HAL
open science

Quand les harmoniques d'un rayonnement ultraviolet extrême se focalisent

Kévin Veyrinas, Jan Vabek, Constance Valentin, Éric Mével, Éric Constant, Fabrice Catoire

To cite this version:

Kévin Veyrinas, Jan Vabek, Constance Valentin, Éric Mével, Éric Constant, et al.. Quand les harmoniques d'un rayonnement ultraviolet extrême se focalisent. Reflets de la Physique, 2022, 72, pp.10-16. 10.1051/refdp/202272010 . hal-03768119

HAL Id: hal-03768119

https://hal.science/hal-03768119v1

Submitted on 5 Sep 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Quand les harmoniques d'un rayonnement ultraviolet extrême se focalisent

K. Veyrinas, J. Vabek, C. Valentin, E. Mével, E. Constant, F. Catoire

Introduction - chapeau : L'utilisation de flashs lumineux pour observer l'évolution temporelle de phénomènes brefs a toujours été une quête du graal pour les physiciens qui ont besoin de flashs de plus en plus brefs. Cette technique permet de répondre à des questions intrigantes. Un exemple historique fameux concernait le galop d'un cheval avec la question polémique de savoir si les sabots quittaient tous le sol simultanément à un moment de sa course. La réponse est oui et elle a été apportée par Eeadweard Muybridge en 1878 (voir *Animal Locomotion* (1187)). Pour répondre à cette question, le photographe de talent a disposé plusieurs caméras le long du parcours du cheval permettant de prendre des photos (avec un temps d'obturation bref) à intervalles réguliers. Ce dispositif, qui a pour but de répondre à des questions fondamentales, a de plus était la prémisse du cinématographe. Aujourd'hui la poursuite de ce graal consiste à « photographier » la dynamique de systèmes atomiques et moléculaires évoluant à des échelles de temps extrêmement brèves allant de l'attoseconde (as = 10^{-18} s) à la femtoseconde (fs = 10^{-15} s). Dans cet article, nous allons présenter brièvement le principe de production d'impulsions aussi brèves par un processus appelé génération d'harmoniques d'ordres élevés, mais aussi et surtout comment contrôler les propriétés spatiales de ce rayonnement.

- Comment produire des impulsions lumineuses d'une durée inférieure à la fs ?

La durée d'une impulsion lumineuse est inversement proportionnelle à la largeur de son spectre. En conséquence, si on souhaite produire une impulsion lumineuse de durée inférieure à la fs, il faut produire un rayonnement ayant une largeur énergétique (spectrale) supérieure à $\delta E = 3$ eV. Ceci n'est pas possible dans le domaine visible (la largeur spectrale du domaine visible tout entier correspond à 1.5 eV) mais le devient pour rayonnements dans la gamme des ultraviolet (UV) à l'ultraviolet extrême (UVX). Plusieurs sources permettent de répondre à ces critères. Les synchrotrons produisent des impulsions brèves (quelques dizaines de picosecondes), intenses, accordables en fréquence, à des taux de répétition très élevés (quelques mégaHertz). Les lasers à électrons libres (LELs) délivrent des impulsions encore plus brèves (quelques dizaines de femtosecondes) et très intenses. La principale limitation de ces deux types de sources, qui sont des grandes installations, réside en l'accès limité – obtenu via des appels internationaux très compétitifs – et les fluctuations importantes tir à tir pour les LELs. La génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE, voir encadré) permet aussi de générer des radiations XUV large bande. En dépit du faible taux de conversion, c'est un outil de choix par la compacité des dispositifs et l'accessibilité. De plus, les propriétés physiques telles que la stabilité tir à tir, la résolution temporelle et la cohérence spatiale font de ce type de source un outil essentiel pour des applications de plus en plus nombreuses (ex : études 'pompe-sonde' résolues en temps pour étudier les dynamiques moléculaires, l'imagerie 3D de molécules par tomographie etc.). C'est ce type de source qui est illustré par la suite.

- Comment contrôler les propriétés spatiales d'harmoniques d'ordres élevées ?

