

# Histoire des attosecondes

Pierre Agostini

Dept of Physics

The Ohio State University

Attoseconde =  $10^{-18}\text{s}$

Les “attos” sont des flashes de lumière extrêmement courts dans les XUV (30 eV -1 keV).

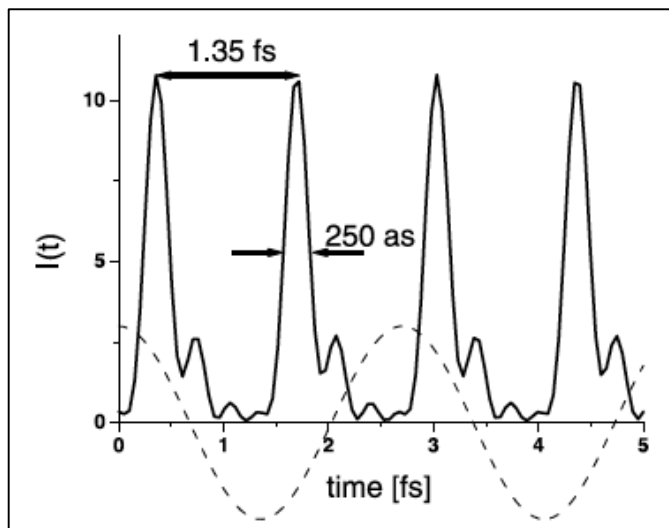
Leur spectre est nécessairement très large

Ils se déplacent bien sûr à la vitesse de la lumière 0.3nm/as



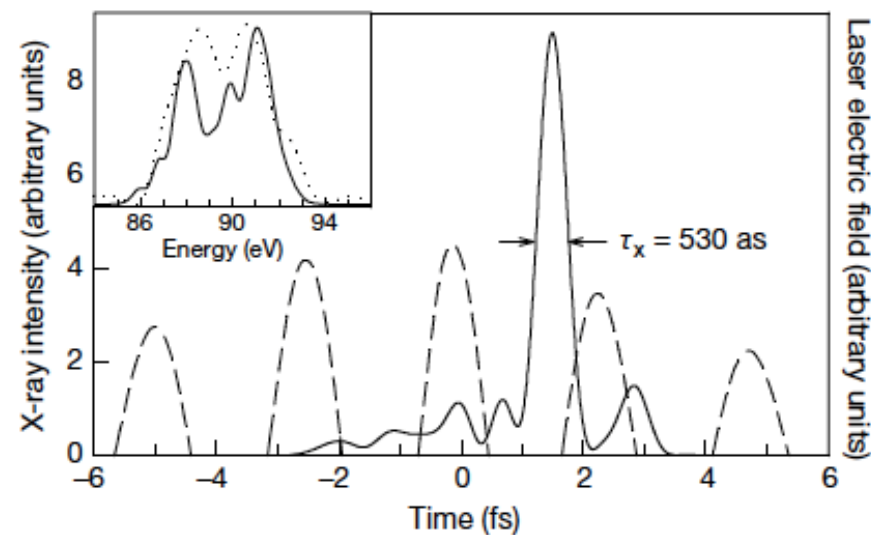
# Attosecondes 2001

## Premier train



Paul et al Science 2001

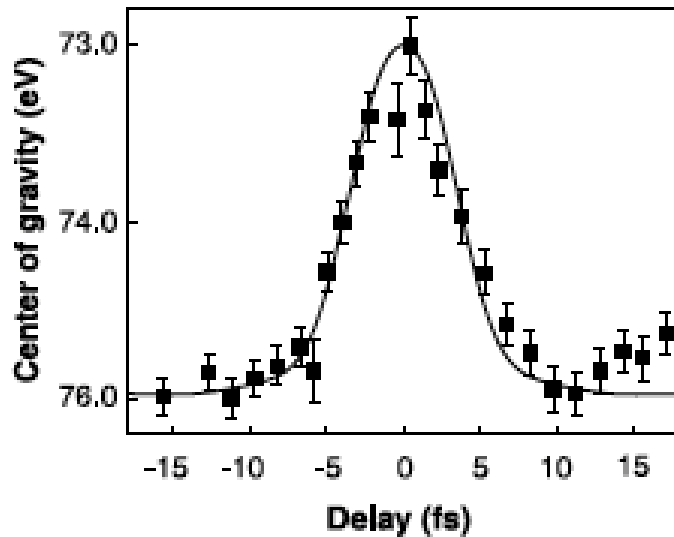
## Premiere impulsion isolée



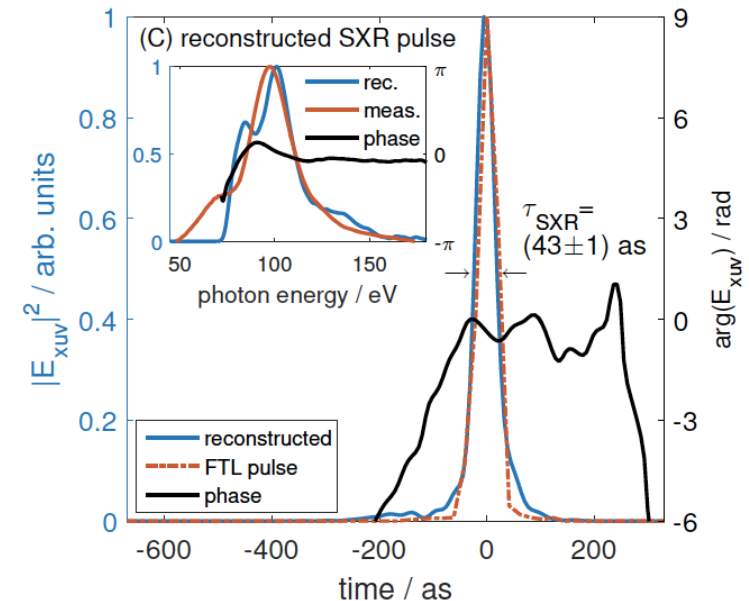
Hentschel et al Nature 2001

L' "histoire" que je vais vous raconter commence vraiment en 1979, se poursuit en 1987 puis en 1992 et 1996 pour finir en 2001, qui est aussi le commencement.

Je vais surtout vous parler des trains d'impulsions (APT). La technique des impulsions isolées (IAP) est plus sophistiquée car elle exige des lasers de pompe super-courts (un ou deux cycles)



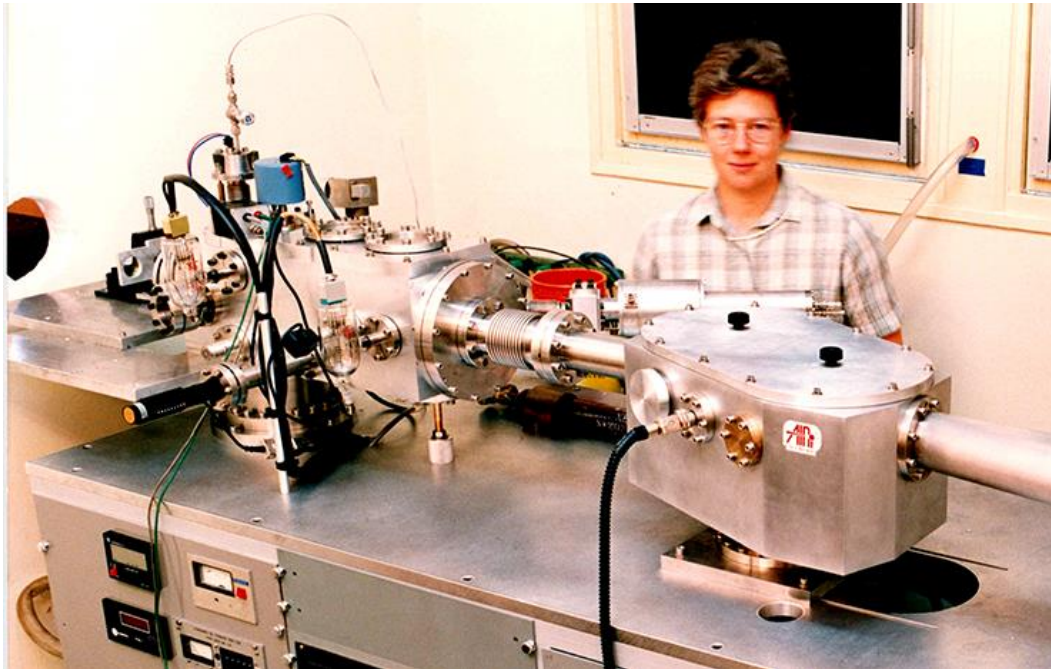
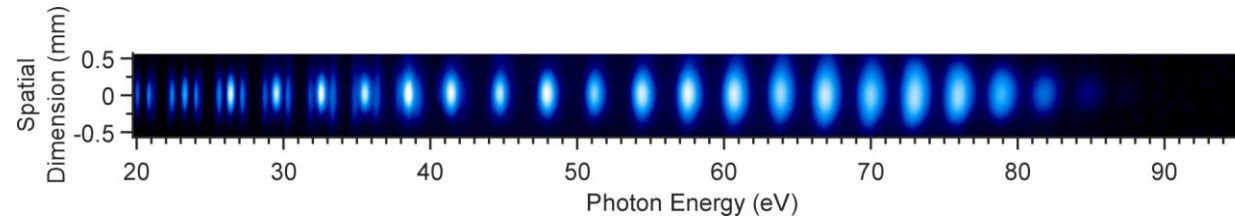
Drescher et al. Science 2001



Gaumnitz et al Optics Express. 2017

Cette technique déteint le record actuel de l'impulsion la plus courte avec 43 as.

