

# Explorer la matière aux échelles temporelles femtosecondes

Jérôme Gaudin

Centre Lasers Intenses et Applications  
UMR 5107, U. Bordeaux, CNRS, CEA

6 novembre 2018

- 1 Introduction : principe de base des lasers fs
- 2 Que faire avec un laser fs ?
- 3 Exemple 1 : transition de phase dans les solides
- 4 Exemple 2 : dynamique attoseconde et chiralité
- 5 Exemple 3 : warm dense matter
- 6 Conclusion

# Laser fs : principe de base I

**L.A.S.E.R.**

=

Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation

1ère démonstration pratique 1960 : laser à rubis

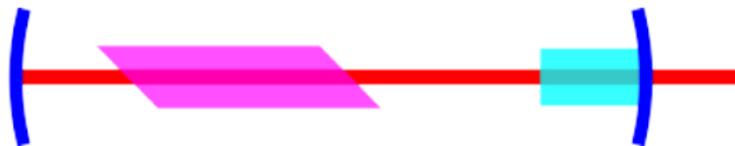
Ted Maiman - Hughes Research Laboratories, Malibu - USA



# Laser fs : principe de base II

Laser principe de base :

- une cavité optique (Fabry-Perrot),
- un milieu amplificateur (solide, liquide, gaz),
- une source de pompage (electrique, chimique, lumineux).



## Laser fs : principe de base III

Fonctionnement en mode pulsé :

- nanoseconde (**1 ns** =  $1.10^{-9}$ s) : Q-switch, fonctionnement en mode relaxé. On introduit des pertes dans la cavité, le gain augmente puis on "switch" les pertes.
- picoseconde (**1 ps** =  $1.10^{-12}$ s) : similaire mais en utilisant un switch plus rapide : par ex un absorbant saturable.
- femtoseconde (**1 fs** =  $1.10^{-15}$ s) : domaine spécifique : 1 cycle optique  
2.5 fs (800 nm) : blocage de modes.

# Laser fs : principe de base IV

Blocage de mode : cavité + milieu amplificateur

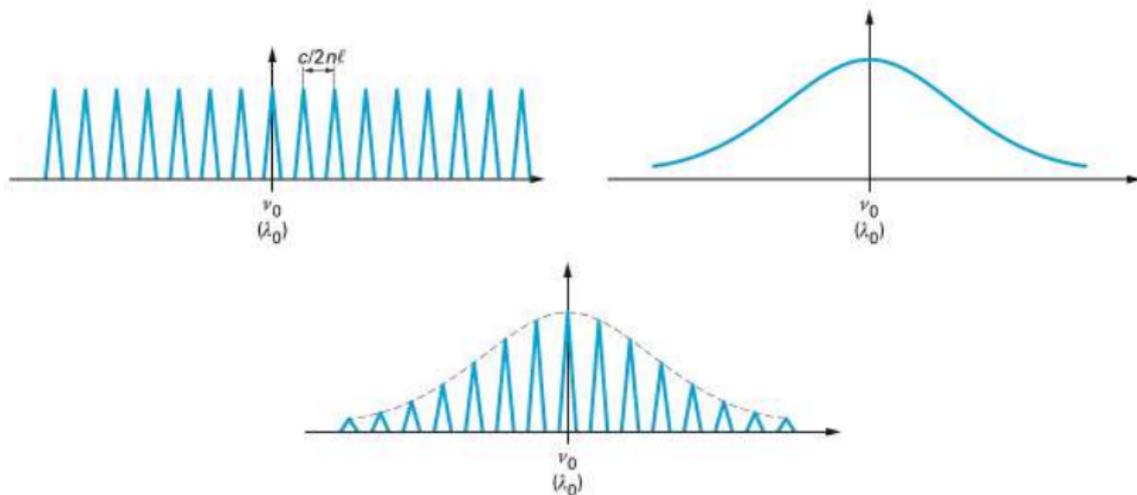


fig : G. Boulon, Techn. de l'ingénieur AF3282V2 (2017)

## Laser fs : principe de base V

Si chaque mode est une onde stationnaire, le champ laser résultant est la somme des composantes telle que :

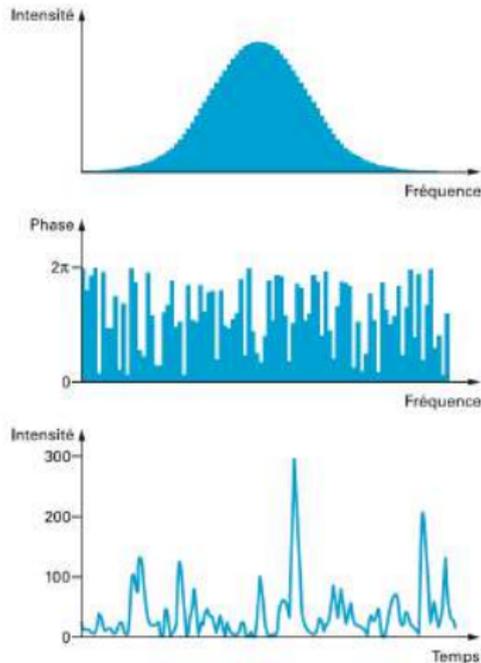
$$E_{total}(t) = E_0 \sum_{n=-N}^{n=+N} \exp(2.\pi.j [(\nu_0 + n\Delta\nu)t + n\phi])$$

(quelques lignes de calcul plus tard)

$$I_{total}(t) = I_0 \left\{ \frac{\sin [(2N + 1)(2\pi\Delta\nu.t + \phi)/2]^2}{\sin [(2\pi\Delta\nu.t + \phi)/2]^2} \right\}$$

# Laser fs : principe de base VI

Laser multimode, phases aléatoires



laser monomode, bloqué en phase

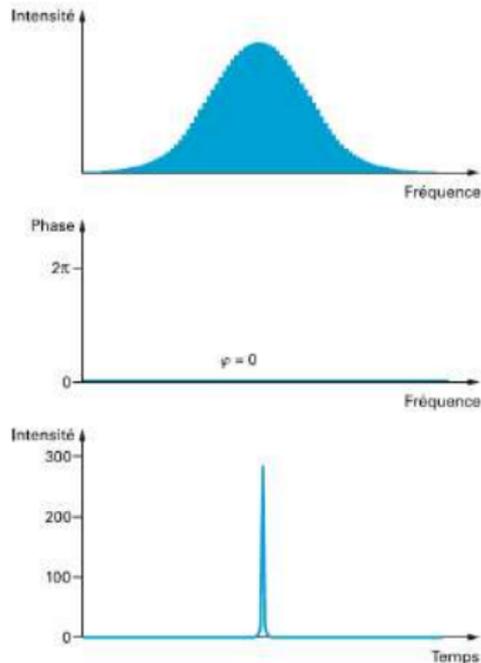
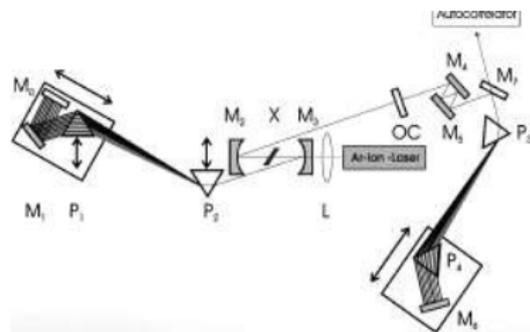
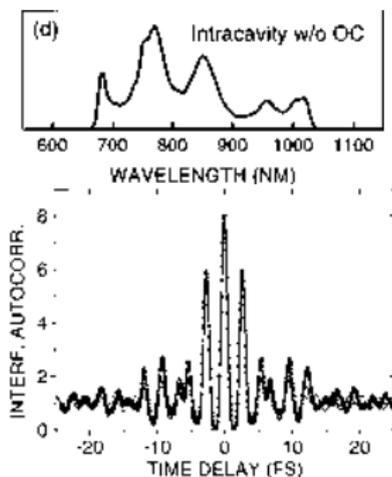


fig : G. Boulon, Techn. de l'ingénieur AF3282V2 (2017)

# Laser fs : principe de base VII

Les lasers femtosecondes sont des lasers à large bande spectrale.

$$\Delta t = \frac{1}{(2N + 1)\Delta\nu}$$



Morgner *et al.* "Sub-two-cycle pulses from a Kerr-lens mode-locked, Ti:sapphire laser", *Opt. Lett.* 24, 406 (1999)

## Laser fs : principe de base VIII

On vient de voir comment générer des impulsions courtes. Il faut maintenant, pouvoir les amplifier. On ajoute des étages d'amplifications : il faut focaliser le laser dans le milieu amplificateur.