La durée minimale des impulsions XUV est contrôlable par le choix de la largeur spectrale (voir [1] par exemple pour un article de grande audience). Du point de vue applicatif, un des paramètres important est l'éclairement du rayonnement, c'est-à-dire l'énergie par unité de temps et par unité de surface. La brièveté des impulsions va dans le sens d'un fort éclairement qui nécessite néanmoins que toutes les radiations se recouvrent spatialement. Un bon recouvrement spatial des différents faisceaux harmoniques est aussi nécessaire pour avoir des impulsions courtes en tout point car si les profils sont différents la largeur spectrale peut varier d'un point à l'autre ce qui modifie localement la durée des impulsions. Le contrôle du profil spatial du faisceau harmonique est donc nécessaire pour garantir la génération d'impulsions brèves et intenses. Les mécanismes physiques qui sont à l'origine du spectre harmonique reposent sur des descriptions ne faisant intervenir qu'un atome (ou une molécule) unique

[2-3] et montrent que l'émission XUV est cohérente (la phase de la radiation émise est liée à la phase du champ générateur contrairement à une émission incohérente où la phase du champ émis est aléatoire). En revanche, les propriétés spatiales du rayonnement harmonique sont imposées par des effets macroscopiques. Une description à l'échelle macroscopique, échelle spatiale caractéristique du faisceau générateur, est nécessaire. Les équations de Maxwell sont alors résolues avec le dipôle rayonné par l'atome unique comme terme source (voir [4] pour plus de précisions) pour prendre en compte la propagation des radiations dans le milieu générateur. Cependant, dans le cas de la génération dans des milieux émetteurs fins, les faisceaux XUV ont des profils Gaussiens dans le plan d'émission et les modes propres de propagations dans le vide - les faisceaux Gaussiens - peuvent être utilisés pour décrire au premier ordre les propriétés spatiales des harmoniques et leur propagation. Dans tout ce qui suivra, les propriétés de symétrie cylindrique seront utilisées et seule la coordonnée z, dans la direction de propagation du champ laser générateur, et r la coordonnée radiale perpendiculaire à z seront utilisées (voir Fig. 1). Pour un faisceau Gaussien, la donnée de la largeur à mi-hauteur de la distribution spatiale d'intensité ainsi que le rayon de courbure de la phase spatiale en un plan z (front de phase), sont deux paramètres qui permettent de déterminer l'évolution spatiale du faisceau en tout point de l'espace. Quelle est l'origine physique de la distribution de phase spatiale ? Quelles sont ses conséquences sur la propagation d'un faisceau Gaussien ? Comment cette phase impacte les propriétés spatiales des harmoniques ? Voici les questions auxquelles nous nous proposons de répondre dans la suite du texte.
Sur le plan physique, la distribution de phase spatiale est assimilée (par la transformée de Fourier) à un délai relatif du champ rayonné en fonction de la position spatiale dans un plan perpendiculaire à la direction de propagation. Le gradient de cette phase est donc relié à l'orientation du vecteur de propagation. Si le front d'onde est plan, le faisceau est collimaté, tous les vecteurs de propagation pointent dans la direction de z. Si la courbure est positive, le faisceau converge et à l'inverse si la courbure est négative, le faisceau diverge. Une analyse détaillée du processus de GHOE, montre que la phase d'une harmonique dépend linéairement de l'intensité du champ générateur (voir encadré). Cette phase, pour une harmonique q, peut s'approximer par : $\varphi_q(r,z) = -\alpha_q I(r,z)$. Comme la distribution spatiale de I est Gaussienne, et que seules les valeurs de r proches de $r = 0$ contribuent, on peut approximer cette phase par $\varphi_q(r,z) = -\alpha_q I(r,z) \approx \alpha_q I_0(z)\frac{r^2}{w^2(z)}$. Ce qui signifie que le rayonnement issu de la GHOE est toujours divergent[1] lorsque cette phase seule est prise en compte. Pour focaliser les harmoniques et imprimer une variation de phase opposée, il faut donc utiliser des éléments d'optiques. Ces éléments sont connus : ce sont des lentilles (ou des miroirs dans le cas d'une réflexion de l'UVX). L'épaisseur d'une lentille convergente est plus importante au centre que sur les bords ce qui signifie que le déphasage temporel introduit – lié à la différence de chemin optique entre le centre et le bord de la lentille – peut permettre d'obtenir le front de phase convergent discuté précédemment. Malheureusement, la plupart des éléments sont absorbants pour le gamme UV et UVX, ce qui impossible l'utilisation d'optique en transmission (lentille) comme cela se fait usuellement dans le visible. Il faut utiliser des miroirs courbes pour obtenir le déphasage par réflexion. Il existe des miroirs possédant un relativement bon coefficient de réflexion (plusieurs dizaines de %) dans la gamme des longueurs d'ondes de 50-10 nm. Ces longueurs d'ondes sont largement utilisées pour la lithographie en microélectronique et beaucoup d'efforts ont permis la réalisation de ces miroirs. Ces derniers sont basés sur la technologie du miroir interférentiel ce qui implique une réflectivité satisfaisante sur une très petite largeur spectrale ce qui limite la brièveté des impulsions. Heureusement, la nature faisant bien les choses, le front d'onde d'une harmonique q, imprime également la phase du faisceau générateur. La phase $\varphi_q(r,z)$ totale du dipôle harmonique d'ordre q s'écrit :