Les deux techniques reposent sur la Génération d'Harmoniques élevées découverte par d'Anne L'Huillier et collaborateurs dans les années 80, en même temps qu'à Chicago. Une découverte purement expérimentale, inattendue, inexplicable!



Anne dans son labo, bat 24 à Saclay.

**Sans les harmoniques**, qui fournissent la fréquence élevée et la bande de fréquence, **pas d'attosecondes!**

Irradié par un laser intense IR un atome peut absorber un nombre impair de photons et émettre un photon XUV d'énergie égale.

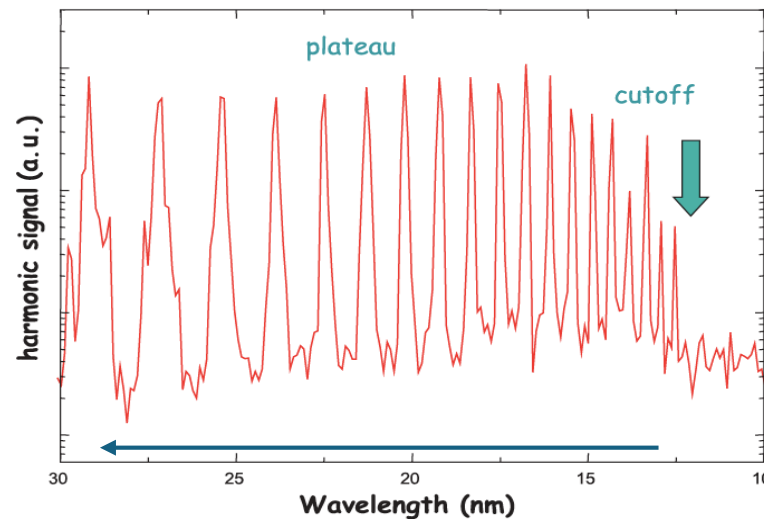
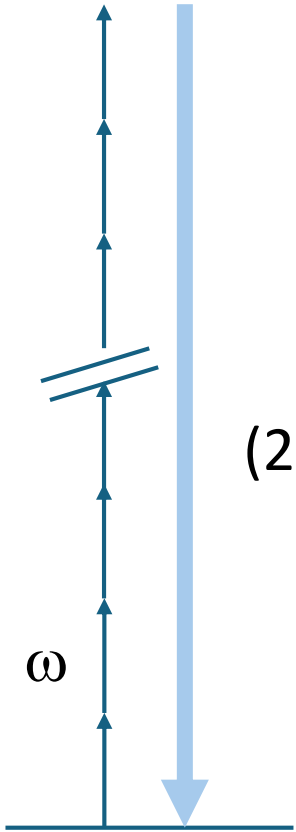
On connaissait l'optique non linéaire, avec des ordres trois ou cinq, maximum, mais les harmoniques vont jusqu'à 300

Le spectre des harmoniques est inexplicable par la théorie des perturbations; la seule dont on disposait à l'époque.

$$(2q + 1) \omega$$

On sait maintenant (depuis Ken Kulander, 1987) résoudre l'Equation de Shrodinger numériquement et reproduire ces spectres

Le cutoff d'autre part s'explique bien par le modèle des recollisions (Schafer, Kulander (1993), et Corkum (1993)).



La théorie des recollisions en deux mots:

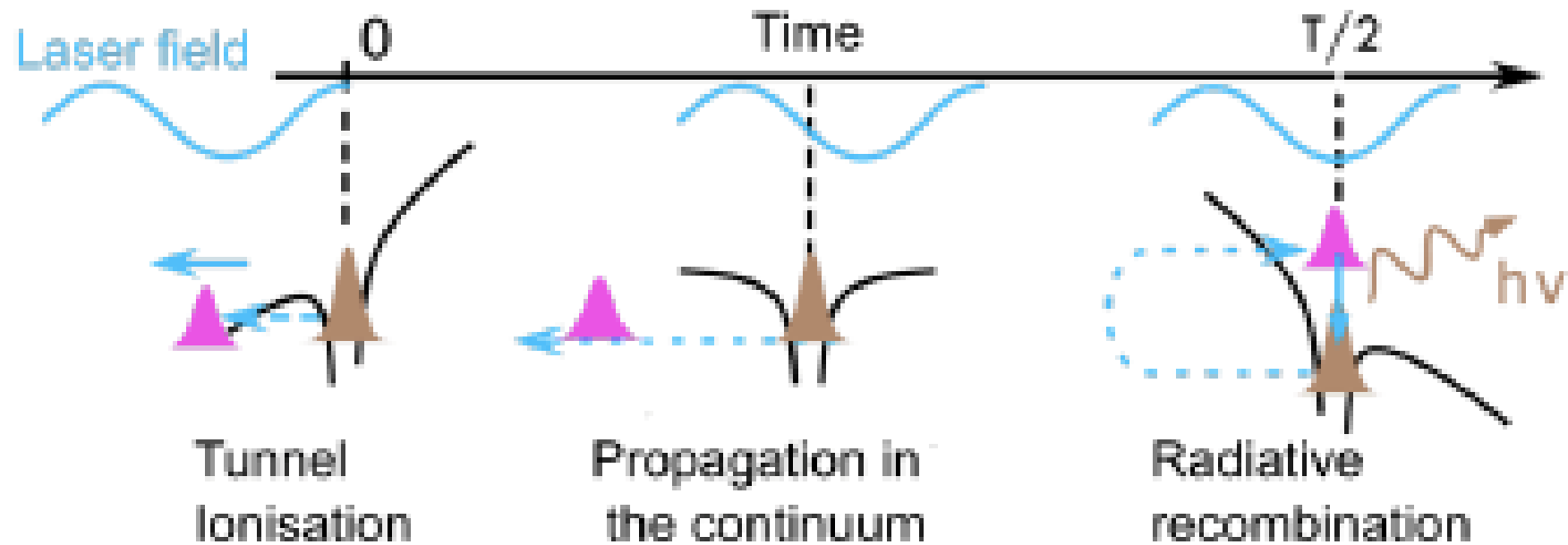
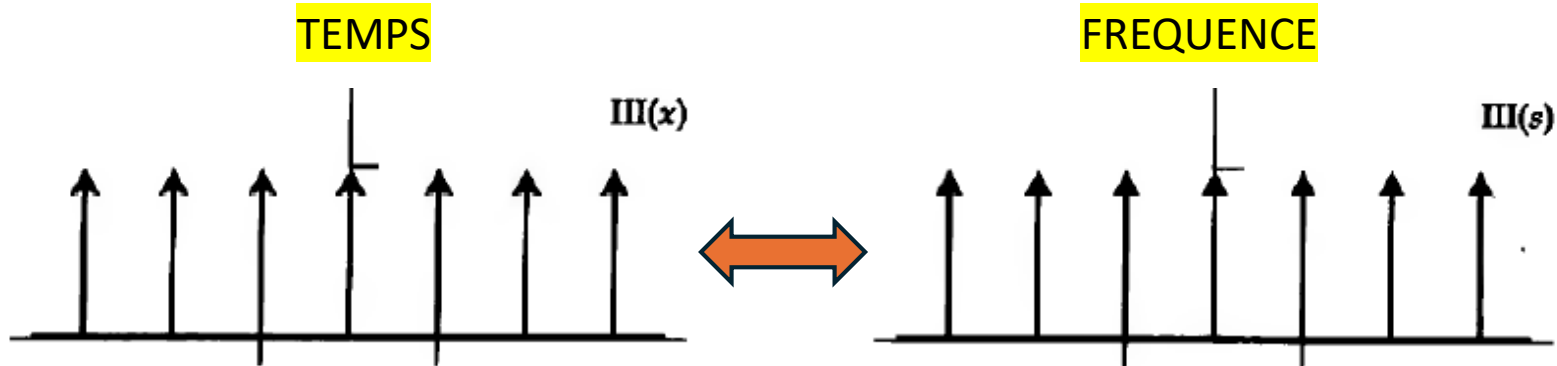


Fig. empruntée à Thierry Ruchon

# Transformée de Fourier



Joseph Fourier, 21 March 1768–16 May 1830. (By permission of the Bibliothèque Municipale de Grenoble.)

Les propriétés de la transformée de Fourier permettent de penser que le spectre des harmoniques peut correspondre à une série d'impulsions très courtes quand les phases spectrales sont des **constantes ou des fonctions linéaires** de la fréquence.



Il faut attendre 1992 pour une première mention, assez discrète, de la possibilité théorique d'impulsions très courtes liées au spectre des harmoniques par Farkas et Toth, deux physiciens hongrois.

Si les phases spectrales sont d'accord!

