

# La mesure du temps infinitésimal

*Grâce à de nouvelles sources de lumière, les physiciens ont mis au point les premières méthodes de mesure de phénomènes qui se déroulent en quelques milliardièmes de milliardièmes de seconde.*

Pascal Salières • Pierre Agostini

*Ô temps ! Suspends ton vol ; et vous, heures propices  
Suspendez votre cours !  
Alphonse de Lamartine, Le Lac*

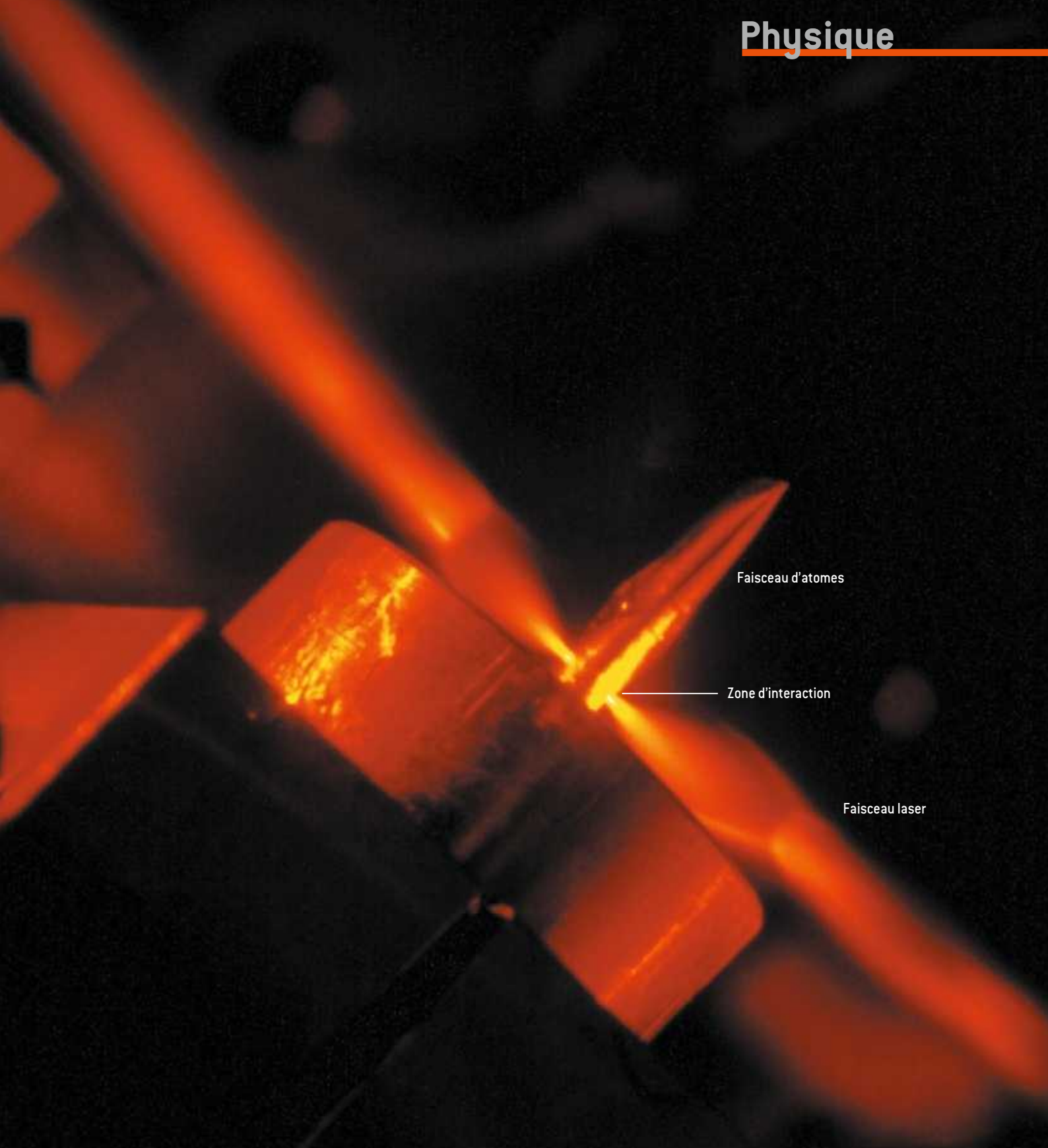
**A**rrêter le temps... Ce rêve préoccupe les poètes, mais aussi les physiciens. Au V<sup>e</sup> siècle avant notre ère, Zénon se heurtait déjà au paradoxe d'Achille : le guerrier aux pieds agiles ne parvient pas à rattraper une tortue dix fois plus lente que lui à qui il a concédé dix pas d'avance. Pendant qu'il franchit dix pas, la tortue progresse d'un pas... Ce pas franchi, il a toujours un dixième de pas de retard sur elle... Le temps nécessaire pour qu'Achille rattrape la tortue est donc la somme d'un nombre infini de termes. Cette somme est bien sûr finie, mais Zénon, qui ne maîtrisait pas la notion de limite mathématique, l'ignorait. Si, aujourd'hui, le paradoxe de Zénon est résolu, la quête de l'infiniment petit se poursuit, notamment dans le domaine du temps. Les physiciens partent aujourd'hui à l'assaut de l'attoseconde, c'est-à-dire du milliardième de milliardième de seconde ( $10^{-18}$  seconde). L'attoseconde est presque à la seconde, ce que la seconde est à l'âge de l'Univers. C'est aussi l'échelle de durée des mouvements des électrons : celui de l'hydrogène, par exemple, parcourt son orbite en 150 attosecondes seulement. Or, de telles durées sont désormais à portée de... chronomètre ou plutôt de flash. Nous examinerons ici comment, grâce à de nouvelles sources de lumière, les physiciens progressent dans leur conquête de l'échelle de temps attoseconde.