Problème : pour  $F = 10^{12} \text{W/cm}^2$ , les matériaux sont endommagés  $\Rightarrow$  si  $\Delta t = 25 \text{ fs}$ ,  $r = 50 \mu\text{m} \Rightarrow E = 1 \text{ nJ}$ ...pas beaucoup...

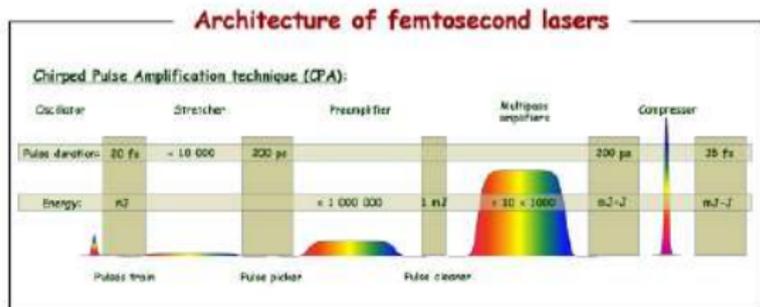
**La solution : chirped pulse amplification (CPA)**

D. Strikland et G. Mourou "Compression of amplified chirped optical pulses" Optics Com. 56, 219 (1985).

Prix Nobel de Physique 2018.

# Laser fs : principe de base IX

Principe du CPA : exemple de la chaîne laser AURORE du CELIA.



au final par impulsion :

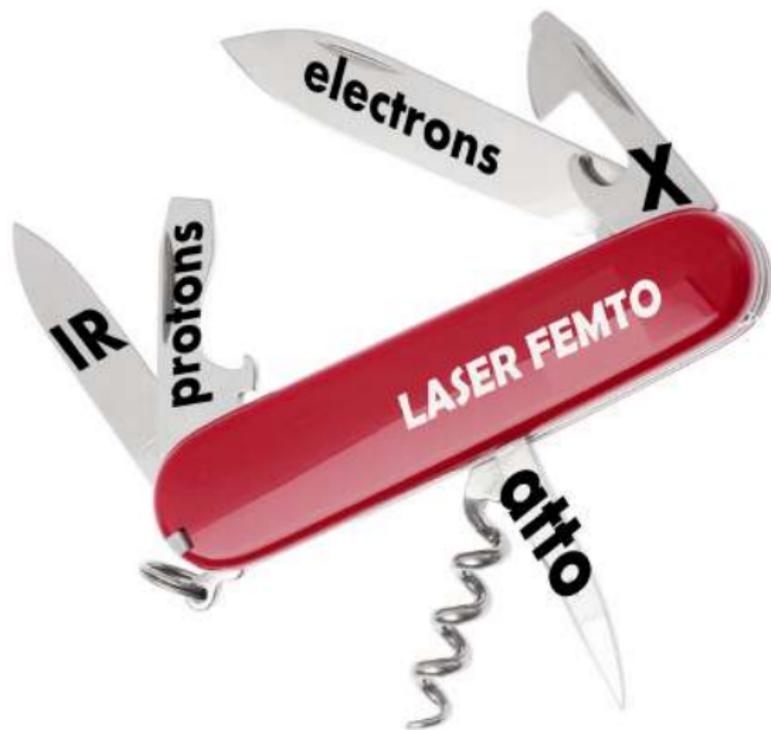
- 20 mJ/impulsion
- 25 fs
- 1 kHz
- 800 nm (100 nm pied à pied)

# Que faire avec un laser fs ? I

## Que peut-on faire avec un laser femtoseconde ?

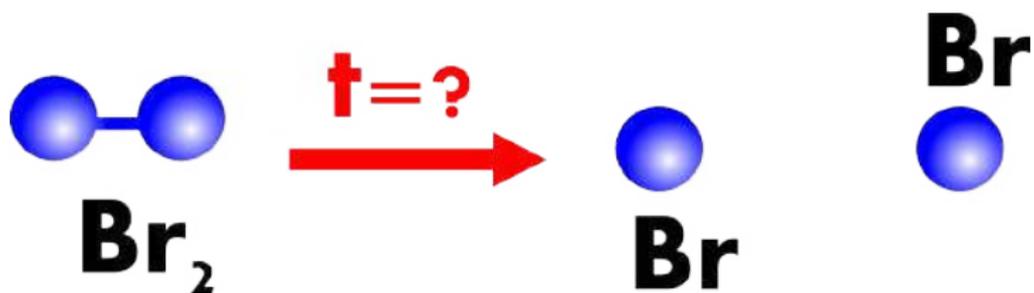
- Accès aux processus aux échelles de temps fs : processus atomique type transition de phase (fusion) et moléculaire : femtochimie (H. Zewail, Prix Nobel de Chimie 1999)
- Champ électrique du même ordre de grandeur que le potentiel atomique  $\Rightarrow$  effets hautement non-linéaires  $\Rightarrow$  génération d'électrons, de protons, d'IR et rayons EUV-X.
- Impulsions attosecondes  $\Rightarrow$  dynamique électronique.
- Applications "pratiques" : usinage laser, médecine...

## Que faire avec un laser fs ? II



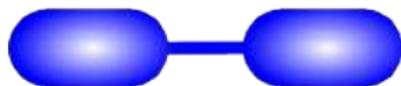
## Que faire avec un laser fs ? III

Cas simple : observation en temps réel de la photodissociation de  $\text{Br}_2$



## Que faire avec un laser fs ? IV

Avec un détecteur à temps de pause "trop long" on va observer ca :

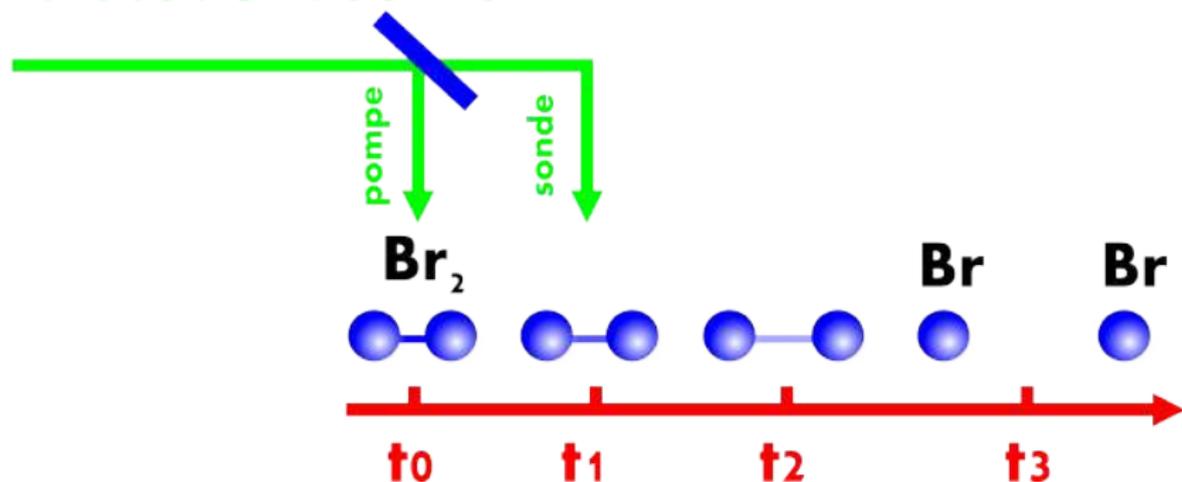


en pratique pas de détecteur avec des temps de pause fs.

# Que faire avec un laser fs ? V

On utilise les impulsions comme des "flash".

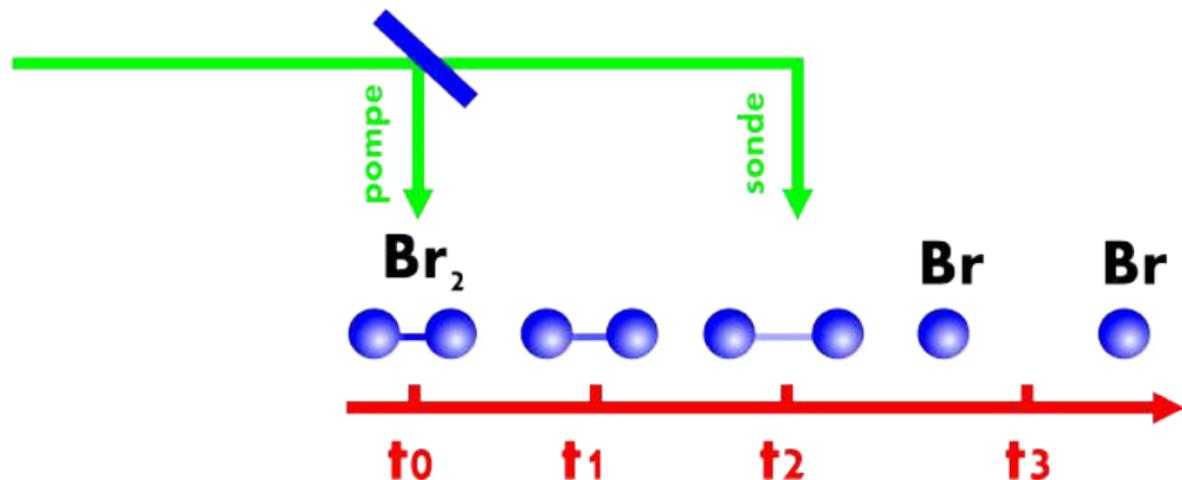
faisceau laser fs



# Que faire avec un laser fs ? VI

On utilise les impulsions comme des "flash".