G. Farkas



Cs. Toth

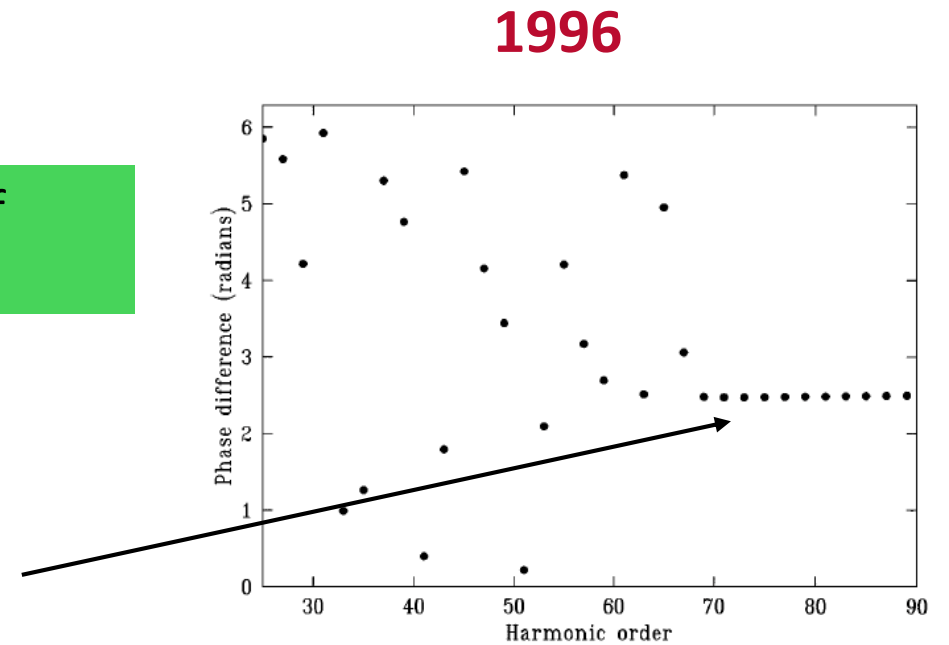


Physics Letters A 168 (1992) 447

Or justement il y avait un calcul (à Saclay) d'Antoine, L'Huillier et Lewnestein qui semblait dire que les phases n'étaient pas d'accord!

Les phases en fonction de l'ordre apparaissent aléatoires, sauf dans le cutoff où l'intensité des attosecondes est très limitée.

(c'est la solution utilisée pour les IAP de Ferenc Krausz)





# Mesurer les attosecondes

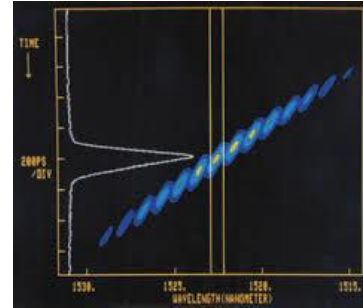


Nanosecond



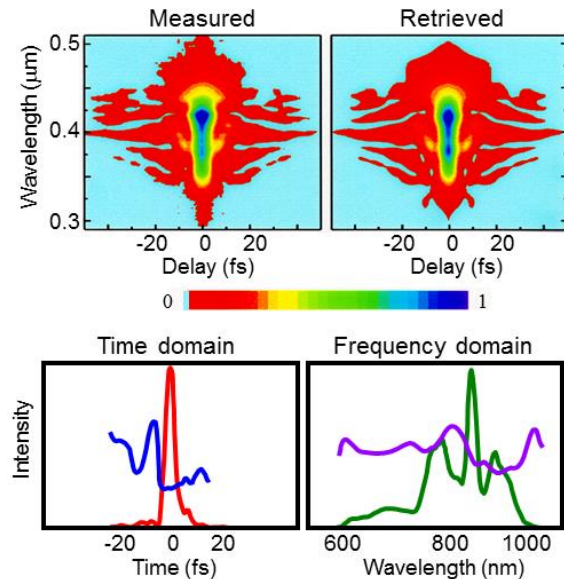
Fast Photodiode

Picosecond



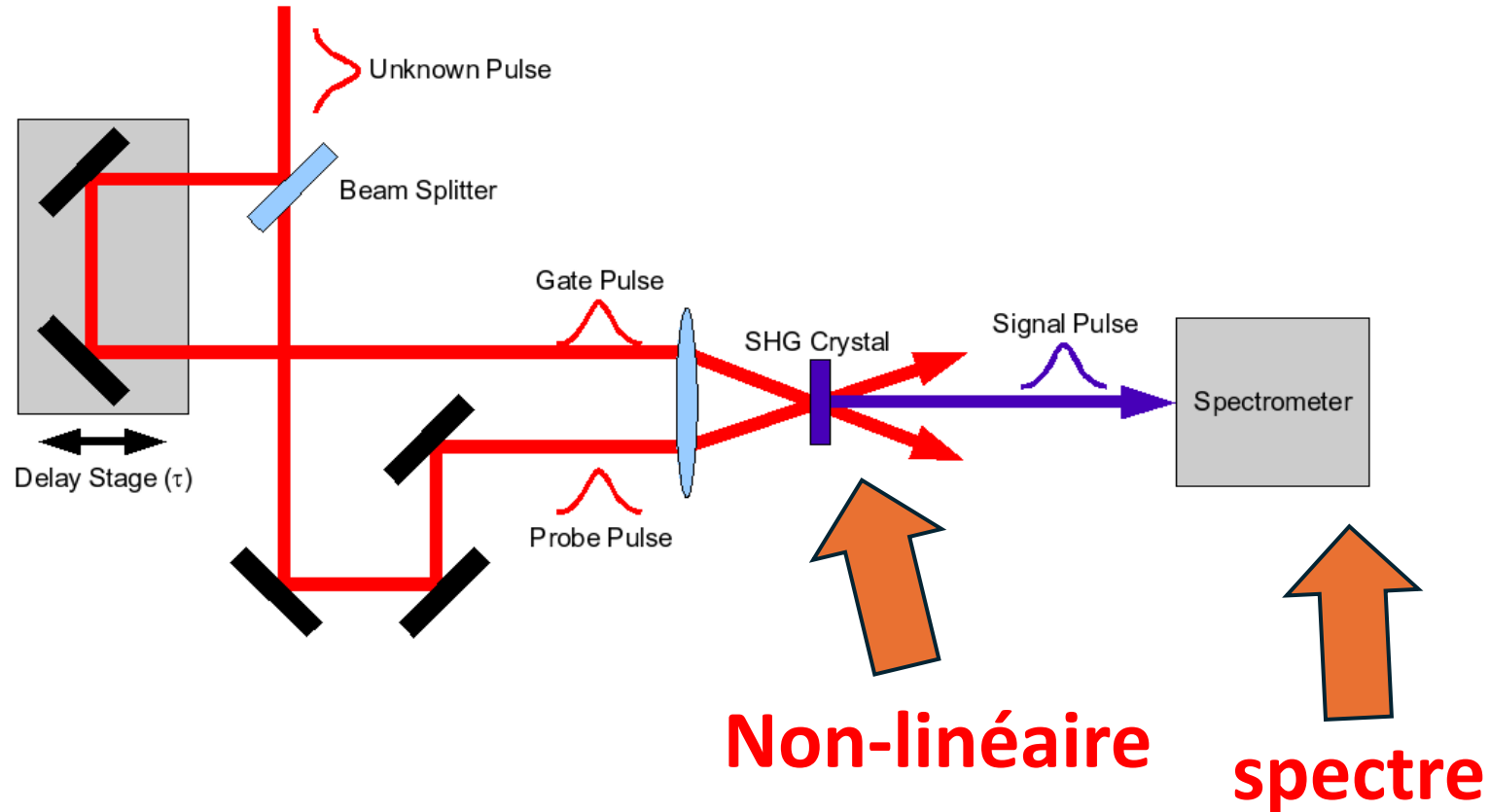
Streak Camera

Femtosecond



FROG

# Trebino's FROG for $fs$ IR pulses



C'est une extension de cette méthode qui deviendra RABITT en 2002



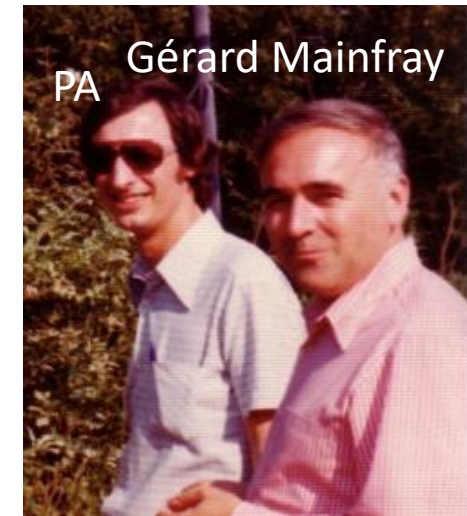
Le processus multiphotonique que va jouer le rôle de l'élément non linéaire a été observé pour la première fois en 1979 à Saclay



Françoise  
Fabre



Guillaume  
Petite



PA Gérard Mainfray



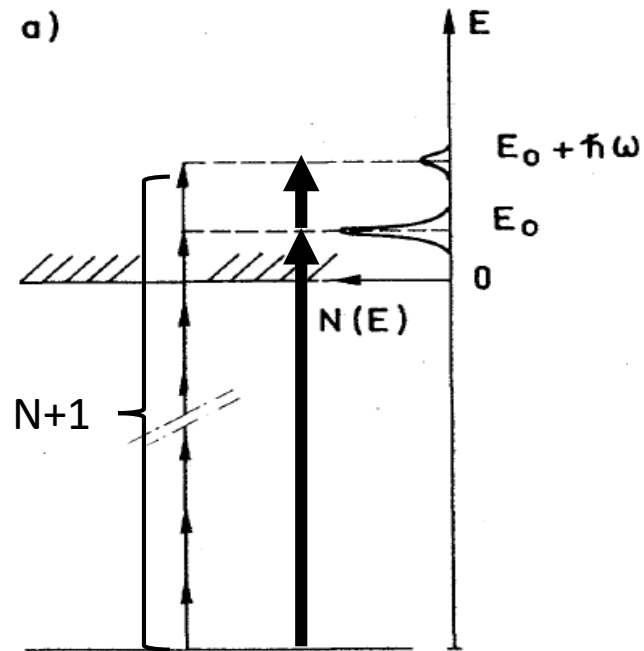
Naseem  
Rhaman

Les harmoniques fournissent facilement la fréquence et la bande de fréquences nécessaires à la synthèse d'impulsions attos.