Comment mesure-t-on la brièveté ? On la fige, c'est-à-dire que l'on fixe le phénomène bref par effet stroboscopique en le soumettant à des flashes lumineux. Dès les années 1930, le physicien Harold Edgerton, inventait le flash électronique pour décomposer le mouvement d'un sujet. Les flashes d'Edgerton durent environ un millionième de seconde, ce qui fige tout à notre échelle de temps. Pourtant, les poussières

en suspension dans l'air, par exemple, continuent à bouger, même pendant un intervalle de temps aussi court. Comme elles parcourent environ 0,3 millimètre sur leurs trajectoires browniennes pendant un flash d'Edgerton, il faut des éclairs 10 à 100 fois plus brefs – de l'ordre du milliardième de seconde, c'est-à-dire de la nanoseconde – pour les figer. Nos tentatives pour suspendre le temps deviendraient plus difficiles encore, si nous essayions de suivre les atomes d'une molécule. La minuscule molécule de disodium, par exemple, est constituée de deux atomes de sodium qui occupent un petit volume de 0,1 nanomètre de diamètre. Au repos, ces atomes seraient séparés de 0,3 nanomètre, mais, sauf à une température proche du zéro absolu, ils oscillent quelque trois mille milliards de fois par seconde autour de leur position d'équilibre. Comment suivre des oscillations aussi rapides ?

## Des flashes ultrabrefs

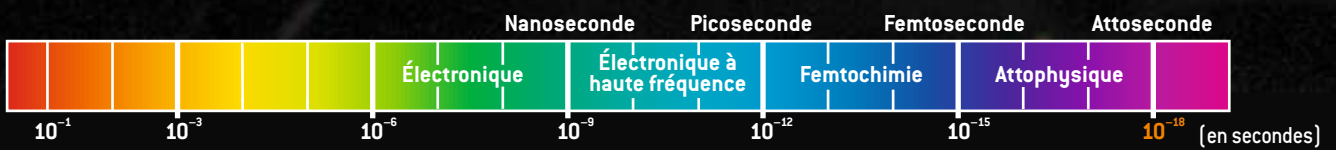
Le flash nécessaire pour y parvenir doit non seulement être assez bref, mais pouvoir être reproduit une dizaine de fois au cours de chaque oscillation. Jusqu'au début des années 1980, ce problème est resté insoluble. Nos connaissances de la structure moléculaire étaient issues de la spectroscopie, l'étude du rayonnement électromagnétique émis ou absorbé par les atomes ou par les molécules. Cette méthode fournit essentiellement les énergies des états accessibles, données essentielles en physique microscopique, que la théorie quantique permet d'interpréter. La spectroscopie nous renseigne sur l'évolution temporelle des systèmes quantiques, mais de façon indirecte. En fait, une mesure spectroscopique revient à suivre une course de voitures en se contentant de regarder défiler les vitesses des concurrents sur un écran, après l'événement : la méthode tue le suspense, et prive les spectateurs des détails. La perte d'information est pire encore lorsque plusieurs systèmes



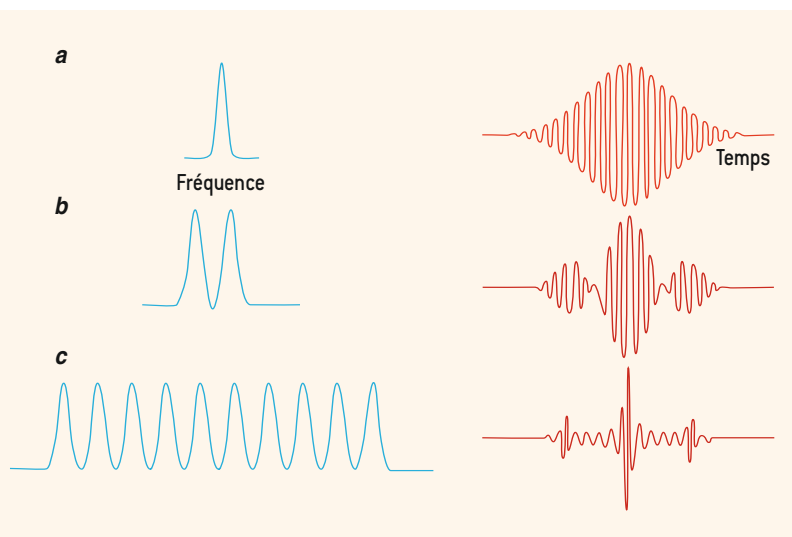
Faisceau d'atomes

Zone d'interaction

Faisceau laser



**1. Un faisceau laser femtoseconde** interagit avec un jet d'atomes d'un gaz rare. Cette interaction engendre des impulsions de rayon X subfemtosecondes. En bas, on a rassemblé les différentes échelles de temps et quelques domaines physiques qu'elles caractérisent.



**2. Plus une impulsion est brève** plus son spectre comporte de fréquences. Pour des fréquences resserrées au sein d'une bande étroite (a, courbe bleue), la courbe du champ électrique oscillant en fonction du temps est très étalée (a, courbe rouge). Quand le spectre de l'impulsion comporte deux bandes resserrées (b), des pics d'intensité apparaissent avec des durées de l'ordre de la moitié de celle du premier cas. Avec dix bandes de fréquences (c), la largeur des battements est à peu près dix fois moindre quand les différents signaux sinusoïdaux médians des dix bandes de fréquences sont synchronisés ou, en d'autres termes, « en phase ». Quand cette condition n'est pas satisfaite et que les phases sont aléatoires, les battements sont décalés et brouillent l'ensemble et le signal temporel obtenu devient si irrégulier qu'il perd sa brièveté.

moléculaires interagissent. Au cours d'une réaction chimique, par exemple, les molécules se déforment, se heurtent, des liaisons se brisent à grande vitesse. À une échelle temporelle plus réduite encore, les couches électroniques se réarrangent quasi instantanément au moindre événement, par exemple quand un électron profond est expulsé (effet Auger). Si la spectroscopie classique donne des indices de la rapidité de ces phénomènes, elle n'en fournit pas le déroulement détaillé.

