

Sources cohérentes de laboratoire dans l'extrême ultraviolet

Thierry Ruchon⁽¹⁾ (thierry.ruchon@cea.fr), Pascal Salières⁽¹⁾, Philippe Zeitoun⁽²⁾ et Stéphane Sebban⁽²⁾

(1) Service de physique des atomes et des molécules, DSM/IRAMIS, CEA/Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex

(2) Laboratoire d'optique appliquée, ENSTA, Chemin de la Hunière, 91761 Palaiseau Cedex

La génération d'harmoniques élevées dans les gaz, découverte il y a 25 ans, constitue une source de rayonnement XUV aujourd'hui en plein développement, en raison notamment de ses propriétés de cohérence.

Dans cet article, après avoir présenté le principe de ces sources XUV, nous illustrons les possibilités offertes par leurs cohérences spatiale, temporelle et spectrale, en détaillant des expériences d'imagerie photonique nanométrique, d'imagerie électronique sub-nanométrique, d'amplification XUV et de synthèse d'impulsions attosecondes.

Les termes suivis d'un astérisque sont expliqués dans le glossaire, p. 31.

Les sources lumineuses émettant dans le domaine extrême ultraviolet* (EUV) du spectre sont particulièrement recherchées pour plusieurs raisons, liées respectivement à la longueur d'onde, à l'énergie et à la période des ondes et photons associés.

Premièrement, la limite de résolution théorique d'un microscope ou, réciproquement, la limite de focalisation d'un faisceau, est proportionnelle à la longueur d'onde utilisée pour une ouverture numérique donnée : les courtes longueurs d'onde sont donc proportionnellement favorisées.

Deuxièmement, les photons EUV ont des énergies* élevées (6 à 300 eV), comparables à celles requises pour ioniser directement la matière diluée ou solide : une spectroscopie extrêmement riche s'est développée à partir de cette constatation comme, par exemple, la spectroscopie de coïncidences et la spectroscopie Auger.

Enfin, c'est une zone du spectre très étendue (≈ 300 eV), dans laquelle les périodes des ondes électromagnétiques sont courtes (12 à 700 attosecondes (as)) : ceci donne l'opportunité d'y synthétiser des impulsions extrêmement brèves, plus brèves que celles obtenues dans le domaine visible qui sont limitées à quelques femtosecondes.

Naturellement, toutes ces applications bénéficient, voire requièrent, une source EUV cohérente (voir encadré 1). En effet, une source *cohérente spatialement* gagne en focalisabilité et en éclairage* ; une source *cohérente temporellement* correspond à une raie spectralement fine, indispensable en spectroscopie ; enfin, à

l'inverse, un rayonnement *cohérent spectralement* correspond potentiellement à des impulsions ultra-brèves.

Cependant, lorsqu'on souhaite bénéficier d'une certaine cohérence dans ce domaine spectral, on est souvent réduit à filtrer des sources intenses, de type synchrotron, à la façon de ce qui se faisait dans le visible avant l'avènement des lasers, ou à recourir aux lasers à électrons libres, disponibles depuis peu. Le coût de telles machines et le temps de faisceau disponible restreignent drastiquement les durées d'accès des utilisateurs au faisceau. De plus, de nombreuses expériences, comme par exemple les techniques pompe-sonde*, y sont très difficiles en raison de la gigue temporelle* importante du faisceau. La demande de solutions alternatives est donc élevée, et plusieurs approches basées sur l'interaction laser-matière sont à l'étude en France [1].

Elles utilisent différents processus, basés soit sur la conversion de fréquence de lasers, soit sur l'émission de rayons X de plasmas chauds produits par laser. Dans cet article, nous nous focalisons sur les techniques à base de Génération d'Harmoniques d'ordres Élevés (GHE) d'un laser, qui se rangent dans la première catégorie. Nous présentons d'abord le principe de la GHE, découverte il y a 20 ans, qui constitue un outil aujourd'hui mature pour les applications. Nous montrons ensuite comment elle peut servir de source primaire pour deux développements importants : la fabrication d'impulsions EUV intenses et la synthèse d'impulsions EUV attosecondes.

