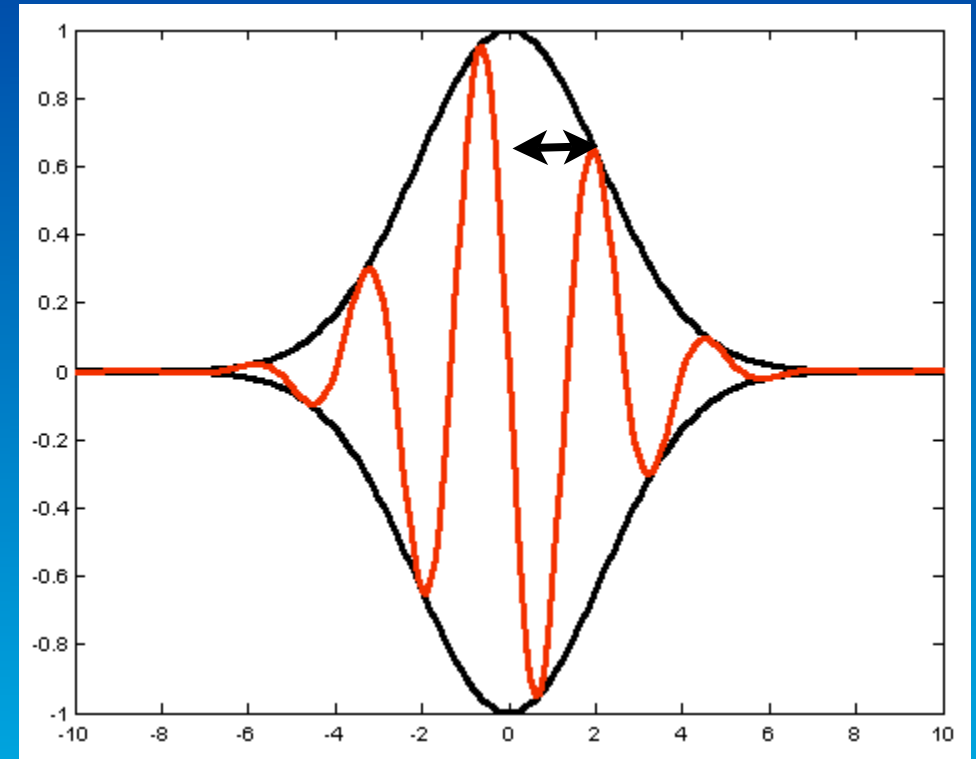
quasi-continuum spectral
spectre harmonique