Ils sont faciles à générer par exemple dans un gaz

Un seul défaut : leur **intensité est trop faible** pour des effets non linéaires.

Or, pour extraire les phases il faut un processus non linéaire. Il sera fourni par une ATI a deux couleurs et deux photons



Le spectre des photoélectrons produits sous haute intensité révèle des transitions à  $N+s$  photons ou  $n$  est le nombre minimum imposé par le potentiel d'ionisation et l'énergie des photons.

La version 2-couleurs 2-photons de cette ATI est facilement observable en superposant un faisceau laser au train d'impulsions attosecondes.

Le calcul qui a inspiré RABBITT se trouve dans le paragraphe V d'un PRA de 1996 intitulé **Phase dependence of (N+1)-color (N>1) ir-uv photoionization of atoms with higher harmonics**



Valerie  
Veniard



Richard  
Taieb



Alfred  
Maquet



Véniard et al PRA 54:721 (1996)

Ce calcul est la base de RABBITT

Une interférence détermine:

- la phase des harmoniques; et donc les attosecondes.
- retards de photo ionisation





Nobel  
Museum

Ti:S  
40 fs  
800 nm  
8 mJ  
1 kHz

Cache

stepping motor

Argon

Diaphragm

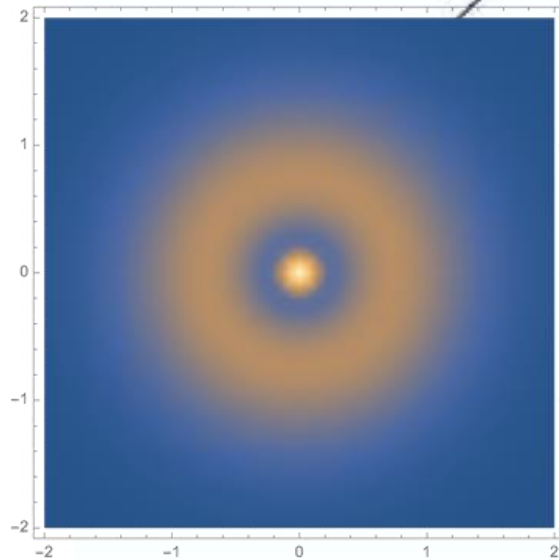
Mirror

e<sup>-</sup>

Argon

MCP

TOF spectrometer



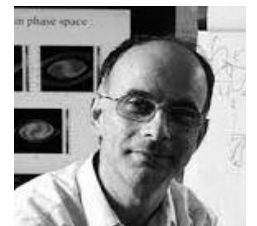
H.G. Muller



E. Toma

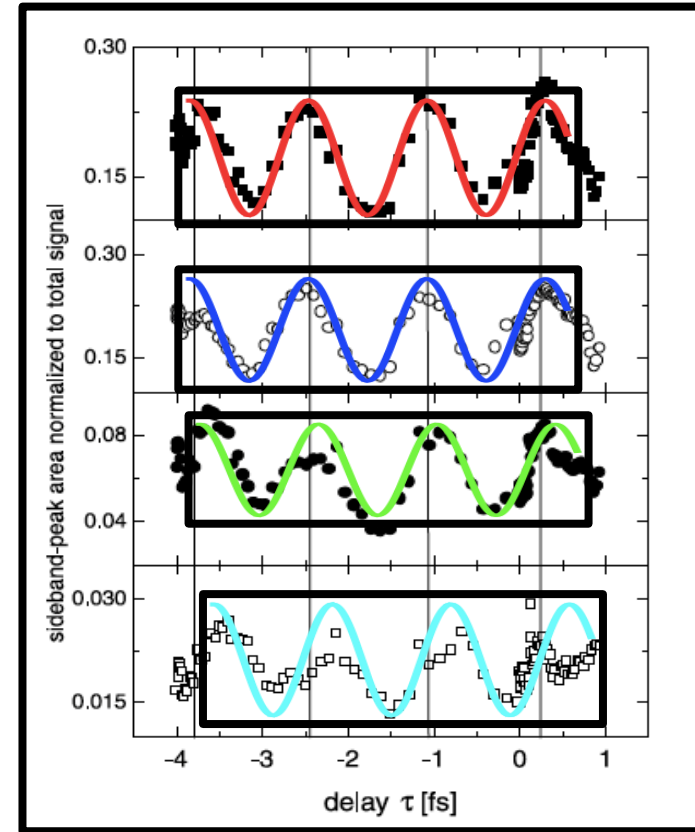
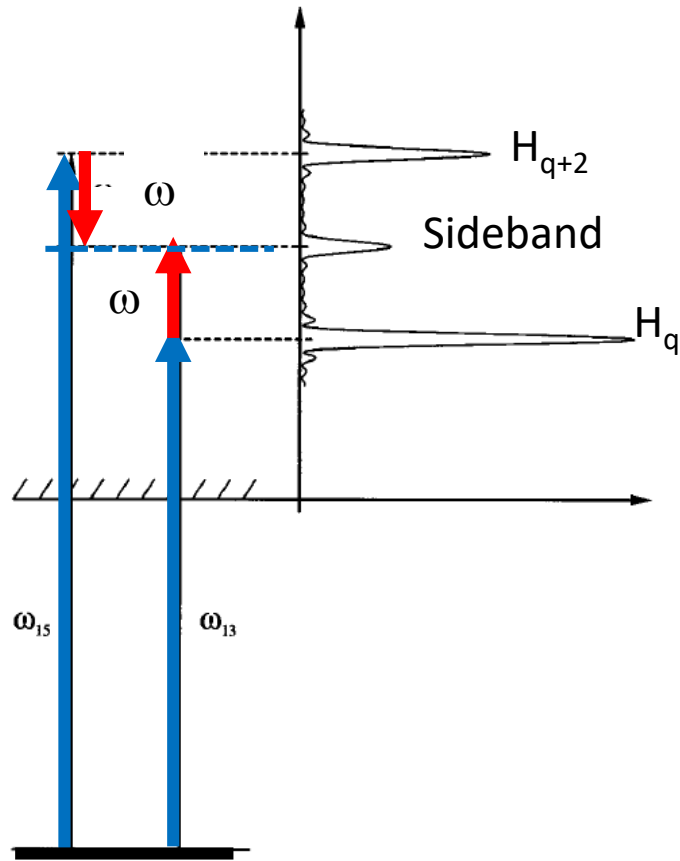


P. M. Paul

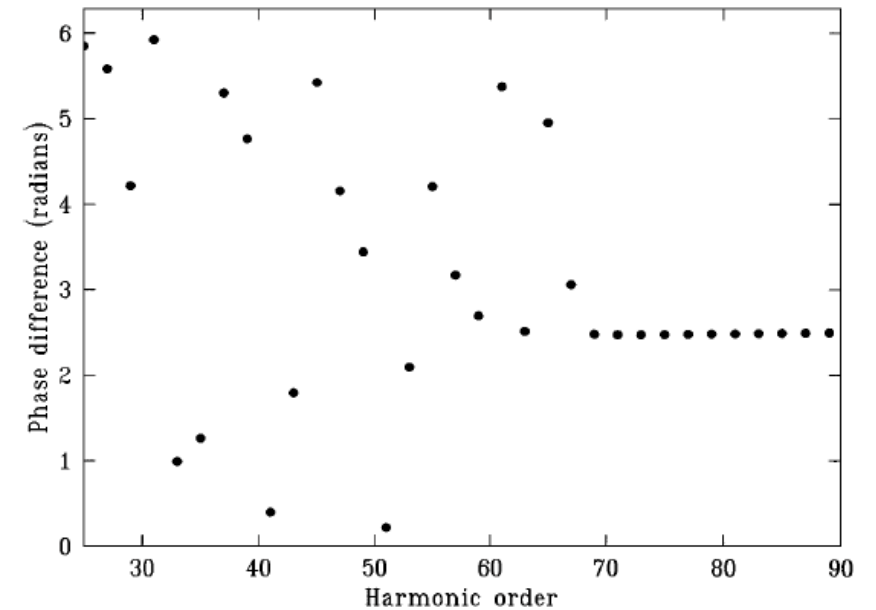
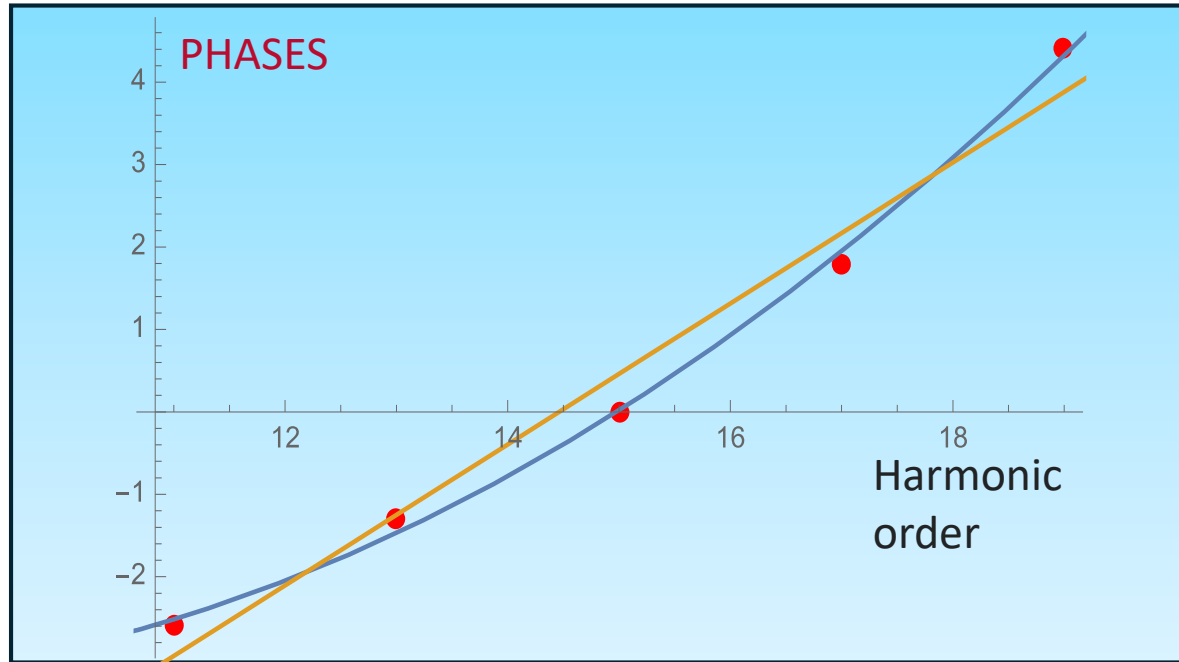