>>>



Laser femtoseconde kilohertz du Laboratoire d'optique appliquée (Palaiseau), utilisé dans la cadre de la génération d'harmoniques d'ordres multiples.

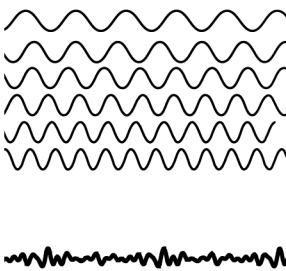
© CNRS Photothèque / CHEZIERE Alexis.

► Cohérences temporelle et spatiale

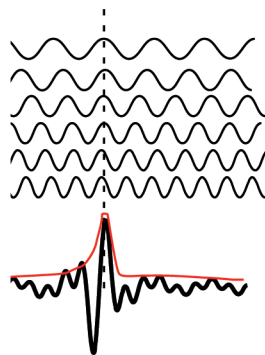
Encadré 1

La *cohérence spectrale* d'une onde électromagnétique est déterminée par la fonction de corrélation entre les composantes spectrales du champ électromagnétique associé. En général, la corrélation décroît avec l'écart spectral entre ces points, et on peut donc définir une largeur spectrale de cohérence comme la gamme spectrale au-delà de laquelle la corrélation des champs passe sous un seuil déterminé. Si une source a un spectre très large et ses phases spectrales des relations bien déterminées, elle sera dite cohérente spectralement et ses composantes pourront interférer pour former des impulsions brèves (cf. relation de Fourier*).

À titre illustratif, la somme de nombreuses ondes sinusoïdales harmoniques et de même amplitude donne une valeur très faible pour tous les instants lorsque les phases spectrales sont aléatoires (fig. a), mais une série d'impulsions brèves lorsque les phases spectrales sont identiques (fig. b).



a



b

Somme d'ondes sinusoïdales de fréquences harmoniques ayant (a) des phases aléatoires, et (b) des phases identiques.

De façon analogue, on définit le *temps de cohérence* en mesurant la corrélation du champ électromagnétique entre deux instants différents, et la *cohérence spatiale* en mesurant la corrélation entre deux points de l'espace.

Glossaire

Éclairement

Unité de mesure de l'amplitude d'un champ laser. Par exemple, $E = 10^{14} \text{ W/cm}^2$ correspond à $2 \cdot 10^8 \text{ V/cm}$. C'est la grandeur utile pour calculer les taux d'ionisation d'un atome.

Énergie d'un photon

$E = hc/\lambda = h/T$, où h est la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide, λ la longueur d'onde associée au photon et T sa période. Par exemple, $E = 1,55 \text{ eV}$ correspond à $\lambda = 800 \text{ nm}$ et $T = 2,7 \text{ fs}$.

Extrême ultraviolet

Zone du spectre de rayonnement électromagnétique correspondant à des longueurs d'onde de 4 à 200 nm et à des énergies de 6 à 300 eV.

Pompe-sonde et gigue temporelle

Une expérience pompe-sonde consiste à exciter un phénomène avec une impulsion dite de pompe déterminant l'origine des temps, et à venir sonder le système à un instant ultérieur avec une impulsion dite de sonde. En reproduisant l'expérience dans un milieu régénéré pour différents retards, on reconstruit l'évolution temporelle du processus. On parle de gigue temporelle quand le retard entre les deux faisceaux montre des fluctuations incontrôlées, réduisant ainsi la résolution temporelle.

Relation de Fourier

La relation liant largeurs spectrales ($\Delta\omega$) et temporelle (Δt) d'une impulsion s'écrit : $\Delta\omega \cdot \Delta t \geq 4 \ln 2$, avec l'égalité obtenue pour des profils gaussiens à phase plate. Pour réaliser des impulsions brèves, il est donc utile de mettre en phase le spectre de rayonnement le plus large possible. Ainsi, un spectre de 18 eV de largeur à mi-hauteur correspond à une limite, dite de Fourier, de 100 as sur la durée.