1-2 impulsions attosecondes
en fonction des tirs laser

Phase absolue du champ laser

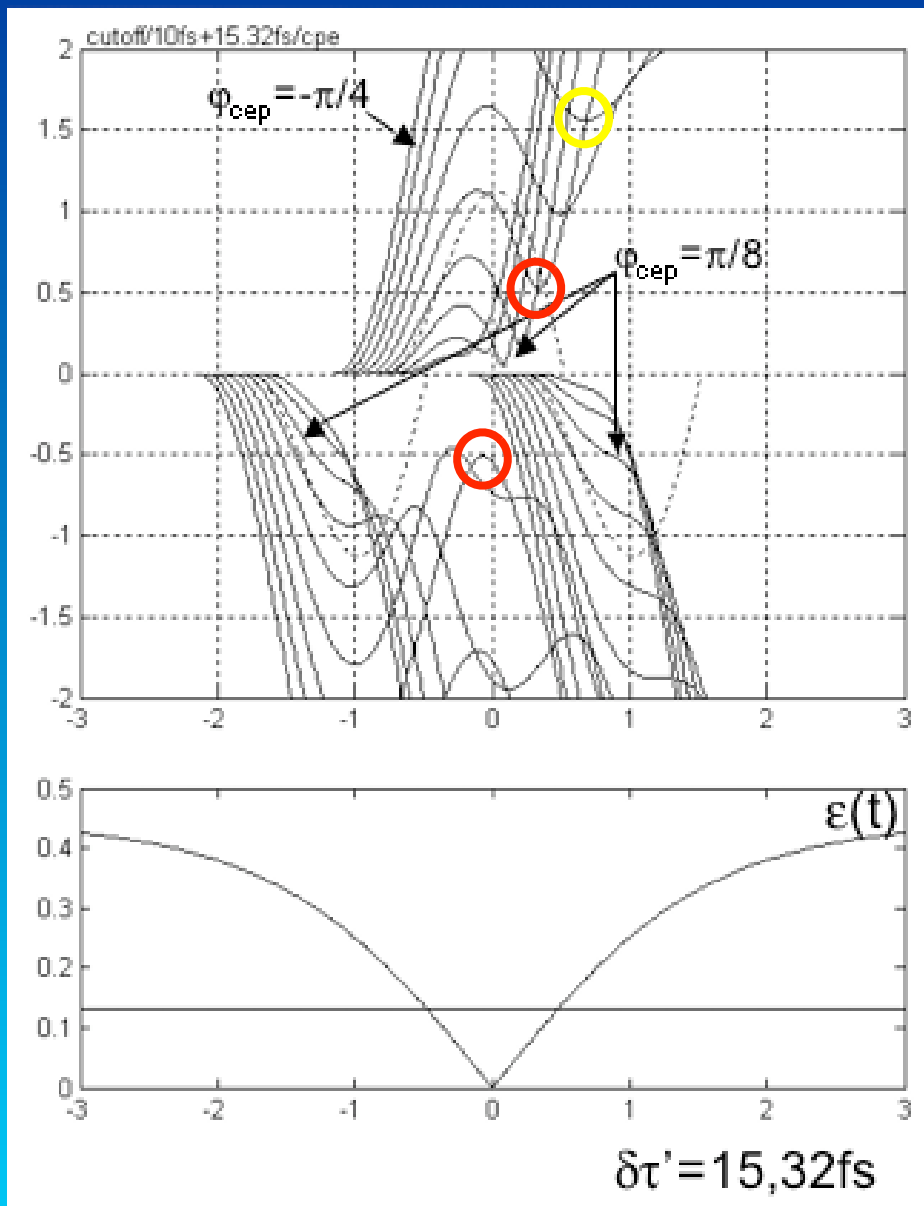


$\varphi=0$



$\varphi=\pi/2$

Rôle de la phase absolue du champ laser



$$\varphi=0$$

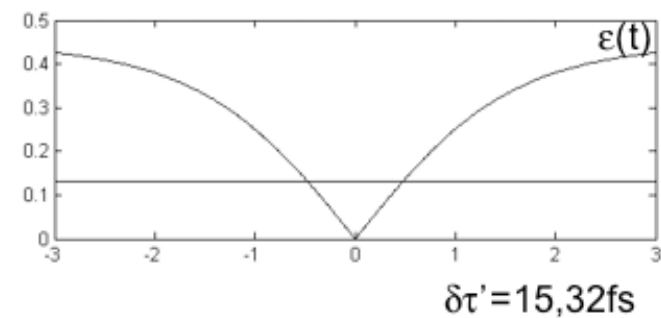
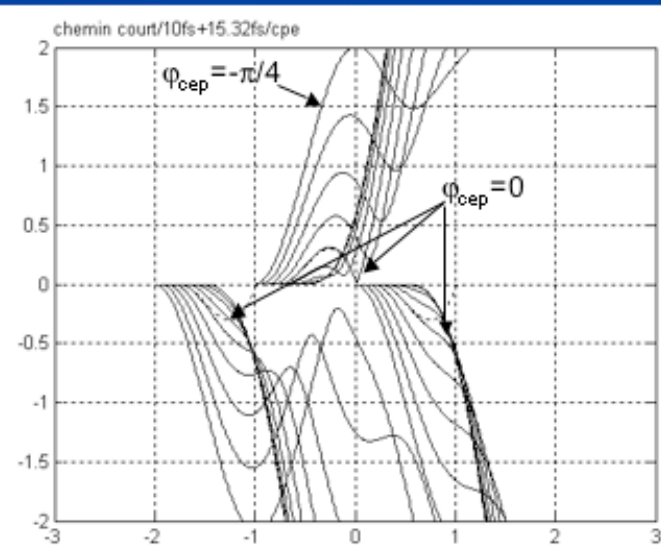
2 recombinaisons probables

$$\varphi = -\pi/4$$

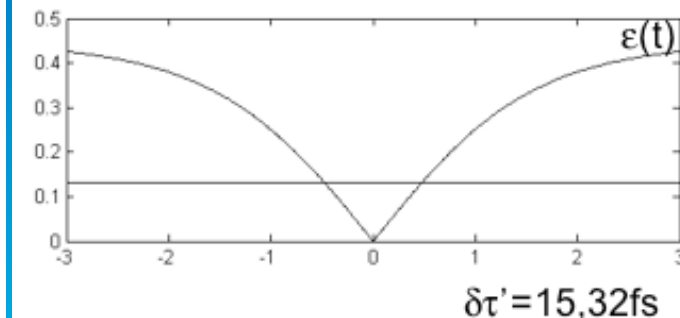
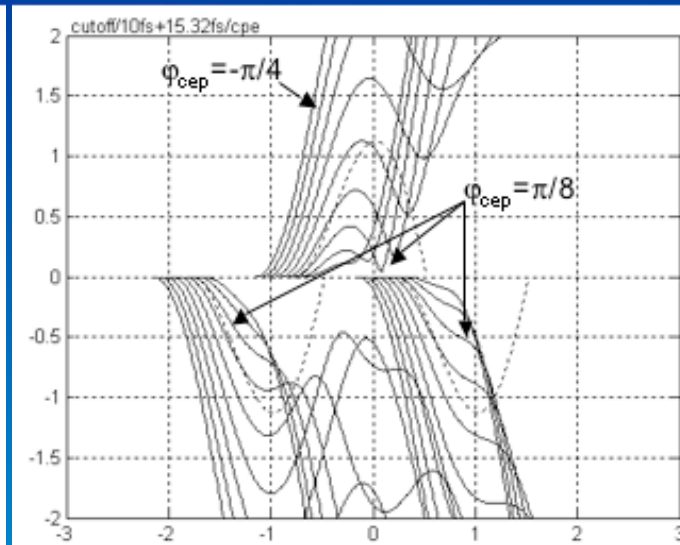
1 recombinaison probable