Ph. Balcou

# 1ere Mesure des phases harmoniques



Les phases sont une fonction à peu près linéaire de l'ordre des harmoniques (en fait légèrement quadratiques comme précisé plus tard par Kazamias et Balcou) .

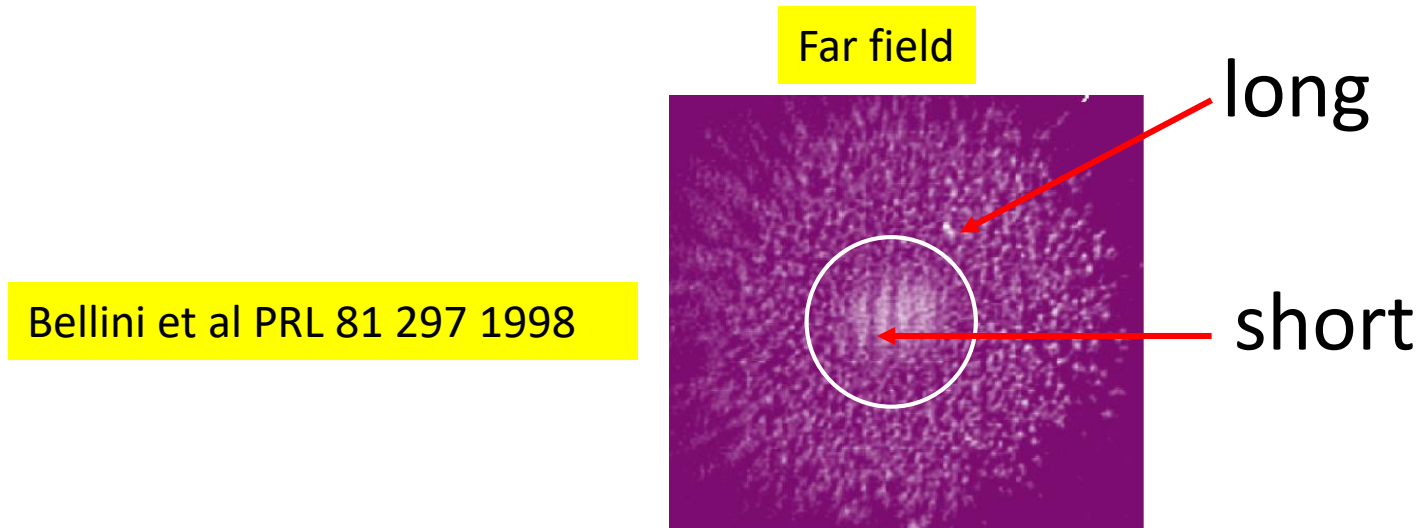


Antoine et al. PRA 1996

C'est exactement ce qu'il faut pour faire des attosecondes, mais, alors, on peut se demander si le calcul d'Antoine était faux .

La théorie des harmoniques (Lewenstein et al PRA 1996) nous dit que pour chaque harmonique il y a deux contributions . On les appelle les « trajectoires longues et courtes ». Le calcul d'Antoine et al., somme les deux contributions et le résultat est l'effet de leur interférence .

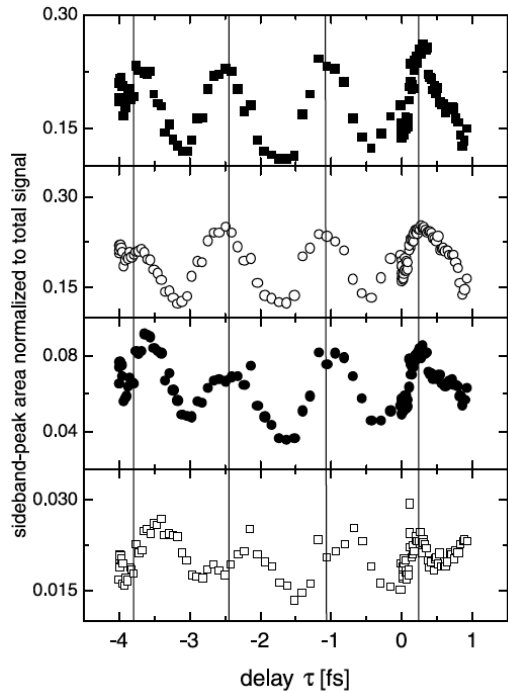
Or une autre expérience d'Anne L'Huillier en 1998 montre que les deux contributions ont des distributions angulaires différentes



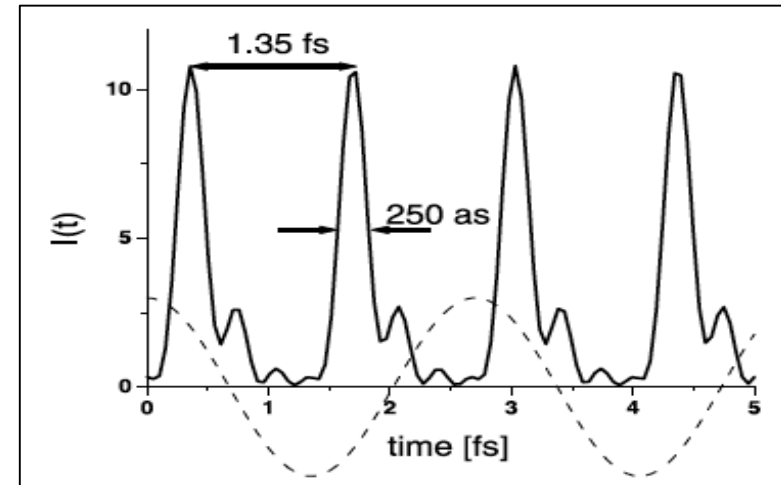
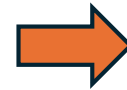
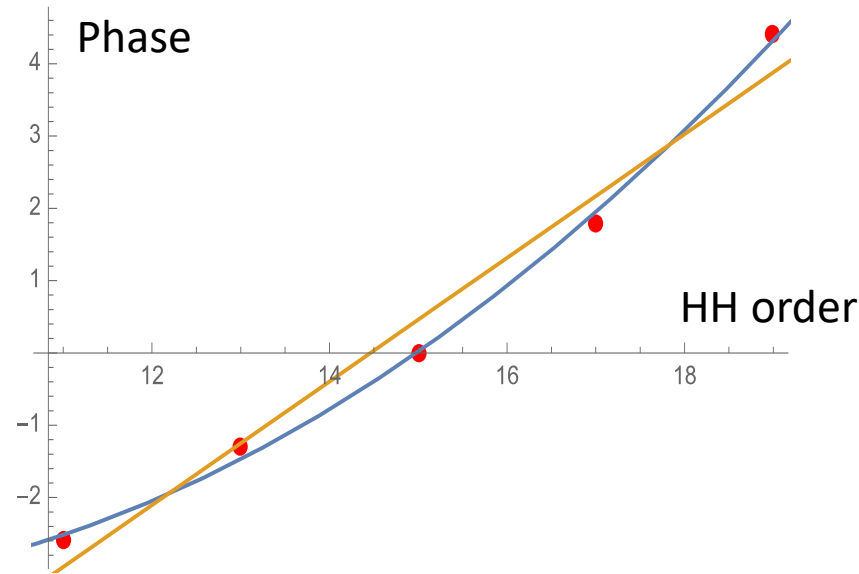
La trajectoire longue est éliminée par un simple diaphragme, la pièce maitresse de l'équipement!



