

Des flashes toujours plus courts

Comment observer des mouvements aussi rapides que ceux des électrons ? En les « photographiant » avec des temps de pause extrêmement brefs. Récit d'une course à la vitesse.

Pascal Salières, Thierry Ruchon et Bertrand Carré, physiciens à l'institut rayonnement matière du CEA-Saclay. pascal.salieres@cea.fr

« **P**lus vif que l'éclair », dit-on couramment pour désigner un mouvement trop rapide pour être perçu. La persistance des images sur la rétine, pendant quelques dizaines de millisecondes, nous empêche effectivement de suivre des phénomènes plus brefs, tels que la progression d'une décharge électrique dans les nuages.

Pour s'affranchir de cette limite, l'homme a développé des instruments permettant de mesurer des évolutions toujours plus rapides. Ainsi, dans les années 1870, le photographe anglo-américain Eadward Muybridge, qui souhaitait décrire précisément les mouvements d'un cheval au galop, eut l'idée de prendre des photographies à intervalles réguliers le long d'une piste de course. Pour que les photographies ne soient pas floues, il choisit un temps d'exposition suffisamment court pour « geler » le mouvement.

La technique a largement été reprise depuis. L'invention du laser, en 1960, et les progrès spectaculaires de la technologie associée ont permis, dans les années 1990, de diminuer la durée d'exposition de la milliseconde à seulement quelques femtosecondes*. La femtoseconde est

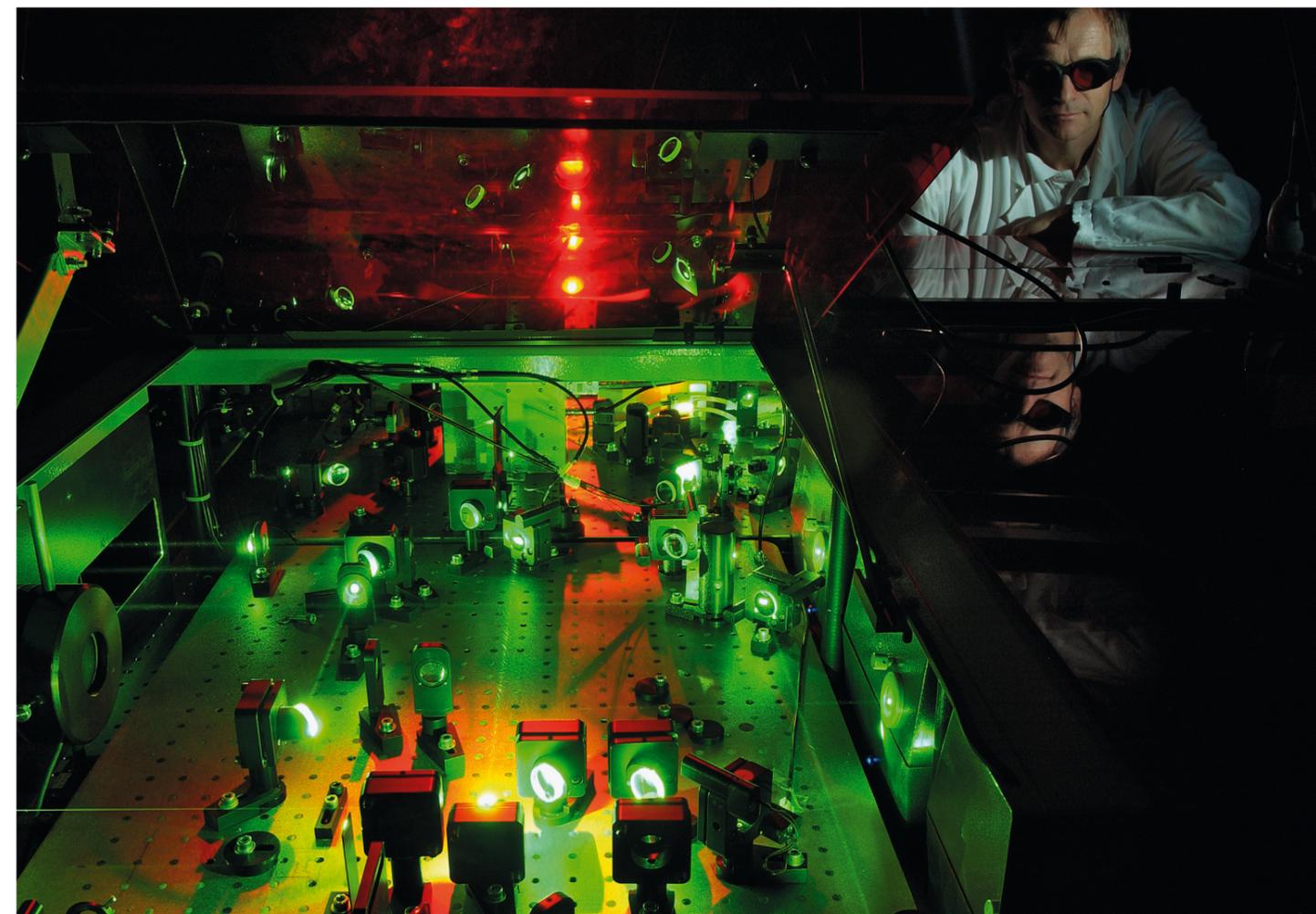
justement l'échelle de temps caractéristique des mouvements des atomes dans les molécules. Il est ainsi possible d'observer « en temps réel » les déplacements des atomes lors des vibrations des molécules ou lors de leur dissociation (lire « La technique pompe-sonde », p. 62).

