



## Les lasers attosecondes

Cent attosecondes, soit 100 milliardièmes de milliardième de seconde : c'est le nouveau record de brièveté pour des impulsions laser. Un champ d'observation s'ouvre ainsi pour les physiciens et les chimistes, qui pourront étudier, voire contrôler, des mouvements aussi rapides que ceux des électrons dans la matière.

➤ Pascal SALIÈRES, Thierry RUCHON, Bertrand CARRÉ  
Institut rayonnement matière du CEA-Saclay.  
pascal.salieres@cea.fr

Depuis l'invention du laser, en 1960, la durée d'impulsion a diminué de plus de dix ordres de grandeur, de la milliseconde en 1960 à seulement quelques femtosecondes dans les années 1990. Cet accès à l'échelle de temps femtoseconde, qui est celle des mouvements des atomes dans les molécules, a permis de mesurer « en temps réel » leurs déplacements lors des vibrations et dissociations moléculaires. Maintenant, les chimistes souhaiteraient observer les mouvements des électrons, qui, mille fois plus légers que les noyaux des atomes, sont les premiers à se réorganiser lors de la formation ou de la rupture d'une liaison chimique. Et pour cela, il faut donc des impulsions attosecondes, mille fois plus brèves.

### Production des impulsions

Les lasers actuels émettent au voisinage du domaine visible, où la période est de l'ordre de deux femtosecondes. Pour atteindre l'attoseconde, il faut une période nettement plus courte, qui correspond à l'émission de rayons X. Par ailleurs, la durée minimale d'une impulsion est inversement proportionnelle à son extension en fréquence. Pour obtenir une impulsion de 100 attosecondes, il faut donc disposer d'un spectre dix fois plus large que le domaine visible. Enfin, et ce n'est pas la moindre des contraintes, les différentes fréquences que l'on combine doivent être mutuellement cohérentes : bien qu'oscillant à des fréquences différentes, elles doivent, à un moment donné, toutes être en phase, de façon à s'additionner et produire l'impulsion ultrabrève.

En 1988, des physiciens du CEA-Saclay découvraient qu'en excitant des atomes de gaz rares avec des impulsions laser brèves et intenses, un grand nombre de fréquences toutes multiples de la fréquence laser initiale, appelées fréquences harmoniques, étaient émises : à partir d'un laser infrarouge, ils obtenaient ainsi un rayonnement couvrant un grand spectre de fréquences, du visible aux rayons X [1]. Mais la question de la « synchronisation » attoseconde de toutes ces fréquences restait ouverte car, à l'époque, aucune technique ne permettait de la mesurer. En 1993, le canadien Paul Corkum proposa un modèle où la production de ces harmo-

niques allait de pair avec l'émission d'impulsions ultrabrèves. Lorsque le champ électrique du laser atteint son maximum, il est si intense qu'il arrache un électron à l'atome de gaz rare, l'accélère, puis le renvoie vers l'atome. Lors de la collision au retour, un flash couvrant une large gamme de rayons X, et de durée attoseconde, est émis : il restitue sous forme de lumière l'énergie acquise par l'électron dans le champ laser. Ce processus se produisant chaque fois que l'amplitude du champ laser est maximale, donc toutes les demi-périodes, il en résulte un train de flashes successifs espacés d'une femtoseconde dont l'interférence spectrale ne laisse subsister que les fréquences harmoniques (figure 1).

### Mesure dans la gamme attoseconde

La confirmation expérimentale est venue en 2001 avec la mesure d'un train constitué d'une douzaine d'impulsions durant chacune 250 attosecondes par une équipe franco-néerlandaise menée par Pierre Agostini (CEA-Saclay) et Harm Muller (Institut FOM, Amsterdam) [2]. Pour mesurer ces flashes ultrabrefs, il a fallu inventer une sorte d'« oscilloscope attoseconde », basé sur les travaux de théoriciens de l'Université Paris 6 dirigés par Alfred Maquet : les électrons produits lors de l'ionisation d'un gaz cible par l'impulsion X sont « déviés » par le champ laser d'une impulsion infrarouge peu intense ; leur déviation totale renseigne sur la durée de l'impulsion qui les a créés. Pour utiliser ces impulsions attosecondes dans l'étude de réactions chimiques par la technique pompe-sonde, par exemple, il est toutefois nécessaire d'isoler une impulsion du train généré. Une première technique, mise en œuvre par l'équipe de Ferenc Krausz à Vienne (Autriche) dès 2001 utilise des impulsions laser quasi monocycles pour ne produire qu'un seul flash attoseconde : en 2008, des impulsions isolées