$$\varphi_q(r,z) = q\varphi_{IR}(r,z) - \alpha_q I_{IR}(r,z). \tag{1}$$

$\varphi_{IR}(r,z)$ est la phase du faisceau générateur qui est donc plan (ne dépend pas de r) au point focal et présente une courbure positive avant le foyer et négative après le foyer. Il suffit donc de trouver les bons paramètres laser pour que cette évolution de phase en fonction de z se manifeste également pour le faisceau harmonique. Comme évoqué précédemment, si le faisceau de génération est Gaussien et que

[1] Pour rappel le champ total s'écrit $E = e^{-i\varphi}$ donc la courbure du front de phase est opposée à celle de la phase.

l'émission harmonique se produit proche de l'axe de propagation du faisceau IR, les deux termes précédents sont des fonctions quadratiques de r que l'on peut réécrire, en faisant intervenir des rayons de courbure $R_{IR}(z)$ lié au front d'onde du laser et $R_{atome}(z)$ lié au dipôle harmonique de l'atome :

$$\varphi_q(r,z) = \frac{k_q r^2}{2}\left(\frac{1}{R_{IR}(z)} + \frac{1}{R_{atome}(z)}\right) = \frac{k_q r^2}{2R(z)}, \tag{2}$$

qui est de forme quadratique. De la même manière, on peut montrer que l'intensité du rayonnement harmonique émis est une puissance q_{eff} de l'intensité du faisceau générateur (voir [4]). Or lorsque faisceau générateur a une distribution d'intensité Gaussienne, la distribution d'intensité du faisceau harmonique est également une Gaussienne de largeur à mi-hauteur $\sqrt{q_{eff}}$ fois plus petite que le faisceau générateur. De fait, en première approximation, le faisceau harmonique est composé de Gaussiennes dont toutes les caractéristiques (profil spatial et de phase) sont connues au niveau du milieu générateur. Leur propagation a donc les propriétés des faisceaux Gaussiens et leurs caractéristiques sont donc parfaitement connues en tout point de l'espace. En contrôlant les propriétés du faisceau générateur, suivant les valeurs paramétriques du champ, il est donc possible de focaliser les harmoniques sans pour autant recourir à l'emploi d'optiques qui seraient délétères pour les qualités spatio-temporelles des impulsions ainsi générées.

- Peut-on observer expérimentalement ces propriétés ?

Les harmoniques sont générées en focalisant un faisceau laser titane:saphir (800 nm, 40 fs, 2-5 mJ, 10 Hz) dans un jet de gaz de néon. Le jet a une taille caractéristique de 250 µm qui est bien plus petite que la longueur de Rayleigh, Z_r, du laser utilisé (Z_r = 2,7 cm). Le jet de gaz est installé sur une platine de translation qui permet de le déplacer de 7.5 cm de part et d'autre du foyer du laser (15 cm d'excursion). Les harmoniques sont ensuite dispersées angulairement par un réseau imageur (1200 traits/mm) et imagées sur un détecteur UVX composé de deux galettes de microcanaux et d'un écran phosphore (voir fig. 1) qui permettent d'observer simultanément le profil spectral et spatial des harmoniques.