Cependant, il existe dans les molécules des phénomènes encore plus rapides que les chimistes souhaiteraient observer : les mouvements des électrons. En effet, mille fois plus légers que les noyaux des atomes, les électrons sont les premiers à se réorganiser lors de la formation ou de la rupture d'une liaison chimique. Leur observation nécessite des impulsions attosecondes, mille fois plus brèves.

Rayons X. Comment produire des impulsions aussi brèves que l'attoseconde ? La technologie laser rencontre là une limite fondamentale : l'impulsion ne peut être plus brève que la période de l'onde électromagnétique qui la porte. Or, les lasers actuels émettent au voisinage du domaine visible, où la période est de l'ordre de 2 femtosecondes. Pour atteindre l'attoseconde, il faut une période nettement plus courte, qui correspond à l'émission de rayons X.

On sait par ailleurs, depuis les travaux de Joseph Fourier au début du XIX^e siècle, que tout signal de durée finie est composite en fréquence, c'est-à-dire qu'il peut être construit comme la somme de signaux sinusoidaux ayant chacun une fréquence « pure » bien définie. Et la durée minimale d'un signal bref est inversement proportionnelle à son extension en fréquence. La seconde condition à l'émission d'une impulsion ultrabrève est donc que celle-ci couvre le plus grand domaine possible en fréquence.

Comment conjuguer ces deux impératifs : émettre une onde électromagnétique à très haute fréquence et sur le plus large domaine spectral possible ? Une idée de solution est venue d'un domaine tout autre que la production d'impulsions ultrabrèves. À la fin des années



P. STROPPA/CEA

1980, des physiciens, telle Anne L'Huillier au Commissariat à l'énergie atomique, étudiaient l'excitation d'atomes de gaz rares comme le néon ou l'argon par des impulsions laser femtosecondes. Ces impulsions étaient si intenses qu'elles parvenaient à arracher des électrons à ces atomes pourtant très stables. La lumière émise lors de l'interaction renseignait sur l'état d'excitation des atomes.

Or, dans ces expériences, ils observèrent l'émission d'un grand nombre de fréquences, toutes multiples de la fréquence laser initiale, appelées « fréquences harmoniques ». À partir d'un laser infrarouge, ils obtenaient ainsi un rayonnement couvrant un grand spectre de fréquences, du visible aux rayons X : à condition de filtrer les fréquences les plus basses, il satisfaisait donc les deux conditions préalables à la production d'impulsions ultrabrèves [1]. On pensa donc à

utiliser cette méthode pour produire des impulsions attosecondes.