À la fin des années 1980, les lasers à impulsions ultrabrèves ont vu le jour et apporté un début de solution. Des impulsions de quelques dizaines de femtosecondes ( $10^{-15}$  seconde) seulement sont assez brèves pour que l'on puisse « stroboscooper » des vibrations moléculaires. Toutefois, on doit pouvoir les répéter à une cadence trop élevée pour les lasers. Pour pallier cette difficulté, Ahmed Zewail, de l'Institut californien de technologie (CALTECH), a inventé la technique pompe-sonde. Elle consiste à diviser une impulsion ultrabrève en deux moitiés synchrones. La première, la pompe, excite les molécules de l'échantillon. La seconde, la sonde, est envoyée dans l'échantillon après un intervalle de temps connu ( $10^{-12}$  seconde par exemple) et elle en teste les propriétés. En répétant la mesure avec un retard variable, on obtient ainsi l'équivalent d'un flash capable de se répéter des milliers de milliards de fois par seconde.

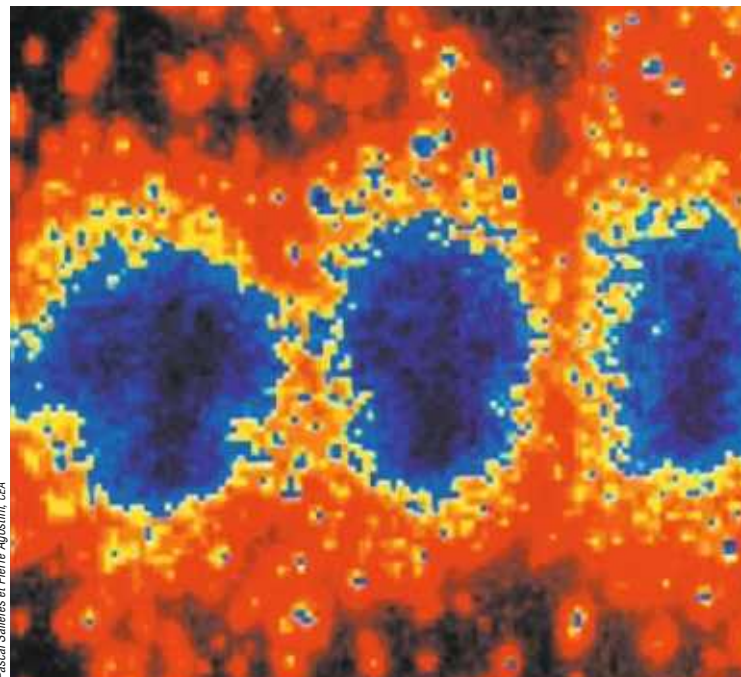
Au cours des années 1990, les impulsions laser sont devenues plus brèves encore : aujourd'hui, elles n'excèdent pas cinq femtosecondes. Toutefois, même des impulsions aussi brèves sont trop longues pour prendre des instantanés du mouvement électronique. Ainsi, l'électron de l'hydrogène parcourt son orbite autour du noyau en 150 attosecondes

seulement, une période 2000 fois plus courte que celle de la vibration du disodium.

Des flashes subfemtosecondes sont donc nécessaires pour « filmer » le mouvement d'un électron atomique. Toutefois, on a longtemps ignoré comment les produire, car on ne disposait pas de sources laser produisant des longueurs d'onde assez courtes. De fait, les impulsions les plus brèves que l'on sait produire sont situées dans le visible, voire dans le proche infrarouge : les lasers à saphir dopé au titane utilisés aujourd'hui comme source femtoseconde émettent autour de 800 nanomètres. La période d'une onde électromagnétique de cette longueur d'onde est de 2,7 femtosecondes, de sorte que l'impulsion la plus brève réalisée aujourd'hui (4,7 femtosecondes) ne comporte guère que deux cycles optiques... La raccourcir davantage est illusoire. Or, cette impulsion est bien trop longue pour mesurer des phénomènes plus brefs que la femtoseconde. Comment franchir la « barrière femtoseconde » ?

## La barrière femtoseconde

Le premier obstacle à franchir est celui de la bande passante : son dépassement exige de nouvelles sources de rayonnement, dont les longueurs d'onde se situent dans l'ultraviolet extrême, voire dans la domaine des X. De quoi s'agit-il ? Plus une impulsion est brève, plus les fréquences des ondes qui la composent sont nombreuses, et couvrent une large bande. Centrées autour de 800 nanomètres, les impulsions de 5 femtoseconde des lasers à saphir dopé au titane s'étaient, par exemple, sur une bande spectrale large de 400 nanomètres. Or, l'étalement spectral d'une impulsion attoseconde doit être environ dix fois plus large (dix fois plus que le domaine visible). Le second obstacle à franchir est celui de



Pascal Salières et Pierre Agostini, CEA

**3. Une superposition d'harmoniques** est produite dans l'ultraviolet lointain ou dans le domaine des X lorsqu'on fait interagir un faisceau laser femtoseconde intense avec les atomes d'un gaz rare. Chaque harmonique possède une fréquence multiple de la fréquence du laser, de sorte

la synchronisation : pour atteindre l'attoseconde, il faut que les différentes composantes spectrales soient synchrones, ou en phase, c'est-à-dire qu'elles atteignent ensemble leur amplitude maximale. Si cette condition n'est pas satisfaite, l'impulsion produite ne sera pas ultrabrève ; or elle est d'autant plus difficile à remplir que le nombre de fréquences à aligner est grand. Tout ceci montre assez à quel point la barrière femtoseconde était difficile à franchir.