En résumé, la mesure des attosecondes se fait dans le domaine spectral .  
**Amplitudes + Phases = RABBITT.**



+





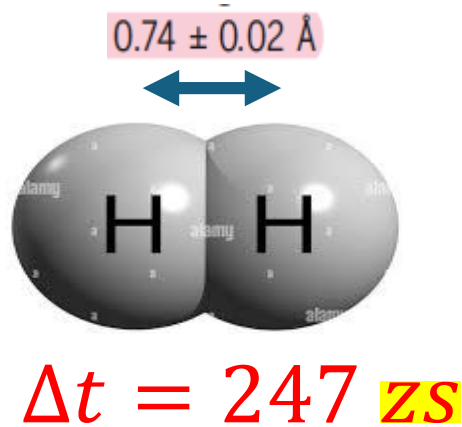
Une remarque:

Ni la génération harmonique (1987), ni L'ATI (1979), ni l'interférence quantique (1996) qui ont fait un succès des recherches de 2001 ne mentionnait les attosecondes!  
Ces connaissances sont indispensables au succès de l'expérience de 2001!

Il est difficile de prévoir si une recherche trouvera un jour une application.

# Peut-on aller au-delà des attos?

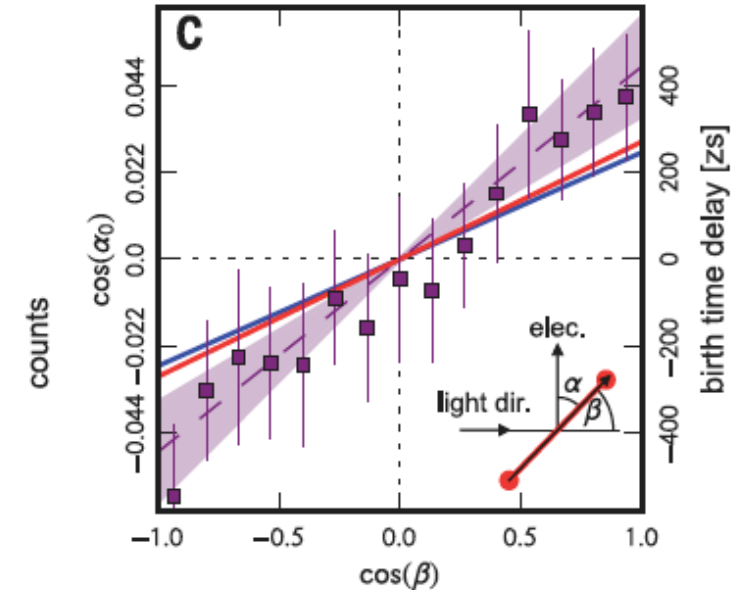
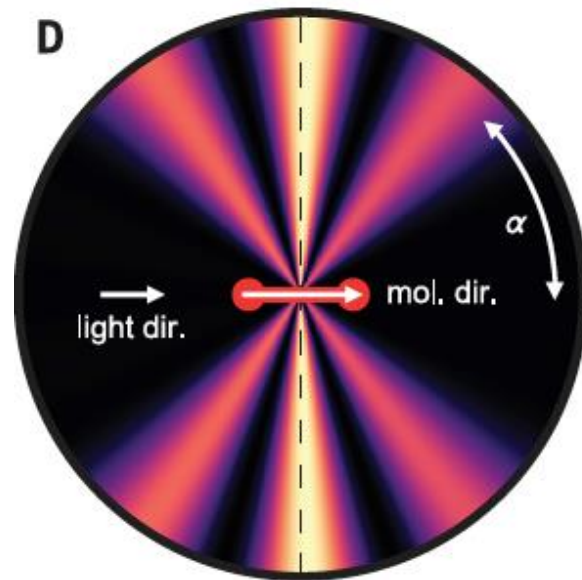
Le plus court  
intervalle de temps  
mesuré!



## Zeptosecond birth time delay in molecular photoionization

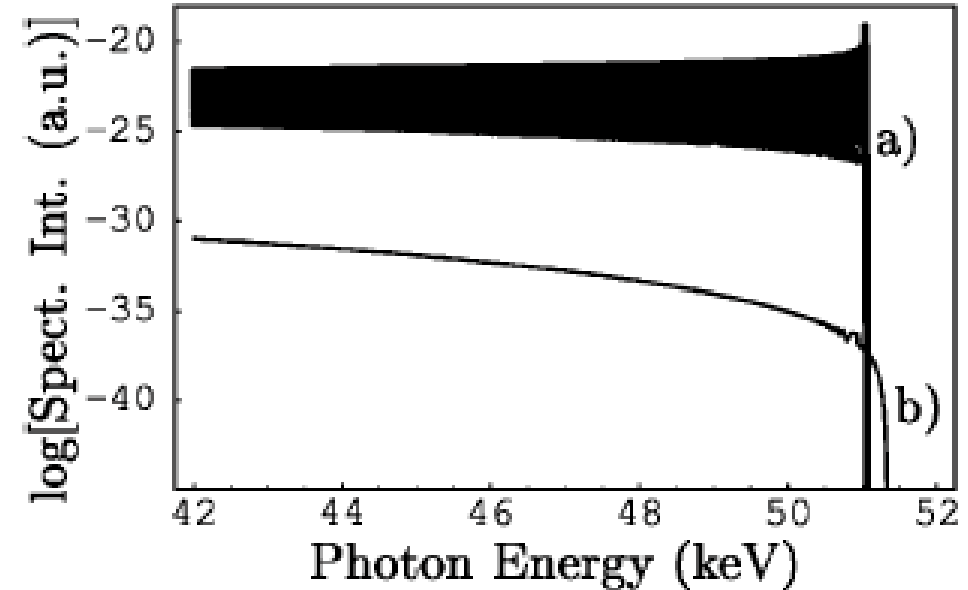
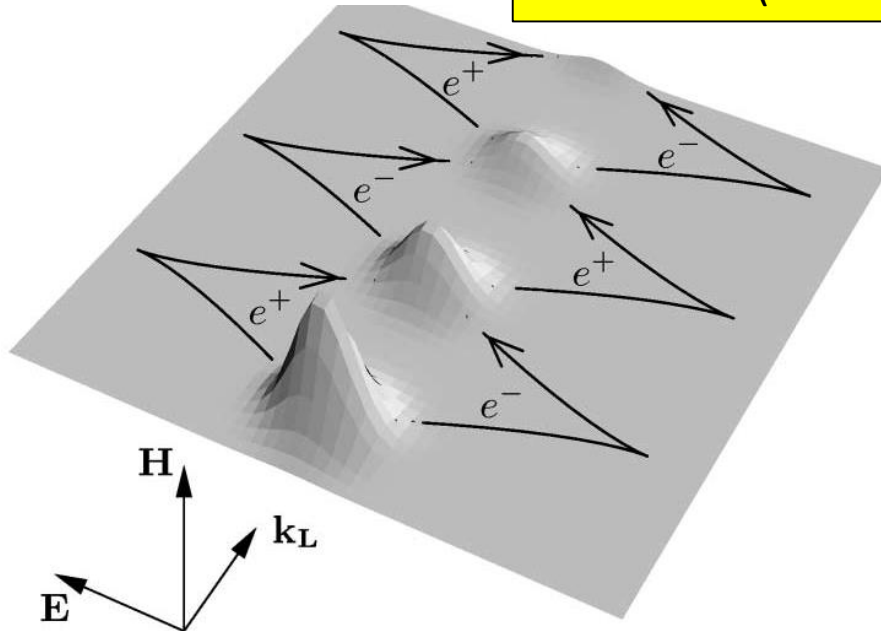
Sven Grundmann<sup>1\*</sup>, Daniel Trabert<sup>1</sup>, Kilian Fehre<sup>1</sup>, Nico Strenger<sup>1</sup>, Andreas Pier<sup>1</sup>, Leon Kaiser<sup>1</sup>,  
Max Kircher<sup>1</sup>, Miriam Weller<sup>1</sup>, Sebastian Eckart<sup>1</sup>, Lothar Ph. H. Schmidt<sup>1</sup>, Florian Trinter<sup>1,2,3</sup>,  
Till Jahnke<sup>1\*</sup>, Markus S. Schöffler<sup>1</sup>, Reinhard Dörner<sup>1\*</sup>

*Science* **370**, 339–341 (2020)



Pour des impulsions de lumière Zeptosecondes il faudrait des ordres d'harmonique de l'ordre de 10000!  
 Même un laser très intense ne peut générer de tels ordres car la composante magnétique de la force de Lorentz empêche la recollision.