Mais, pour réellement obtenir de telles impulsions, il existait une dernière condition, et non la moindre : les différentes ondes harmoniques qui se combinent devaient être mutuellement cohérentes, c'est-à-dire que, bien qu'oscillant à des fréquences différentes, elles devaient à un moment

donné toutes être en phase, c'est-à-dire se trouver simultanément à leur amplitude maximale, de façon à s'additionner et à produire l'impulsion ultrabrève. Pouvaient-elles le faire ? C'était évidemment d'autant

plus difficile que le nombre de fréquences à « aligner » était grand. À l'époque, aucune technique ne permettait de mesurer cette cohérence, et a fortiori n'était assez précise pour mesurer des impulsions attosecondes. La question a donc fait l'objet dans la communauté scientifique >>>

En 1990, aucune technique n'était assez précise pour mesurer des impulsions si courtes

Ce laser du CEA-Saclay produit des impulsions femtosecondes. Leur passage dans un tube contenant du néon génère des bouffées de rayons X mille fois plus brèves.

*UNE FEMTOSECONDE est un millionième de milliardième de seconde.

L'essentiel

> DES LASERS délivrant des impulsions de quelques milliardièmes de seconde ont permis depuis les années 1980 d'étudier les mouvements des atomes dans les molécules pendant les réactions chimiques.

> POUR OBSERVER LES TRANSFORMATIONS ÉLECTRONIQUES, on a besoin d'impulsions mille fois plus brèves. Elles ont été produites aux longueurs d'onde des rayons X en éclairant du néon avec un premier laser.

> L'UNE DES PRINCIPALES DIFFICULTÉS a été de trouver des méthodes pour mesurer des événements aussi courts et pour isoler ces impulsions.

La technique « pompe-sonde »

Les chimistes analysent les phénomènes très rapides avec une technique baptisée « pompe-sonde » : une première impulsion lumineuse femto-seconde (la pompe) excite des molécules, déclenchant par exemple une réaction chimique.

Puis, l'état d'avancement de la réaction est sondé à différents instants par l'absorption plus ou moins importante d'une seconde impulsion. La mise au point de cette méthode a valu en 1999 le prix Nobel de chimie à Ahmed Zewail, de Caltech.

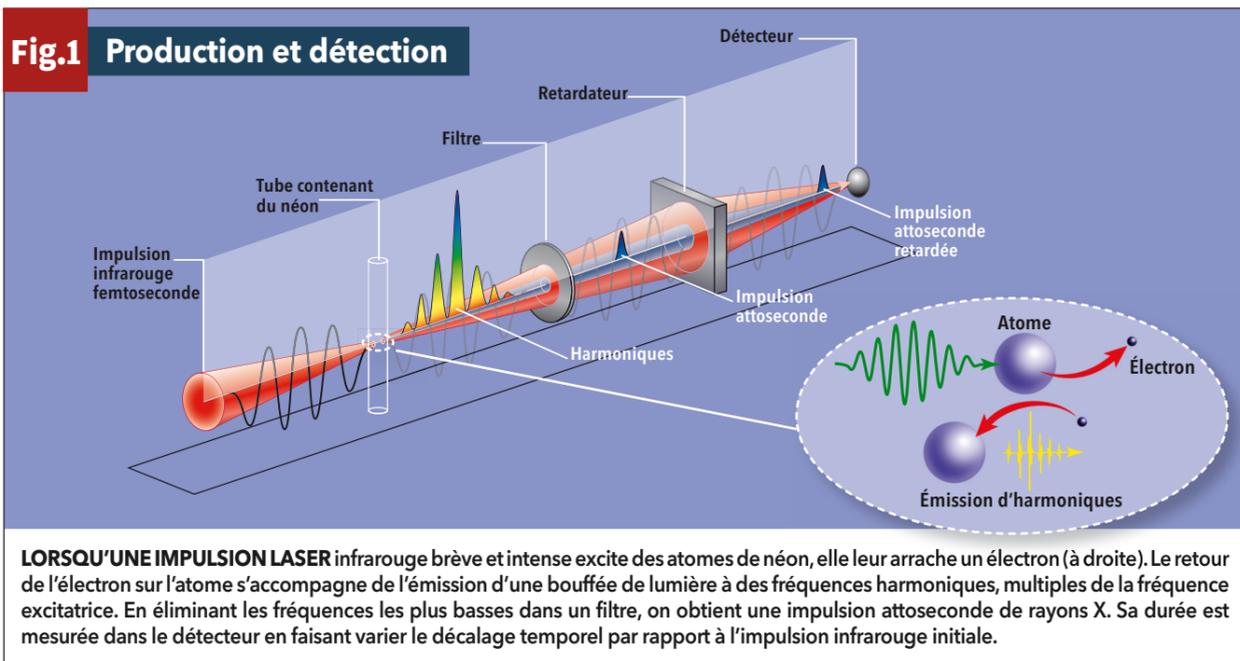
» de vifs débats théoriques, alimentés par des simulations numériques contradictoires.