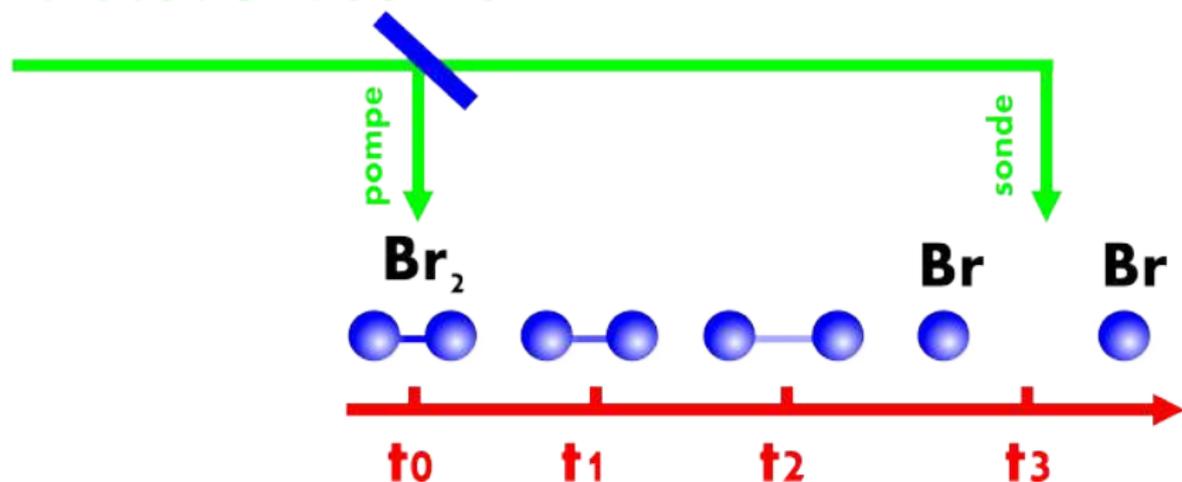
faisceau laser fs



## Que faire avec un laser fs ? VII

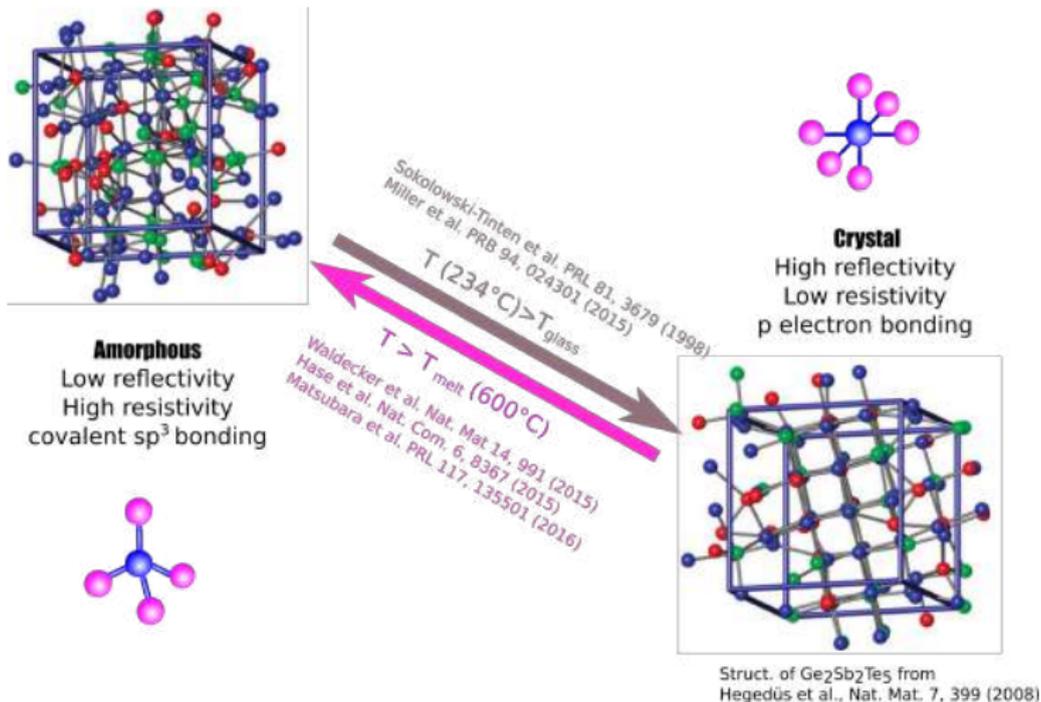
On utilise les impulsions comme des "flash".

faisceau laser fs



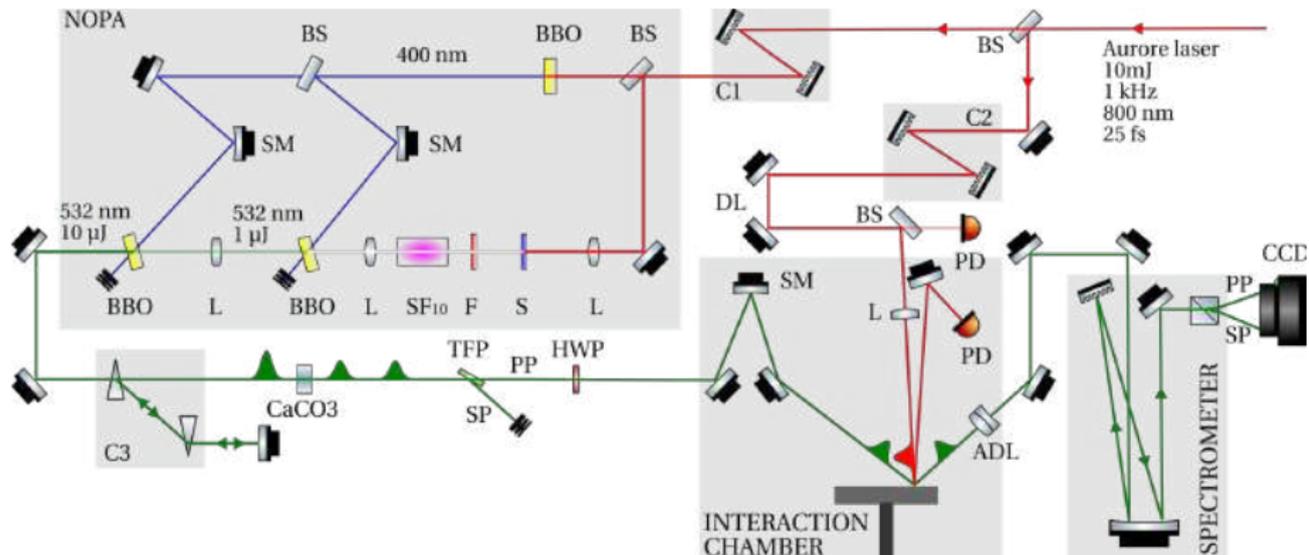
# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures I

## GST alloys



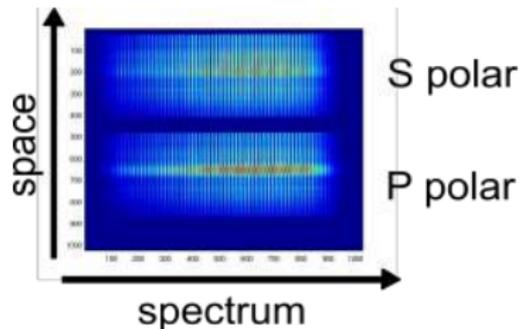
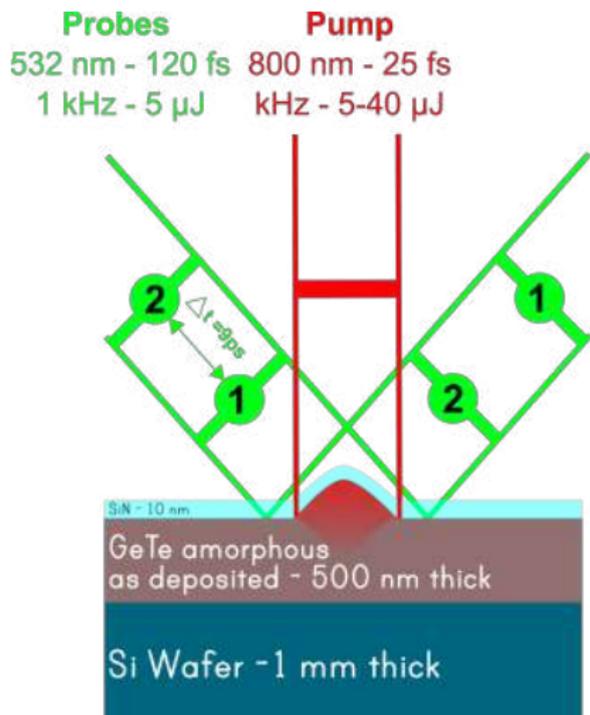
# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures II