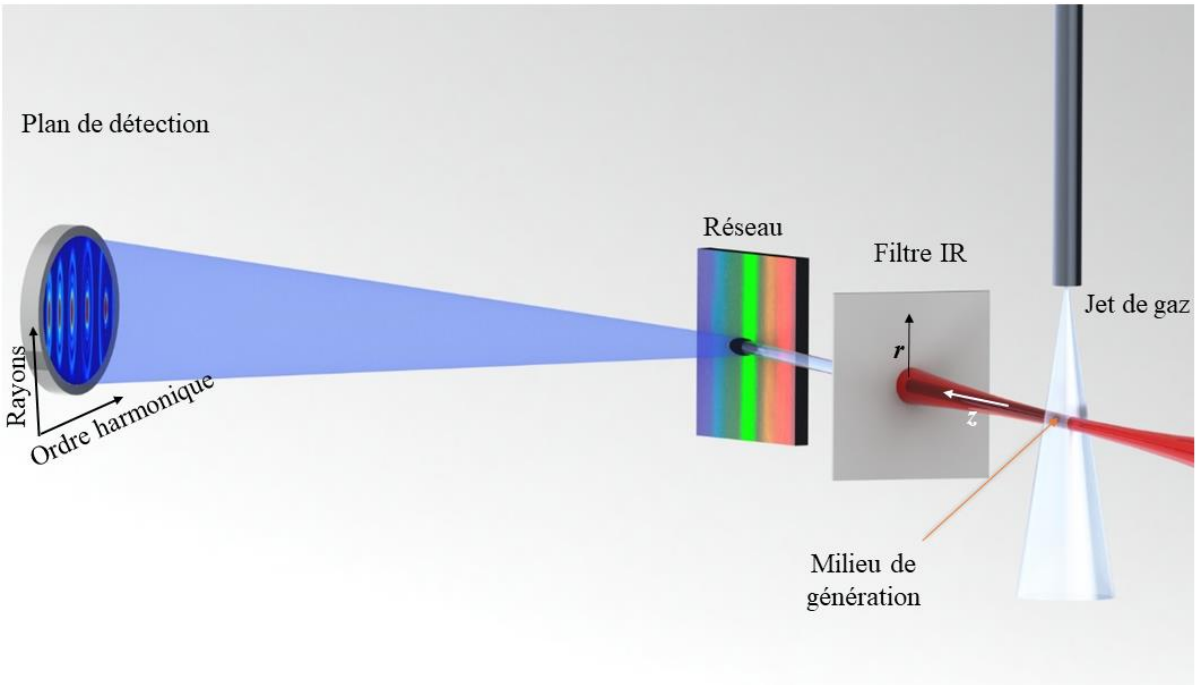


Fig. 1 : Schéma de principe de la génération d'harmoniques d'ordres élevés et de l'observation de leur profil spatial résolu spectralement. Le laser intense fondamental (en rouge sur le dessin) est focalisé sur

un jet de gaz (cône blanc). Après le jet les harmoniques générées (voir encadré) se propagent avec le faisceau fondamental et sont interceptés par une fente qui représente l'entrée du spectromètre XUV. Le faisceau XUV est ensuite dispersé en fréquence par un réseau puis imagé sur le détecteur.

A l'entrée du spectromètre, une fente est disposée pour sélectionner une tranche du faisceau. Cette fente est ensuite imagée par le réseau sur le détecteur dans la dimension où le spectre est dispersé. L'autre dimension n'est pas impactée par le réseau et permet de mesurer directement le profil spatial du faisceau XUV pour chaque fréquence. Ce dispositif permet donc d'obtenir la distribution spectrale et spatiale des harmoniques. Un exemple de distribution spatio-spectrale est représenté sur les figures 2a et 2b qui montrent les images obtenues sur le détecteur pour deux positions du jet de gaz par rapport au foyer du faisceau générateur. Un changement des propriétés spatio-spectrales avec la position du milieu générateur est constaté en accord avec la physique présentée précédemment. La largeur à mi-hauteur des harmoniques est alors mesurée en fonction de la position du jet de gaz. Le résultat est présenté sur la fig. 2c. Une claire évolution apparaît en fonction de l'ordre harmonique et de la position du jet de gaz [5].