Dès 1993, Paul Corkum, du Conseil national de la recherche du Canada, avait proposé un modèle où la production d'harmoniques d'ordre élevé allait de pair avec l'émission d'impulsions ultrabréves [2]. Lorsque le champ électrique du laser atteint son maximum, il est si intense qu'il peut arracher un électron à l'atome de gaz rare, l'accélérer, puis le renvoyer 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 reproduit chaque fois que l'amplitude du champ laser est maximale, donc toutes les demi-périodes. Il en résulte donc un train de flashes successifs espacés d'une femto-seconde dont l'interférence ne laisse subsister que les fréquences harmoniques. La confirmation expérimentale que l'on pouvait fabriquer

des impulsions attosecondes de cette manière est venue en 2001, avec la mesure expérimentale d'un train constitué d'une douzaine d'impulsions durant chacune 250 attosecondes par une équipe franco-néerlandaise menée par Pierre Agostini, du Commissariat à l'énergie atomique, et Harm Muller, de l'Institut FOM à Amsterdam [3].

Pour mesurer ces flashes ultrabrefs, il fallait faire appel à un processus plus « rapide » que ces impulsions. C'est l'ionisation d'un gaz cible par l'impulsion X en présence d'une impulsion infrarouge peu intense qui avait fourni la solution. Celle-ci avait été proposée par une équipe de théoriciens menée par Alfred Maquet à l'université Paris-VI : l'impulsion X provoque l'ionisation des atomes du gaz, tandis que la vitesse d'éjection des électrons dépend de la valeur du champ électrique infrarouge à l'instant d'ionisation. Cette valeur peut être variée en faisant parcourir un chemin plus ou moins long à l'impulsion X, ce qui décale l'arrivée des flashes attosecondes au sein de la période de l'impulsion infrarouge femto-seconde. Les physiciens observèrent effectivement que l'énergie des électrons éjectés était modulée et la théorie permit de relier cette modulation à la durée des flashes.

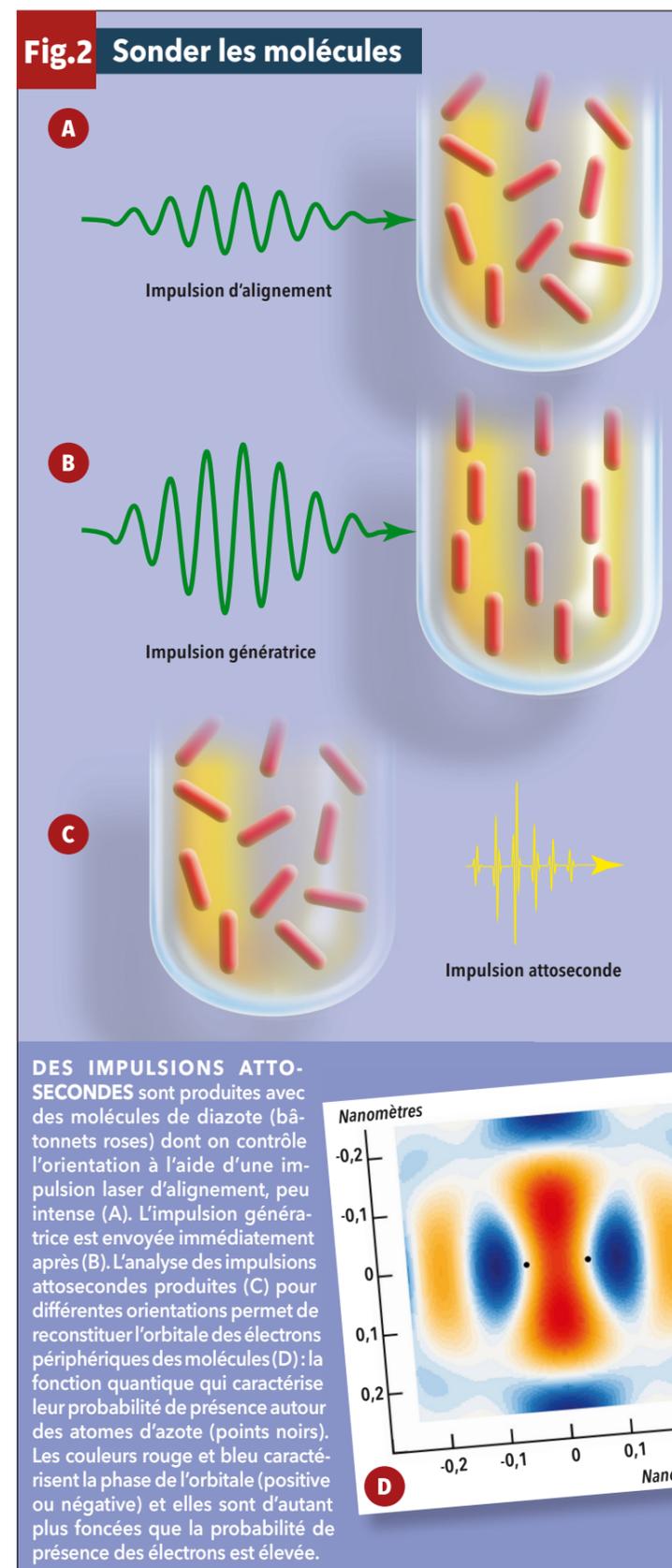
Visualiser les trajectoires. Ils effectuèrent ainsi la première mesure inférieure à la femto-seconde. Des mesures plus récentes effectuées dans notre laboratoire avec la même méthode ont permis d'étudier le processus de génération des impulsions attosecondes lui-même et de visualiser directement les trajectoires électroniques