La solution (théorique): le positronium



VOLUME 93, NUMBER 1

PHYSICAL REVIEW LETTERS

week ending  
 2 JULY 2004

### Positronium in Intense Laser Fields

Björn Henrich,<sup>1</sup> Karen Z. Hatsagortsyan,<sup>1,2,\*</sup> and Christoph H. Keitel<sup>1,3,†</sup>



# APPLICATIONS

Photo L. F. DiMauro  
Nature 2002





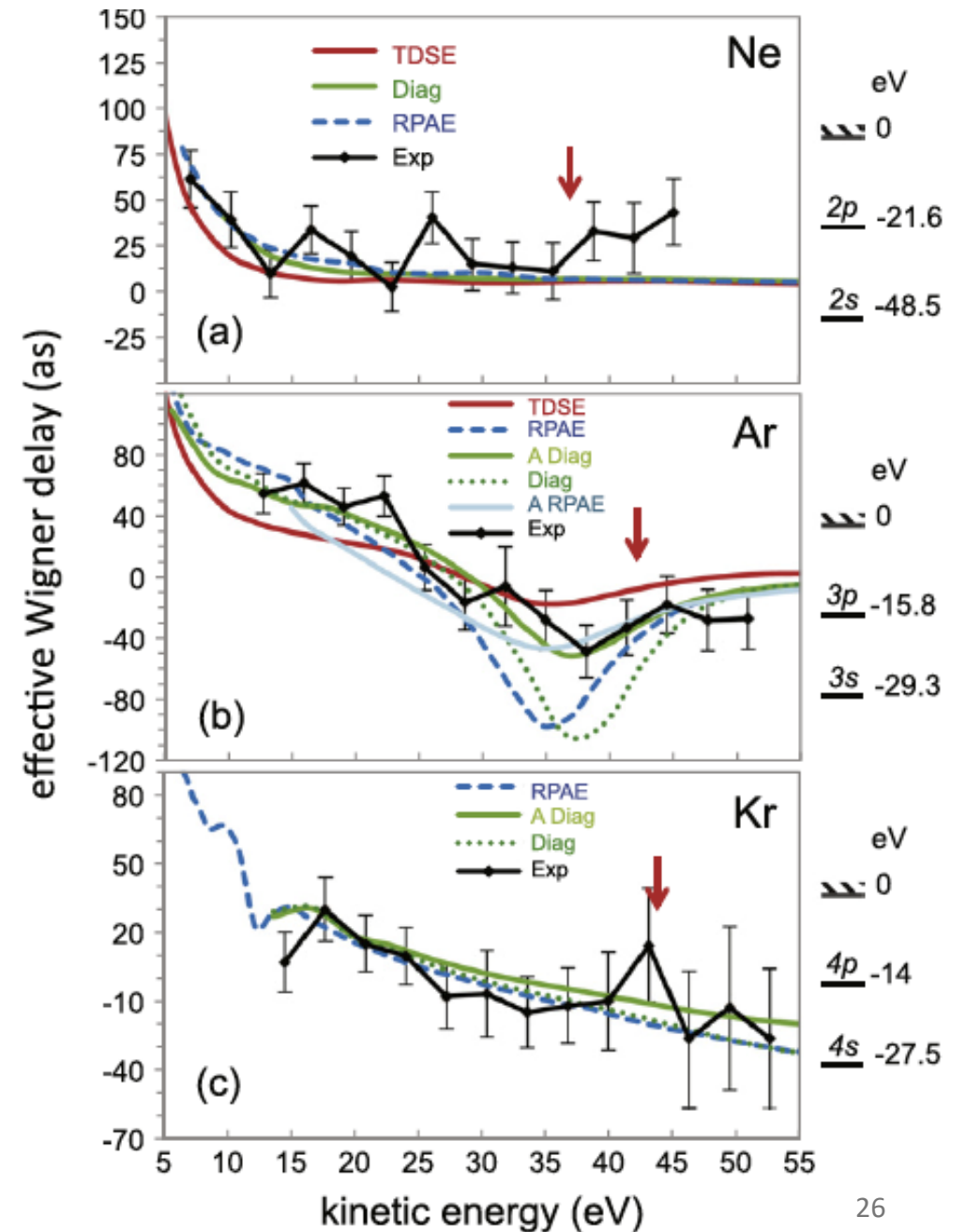
# Les retards de Photoionisation

C'est une conséquence du calcul de Veniard et al. de 1996. la phase spectrale mesurée est la somme de la phase harmonique (responsable des attosecondes dans le domaine temporel) et d'une phase qui dépend de l'atome. Cette (petite) phase correspond au retard de Wigner de l'ordre de 10-100 as.

De nombreux calculs théoriques permettent une comparaison avec l'expérience.

Ici un exemple d'une telle comparaison a Ohio State.

C. Palatchi et al., J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 47 (2014)



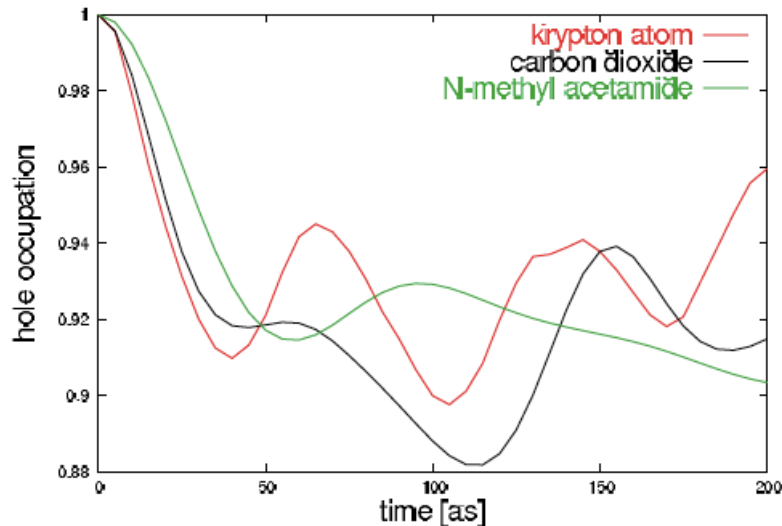


# Migration de charge

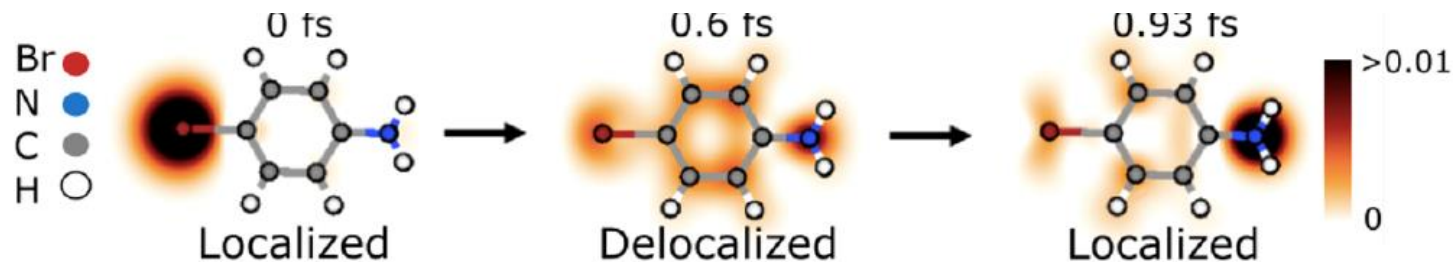
Breidbach & Cederbaum

PRL **94**, 033901 (2005)

When an electron is suddenly removed, a universal response of the system is shown to occur on an attosecond ( $10^{-18}$  s) time scale.

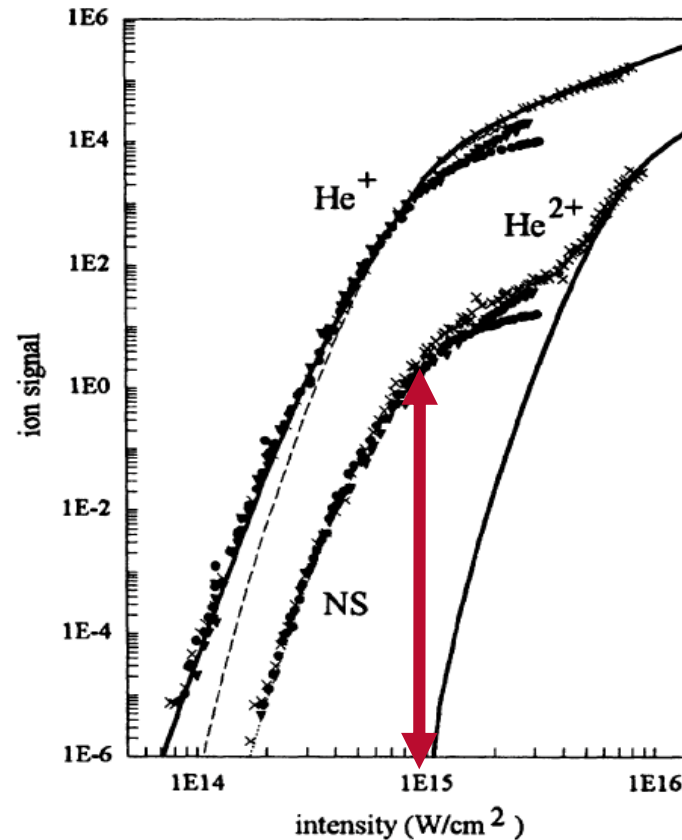
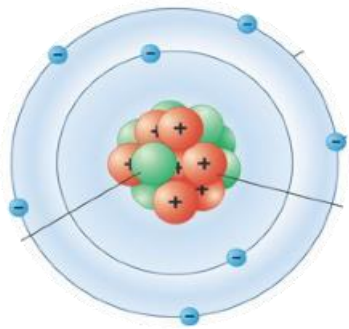


Folorunso et al. J.Phys. Chem A (2023 )127;1894



Il existe de nombreux calculs numériques (TDDFT) qui vérifient cette idée et quelques expériences. C'est une application des attosecondes qui a beaucoup d'avenir. Voir par ex les expériences du groupe de M. Nisoli à Milan (J.Phys. Chem. 3 3751 2012).