>>>

Génération d'harmoniques élevées

Actuellement, un dispositif de GHE est essentiellement constitué d'un laser pouvant être focalisé à des éclaircements de l'ordre de quelques 10^{14} W/cm² dans un gaz rare – jet ou cellule d'argon par exemple, à une pression de quelques dizaines de millibars (mbar). Pour atteindre de tels éclaircements, il est nécessaire de disposer d'un laser délivrant une grande quantité d'énergie en très peu de temps. Les lasers femtosecondes énergétiques et, en particulier, les lasers à base de cristaux de titane-saphir [2] émettant dans le proche infrarouge, remplissent parfaitement ce rôle. Ces éclaircements correspondent à des potentiels électriques oscillant à la fréquence laser, d'amplitudes comparables au potentiel coulombien qui maintient l'électron au voisinage du noyau.

À chaque demi-période du champ laser, la barrière coulombienne du cœur atomique est donc fortement abaissée et permet à la fonction d'onde électronique de se séparer en deux parties (fig. 1) : l'une reste au voisinage du cœur atomique et servira de référence de phase, l'autre est « ionisée » par effet tunnel et sort dans le continuum d'énergie de l'atome. En première approximation, cette deuxième partie de la fonction d'onde se comporte alors classiquement : elle est d'abord accélérée loin du cœur par le champ laser, puis, sous certaines conditions initiales, elle est ramenée au voisinage du cœur avec une énergie cinétique importante, pouvant atteindre plusieurs dizaines

d'électron-volts (eV). L'interaction avec le cœur conduit, avec une efficacité relativement faible, à une recombinaison radiative : l'énergie cinétique acquise par l'électron, qui couvre une large gamme continue, est convertie en énergie de photon, dont la fréquence se trouve dans l'EUV.

Ces trois étapes se répètent tous les demi-cycles optiques, tant que le champ laser est suffisamment intense, c'est-à-dire pendant une fraction de la durée de l'impulsion infrarouge, déterminant ainsi la durée totale de l'émission (quelques dizaines de femtosecondes). Naturellement, plus le champ est intense, plus l'électron gagne d'énergie cinétique et plus les photons émis ont une énergie élevée. Cependant, tout repose sur le fait que l'atome n'est que partiellement ionisé par effet tunnel et qu'ainsi, la partie du paquet d'ondes restée liée garde la « mémoire » de phase de l'onde électronique initiale jusqu'à la recombinaison, rendant ainsi les émissions de cycles laser successifs *cohérentes entre elles*. Il est donc indispensable que l'atome ne soit pas entièrement ionisé pour ne pas perdre la référence ; ceci limite l'éclaircissement acceptable pour une espèce donnée (à 2×10^{14} W/cm² pour l'argon, par exemple). Le spectre n'est donc pas indéfiniment extensible, mais une relation de phase existe entre ses différentes composantes [3].

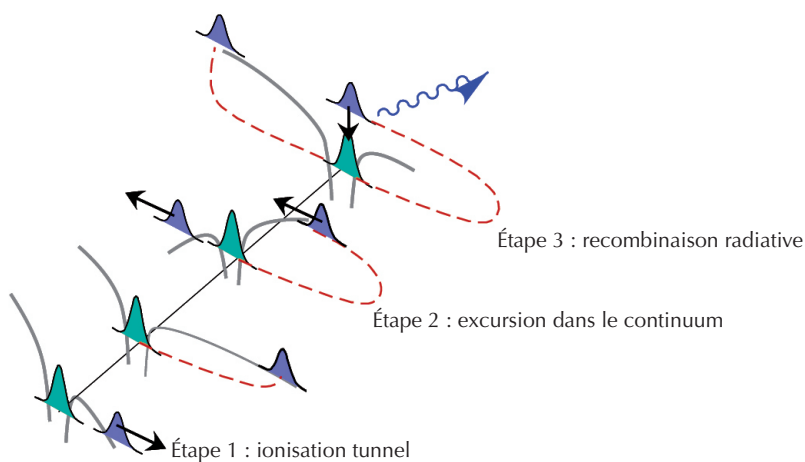
À l'instar du fonctionnement des lasers impulsifs [4], la périodicité en temps du phénomène se traduit par l'apparition dans le spectre d'un peigne de fréquences, d'où le nom de *génération d'harmoniques d'ordres élevés*.