$$\tau_0 = 10 \text{ fs}$$
$$\delta\tau = 15.32 \text{ fs}$$

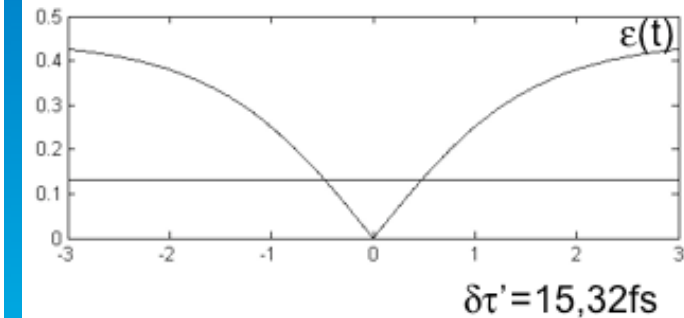
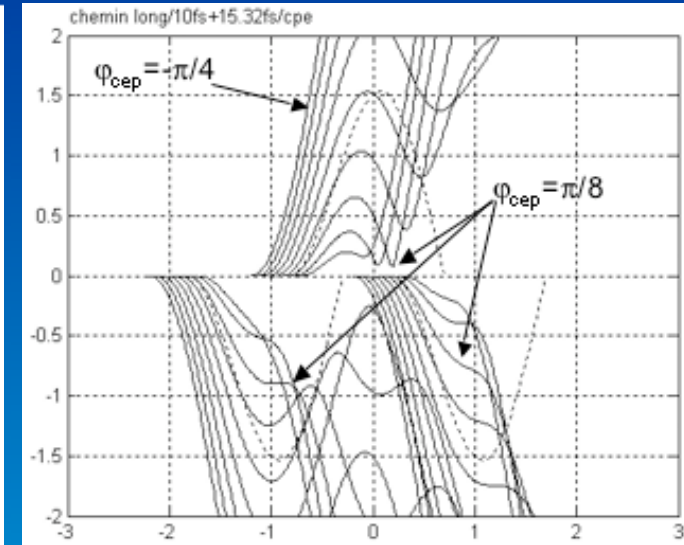
Rôle de la phase absolue du champ laser



chemin court



chemin de la coupure

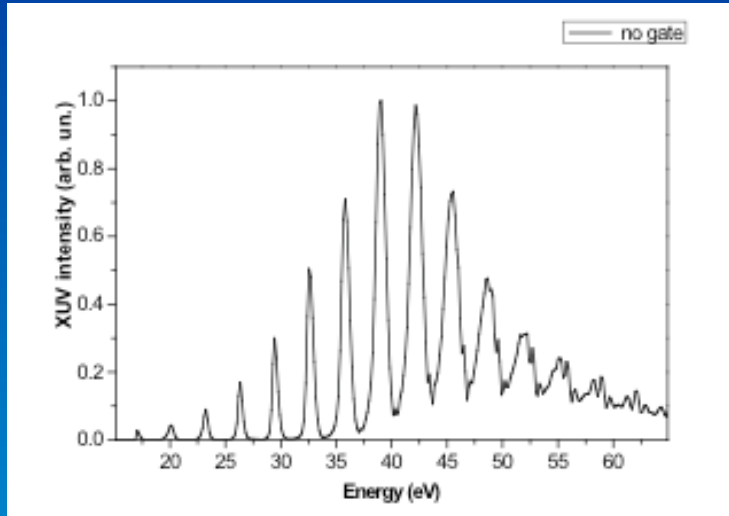


chemin long

$$\tau_0 = 10\text{fs}$$

$$\delta\tau = 15.32\text{fs}$$

Impulsion attoseconde isolée?



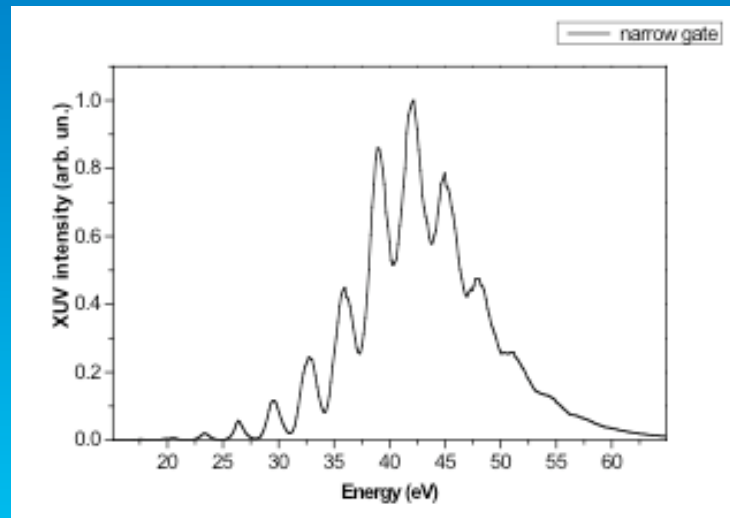
Calcul SFA

Strelkov et al, Appl. Phys. B 2004

sans porte:

$$\tau_0 = 10 \text{ fs}$$

$$\delta\tau = 15 \text{ fs}$$



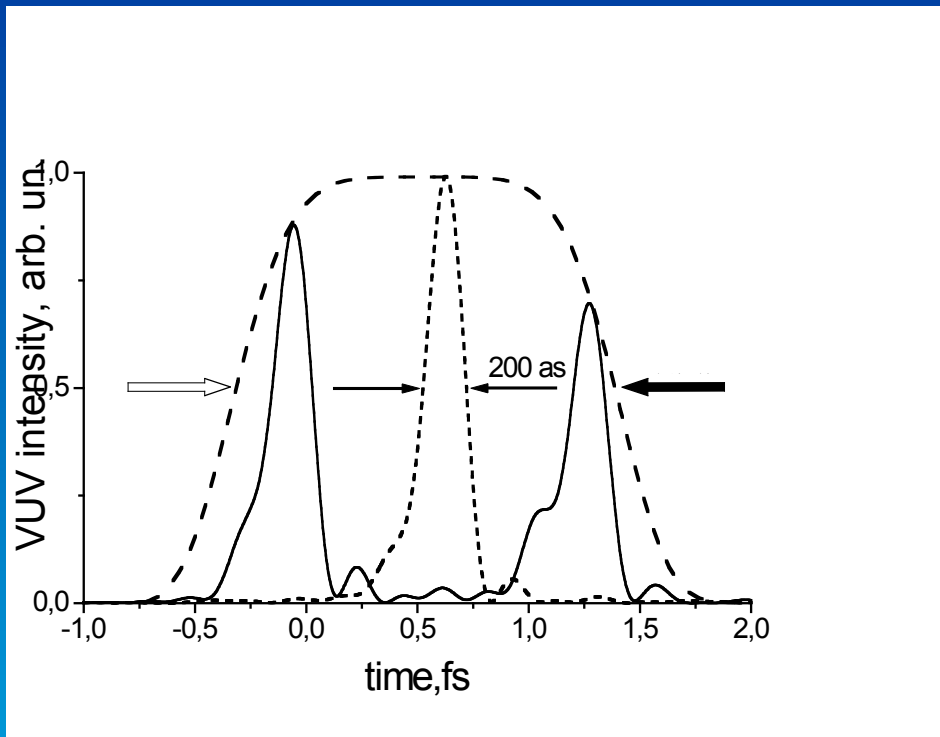
porte étroite:

$$\tau_0 = 10 \text{ fs}$$

$$\delta\tau = 15 \text{ fs}$$

$$\varphi \quad [0; \pi/2]$$

Impulsion attoseconde isolée?



porte étroite:

$$\tau_0 = 10 \text{ fs}$$

$$\delta\tau = 15 \text{ fs}$$

$$\varphi \quad [0 ; \pi/2]$$

1 ou 2 impulsions attosecondes
Stabilisation de la phase absolue laser!!!

Strelkov et al, Appl. Phys. B 2004

Etude $\tau_0 = 5 \text{ fs}$ $\delta\tau = 6.2 \text{ fs}$ en fonction de la phase absolue laser

Sola et al, Nature physic 2006

$\tau_G < 1/2$ cycle optique = condition nécessaire mais pas suffisante
Il faut stabiliser la phase absolue laser

Contrôle de l'émission VUV

Extension de la technique de porte d'ellipticité aux impulsions < 10 fs

Observation spectrale et temporelle de ce confinement

Première mesure directe de la porte d'ellipticité

Observation d'un quasi-continuum spectral

=> 1 ou 2 impulsions attosecondes

=> importance de la stabilisation de la phase absolue

la porte d'ellipticité:

contrôler continuellement le nombre d'impulsions attosecondes

technique de caractérisation du train

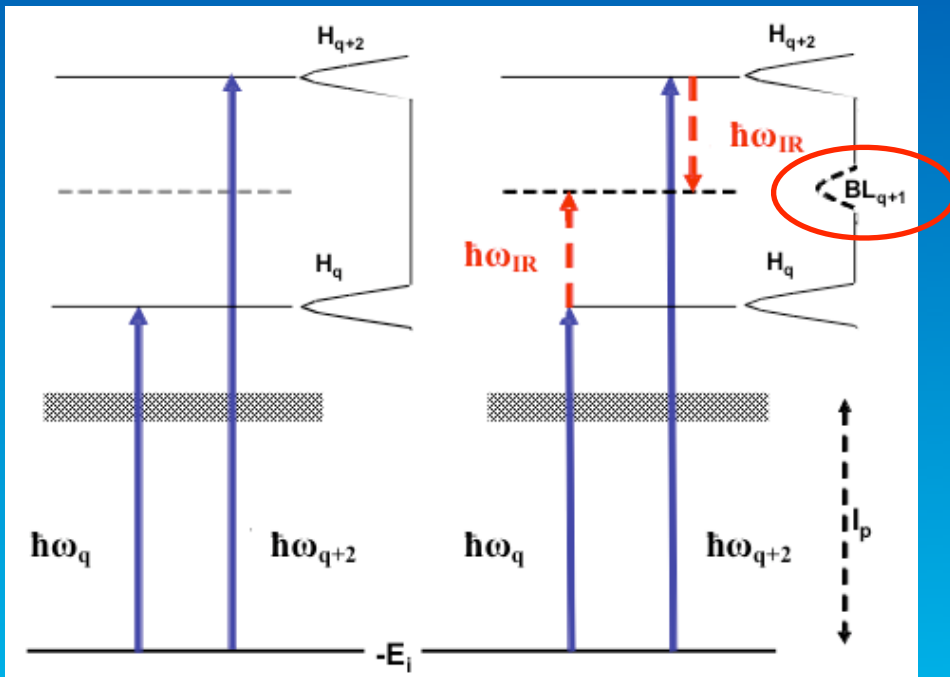
Caractérisation des impulsions attosecondes dans le train

RABITT:

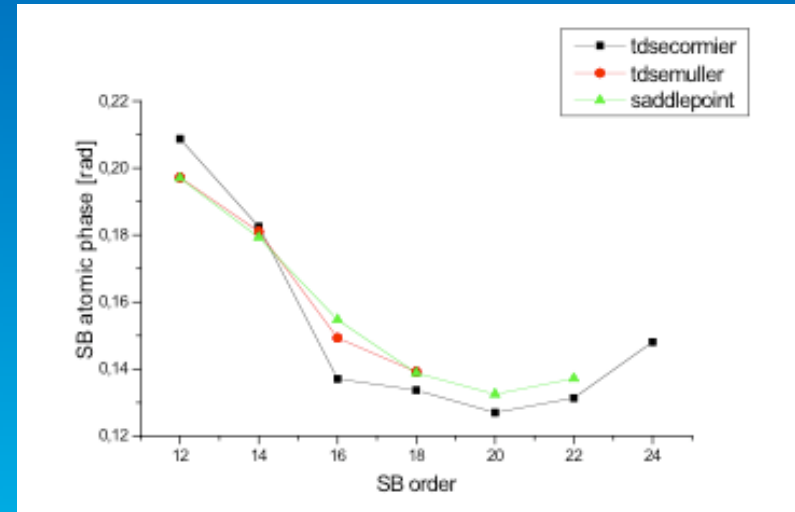
Muller et al, Appl. Phys B 2002

Paul et al, Science 2001

Reconstruction of an Attosecond Beating by Interference of Two photon Transitions



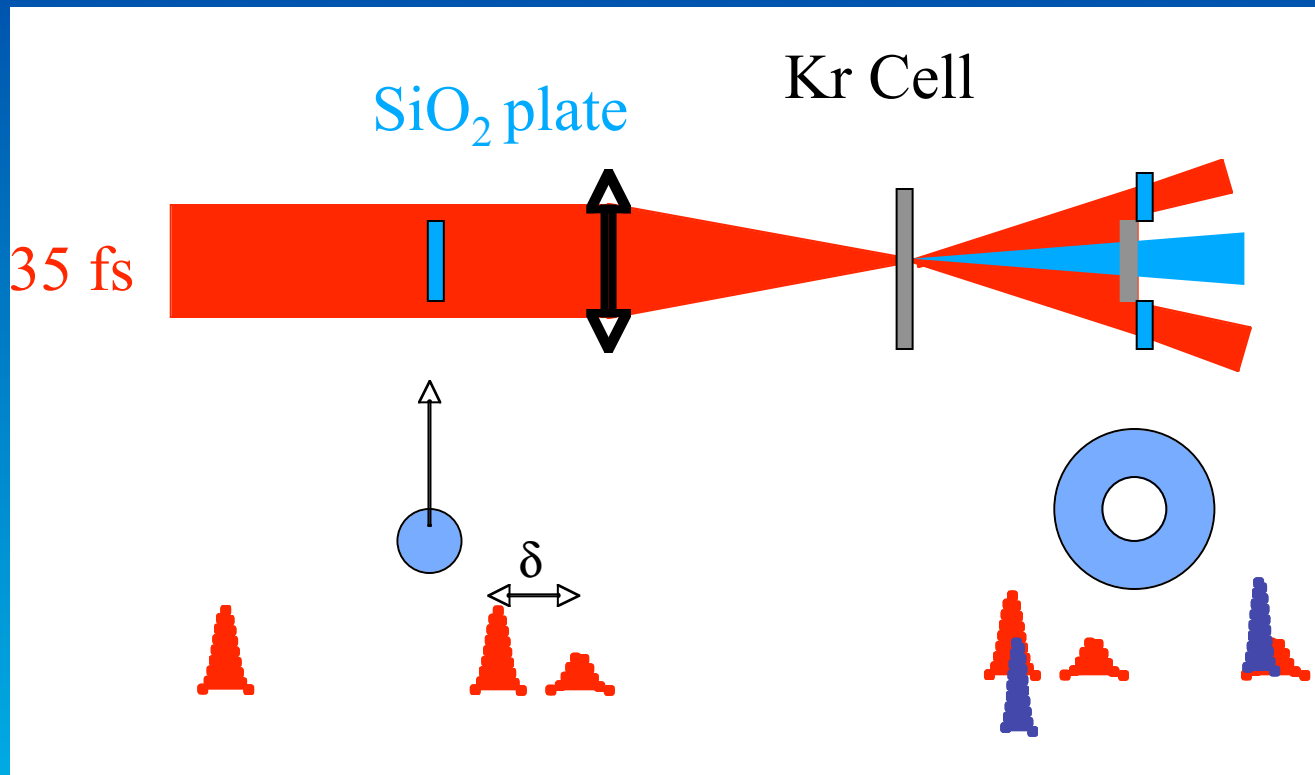
$$I_{BL_{q+1}}(t) = A + B \cos(2\omega_0\tau + \Delta\phi_{q+1} + \Delta\phi^{at}_{q+1})$$



$$\Delta\phi_{q+1} = \phi_q - \phi_{q+2}$$

Dispositif du SPACE RABITT

Spatial Profile shearing And temporal delay Control for Evolved RABITT measurement: SPACE RABITT