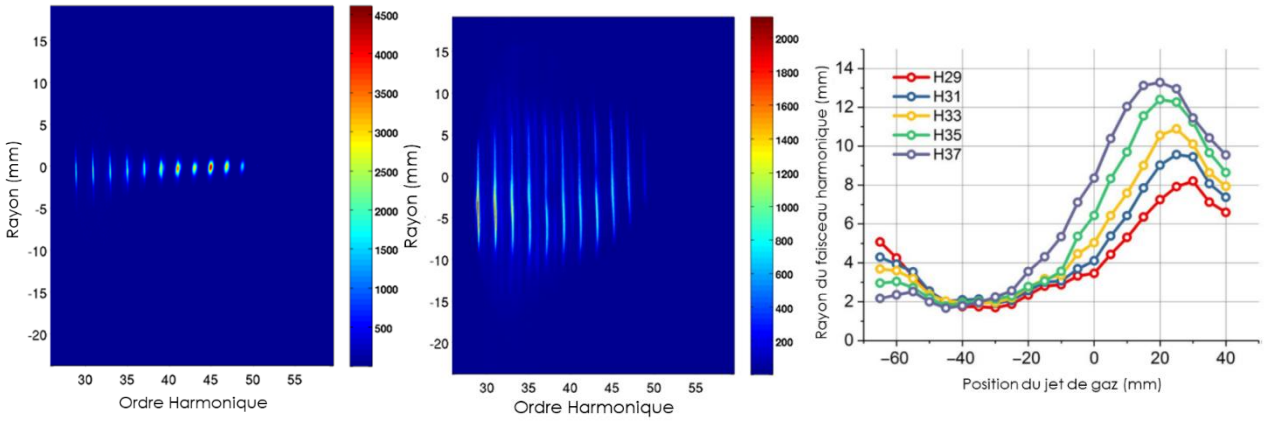


Fig. 2 : a) Tracé du spectre harmonique obtenu pour le Néon (abscisse : ordre harmonique, ordonnée : divergence notée rayon) pour un jet de gaz positionné à z = -60 mm avant le foyer du laser. Le laser incident à une durée de 40 fs, une taille au col de 83 µm au point focal, une fréquence centrale de 800nm, une intensité pic de 5,6 x 10^{14} W/cm^2 b) Idem à Fig. 2a mais pour un jet de gaz positionné à z = 20 mm après le foyer du laser c) Tracé de la largeur à mi-hauteur obtenu pour différentes harmoniques en fonction de la position du jet de gaz (z = 0 correspond au point focal du laser générateur)

Sur ce graphique il est montré que toutes les harmoniques présentent une très faible divergence pour des jets de gaz positionnés entre -30 et -40 mm. Dans ce cas, la courbure des harmoniques est nulle dans le milieu générateur et les faisceaux émis sont collimatés. Ce résultat est en accord avec les simulations (voir Fig. 3a) dont le modèle a été en partie résumé ci-dessus. Ce modèle nous permet de faire une analyse plus poussée. En particulier, la taille minimale des faisceaux XUV ainsi que la position du plan focal peuvent être déterminées. Le résultat est présenté fig. 3b. Ce graphique permet de distinguer deux régions, une première correspondant au cas où le foyer des harmoniques est situé après le milieu de génération positionné en z : c'est la zone appelée « à foyer réel ». Dans ce cas, les faisceaux harmoniques sont convergents après le milieu générateur. Une seconde zone appelée « à foyer virtuel » correspond au cas où le faisceau Gaussien a un plan focal situé en amont de la zone de génération. Dans ce cas les faisceaux harmoniques sont divergents après le milieu générateur (voir [5] pour une illustration expérimentale).