Les impulsions attosecondes sont produites dans la chambre cylindrique (premier plan) et analysées dans l'enceinte carrée (ouverte).

contribuant à l'émission attoseconde [4]. Pour utiliser ces impulsions attosecondes dans l'étude de réactions chimiques par la technique pompe-sonde, par exemple, il était toutefois nécessaire de les espacer suffisamment, voire de les individualiser complètement. Sinon, pour reprendre l'analogie avec le travail de Muybridge, on réaliserait plusieurs photographies qui se recouvriraient les unes les autres, et qui seraient donc floues. Dès 2001, une première technique fut mise en œuvre par l'équipe de Ferenc Krausz, alors à l'université de Vienne, en Autriche. La focalisation d'une impulsion laser déjà très brève (7 femtosecondes) dans un gaz de néon ne produit que quelques flashes attosecondes. La sélection des harmoniques d'ordres les plus élevés par filtrage leur a ensuite permis d'isoler un flash de 650 attosecondes. Cette durée a été récemment ramenée à seulement 80 attosecondes, avec une impulsion de 3,3 femtosecondes pour le laser générateur [5].

Vitesse latérale. Une seconde technique de production d'impulsions isolées a été démontrée en 2006 par une équipe franco-italienne menée par Éric Constant, de l'université Bordeaux-I, et Mauro Nisoli, de l'école polytechnique de Milan [6]. Ils proposèrent de contrôler la trajectoire de l'électron arraché à l'atome en utilisant un deuxième champ laser perpendiculaire au premier et déphasé d'un quart de période. L'électron acquiert ainsi une vitesse latérale qui, si elle est trop grande, peut lui faire « manquer » l'atome à son retour et supprimer l'émission lumineuse. Ils ont donc »



Trois applications

1. Métrologie ultrarapide.

Les impulsions attosecondes ont permis de mesurer pour la première fois les oscillations du champ électrique à l'intérieur d'une impulsion laser, à une fréquence de l'ordre du petahertz (10^{15} hertz), un million de fois plus grande que celles qu'on peut suivre avec un oscilloscope. La mesure précise de ces oscillations a permis de déterminer la phase de l'onde porteuse par rapport à l'enveloppe [1]. Cette caractérisation complète des impulsions laser devrait permettre de contrôler finement de nombreux processus d'interaction lumière-matière, tels que les effets non linéaires.