Conditions

pompe $\tau_0=40\text{fs}$

sonde $\tau_s\sim 40\text{fs}$

τ variable $\sim 20\text{fs}$

Krypton

Avantages

géométrie colinéaire

=> recouvrement spatial assuré

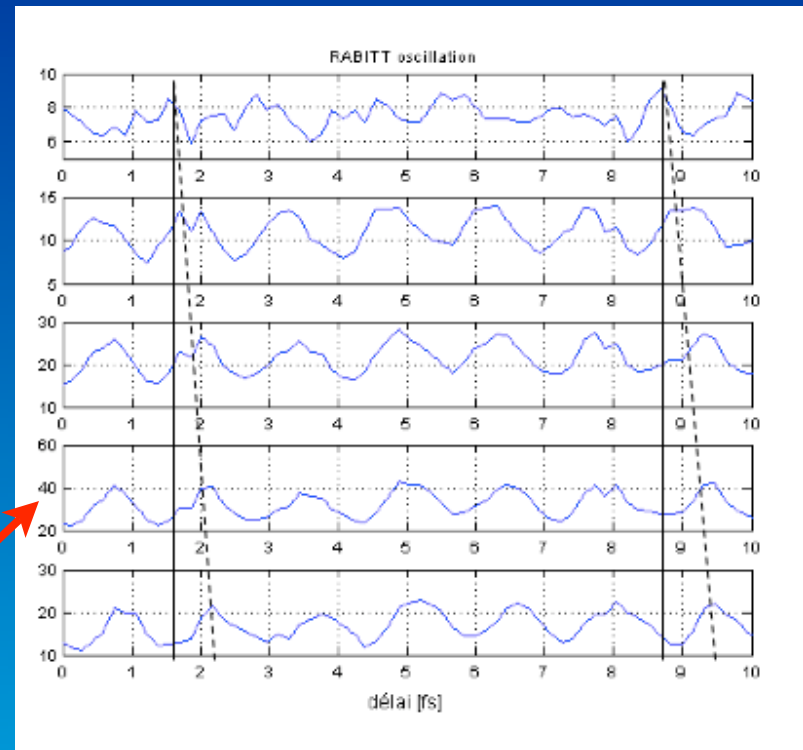
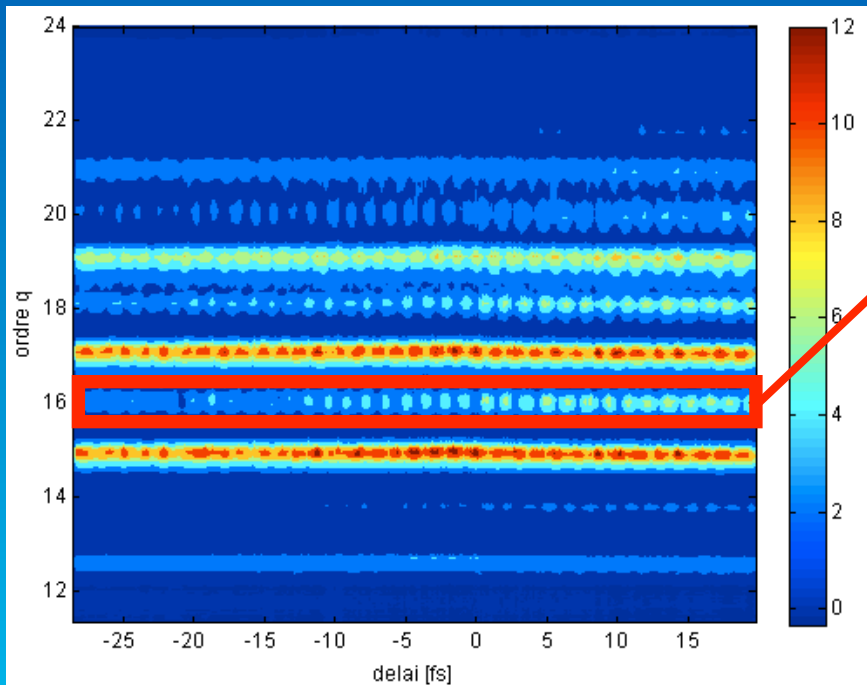
=> stabilité interférométrique