Experimental set-up : 2 colors pump/probe experiment



# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures III

FDI - Basic principle<sup>1</sup>



The interference pattern in the frequency domain provides a  $\Delta\Phi$  and  $\Delta r$ , variation of the phase and the module of :

$$R = r \cdot e^{j \cdot \Phi}$$

## Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures IV

FDI : Polarization-resolved measurement We measure at the same time S and P polarizations<sup>2</sup>. As  $\Theta_i = \pi/4$  then :

$\beta$  parameters for applicability of Fresnel's formulae

$$R_p = R_s^2$$

as  $R = r \exp(j\Phi)$

$$r_p = r_s^2 \text{ and } \Phi_p = 2\Phi_s$$

we define 2 parameters :

$$\beta_r = r_p / r_s^2 = 1$$
$$\beta_\Phi = 2\Phi_s - \Phi_p = 0$$

## Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures V

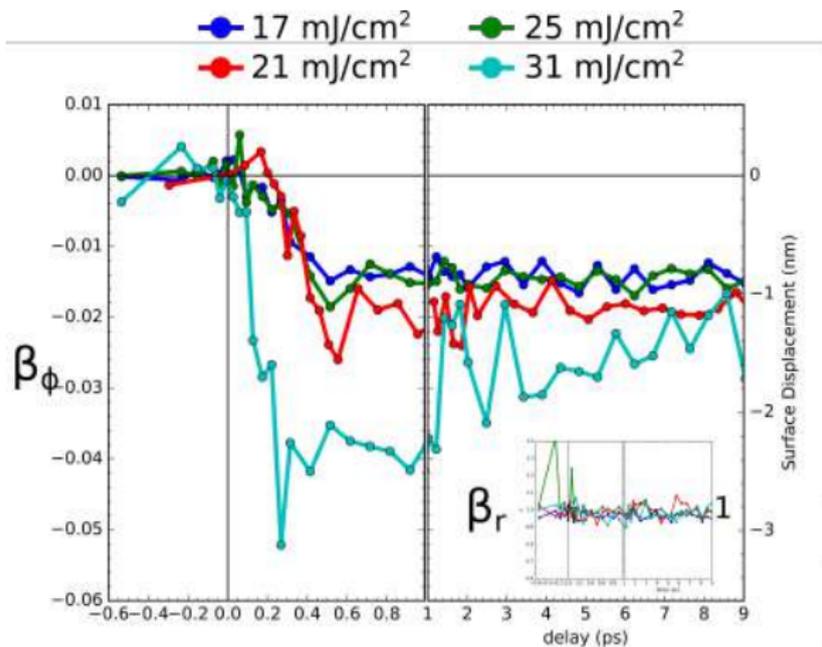
FDI : Polarization-resolved measurement Interpretation of the  $\beta_r = r_p/r_s^2$  and  $\beta_\Phi = 2 * \Phi_s - \Phi_p$  parameters, 3 majors cases<sup>3</sup> :

- 1  $\beta_r = 1 \rightarrow$  solid, liquid,  $\beta_\Phi = 0 \rightarrow$  static surface
- 2  $\beta_r = 1 \rightarrow$  solid, liquid,  $\beta_\Phi \neq 0 \rightarrow$  moving surface
- 3  $\beta_r \neq 1 \rightarrow$  gaz, plasma,  $\beta_\Phi \neq 0 \rightarrow$  Fresnel's formulas not valid

Polarization-resolved FDI provides "on top" informations on the hydrodynamics of the sample.

# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures VI

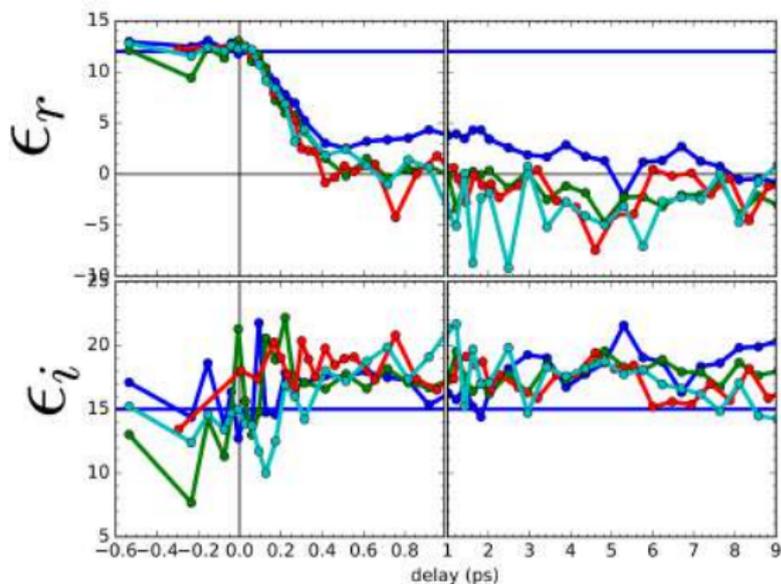
## Experimental results : surface dynamics



- $\beta_r = 1$  sharp interface = solid or liquid state
- $\beta_\phi < 0$ , the surface is moving, the sample is shrinking by more than 2 nm.

# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures VII

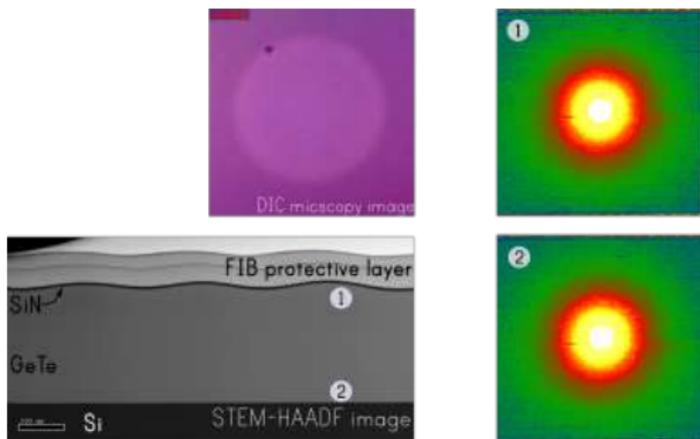
Experimental results : dielectric constant dynamics



- Initial  $\epsilon = 12 - 15$  i
- Ultrafast change of the dielectric constant.

# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures VIII

Experimental results : post-irradiation analysis  
Analysis of post-irradiated samples.



- STEM reveals no change of structure : the sample is still amorphous which is confirmed by nano-diffraction measurements.
- Optical microscopy shows a clear change of refractive index.

## Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures IX

Exp results : preliminary conclusions

- We observed a transition taking place within  $< 500$  fs
- The sample is still solid but the surface is shrinking
- Final state is amorphous but 2 forms of amorphous phase are known : "as-deposited" and "melt-quenched"<sup>4</sup>.

This raises the following questions :

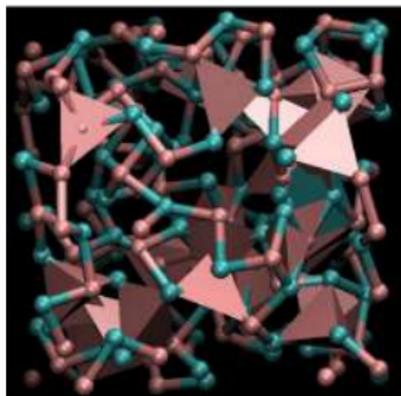
- 1 Do we observe a amorphous  $\rightarrow$  amorphous or amorphous  $\rightarrow$  liquid
- 2 We measure the change of optical index which results from the change of structure but also the excitation of free carriers (Drude).