Ce type de source autorise de nombreuses applications, comme, par exemple, les deux techniques d'imagerie très différentes illustrées dans l'encadré 2. Celles-ci exploitent respectivement la cohérence spatiale de l'émission [5] et la cohérence relative des différentes composantes spectrales [6]. Le transfert de cohérence du visible vers l'EUV ouvre ainsi de nombreuses perspectives (holographie, interférométrie, tomographie moléculaire...). Mais nous cherchons également dans nos laboratoires à perfectionner ces sources en suivant deux autres lignes directrices : augmenter les flux obtenus et synchroniser les différentes composantes spectrales, afin d'obtenir des impulsions attosecondes plutôt que femtosecondes.

Rayonnement XUV intense

L'augmentation de l'énergie d'une impulsion harmonique est un défi scientifique, qui motive un effort important d'une partie de la communauté travaillant sur les sources cohérentes dans la gamme EUV.

Une des voies actuellement à l'étude consiste à utiliser le faisceau harmonique issu d'une source GHE comme premier étage d'un laser EUV de puissance (fig. 2). Il est ainsi injecté dans un plasma en inversion de population, pour y être amplifié par « effet laser ». Compte tenu du fort gain de l'amplificateur plasma (20 à 600), le faisceau harmonique extrait l'énergie après un seul passage, ce qui permet de s'affranchir de la mise en place d'une cavité optique, difficile à réaliser dans cette gamme de longueurs d'onde. De plus, la polarisation est conservée et la cohérence spatiale du faisceau est légèrement améliorée. L'écart-type de l'erreur de sphéricité du front d'onde atteint la valeur record de $\lambda/17$ à la longueur d'onde de 32 nm. Ceci est bien meilleur que la limite de diffraction [5] et permet d'anticiper la possibilité de focaliser ces sources sur une dimension proche de leur longueur d'onde. L'énergie du faisceau est aujourd'hui de l'ordre du microjoule par tir, ce qui est remarquable dans cette gamme spectrale. Par ailleurs, tous les calculs montrent qu'il est possible d'extraire dans un futur proche une énergie environ cent fois plus importante. Enfin, il faut noter que la largeur spectrale de gain est déterminée par la largeur étroite d'une transition atomique, bien plus faible que la gamme spectrale du rayonnement issu de la GHE,



1. Modèle à trois étapes de la génération d'harmoniques d'ordres élevés. Les gaussiennes représentent des paquets d'ondes électroniques (en mauve, la fraction ionisée), les traits épais le potentiel total, somme du potentiel coulombien atomique et du potentiel imposé par le laser. Tirets oranges : trajectoires des paquets d'ondes libérés par effet tunnel.

qui couvre des dizaines d'électronvolts dans son ensemble et environ 200 meV pour une harmonique isolée. En conséquence, le faisceau harmonique n'est amplifié que sur une faible largeur spectrale et voit sa durée allongée à la picoseconde.

La transposition dans la gamme EUV de cette architecture « oscillateur-amplificateur », couramment utilisée dans les chaînes laser de puissance dans la gamme infrarouge, est l'aboutissement d'une vingtaine d'années d'étude sur les plasmas de lasers EUV créés par laser [6]. Son succès est aujourd'hui reconnu et transposé aux lasers à électrons libres EUV, afin de réduire la taille de ces installations et améliorer la cohérence temporelle du faisceau. Par ailleurs, des schémas alternatifs sont aujourd'hui à l'étude pour atteindre des durées de l'ordre de la centaine de femtosecondes avec une énergie de faisceau autour de 100 μ J, dans la gamme de longueurs d'onde de la dizaine de nanomètres (nm).