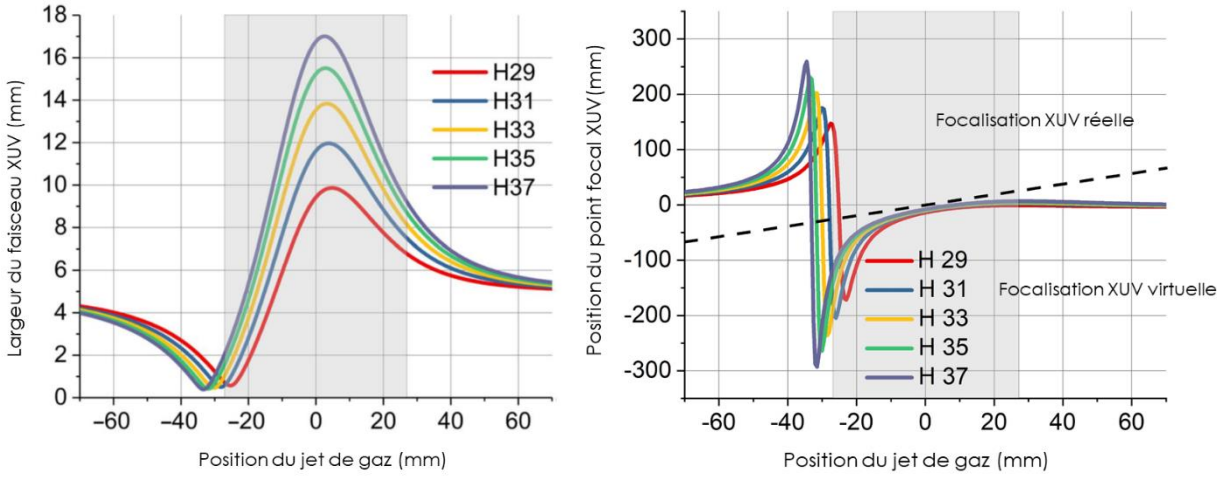


Fig. 3 : a) Résultats théoriques modélisant les conditions expérimentales de la fig. 1c pour les trajectoires courtes. Pour les simulations seules les trajectoires courtes (voir encadré) sont considérées. b) Simulations de la position du point focal des harmoniques, décrites par des faisceaux Gaussiens, en fonction de la position du jet de gaz. Les conditions de générations sont identiques à celles de la fig. 3a.

- Conclusions et perspectives

Dans ces travaux nous avons montré comment contrôler les propriétés spatiales d'un faisceaux XUV tout en s'affranchissant de l'utilisation d'optiques ce qui se ferait au détriment de l'éclairement. Pour ce faire nous avons mis en œuvre une méthode optique reposant sur les principes fondamentaux physiques de la génération d'harmonique qui utilise la cohérence du processus pour imprimer un front de phase particulier aux faisceaux harmoniques. Ce travail a permis de mettre en évidence une grande compréhension des mécanismes de génération des harmoniques et notamment leur influence sur les propriétés spatiales qui peuvent donc être exploitées pour mettre en forme spatialement le faisceau XUV. Ces travaux ouvrent de nombreuses perspectives ainsi que de nombreuses questions. Par exemple, il est connu que les paramètres α et q_{eff} dépendent de l'ordre harmonique ce qui implique que les caractéristiques spatiales des différents faisceaux harmoniques changent avec l'ordre comme montré dans le texte. Est-il possible de contrôler α et/ou q_{eff} pour contrebalancer cet effet ? Est-il possible de contrôler le profil spatial du faisceau générateur pour contrôler le front d'onde et le profil spatial des harmoniques ? Par exemple, il a été observé que l'utilisation de faisceau à profil d'intensité radial plat (flat-top beam) et non plus Gaussien permet de réduire notablement la divergence des harmoniques et d'obtenir des divergences très similaires sur une large gamme spectrale (voir [6] par exemple). Peut-être que d'autres profils spatiaux permettront un meilleur contrôle des sources attosecondes. Cela va bien au-delà de l'approximation Gaussienne que nous avons présentée dans cet article mais cette compréhension ouvre de nouvelles possibilités de contrôle cohérent des profils spatiaux XUV et afin d'améliorer les sources attosecondes et ainsi de permettre des avancées dans le domaine de l'attophysique.