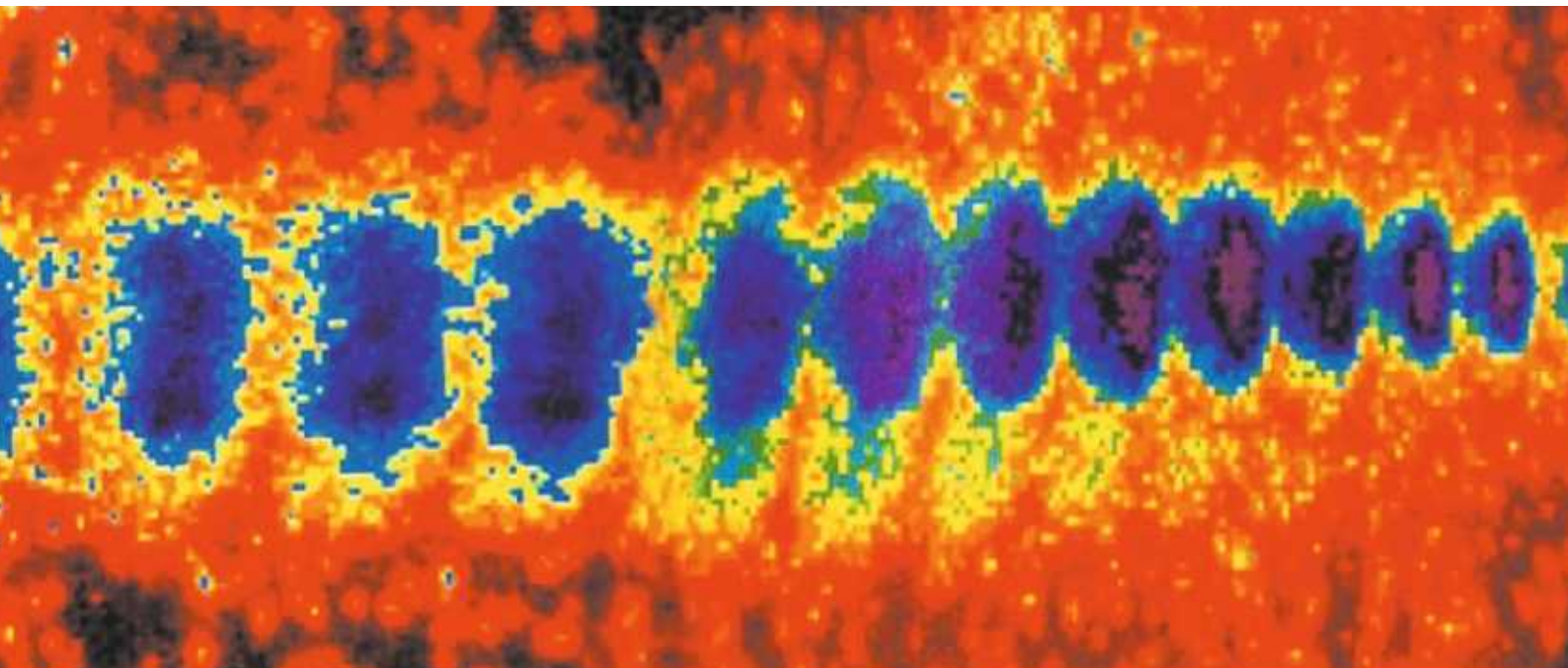
La solution a surgi de l'optique non linéaire, laquelle est devenue une réalité avec l'invention des lasers vers 1960. Grâce à ces sources de lumière, on a découvert qu'une onde monochromatique intense traversant un milieu matériel peut y créer des ondes de fréquences différentes, qui sont cohérentes (capables d'interférer). Avant d'expliquer leurs mécanismes de formation, citons deux approches récentes qui exploitent des effets d'optique non linéaire pour créer les ondes de hautes fréquences (de courtes longueurs d'onde), nécessaires pour obtenir des impulsions attosecondes.

La première méthode, la diffusion Raman stimulée, est actuellement développée par le groupe de Stephen Harris à l'Université de Stanford et par celui d'Alexei Sokolov à Houston, au Texas. La diffusion Raman se produit lorsqu'une impulsion laser interagit avec un gaz moléculaire. Absorbant un photon laser, puis réémettant un photon d'énergie différente, une molécule de ce gaz passe de l'état fondamental à un état excité. La différence entre l'énergie du photon réémis et celle du photon laser est nommée décalage Raman. L'onde Raman peut à son tour créer une troisième onde d'énergie différente, donc décalée sur le spectre d'un décalage Raman... S. Harris et A. Sokolov ont provoqué de telles transitions Raman à l'aide de deux lasers dont les longueurs d'onde diffèrent du décalage Raman, et obtenu une série de fréquences s'étendant jusqu'à l'ultraviolet. Les

physiciens ont atteint la femtoseconde et espèrent créer bientôt de cette façon des impulsions subfemtosecondes.

La deuxième méthode, la génération d'harmoniques d'ordre élevé, a conduit aux premières impulsions attosecondes. Découverte au Centre d'étude de Saclay (CEA) et à l'Université de Chicago en 1987, cette méthode repose sur l'émission spontanée d'harmoniques qui se produit quand un faisceau laser bref et intense interagit avec un gaz rare. Les fréquences des harmoniques produites sont des multiples impairs de la fréquence du laser exciteur. L'existence de ce type d'harmoniques était connue depuis les années 1960, mais les fréquences étaient limitées à une dizaine de fois celle du laser exciteur. Les lasers femtosecondes ont changé la donne : en 1997, on a même obtenu des harmoniques dont la fréquence atteignait quelque 300 fois celle du laser exciteur.