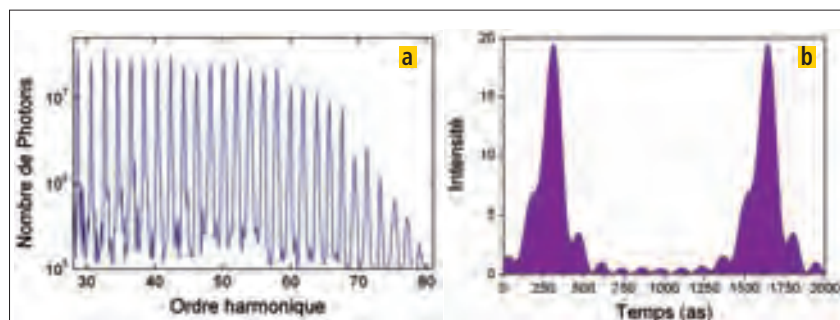


Figure 1. a. Spectre du rayonnement émis par des atomes de néon excités par un laser titane:saphir. b. Partie centrale du train d'impulsions correspondant aux ordres 33 à 53.

de 80 attosecondes ont été générées à partir d'un laser de 3,3 femtosecondes [3].

Une seconde technique a été démontrée en 2006 par une équipe franco-italienne menée par Eric Constant (Université Bordeaux 1) et Mauro Nisoli (École polytechnique de Milan). À l'aide d'un deuxième champ laser, ils contrôlent la trajectoire de l'électron arraché à l'atome et peuvent l'empêcher de collisionner, donc d'émettre des flashes X. Ils ont ainsi réussi à ne produire qu'une seule impulsion de 130 attosecondes [4]. La brièveté des impulsions n'est toutefois pas le seul paramètre important. Pour différentes applications, on souhaiterait contrôler leur profil temporel et leur phase. Une voie très prometteuse est la génération dans de petites molécules de géométrie linéaire ( $H_2$ ,  $N_2$ ,  $CO_2$ ...). En effet, l'orientation de la molécule par rapport au champ électrique du laser infrarouge générateur de l'impulsion détermine la direction de recollision de l'électron et donc les caractéristiques de l'impulsion.

### Vers une imagerie des orbitales moléculaires

L'émission attoseconde résulte du retour de l'électron arraché par le laser à l'état énergétique qu'il occupait initialement. Cet état correspond à une distribution spatiale de la probabilité de présence de l'électron dans la molécule (ce que l'on nomme une orbitale moléculaire) ; l'impulsion attoseconde contient donc une information sur l'orbitale d'origine de l'électron, sondée dans la direction de recollision.

En mesurant l'amplitude et la phase de l'émission attoseconde pour différentes directions de recollision, on peut donc reconstruire, comme en tomographie médicale, une image de l'orbitale moléculaire. Cette possibilité fascinante de visualiser un objet quantique en amplitude et en phase a été proposée initialement par l'équipe de Paul Corkum en 2004 et nous venons de la confirmer début 2010 en collaboration avec l'équipe d'Alfred Maquet [5] (figure 2). Il devient ainsi possible de suivre lors d'une réaction l'évolution de la probabilité de présence dans l'espace des électrons qui participent aux

liaisons chimiques avec une résolution temporelle attoseconde et une résolution spatiale à l'échelle du dixième de nanomètre !

Ce nouveau champ d'études, déjà baptisé attoscience, est en pleine effervescence et intéresse une communauté scientifique croissante. ■



**Figure 2.** Ligne attoseconde du CEA-Saclay installée sur le laser PLFA (laser titane: saphir délivrant des impulsions de 13 mJ, 30 fs à 1 kHz).

### Références

- [1] M. Ferray *et al*, J. Phys. B 21, L31 (1988).
- [2] P.-M. Paul *et al*, Science 292, 1689 (2001).
- [3] E. Goulielmakis *et al*, Science 320, 1614 (2008).
- [4] I. Sola *et al*, Nature Physics 2, 319 (2006).
- [5] S. Haessler *et al*, Nature Physics 6, 200 (2010).

## Modulateur Spatial de lumière LCOS



### La technologie LCOS\* pour un contrôle parfait du front d'onde

- Précision de la modulation
  - 95% de réflectance
- Couvre de 400 à 1600 nm
- Version industrielle disponible
  - Plus de  $2\pi$  de modulation
  - Mode réflexion

\* LCOS : Liquid Crystal On Silicon

**HAMAMATSU**  
PHOTON IS OUR BUSINESS

[www.hamamatsu.fr](http://www.hamamatsu.fr)  
infos@hamamatsu.fr - Tél. +33 1 69 53 71 00