**Theory is needed.**

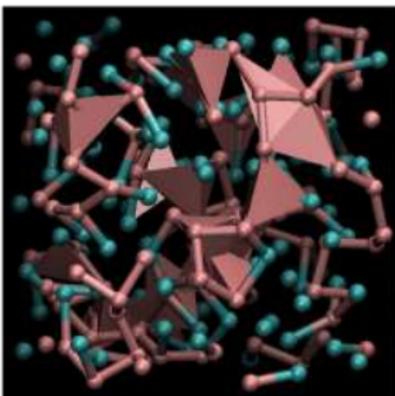
# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures X

Theory : *Ab-initio* simulations  
216 atoms -  $\text{Ge}_{112}\text{Te}_{104}$

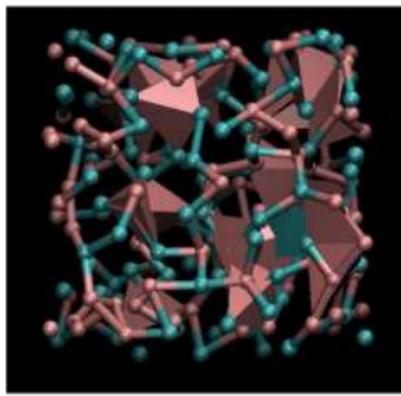
a-GeTe  
Te=Ti=300°K



a-GeTe  
Te= 0.1 eV  
Ti=300°K



liquid-GeTe  
Te=Ti=1000°K

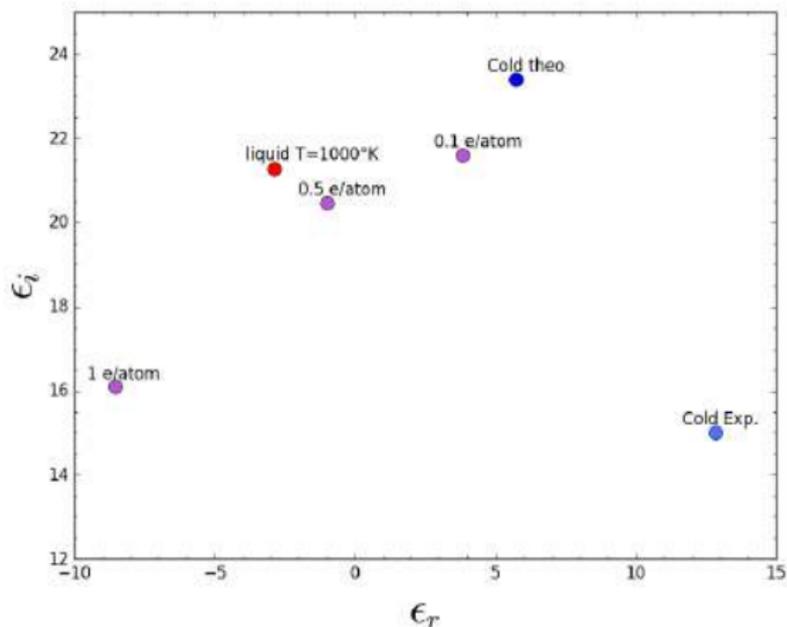


## Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures XI

- a-GeTe\* is shrinking as observed.
- Teraheral bonded atoms ( $sp^3$ ) are decreasing in both a-GeTe\* and liquid.

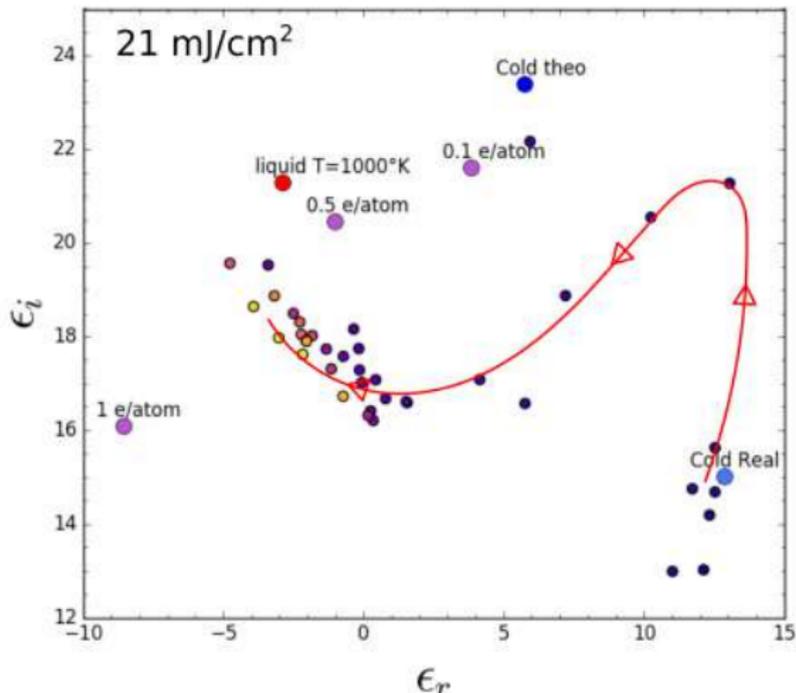
# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures XII

Theory : *Ab-initio* simulations



# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures XIII

Theory : *Ab-initio* simulations



# Exemple 1 : dynamique dans les chalcogénures XIV

## Conclusion

- We have demonstrated sub-ps phase transition with specific volume change.
- *Ab-initio* simulations evidence a shrinking upon electronic excitation, how this relates to the structure needs to be understood.

## ...Perspectives :

- influence of doping (by N) on the phase transition is currently investigated.
- Investigations of crystal→amorphous are under way

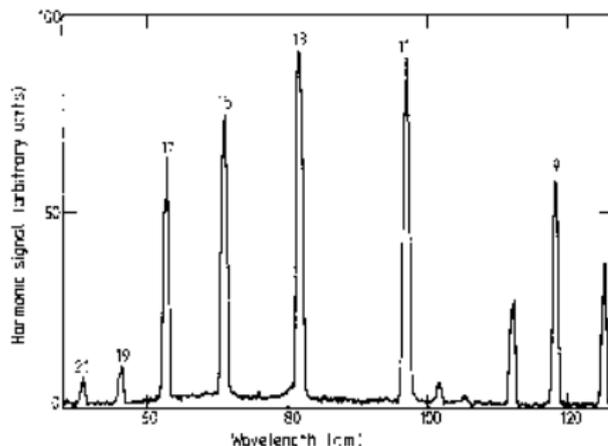
- 
2. Geindre *et al.*, Opt. Lett. 19, 1997 (1994)
  2. C. Fourment *et al.*, PRB 89, 161110(R) (2014)
  3. Deneuve *et al.*, Appl. Phys. Lett. 102, 194104 (2013)
  4. Akola *et al.*, PRB 83,094113 (2011)

# Dynamique attoseconde I

Dynamique attoseconde : échelle des électrons dans les atomes. Une impulsion attoseconde = impossible dans le domaine optique.

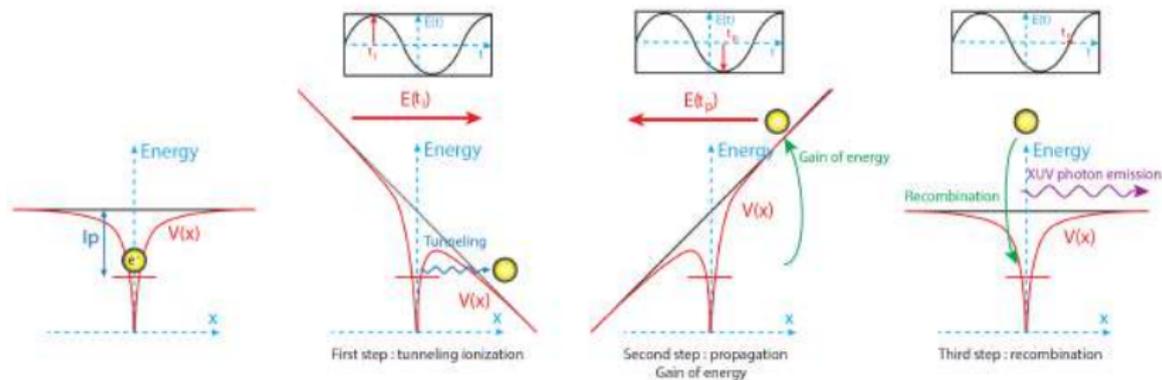
Génération d'harmoniques d'ordres élevés<sup>5 6</sup>

: conversion optique (800 nm, 1.5 eV) dans le VUV (>10 eV).