Or, quand ils sont synchrones (en phase), de tels harmoniques interfèrent et produisent ensemble une impulsion ultrabrève (voir la figure 4). Cette impulsion est attoseconde quand les déphasages entre harmoniques sont petits et quand le domaine spectral qu'ils couvrent est assez grand. En 1993, le physicien canadien Paul Corkum a expliqué par un raisonnement simple la génération de hautes fréquences harmoniques du laser générateur. Lorsque le champ électrique oscillant du laser femtoseconde passe par son maximum, il est si intense qu'il arrache des électrons aux atomes, les entraîne et les accélère. Toutefois, puisqu'il oscille, sa direction s'inverse toutes les demi-périodes. Après avoir été arrachés, les électrons sont finalement ramenés vers leurs ions d'origine. Ils entrent en collision avec eux, se recombinent, et produisent un « flash X », libérant ainsi l'énergie qu'ils ont acquise. L'émission d'un « flash X » toutes les demi-périodes dans le domaine temporel se traduit dans le domaine des fréquences



que lorsque les harmoniques sont en phase (leurs maxima coïncident dans le temps), leurs interférences produisent un signal plus bref que chacune d'elles séparément. Plus le signal contient d'harmoniques, plus il est bref. Pour mettre en évidence le spectre des harmoniques, on les dirige

sur un réseau de diffraction, et on observe l'image produite sur un écran fluorescent. Comme le réseau diffracte chaque onde en fonction de sa longueur d'onde, les harmoniques sont séparés ; ainsi, sur l'image ci-dessus, chaque tache correspond à l'un des harmoniques.

par la génération des harmoniques du laser générateur couvrant un large domaine spectral, évoquée plus haut.

Parmi les groupes qui cherchent à produire des harmoniques d'ordre élevé, une équipe franco-néerlandaise dirigée par l'un d'entre nous (Pierre Agostini) et Harm Muller, de la Fondation néerlandaise pour la recherche fondamentale (FOM), a montré, en 2001, que la génération d'harmoniques d'ordre élevé par un laser femtoseconde dans un gaz rare produit des impulsions subfemtosecondes.

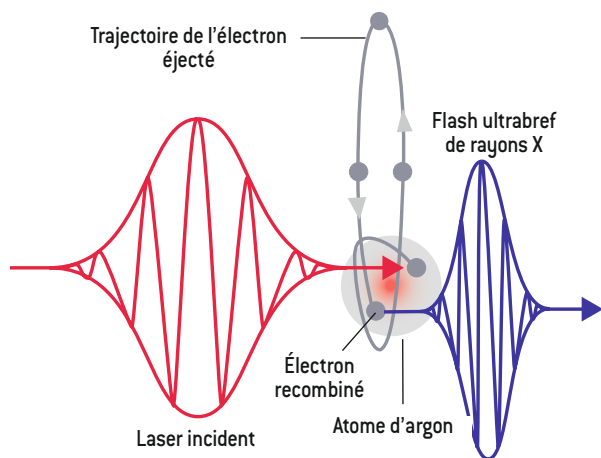
Toutefois, il faut qu'elle soit bien conduite! En effet, plusieurs trajectoires électroniques sont possibles, auxquelles correspondent des trains d'harmoniques différents, qui s'entremêlent pour produire le profil temporel de l'émission X. L'existence de ces différents trains d'harmoniques brouille la structure attoseconde. Pour lever cette difficulté, l'équipe franco-néerlandaise a recherché des conditions pour produire des harmoniques d'ordre élevé dans l'argon, tels que les interférences entre flashes X émis par un groupe d'atomes se combinent en un seul train d'impulsions. Ainsi, les chercheurs ont sélectionné cinq ordres d'harmoniques consécutifs parmi ceux que produit le laser à saphir dopé au titane. Il s'avère que le rayonnement produit conserve la cohérence du faisceau exciteur, de sorte que les harmoniques qui le composent sont suffisamment en phase pour produire un flash X ultrabref à chaque demi-période.

## La métrologie de l'ultrabref

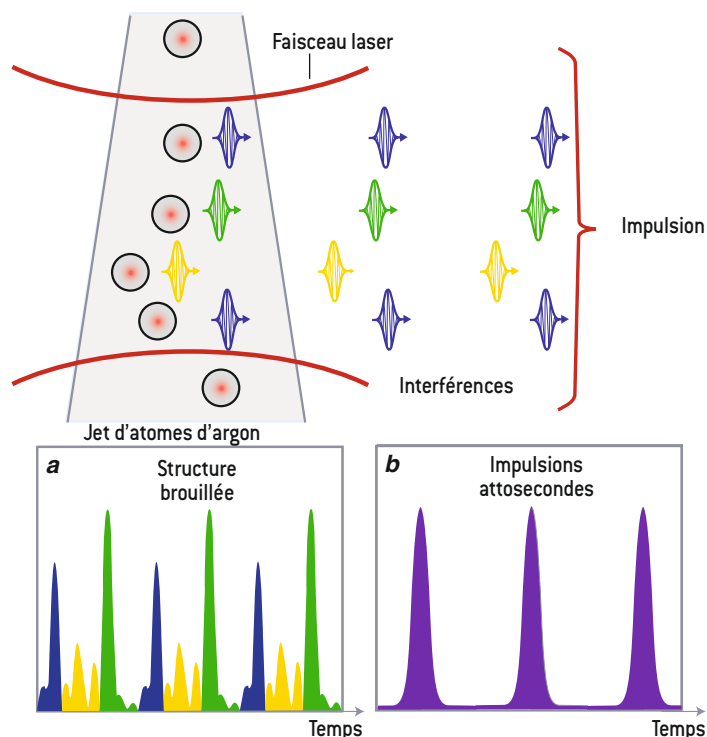
Encore fallait-il le prouver! Pour ce faire, P. Agostini et H. Muller ont inventé une technique de mesure de temps à l'échelle attoseconde: la méthode RABITT (pour *Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-Photon Transitions*, c'est-à-dire reconstruction d'un battement attoseconde par interférence de transitions à deux photons). Il s'agit d'une technique indirecte de mesure des amplitudes et des phases