# Une application dans le domaine temporel: double ionisation non séquentielle



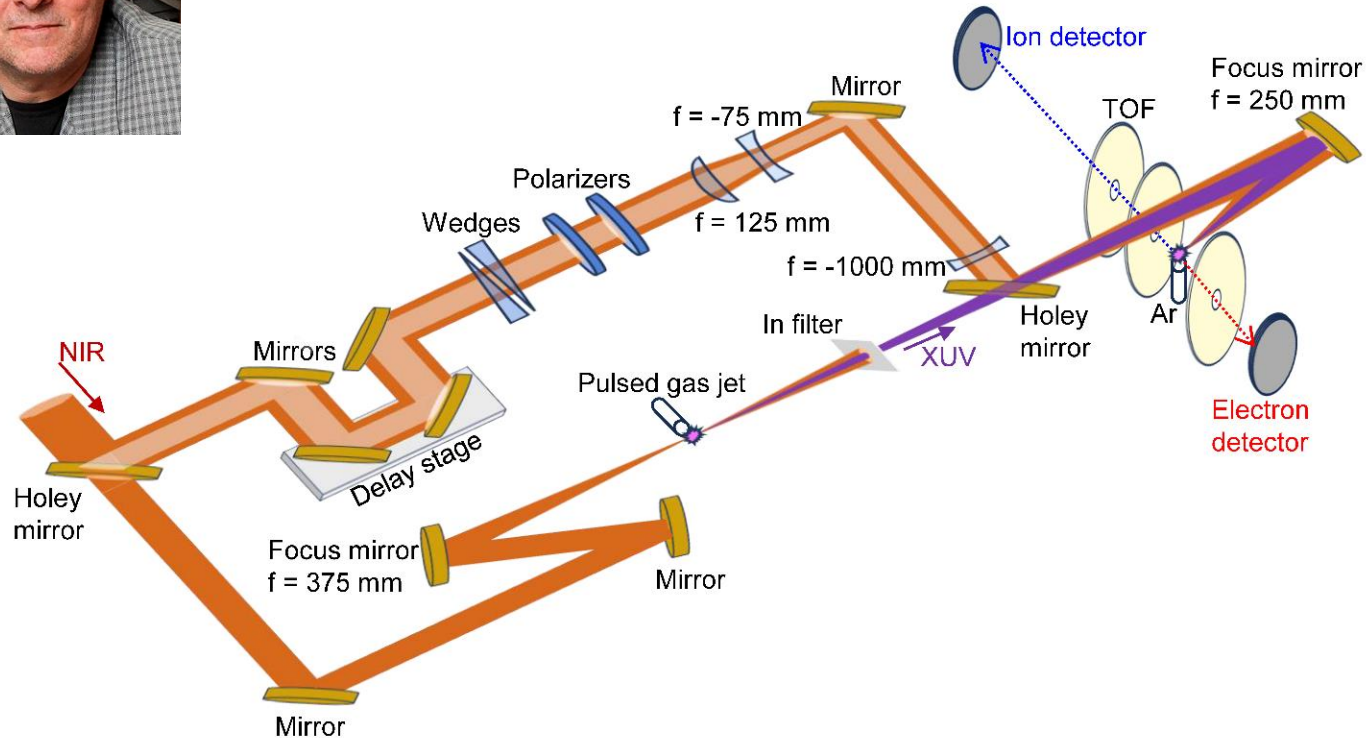
Walker et al.,  
PR LETTERS 1994

La DI dans le modèle de la recollision

Le premier électron est émis par effet tunnel. Il est ensuite accéléré par le champ laser et retourne à l'ion parent ou il arrache un deuxième électron.

Chronométrer le mouvement de l'électron entre éjection et recollision

L. F. DiMauro



A. Piper



A.C. Garibay



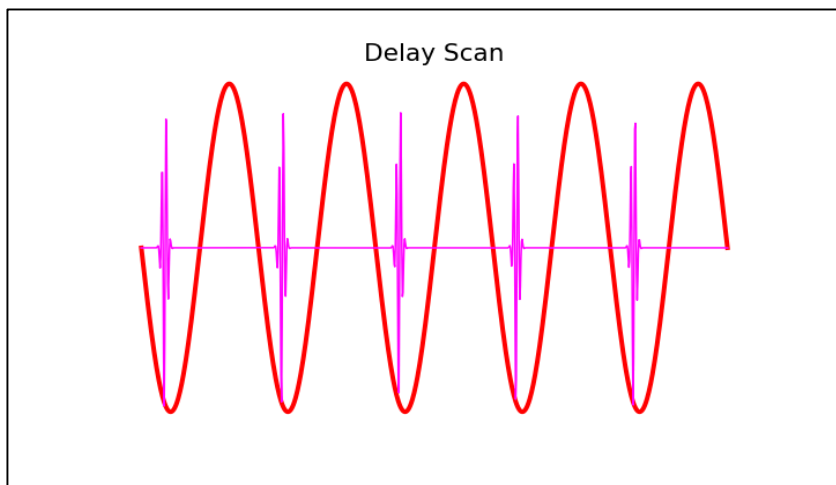
Yaguo Tang



Q. Liu

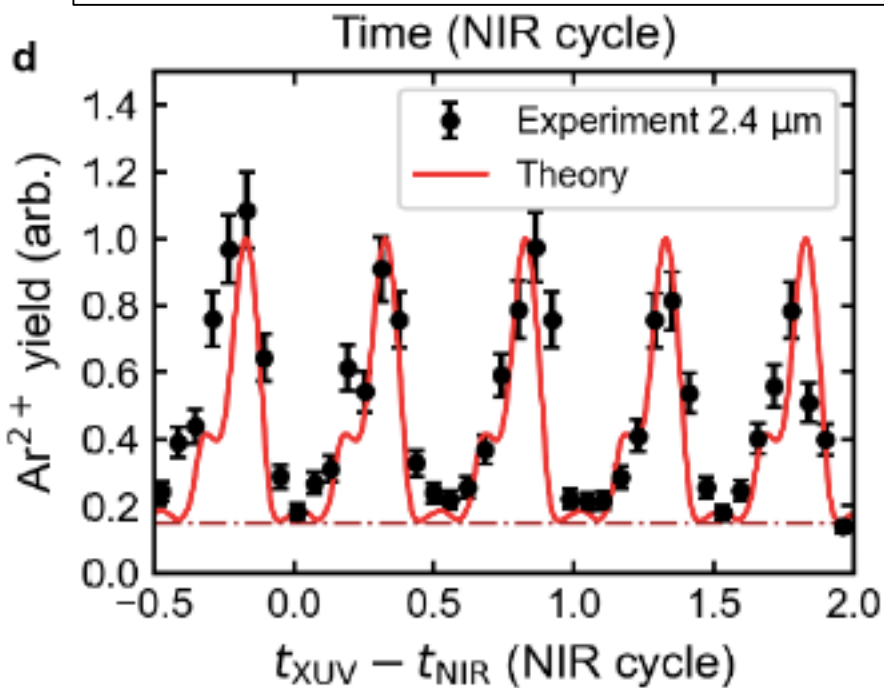


Une application dans le domaine temporel est la vérification quantitative de la physique des recollisions qui génère la double ionisation.



La double ionisation est plus simple que la génération d'harmoniques qui met en jeu les effets de propagation et d'accord de phase.

Un APT et le champ électrique d'un laser IR permettent de choisir l'instant de l'ionisation par rapport au champ. La détection de l'ion deux fois chargé complète le processus.

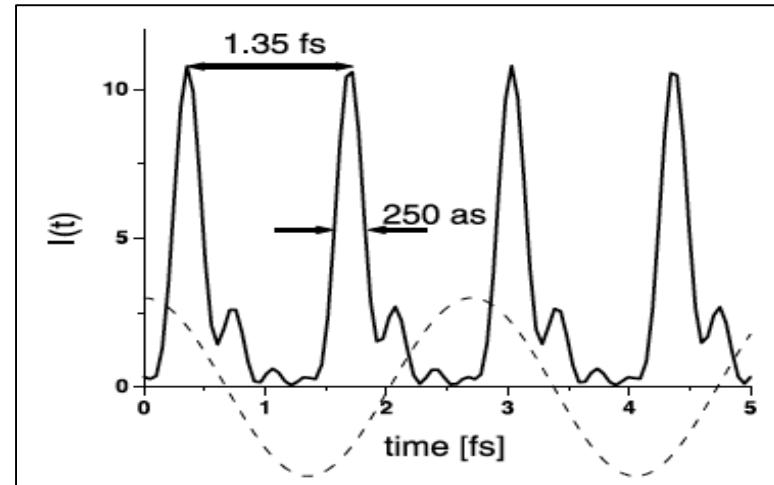


Connaissant la section efficace de double ionisation on peut calculer la dépendance temporelle du signal d'ion 2+ et comparer avec l'expérience après convolution avec l'enveloppe des impulsions attoseconde.

De plus, on peut ajuster le spectre de l'APT de sorte que l'énergie du pic principal de photoélectrons soit proche de zéro. On a alors un moyen de simuler l'ionisation double non séquentielle par le processus a deux couleurs APT+IR. (en cours)

les APT ne sont utiles que pour observer des mouvements très rapides qui n'ont lieu que dans les atomes ou les molécules, et plus courts que l'intervalle entre deux pics temporels séparés par la moitié du cycle optique du laser qui génère les harmoniques

Par ex à 800 nm :



Avec les IAP, la seconde contrainte disparaît et davantage d'applications sont possibles. Plusieurs ont déjà été étudiées par le groupe de Mauro Nisoli à Milan.

L'histoire continue. En dépit des quelques 25 ans depuis la première observation les applications des attosecondes sont encore à leur début. Les difficultés se sont déplacées vers le problème de détecter leurs effets.

Pour finir, je voudrais signaler que récemment un concurrent de la technique des harmoniques s'est révélé dans le laser à électrons libres, Par exemple à Stanford, et probablement bientôt ailleurs dans le monde.



à suivre...