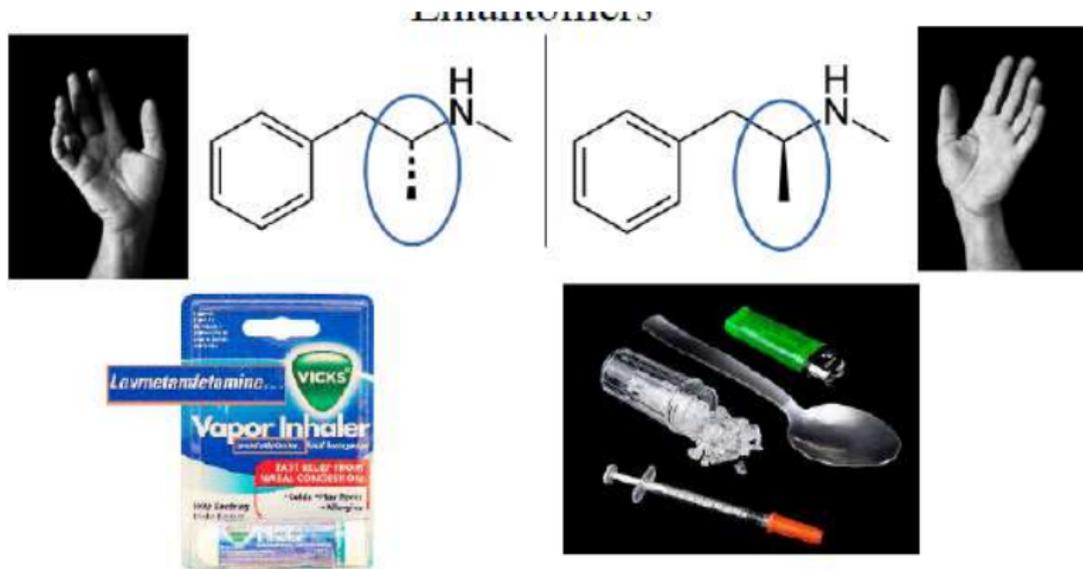
# Dynamique attoseconde II

Le modèle en 3 étapes<sup>7</sup>



# Dynamique attoseconde III

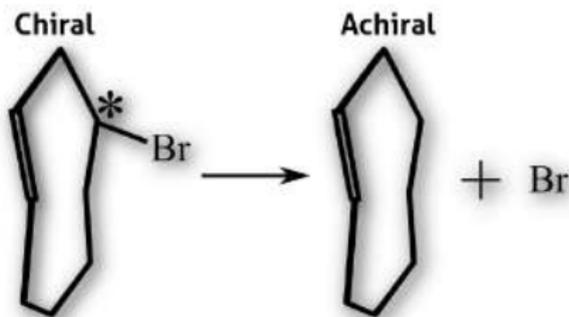
Chiralité ? 2 molécules images dans un miroir mais non superposables.



Très grande importance pour comprendre les mécanismes réactionnels biologiques (origine de la vie...) illustration : courtesy of A. Comby

# Dynamique attoseconde IV

Un exemple :



Chiralité  $\Leftrightarrow$  Structure moléculaire (noyaux)

Réactivité chimique  $\Leftrightarrow$  Électrons de valence

Comment la chiralité est elle transférée des noyaux aux électrons ?

Comment "sonder" la chiralité ?

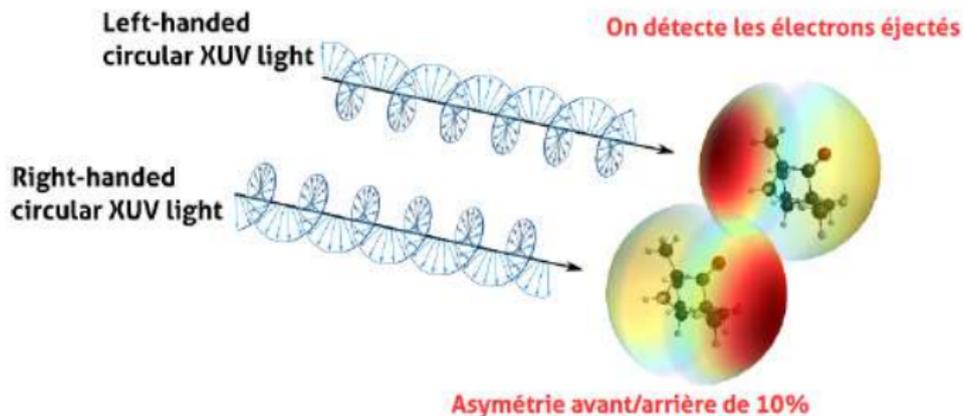
- rotation du plan de polarisation de la lumière (activité optique)
- différence d'absorption de la lumière droite ou gauche (dichroïsme circulaire)

**effets faibles : nécessitent un milieu dense (liquide)**

- regarder les électrons émis par l'ionisation ? PECD

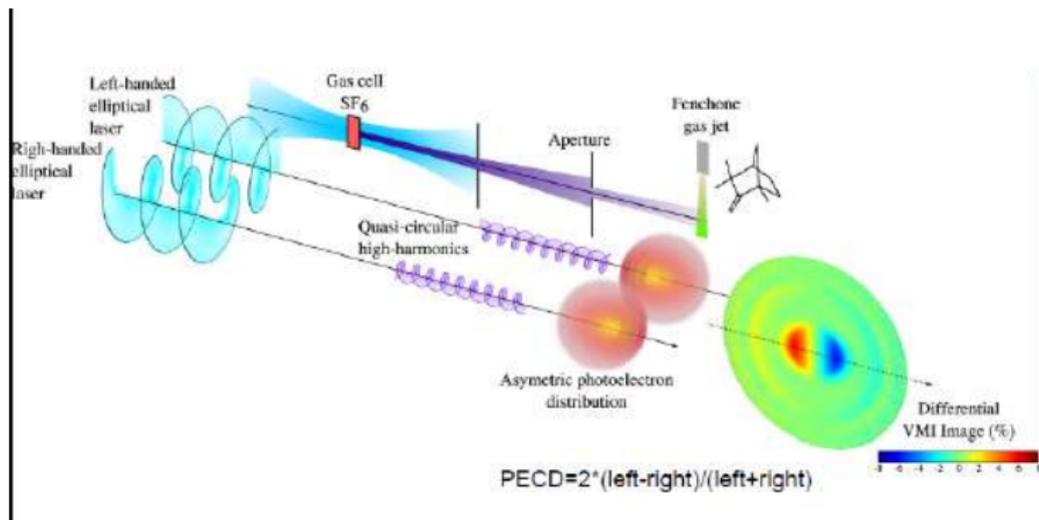
# Dynamique attoseconde VI

## PhotoElectron Circular Dichroism (in a nutshell)



# Dynamique attoseconde VII

Démonstration du PECD : ouvre la voie pour des études résolues en temps de la chiralité.

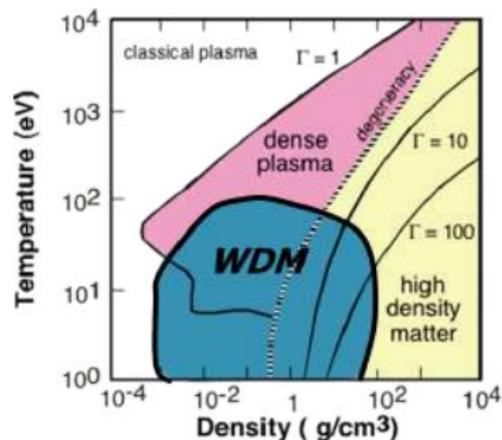


Ferré et al. Nat. Phot. 9,93 (2015)

5. Ferray et al. J. Phys. B : At. Mol. Opt. Phys. 21 L31 (1988)
6. McPherson et al JOSA B, 4 , 595 (1987)
7. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71, 1994 (1993)

# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... I

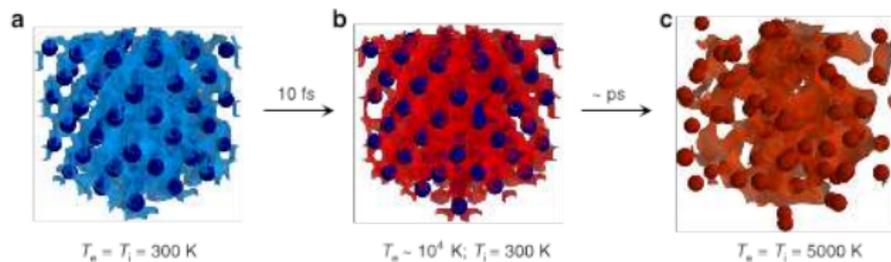
- état entre la matière condensée (électrons délocalisés) et les plasma
- état transitoire durée de vie très brève
- milieu astrophysique/planétologie



# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... II

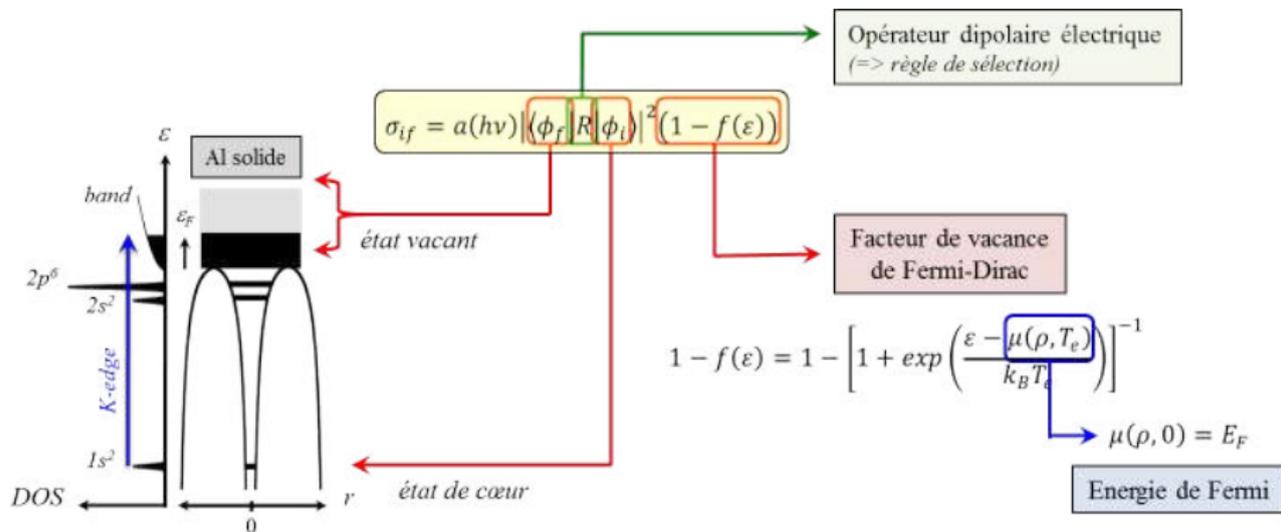
Comment créer ces états ?

- Par compression : enclumes diamant, canons (ions, électrons), choc laser (10-100 Mbar)
- Par chauffage isochores : impulsion laser fs : optique ou rayons x (x-ray free electrons lasers)



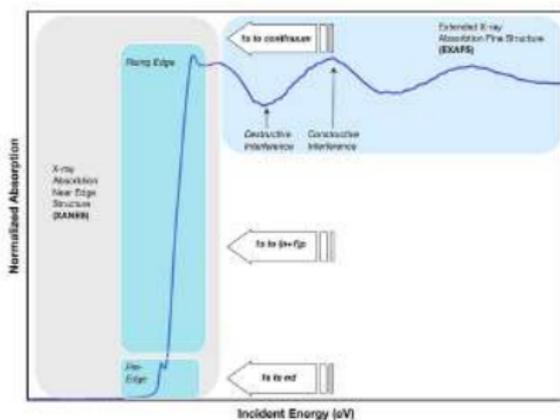
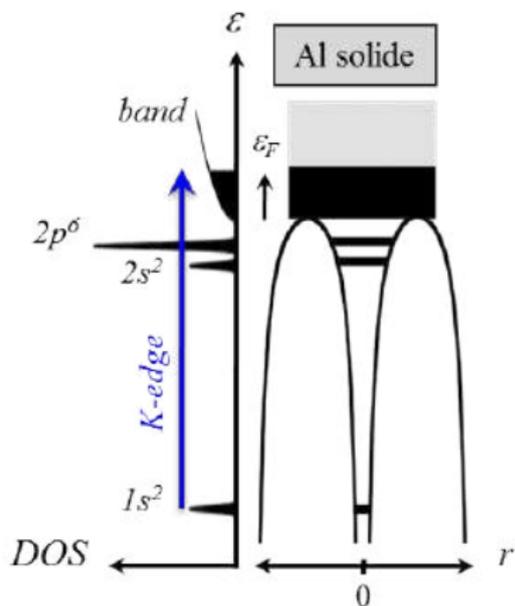
# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... III

Comment sonder ces états ? XANES !



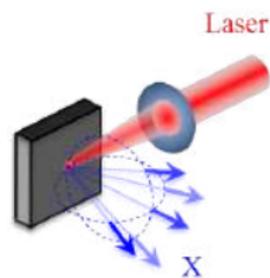
# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... IV

Information sur la DOS et l'ordre local.

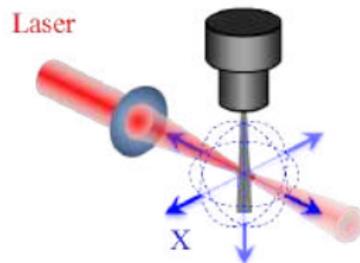


# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... V

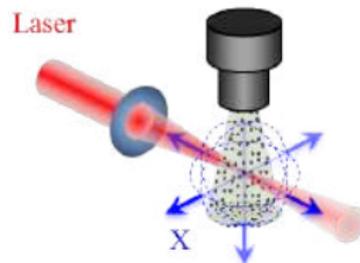
Comment génère-t-on des X courts ?



Cible solide



Jet liquide



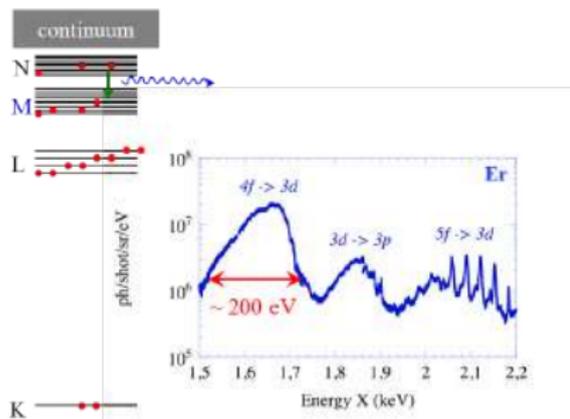
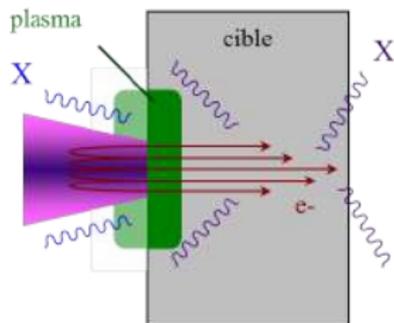
Gouttes

Agrégats (nm)

Émission isotrope, impulsions ps à fs.

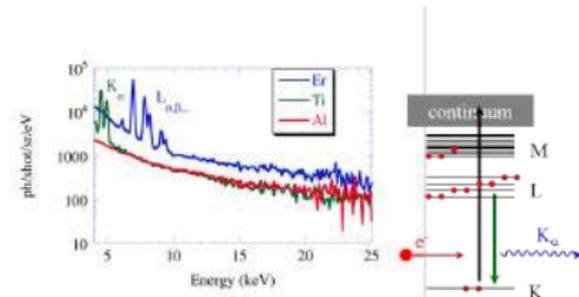
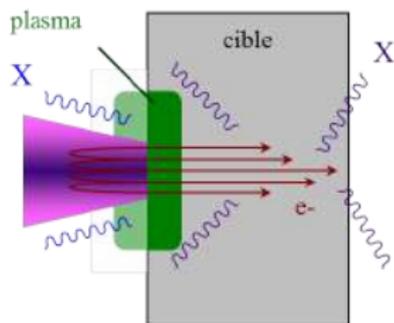
# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... VI

Emission thermique : impulsion ps à sub-ps, large bande



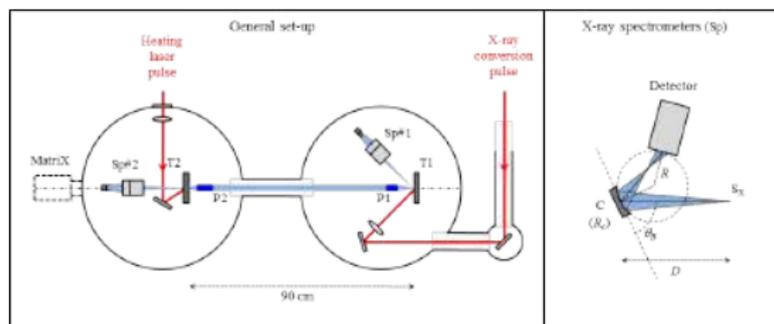
# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... VII

Emission supra-thermique : impulsion fs, raie atomique sur fond large.



# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... VIII

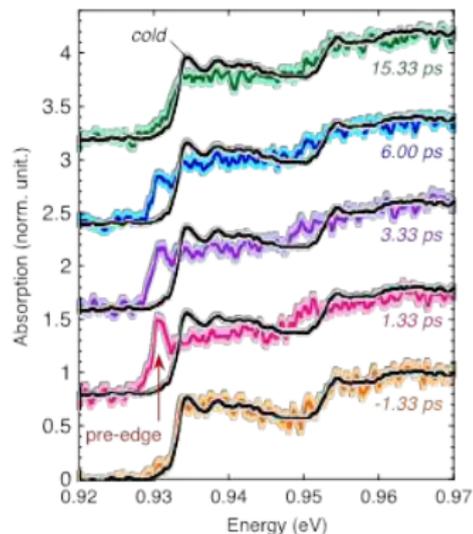
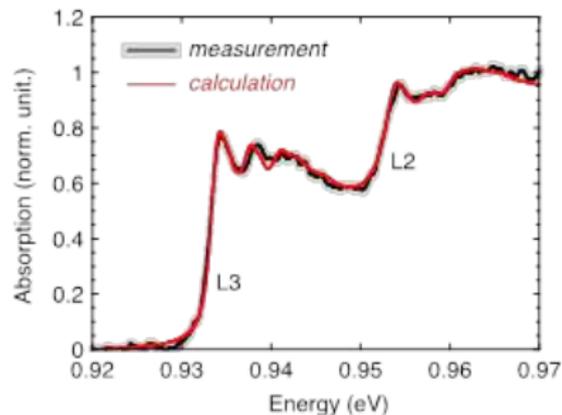
Dispositif TR-XANES au CELIA (thèse N. Jourdain, 25 oct 2018)



- Cible de conversion X solide / agrégats
- Gamme spectrale ajustable (jusqu'à  $\sim 4$  keV)
- $10^{5-6}$  photons / eV / tir focalisés sur l'échantillon
- Résolution temporelle liée à la source X ( $1.2 \pm 0.2$  ps rms)

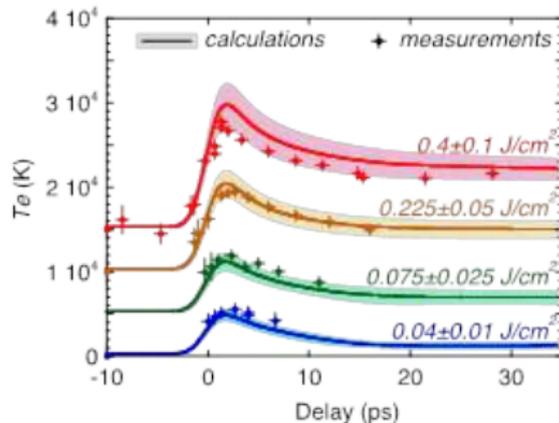
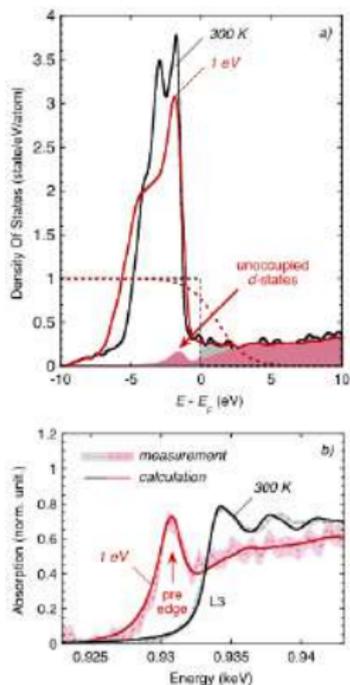
# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... IX

Résultats expérimentaux : chauffage du cuivre.



# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... X

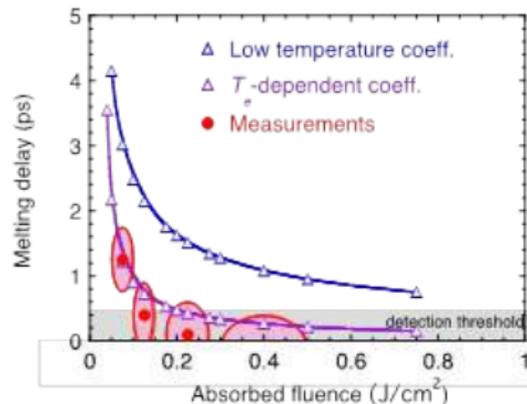
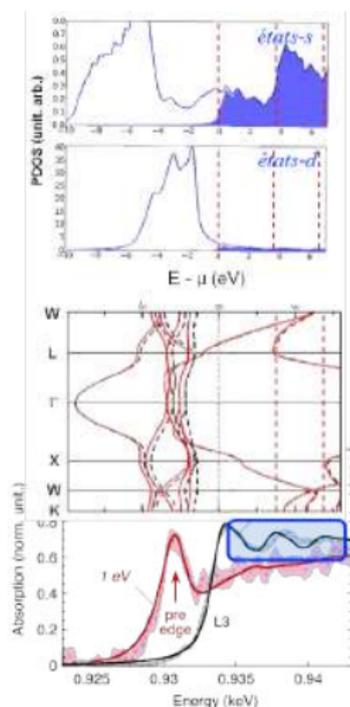
Interprétation : mesure de  $T_e$  par le pré-edge.



N. Jourdain et al., Phys. Rev. B 97, 075148 (2018)

# Warm Dense Matter : matière dense et tiède... XI

Interprétation : mesure de perte de l'ordre local.



25

### Conclusion :

- Mesure des dynamiques atomiques à l'échelle ps.
- Permet de contraindre les modèles (*ab-initio*).
- Source béta-tron de RX : expériences aux échelles fs : processus non-thermiques.

à suivre...

En utilisant des laser fs, on peut

- aborder les dynamiques aux niveau atomique et électronique des atomes, molécules.
- créer d'état exotiques de la matière (wdm)
- source de rayonnement secondaire (XUV, optique, THz) "table top" utilisable en statique.

la plupart des ces applications sont présentes au CELIA.

- Chiralité : Y. Mairesse, S. Michaud, A. Comby, E. Bloch, V. Blanchet, B. Pons, B. Fabre
- WDM : F. Dorchies, N. Jourdain

Merci de votre attention.

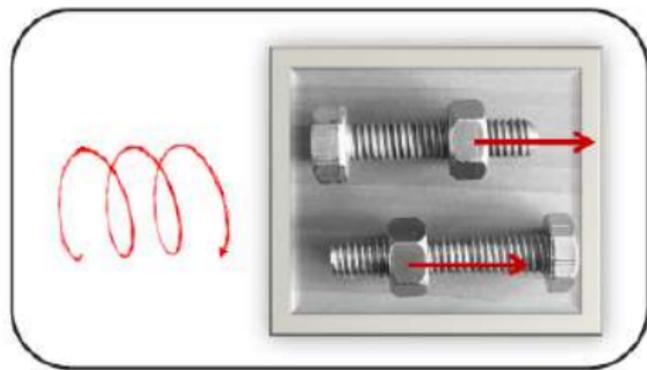
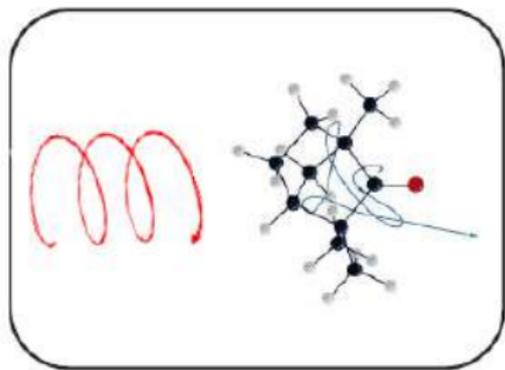


illustration : courtesy of A. Comby

## annexes II

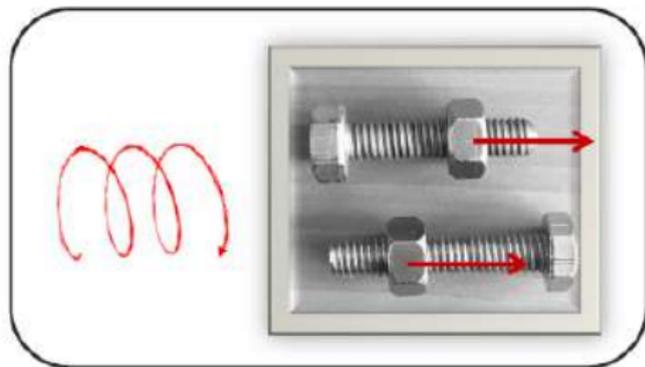
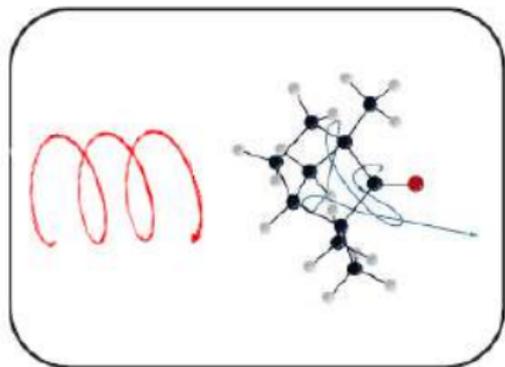


illustration : courtesy of A. Comby