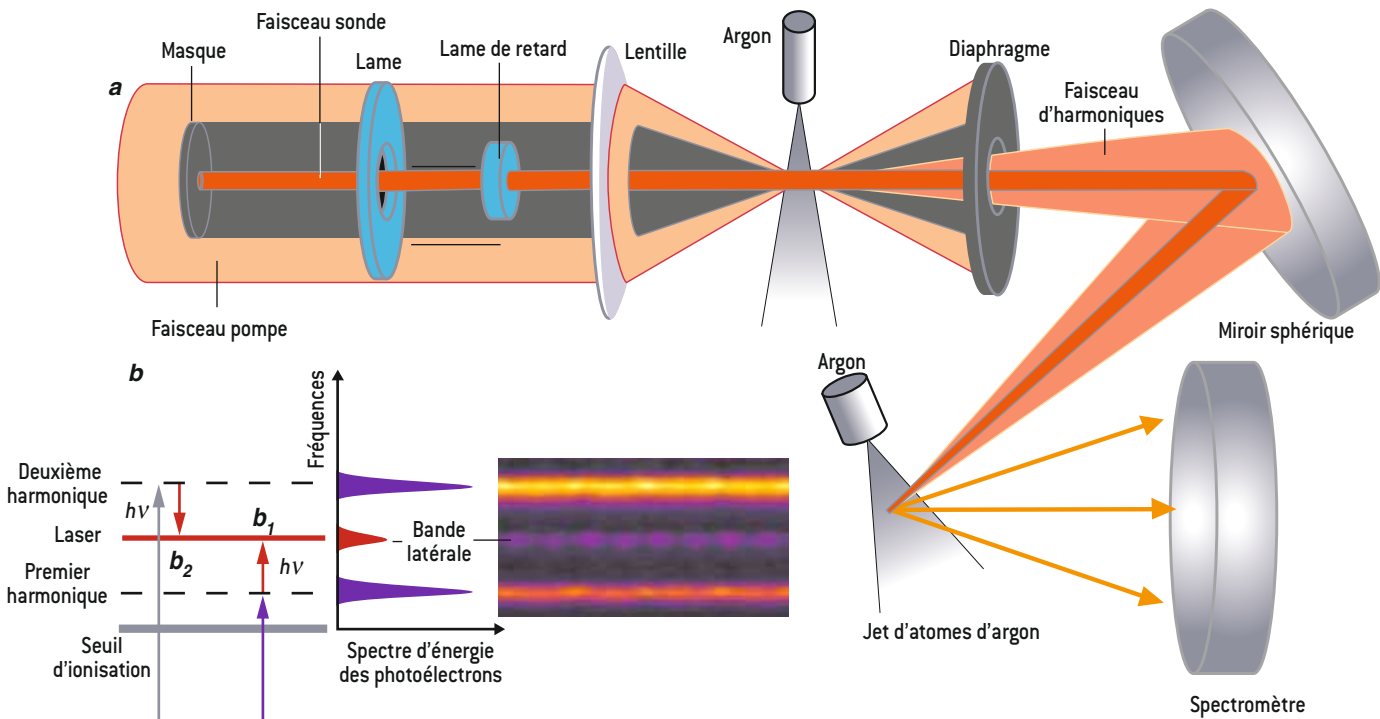
des composantes spectrales d'une impulsion. Elle est fondée sur un effet photoélectrique particulier qui se produit quand un atome est soumis simultanément à un rayonnement infrarouge et à un rayonnement X.

Après que des harmoniques ont été produits dans un premier jet d'argon, ils sont envoyés avec une partie du faisceau exciteur dans un second jet d'argon (voir la figure 5). Ces harmoniques sont tous d'ordre impair, donc séparés spectralement par deux fois l'énergie  $h\nu$  du laser exciteur. Ils arrachent des électrons aux atomes d'argon qu'ils rencontrent dans le second jet. Mesurées avec un spectromètre, les énergies de ces photoélectrons reproduisent le spectre des harmoniques sous la forme de pics séparés de  $2h\nu$ . De plus, un pic supplémentaire s'intercale dans le spectre des photoélectrons pour chaque couple d'harmoniques successifs. Deux modes d'ionisations différents contribuent à ce pic électronique intermédiaire: soit l'électron est arraché par l'harmonique inférieur et absorbe un photon infrarouge d'énergie  $h\nu$ , soit il est arraché par l'harmonique supérieur et émet un photon infrarouge d'énergie  $h\nu$  (voir la figure 5). Comme toujours en mécanique quantique, lorsqu'il y a plusieurs façons d'atteindre un même état final (ici, un électron ionisé d'énergie  $E$ ), des interférences surviennent. Elles produisent le pic intermédiaire et sont la clé de la méthode RABITT. Un calcul réalisé par l'équipe d'Alfred Maquet, de l'Université Pierre et Marie Curie, montre que la probabilité de production d'un électron ionisé d'énergie  $E$  dépend de la différence des phases des deux harmoniques. En mesurant cette probabilité, en d'autres termes l'intensité du pic intermédiaire en fonction du retard optique entre le faisceau exciteur et celui qui apporte les photons infrarouges, on peut déduire de sa variation cette différence de phase. Comme, par ailleurs, on sait déterminer le spectre des harmoniques (donc leurs amplitudes relatives), le calcul permet finalement de reconstruire la fonction



**4. Des impulsions ultrabrèves** sont produites quand un laser femtoseconde dans l'infrarouge (*en rouge*) interagit avec un gaz rare. Deux fois par période, le champ électrique ultra-intense de l'onde incidente arrache des électrons aux atomes, les accélère, puis inverse leur trajectoire. Lorsque ces électrons se recombinent avec leur « ion père », ils libèrent l'énergie accumulée sous forme de flashes ultrabrefs de rayons X. Selon les trajectoires suivies par les électrons, ces flashes sont émis à différents instants, ce qui devrait brouiller la structure attoseconde (a), mais les interférences entre flashes émis par un groupe d'atomes restaurent assez la brièveté pour produire des impulsions attosecondes deux fois par période (b).