- - - Encadré HHG - - - - - - - - - - - - - - - -

La génération d'harmoniques d'ordre élevé (GHOE) est un processus hautement non-linéaire d'interaction entre un faisceau laser intense fondamental et des atomes (ou des molécules) se présentant sous forme gazeuse, liquide ou solide. Ce processus permet de convertir un grand nombre q de photons du laser fondamental (énergie $\hbar\omega_0$) en un photon harmonique q d'énergie $\hbar\omega_q = q\times\hbar\omega_0$ plus élevée (longueur d'onde plus courte) dans le domaine UVX. Le processus de GHOE dans les gaz, qui a une efficacité maximale lorsque le laser de génération est polarisé linéairement, est décrit schématiquement en trois étapes [2-3] (Fig. A) : le champ électrique associé à l'impulsion laser est suffisamment intense pour distordre le potentiel vu par un électron de la cible résultant en un abaissement de la barrière de potentiel permettant à l'électron de s'échapper par effet tunnel (1). L'électron ainsi « libéré » est ensuite accéléré par le champ électrique (2) du laser fondamental. Lorsque ce dernier change d'orientation, l'électron est redirigé vers l'ion parent et ainsi peut revenir à proximité de l'ion parent et se recombiner avec ce dernier (3). L'excès d'énergie (énergie cinétique de l'électron au moment de la collision plus le potentiel d'ionisation) est alors émis sous forme d'un rayonnement UVX. Le spectre se présente sous la forme d'un plateau suivi d'une coupure. L'énergie maximale atteinte par ce spectre est proportionnelle à l'énergie pondéromotrice – énergie moyenne d'oscillation en présence d'un champs laser – qui est elle-même proportionnelle à l'intensité du champs laser et au carré de la longueur d'onde. Pour des intensités suffisamment élevée, la largeur spectrale peut-être compatible avec la production d'impulsions atttosecondes. Au cours de l'interaction, le processus de génération se reproduit à chaque demi- cycle optique. La cohérence du processus et sa périodicité résulte en l'émission d'harmoniques impairs composant un train d'impulsions attosecondes.

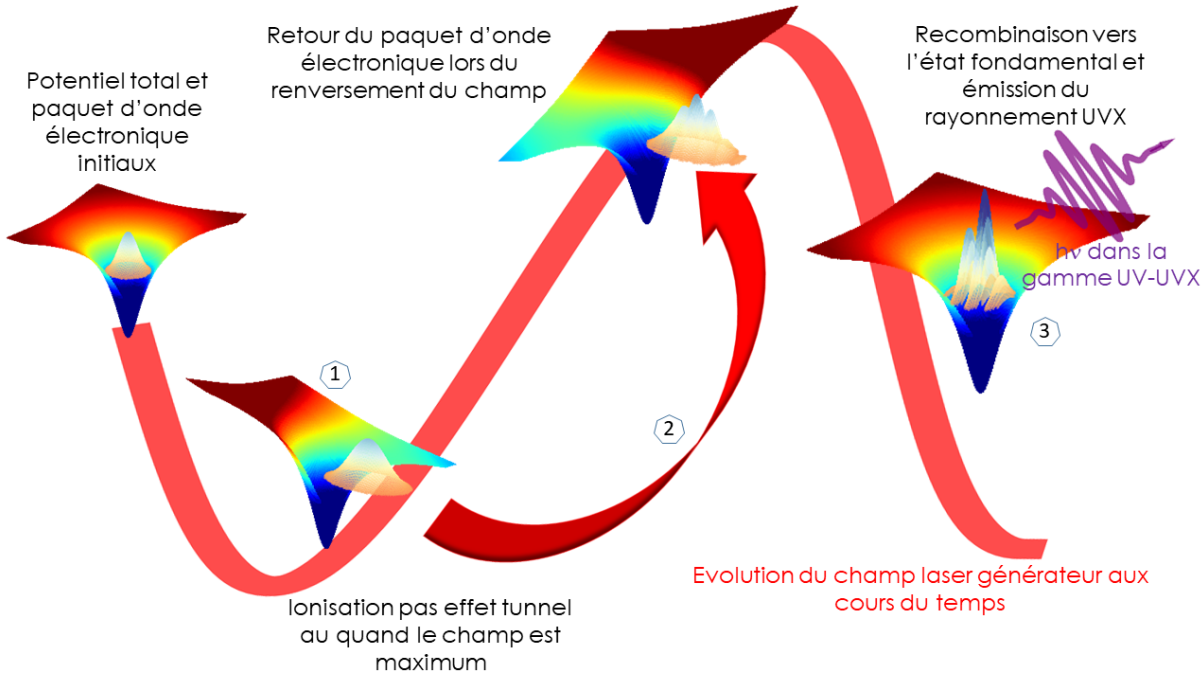
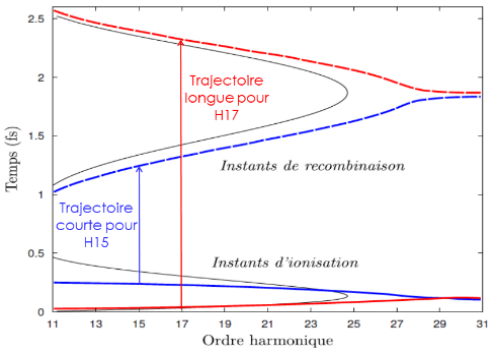