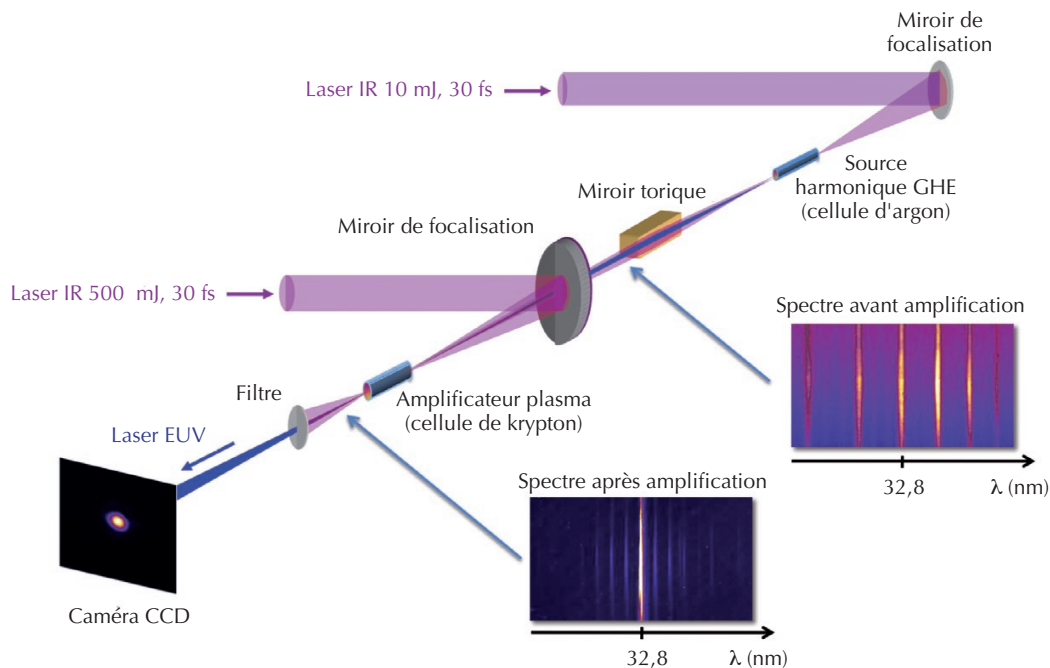
Rayonnement EUV ultra-bref

Comme mentionné ci-dessus, à la différence d'un rayonnement de type synchrotron, il existe une relation de phase bien déterminée, quoique non triviale, entre les différentes composantes d'un spectre de GHE. Or, un spectre de 18 eV de largeur à mi-hauteur, relativement aisé à réaliser avec une telle source, correspond à une limite de Fourier* de 100 as sur la durée. Moyennant la mise en phase des composantes d'un tel spectre en le filtrant par un milieu dispersif, ce type de source peut donc servir de base à la synthèse d'impulsions attosecondes.

Le modèle à trois étapes de la GHE prévoit que les électrons libérés par effet tunnel, selon les conditions initiales, peuvent suivre des trajectoires différentes et ainsi revenir avec des énergies identiques à des instants différents. Dans la pratique, deux familles de trajectoires principales entrent en jeu, l'une plus courte que l'autre. La première étape de filtrage consiste en général à éliminer les contributions des

trajectoires longues, en profitant de la plus grande divergence du rayonnement associé. Ainsi, un iris placé dans le faisceau permet d'en éliminer l'essentiel. Par ailleurs, à l'intérieur de chaque famille de trajectoires, il existe un retard de groupe entre les harmoniques. Ainsi, pour les trajectoires courtes, les harmoniques élevées sont émises avant les faibles. Afin de les resynchroniser et d'obtenir une phase spectrale plate, il faut leur imposer un retard opposé. Deux approches sont poursuivies, utilisant comme filtre, soit des feuilles métalliques de quelques centaines de nanomètres d'épaisseur, soit des miroirs multicouches. Naturellement, la première technique est peu flexible, dépendant entièrement des matériaux des feuilles à disposition, qui sont en outre fragiles. Mais c'est la plus courante aujourd'hui, et celle qui a permis d'obtenir les impulsions les plus brèves à ce jour, à savoir 80 as. La deuxième voie, actuellement à l'étude dans nos laboratoires, tire avantage des progrès récents dans la fabrication de miroirs multicouches EUV, qui devraient