**5. Par la méthode RABBIT**, on déduit la durée d'une impulsion attoseconde des phases et amplitudes des harmoniques qui composent son spectre. Le faisceau d'un laser femtoseconde est divisé en un faisceau pompe (a, en orange clair) et un faisceau sonde (en rouge). Concentré par une lentille sur un premier jet d'atomes d'argon, le faisceau pompe y provoque l'émission de fréquences harmoniques (en orange foncé). La superposition de ces harmoniques avec le faisceau sonde dans un second jet d'argon produit alors des photoélectrons. La distribution des énergies de ces électrons grâce à un spectro-

mètre renseigne sur les phases, intensités et périodes des ondes qui les ont produits. Sur le spectre des énergies (b), apparaissent les fréquences des deux harmoniques successifs et une fréquence supplémentaire nommée bande latérale qui s'intercale entre les deux premiers pics. Elle résulte de l'absorption du photon d'un harmonique suivie de l'absorption d'un photon infrarouge ( $b_1$ ) ou de l'absorption du photon de l'harmonique d'ordre immédiatement supérieur suivie de l'émission d'un photon infrarouge ( $b_2$ ). L'intensité de chaque bande latérale (codée en couleur ci-dessus) dépend de la différence de phase des deux harmoniques qu'elle produit et du retard entre le faisceau pompe et le faisceau sonde.

temporelle résultant de leur superposition, et, par conséquent, la durée des flashes lumineux.

RABBIT est particulièrement bien adaptée à la mesure d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques d'ordre élevé. Grâce à cette méthode, les physiciens ont mesuré la durée du flash X produit par les harmoniques 11 à 19 engendrés dans l'argon par leur laser exciteur femtoseconde. Leur spectre s'étend de 73 nanomètres à 42 nanomètres dans l'ultraviolet extrême, ce qui suffit pour produire une impulsion d'une durée de 250 attosecondes toutes les demi-périodes du laser exciteur, c'est-à-dire toutes les 1,35 femtoseconde.

## Harmoniques asynchrones

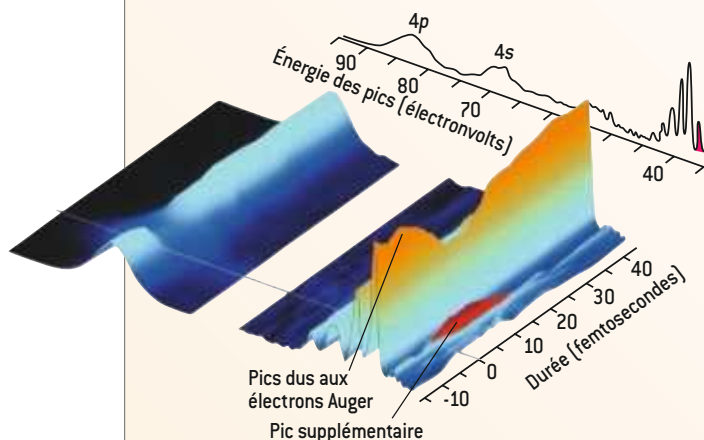
D'autres équipes ont prouvé la brièveté de leurs impulsions ultrabrèves par une autre méthode. Le groupe de Ferenc Krausz, à Vienne, a fait dévier les électrons photoélectriques arrachés à des atomes cibles par l'impulsion attoseconde, de façon à visualiser le phénomène d'arrachement des électrons par l'impulsion ultrabrève sur un écran fluorescent. Ce principe leur a permis de mesurer la durée d'une impulsion attoseconde unique à l'aide d'une impulsion infrarouge dont le champ électrique a fourni le gradient de champ électrique nécessaire. Les physiciens viennois ont ainsi montré que leur impulsion X ultrabrève produite dans le néon dure 650 attosecondes. Centrée sur 14 nanomètres, elle couvre les harmoniques 55 à 59.

En 2001, les impulsions de 250 attosecondes obtenues par P. Agostini et H. Muller constituaient les flashes lumineux les plus brefs jamais mesurés. Tout naturellement, les physiciens ont pensé pouvoir réduire encore la durée en augmentant le nombre d'harmoniques maintenus en phase, puisqu'une impulsion est d'autant plus brève que le nombre d'harmoniques qui la composent est grand (pourvu que les harmoniques soient en phase). Toutefois, comme nous l'avons déjà évoqué, les diverses trajectoires possibles pour les électrons arrachés par le laser exciteur produisent divers trains d'harmoniques, ce qui brouille la structure attoseconde. Depuis 2001, nous sommes parvenus à comprendre comment la cohérence de phase se dégrade lorsque le nombre d'harmoniques augmente. De nouvelles expériences menées au Centre d'étude de Saclay (CEA) ont montré que le décalage de phase entre deux harmoniques successifs est proportionnel à leur ordre, si bien que le décalage total pour un grand nombre d'harmoniques devient considérable. Ainsi, alors que nous tentions de produire une impulsion de 50 attosecondes à partir des interférences de 30 harmoniques, nous avons dû constater que les décalages de phase entre harmoniques successifs nous empêchaient d'atteindre notre objectif.