=> utilisation énergie laser optimale

=> pas de recouvrement temporel dans le milieu

SPACE RABITT 40 fs

spectrogramme de photo électron

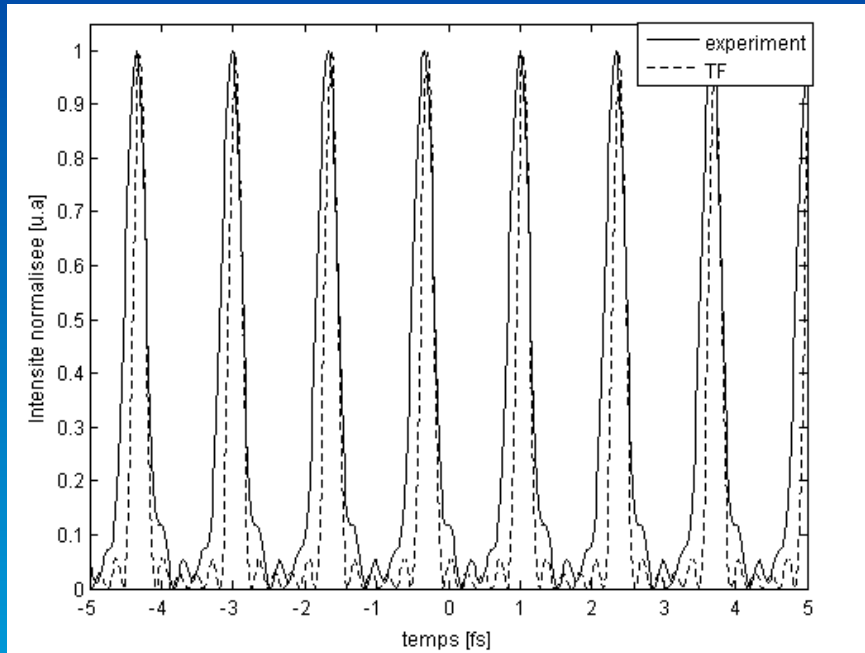


oscillation RABITT $\Rightarrow \Delta\varphi_{q+1}$

phase harmonique moyenne
 \Rightarrow dérive de fréquence harmonique

\Rightarrow désynchronisation

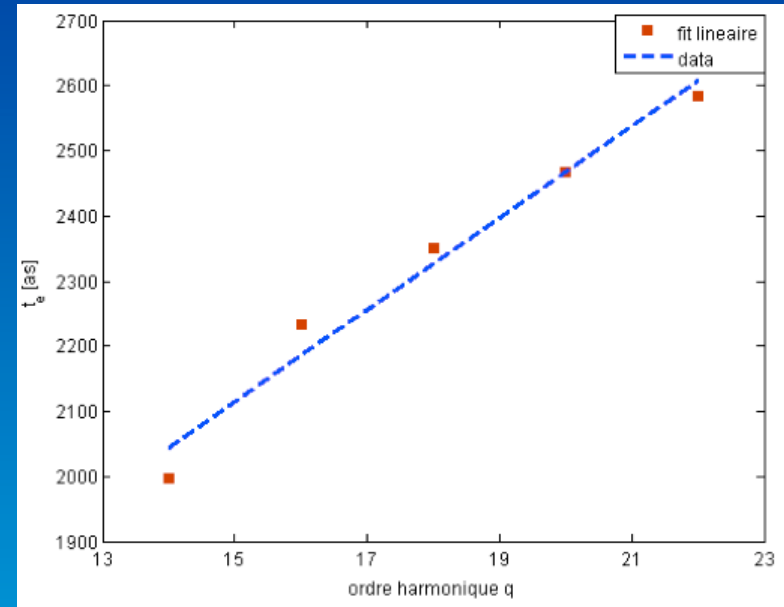
Train et desynchronisation



train “moyen”
d’impulsions attosecondes

290 as

TF 220 as



désynchronisation

$$t_e(q+1) = \frac{\partial \varphi(q+1)}{\partial \omega} \approx \frac{\varphi_{q+2} - \varphi_q}{2\omega_0}$$

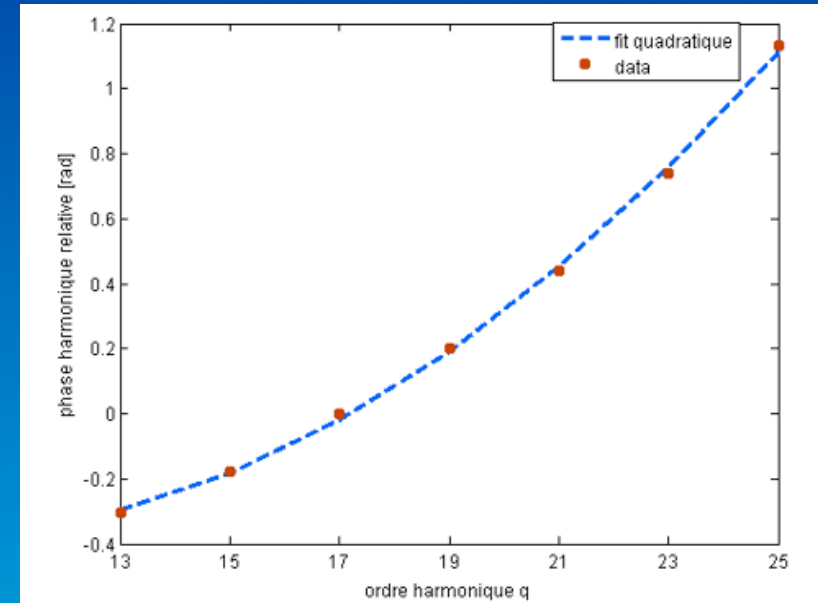
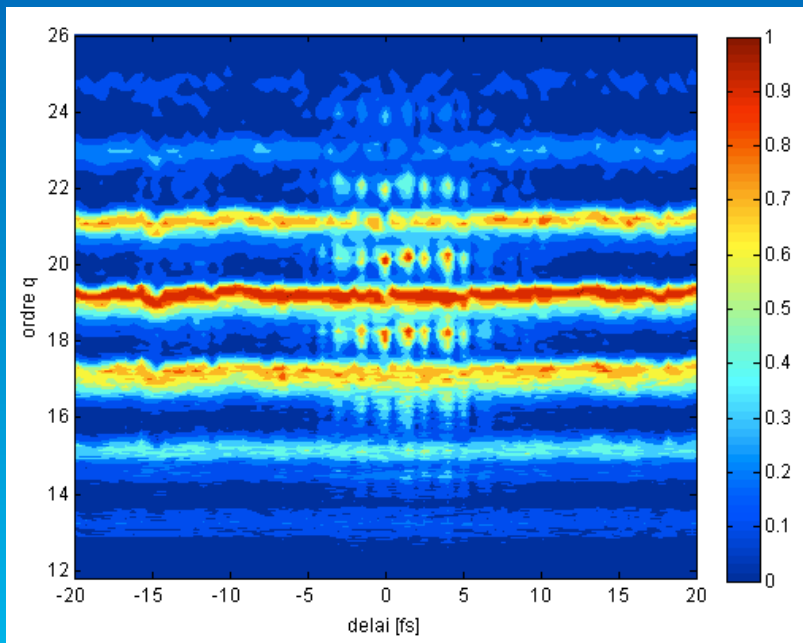
$$\Delta t_e = t_e(q+1) - t_e(q-1) \approx 2\omega_0 \frac{\partial^2 \varphi}{\partial \omega^2}$$

$$\Delta t_e(\text{Kr}) = 117 \text{ as}$$

RABITT 9 fs

Interféromètre type Mach-Zehnder

pompe $\tau_0=9\text{fs}$
sonde $\tau_s\sim 9\text{fs}$
 τ variable $\sim 40\text{fs}$
Argon