>>>



2. Schéma de principe de l'amplification harmonique dans un plasma-laser en inversion de population. Un plasma d'ions multichargés est produit en focalisant une portion d'un faisceau laser femtoseconde (500 mJ) dans une cellule remplie de krypton. La densité et la température du plasma sont ajustées pour qu'une colonne de plasma de 1 cm de long sur une cinquantaine de microns de diamètre soit produite sur le passage du laser et soit le siège d'une inversion de population quelques picosecondes après sa création. Ce plasma devient ainsi amplificateur à la longueur d'onde de la transition en inversion de population (ici la transition 4p-4d dans le krypton nickéloïde à 32,8 nm), mais reste absorbant pour les autres longueurs d'onde situées en dehors de cette bande de gain, en général étroite ($\Delta\lambda/\lambda = 10^{-5}$). Par ailleurs, un faisceau harmonique primaire EUV est obtenu en focalisant une autre partie de l'énergie du laser femtoseconde (10 mJ) dans une cellule de gaz remplie d'argon. Ce faisceau primaire est collecté et focalisé à l'entrée du milieu amplificateur à l'aide d'un miroir torique, en veillant à ajuster sa taille à celle du milieu amplificateur. En comparant les spectres du rayonnement avant et après amplification, on constate bien qu'une seule des harmoniques bénéficie du gain du plasma. Les qualités optiques (profil, front d'onde, cohérence) du faisceau primaire sont conservées au cours de cette amplification.

>>>

permettre de façonner à la demande le rayonnement harmonique [7].

Enfin, le phénomène décrit par le modèle à trois étapes se répétant tous les demi-cycles optiques, les impulsions attosecondes ainsi générées arrivent sous forme de trains d'impulsions. Par exemple, une impulsion de génération de 10 fs donne environ 4-5 impulsions successives. Il est cependant possible, par des techniques de fenêtrage, de réduire ce train à une ou quelques impulsions. De cette façon, des impulsions attoseconde uniques ont pu être synthétisées, en partant d'un laser de 10 fs [7].

Conclusion

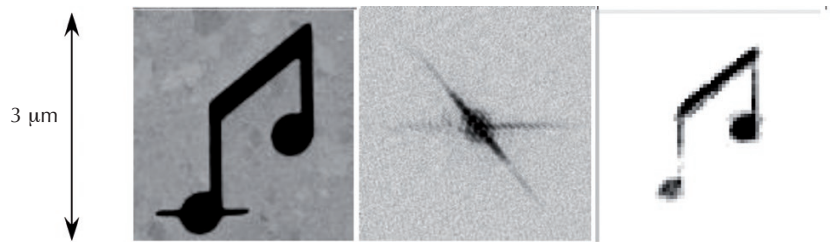
Nous avons effectué un tour d'horizon des progrès récents sur les sources EUV cohérentes produites par laser. Celles-ci deviennent aujourd'hui plus intenses, plus brèves, permettant ainsi non seulement de revisiter les expériences faites dans cette gamme de longueurs d'onde avec des sources incohérentes de type synchrotron, mais aussi d'ouvrir de nouveaux champs de recherche. En particulier, la possibilité de schémas pompe-sonde s'annonce prometteuse. Si ces sources sont disponibles aujourd'hui, elles font cependant l'objet d'études encore nombreuses, qui pourraient se révéler décisives pour leur diffusion. De nombreux travaux sont en cours visant, par exemple (i) leur miniaturisation *via* l'utilisation de nanostructures plasmoniques exaltant le champ, (ii) l'augmentation de leur cadence *via* l'utilisation de lasers fibrés, ou (iii) l'augmentation de leur éclairage en recourant à de la GHE sur cible solide... Ces travaux promettent des sources d'une grande variété d'ici quelques années, et permettront d'élargir le champ de leurs applications. ■

► Imagerie par harmoniques élevées

Encadré 2

Imagerie par diffraction cohérente (IDC)