2. Spectroscopie atomique.

Les physiciens ont observé le réarrangement ultrarapide du nuage électronique d'un atome de krypton

dont un électron de cœur a été arraché par une impulsion attoseconde : le trou laissé dans la couche profonde est vite comblé tandis qu'un électron est éjecté. L'Autrichienne Lise Meitner et le Français Pierre Victor Auger avaient découvert cet effet en 1923, et l'avait étudié en mesurant l'énergie des électrons éjectés. À cette époque, le trou en couche profonde était produit par un bombardement « long » d'électrons ou de photons X. La production « instantanée » du trou, au moyen d'une impulsion attoseconde, a permis la première observation directe dans le domaine temporel de ce réarrangement du nuage électronique [2].

3. Physique du solide.

Une impulsion attoseconde focalisée sur un métal peut provoquer l'éjection ultrarapide d'électrons

par effet photoélectrique, que ces électrons soient initialement localisés dans les couches électroniques internes des atomes, ou qu'ils appartiennent aux états délocalisés qui assurent la conduction métallique (on parle d'électrons « libres »). Les physiciens ont ainsi pu étudier la dynamique d'éjection des électrons dans un cristal de tungstène, et mettre en évidence des différences de temps de transport des charges de l'intérieur du solide jusqu'à la surface [3]. Une meilleure compréhension de ces processus aurait certainement un impact en microélectronique, par exemple en vue d'augmenter la vitesse des composants.

[1] E. Goulielmakis *et al.*, *Science*, 305, 1267, 2004.

[2] M. Drescher *et al.*, *Nature*, 419, 803, 2002.

[3] A. Cavalieri *et al.*, *Nature*, 449, 1029, 2007.

[1] A. Huillier *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, 70, 774, 1993.

[2] P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.*, 71, 1994, 1993.

[3] P.M. Paul *et al.*, *Science*, 292, 1689, 2001.

[4] P. Salières *et al.*, *Science*, 292, 902, 2001 ;

Y. Mairesse *et al.*, *Science*, 302, 1540, 2003.

[5] E. Goulielmakis *et al.*, *Science*, 320, 1614, 2008.

[6] I. Sola *et al.*, *Nature Physics*, 2, 319, 2006.

[7] W. Boutu *et al.*, *Nature Physics*, 4, 545, 2008.

[8] J. Itatani *et al.*, *Nature*, 432, 867, 2004.

[9] S. Haessler *et al.*, *Nature Physics*, sous presse.

»» modulé cette vitesse latérale via l'intensité relative des deux champs laser, afin de contrôler finement le fait que les recollisions se produisent ou non. De cette façon, ils ont réussi à en sélectionner une seule, produisant alors une impulsion isolée, de 130 attosecondes.

Profil temporel. La brièveté des impulsions n'est toutefois pas le seul paramètre important. Pour différentes applications, on souhaiterait contrôler par exemple le profil temporel et la phase de l'émission attoseconde (lire « Trois applications », ci-dessus). Une voie très prometteuse pour y parvenir est la génération des impulsions attosecondes à l'aide de petites molécules de géométrie linéaire (telles que le dihydrogène, le diazote ou le dioxyde de carbone) plutôt qu'avec des atomes de gaz rares. Avec le mouvement des noyaux atomiques, on dispose en effet de plus de paramètres variables. Par exemple, 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, partant, les caractéristiques de l'impulsion [7].

Ces études utilisant des molécules ont un autre intérêt, plus fondamental : 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 certaine 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 cette orbitale, sondée dans la direction de recollision de l'électron. En mesurant l'amplitude et la phase de l'émission attoseconde pour différentes directions de recollision, on peut 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 [8]. Nous venons de la confirmer, début 2010, lors de la thèse de doctorat de Stefan Haessler, en collaboration avec l'équipe d'Alfred Maquet [9]. 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.

Ce nouveau champ d'études, déjà baptisé « attoscience », est en pleine effervescence. Il intéresse une communauté scientifique croissante. De nombreuses possibilités d'optimisation et de contrôle de l'émission attoseconde ont été proposées et restent à explorer. Les applications se multiplient, avec la possibilité de combiner une résolution temporelle attoseconde et une résolution spatiale à l'échelle du dixième de nanomètre ! Cela ouvre la voie à l'étude de nombreux phénomènes fondamentaux intervenant au cœur de la matière. ■

En savoir plus

► <http://bit.ly/6Jliyo>
la thèse de Stefan Haessler.

► <http://bit.ly/80kADV>
le groupe « Attophysique » de Saclay.