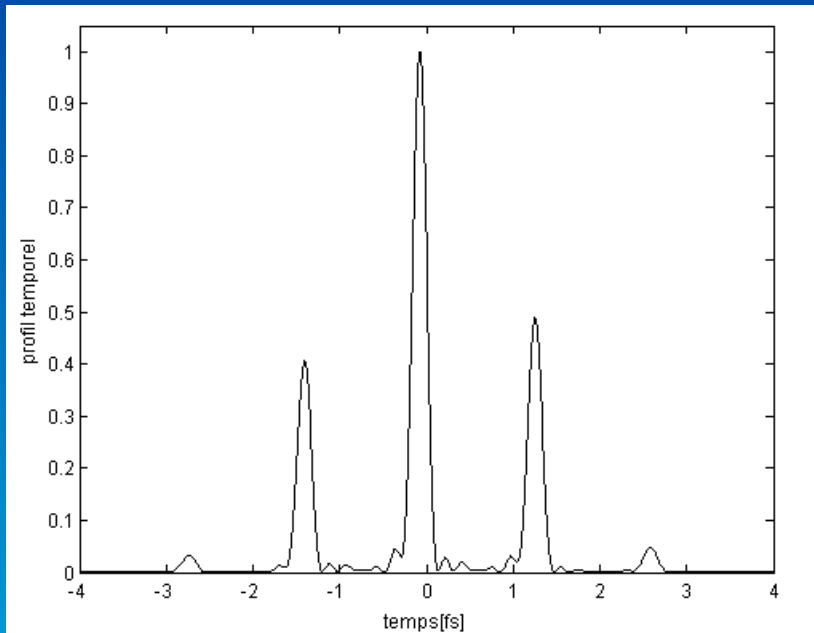


phase harmonique relative

spectrogramme de photo électron

Train et desynchronisation

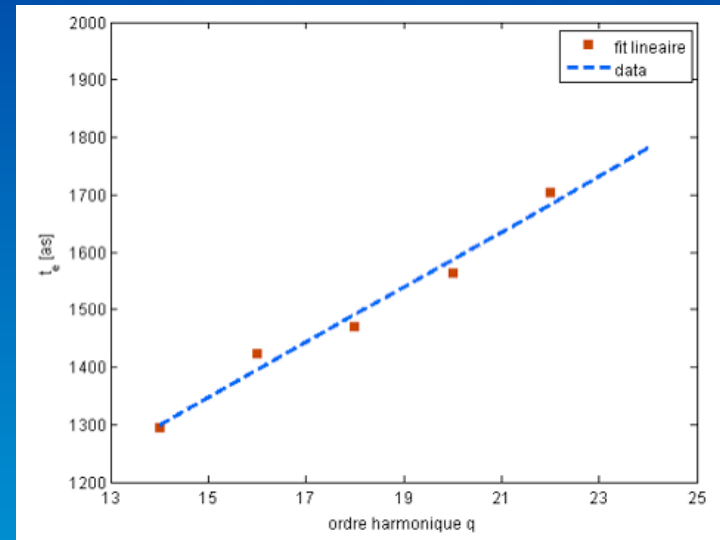
Interféromètre type Mach-Zehnder



Train “moyen”

3 impulsions attosecondes

182 as



désynchronisation

$$\Delta t_e(\text{Ar}) = 104 \text{ as}$$

En accord avec
Mairesse et al 2003

Conclusion

Contrôle de l'émission VUV

Etude approfondie de la porte d'ellipticité

Validité de la technique avec des impulsions ultra-breves

Contrôle du confinement temporel de l'émission VUV

Reconstruction du train d'impulsions attosecondes

Mesure de la phase relative d'harmonique

Reconstruction du train d'impulsions attosecondes

Estimation de la désynchronisation dans Kr et Ar

Perspectives

La source VUV

PORTE D'ELLIPTICITE

Génération d'une impulsion attoseconde isolée

Porte d'ellipticité $< 1/2$ cycle optique

stabilisation de la phase absolue

SPACE RABBIT

Spectrogramme photo-électron

stabilité interférométrique

FROG CRAB

Perspectives

Accordabilité des impulsions attosecondes

PORTE D'ELLIPTICITE

Harmonique $>keV$

Seres et al, 2005

=> Impulsions as plus courtes

Source laser μm

Gordon et al, Opt exp 2005

SPACE RABITT

=> Experience pompe-sonde

Perspectives

Application de la source VUV

Dynamique moléculaire \Rightarrow explosion Coulombienne
oscillation paquet d'onde en H_2^+ : 14 fs

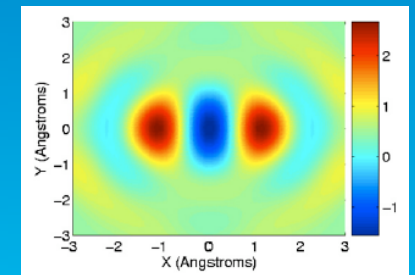
Mesure en temps réel de la relaxation de type Auger

Drescher et al, Nature 2002

Tomographie d'orbitale moléculaire HOMO's

PORTE D'ELLIPTICITE

\Rightarrow 1 impulsion: orbitale non stationnaire



Itatani et al, Nature 2004

Remerciements

CELIA

E. Constant

E. Mével

E. Cormier

I. J Sola

V. Strelkov

O. Tcherbakoff

LLC

A. L'Huillier

R. Lopez

P. Johnsson

K. Varju

et tous les membres du laboratoire.....