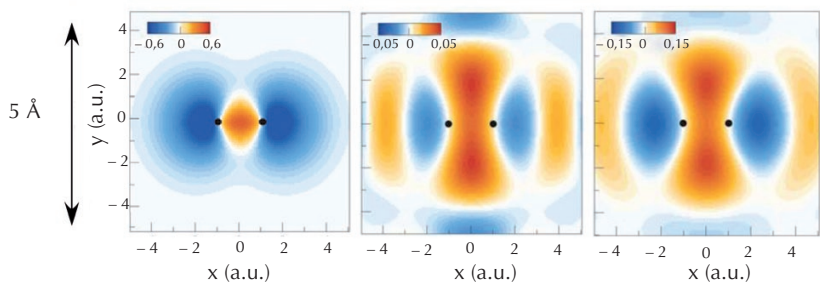
Un objet de dimensions de l'ordre du micromètre est illuminé par le faisceau focalisé d'une harmonique élevée sélectionnée. Une caméra de grande ouverture numérique enregistre la figure de diffraction de l'objet en champ lointain, c'est-à-dire le module de sa transformée de Fourier. Un algorithme de reconstruction itératif permet alors de retrouver la phase et l'amplitude de l'objet qui y sont encodées. Des résolutions jusqu'à 78 nm ont été atteintes avec une harmonique EUV de longueur d'onde 32 nm. Cette technique, qui repose sur l'analyse des interférences des différentes ondes diffractées par les différentes portions de l'objet, requiert une onde spatialement cohérente et est facilitée par un front d'onde plan ou sphérique, tel que celui des harmoniques.



De gauche à droite : image d'un échantillon prise au microscope électronique ; figure de diffraction correspondante obtenue en un seul tir laser EUV et montrant notamment des effets d'interférences ; reconstruction de l'objet [5].

Tomographie d'orbitales moléculaires

La dernière étape du processus de GHE, la recombinaison radiative, met en jeu un moment de transition dipolaire électrique. Ce n'est rien d'autre que le produit intégré d'une onde électronique du continuum (onde plane en première approximation) et de l'orbitale d'où est sortie l'onde électronique. Ceci correspond à la transformée de Fourier de l'orbitale initiale, qui se trouve ainsi encodée dans le rayonnement émis. Moyennant des calibrations, en mesurant ce rayonnement, on trouve, par transformée de Fourier inverse, une image de l'orbitale rayonnante. Une résolution spatiale de l'ordre de l'ångström et une résolution temporelle attoseconde sont obtenues. La résolution est ici bien plus faible que la longueur d'onde optique du photon émis. La raison en est que c'est l'onde électronique issue de l'effet tunnel qui sonde la molécule, et que cette onde a précisément une longueur d'onde de l'ordre de l'ångström. Il faut noter que cette technique repose sur la mesure des amplitudes et phases relatives des harmoniques émises, soit, en définitive, sur leur cohérence spectrale mutuelle.



De gauche à droite : projection sur un plan de l'orbitale la plus haute occupée de la molécule d'azote N_2 , calculée selon la méthode de Hartree-Fock ; reconstruction, obtenue par tomographie, de l'orbitale moléculaire ; et calcul Hartree-Fock prenant en compte une résolution limitée, identique au cas expérimental. L'accord entre ces deux dernières figures est excellent [6].

Références

- 1 • Sites internet des laboratoires suivants : LOA, LULI et IOTA à Palaiseau, LPGP et ISMO à Orsay, IRAMIS/SPAM/Attophysique au CEA-Saclay, CELIA à Bordeaux.
- 2 • S. Forget *et al.*, « Les différents lasers : un tour d'horizon », dans ce numéro, p. 18.
- 3 • P. Salières et M. Lewenstein, "Generation of ultrashort coherent XUV pulses by harmonic conversion of intense laser pulses in gases: towards attosecond pulses", *Meas. Sci. Technol.*, **12** (2001) 1818-1827.
- 4 • A. Amy-Klein, « Mesures absolues de fréquences optiques avec un laser femtoseconde », dans ce numéro, p. 42.
- 5 • A. Ravasio *et al.*, "Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser-Harmonics Source", *Phys. Rev. Lett.*, **103** (2009) 028104.
- 6 • S. Haessler *et al.*, "Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets", *Nature Physics*, **6** (2010) 200-206.
- 7 • J.-Ph Goddet *et al.*, "Aberration-free laser beam in the soft x-ray range", *Optics Letters*, **34** (2008) 2438.
- 8 • P. Zeitoun *et al.*, "A high-intensity highly coherent soft X-ray femtosecond laser seeded by a high harmonic beam", *Nature*, **431** (2004) 426.
- 9 • "Focus on attosecond physics", Numéro spécial du *New Journal of Physics* (accès libre), **10** (2008).