Fig. A : Représentation schématique du processus de génération d'harmonique. Ce schéma fait apparaître les trois étapes clés de la génération d'harmoniques : 1 – l'ionisation, 2 – la propagation sous l'effet du champ laser, 3 – la recombinaison.

Ce rayonnement XUV, composé d'harmoniques, a des propriétés qui sont largement exploitées expérimentalement telle que la cohérence temporelle et spatiale. De plus la synchronisation intrinsèque avec le champ générateur et la relative compacité du dispositif expérimental en font un outil de choix et de prédilection.



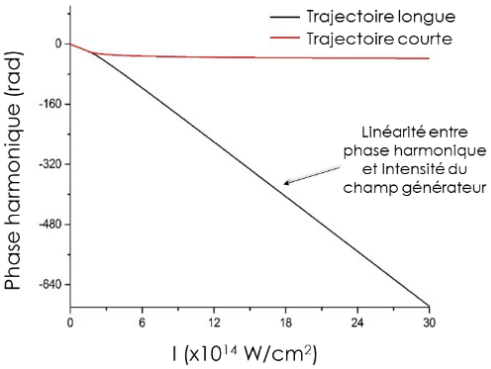


Fig. B-1 – Tracé des temps d'ionisation (en courbes pleines et t = 0 correspond au maximum du champ électrique oscillant à une période de 2,5 fs) et des temps de recombinaisons (courbes en pointillés) en fonction de l'ordre harmonique. Les temps d'excursion (différence de temps entre temps de recombinaison et d'ionisation) pour les harmoniques 17 (H17 trajectoire longue) et 15 (H15 trajectoires courte) sont indiquées. Fig. B-2 – Tracé de la phase du dipôle harmonique obtenu par simulations en fonction de l'intensité du champ laser générateur. La relation de linéarité en phase et intensité est clairement montrée.

Les trajectoires permettant de réaliser la génération d'harmoniques sont déterminées théoriquement par la stationnarité de l'action – comparable au principe de Fermat. Deux classes de trajectoires sont obtenues définies par les temps d'ionisation et de recombinaison (voir Fig. B-1). La particularité des solutions de la physique décrite par le modèle théorique dit « des champs forts » est que les temps sont complexes. La partie réelle, qui correspond au temps où le processus d'ionisation ou de recombinaison a effectivement lieu. La partie imaginaire est quant à elle associée à la probabilité du processus. Sur la figure B-1 les deux classes sont appelées trajectoires courtes ou longues suivant que la différence de temps entre l'ionisation et la recombinaison soit longue ou courte, mais toujours contenu dans un cycle optique. Pour chaque classe de trajectoire, le module et la phase du dipôle harmonique pour une classe particulière est calculé. Sur la Fig. B-2, la phase en fonction de l'intensité pour l'harmonique H15 est tracée. Deux régions montrent une dépendance linéaire de la phase avec l'intensité.

- -

[1] – F. Catoire *et al.*, Photonique **70,** 28 (2014)
[2] – P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993)
[3] – M. Lewenstein *et al.*, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)
[4] – F. Catoire *et al.*, Phys. Rev. A **94**, 063401 (2016)
[5] – L. Quintard *et al.*, Science Advances **5**, 7175 (2019)
[6] – E. Constant *et al.*, J. Phys. B **45**, 074018 (2012)