D'où proviennent ces décalages ? Leur existence traduit l'influence des conditions initiales d'arrachement des électrons au cours de chaque cycle optique. Celles-ci déterminent l'énergie des électrons lors de la recombinaison et

## Première expérience d'atmosphère : l'effet Auger

Lorsqu'un électron d'une couche atomique profonde est arraché par effet photoélectrique, les électrons des couches supérieures se réarrangent extrêmement rapidement : un électron vient combler le « trou » laissé par la couche profonde et un autre électron (l'électron Auger) est éjecté. C'est l'effet découvert par Pierre Victor Auger en 1923. Selon les caractéristiques de l'atome mis en jeu, le réarrangement dure de quelques attosecondes à quelques femtosecondes. Pour avoir



**Spectre des électrons Auger** en présence du rayonnement d'un laser de sonde ; un pic supplémentaire apparaît (en rouge) tant que la lacune liée à l'éjection de l'électron Auger n'est pas comblée.

une chance de « voir » le trou se combler, il faut évidemment le sonder avec des impulsions plus courtes que sa durée de vie, ce qui était impossible jusqu'à récemment.

Pour la première fois, Ferenc Krausz et son groupe de l'Université de Vienne ont mesuré directement la durée de vie du « trou » créé dans le nuage électronique profond d'un atome de krypton par le champ électrique intense d'une impulsion attoseconde.

Pour ce faire, le groupe viennois devait d'abord produire une impulsion attoseconde isolée. Les physiciens l'ont obtenue en envoyant une impulsion laser de sept femtosecondes, soit quelques cycles optiques seulement, sur un gaz d'atomes de néon. Or, l'émission d'harmoniques est un phénomène très non linéaire, qui varie comme une puissance élevée de l'intensité laser, si bien que les harmoniques d'ordre élevé ne sont produits qu'au voisinage du maximum de l'impulsion laser, produisant ainsi l'impulsion de quelques centaines d'attosecondes requise. Dirigée sur un jet d'atomes de krypton, elle déclenche l'émission de photoélectrons (des couches profondes et externes) en un temps très bref (égal à la durée du flash), tandis que l'émission d'électrons Auger s'étale un peu plus. Grâce à cette méthode, les physiciens viennois ont montré que le trou créé dans le nuage électronique de l'atome de krypton par la photo-ionisation disparaît en quelque huit femtosecondes : une durée assez longue, mais cependant inaccessible avec les sources laser conventionnelles. Cette démonstration de principe ouvre la voie à des mesures subfemtosecondes dans un futur proche.

donc conditionnent l'énergie du flash X émis, ou, ce qui revient au même, sa fréquence. Ainsi, les différents trains d'harmoniques qui composent une impulsion ultrabrève traduisent la dispersion en énergie des électrons qui se recombinent. Comme ces électrons sont décalés dans le temps, l'émission des trains d'harmoniques qui leur sont associés l'est aussi, ce qui brouille la structure attoseconde. Dans le domaine spectral, cela se traduit par un décalage de phase entre deux harmoniques successifs, proportionnel à l'ordre (donc à la fréquence). Ce décalage est faible, mais il suffit pour que la superposition d'un nombre trop grand d'harmoniques produise une impulsion distordue, c'est-à-dire plus étalée dans le temps qu'elle ne le serait si les harmoniques étaient en phase. Ainsi, ce déphasage entre harmoniques constitue la limite fondamentale de la création d'impulsions attosecondes par génération d'harmoniques d'ordre élevé. Les impulsions les plus brèves que cette méthode produise résultent d'un compromis entre le nombre d'harmoniques (qui augmente la brièveté) et le déphasage entre harmonique (qui la réduit). En l'état actuel des connaissances, le meilleur compromis est atteint pour 11 harmoniques, pour lesquels nous venons d'obtenir une impulsion de 130 attosecondes : la plus brève jamais produite !

Nous travaillons déjà à dépasser cette limite. Deux voies sont envisageables : la première consiste à augmenter l'intensité du laser, ce qui réduit l'ampleur des déphasages entre harmoniques ; la seconde consiste à intercaler sur le chemin du faisceau un composant optique capable d'annuler ces déphasages. Il s'agit soit d'un réseau dont la surface est gravée, soit de filtres agissant différemment sur des fréquences différentes, afin de compenser les décalages

de phases entre harmoniques. Les premières applications de l'existence d'un étalon de temps à l'échelle de l'attoseconde sont d'ores et déjà envisageables. Le groupe de F. Krausz vient d'étudier la rapide réorganisation des électrons dans un atome tout juste ionisé. L'ionisation électronique est un autre phénomène qu'il devient possible d'approcher temporellement. Si nous parvenons à le comprendre mieux, nous pourrions optimiser les nouvelles sources de rayons X qui contiennent toutes des atomes ionisés par laser. Les transferts de charges au sein des molécules (l'un des fondements de la chimie) ou la relaxation des électrons excités dans la bande de conduction d'un solide (l'un des fondements de l'électronique) sont aussi des phénomènes subfemtosecondes. La maîtrise de l'attoseconde aboutira peut-être aussi à la mise au point d'un nouvel étalon de temps. En un mot, après la femtophysique et la femtochimie, l'atmosphère est née !

**Pascal SALIÈRES**, physicien, est chercheur au Service des photons, atomes et molécules du Centre d'étude de Saclay (CEA), où **Pierre AGOSTINI** physicien, est conseiller scientifique auprès de la Direction des sciences de la matière.

Y. MAIRESSE et al., *Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-Rays*, in *Science*, vol. 302, p. 1540, 2003.

M. DRESCHER et al., *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*, in *Nature*, vol. 419, p. 803, 2002.

P. SALIÈRES et al., *Feynman Path-Integral Approach for Intense-Laser*, in *Science*, vol. 292, p. 902, 2001.

P. M. PAUL et al., *Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation*, in *Science*, vol. 292, p. 1689, 2001.