

# Optimisation expérimentale des flux de photons harmoniques en géométrie longue focale

Ce chapitre présente le travail réalisé en vue de maximiser les flux de photons harmoniques dans différents gaz rares en jouant sur les paramètres qui influencent la génération d'harmoniques et l'accord de phase, comme la pression, la longueur du milieu, la position cellule-foyer, la géométrie focale du laser etc. Une attention toute particulière a été apportée à la calibration en absolu du détecteur, afin d'estimer le nombre de photons produits pour en déduire finalement des efficacités de conversion fiables qui permettent de souligner l'intérêt de la configuration longue focale permise par le progrès des technologies laser : hautes cadences, haute énergie et faible durée d'impulsion. Ces données chiffrées sont alors utilisables pour des comparaisons avec d'autres configurations de génération d'harmoniques telles que celles utilisant les capillaires.

Dans une première partie, nous décrivons l'installation laser infrarouge en nous attachant à la description des caractéristiques laser les plus importantes pour la génération d'harmoniques. Nous présenterons dans une deuxième partie notre montage expérimental pour la source harmonique et nous concluons sur les meilleures efficacités de conversion obtenues, en les comparant à celles d'autres équipes travaillant sur la même thématique. On justifiera ces valeurs expérimentales dans le chapitre suivant après avoir posé le cadre de compréhension générale de la génération d'harmoniques.

## 2.1. Le dispositif laser de pompe

### 2.1.1. Caractéristiques techniques générales

L'installation laser de la « salle rouge » du LOA, couramment utilisée pour la génération d'harmoniques, est un système entièrement basé sur des cristaux de saphir dopé au titane (Ti:Sa) et utilisant la technique d'amplification à dérive de fréquences (CPA pour *Chirped Pulse Amplification*) [1]. Il délivre des impulsions de 30 fs environ à une longueur d'onde de 800 nm et une cadence de 1kHz [2]. Cette cadence est particulièrement bien adaptée à la génération d'harmoniques. À 30 fs, des impulsions de quelques millijoules suffisent pour générer efficacement des harmoniques, ce qui permet ces cadences relativement élevées. Le flux de photons harmoniques moyen par seconde est alors augmenté de façon simple par rapport aux lasers de cadence plus faibles. Dans le cadre de nos expériences, l'énergie par impulsion varie de 4 à 7 mJ et le diamètre du faisceau, parallèle en sortie de laser, mesuré au sens des faisceaux gaussiens ( $1/e^2$  de l'intensité maximale) est de 22 mm, soit un éclairement d'environ  $2\text{mJ/cm}^2$ . Dans cette configuration, les intensités laser atteintes restent suffisamment modestes pour permettre de travailler dans l'air, ce qui facilite considérablement les réglages.

Les choix technologiques faits sur cette chaîne laser ont des conséquences sur l'efficacité de la génération d'harmoniques. D'abord, celle-ci, en tant qu'effet hautement non linéaire, est très sensible à l'intensité crête atteinte par l'impulsion, intensité elle-même inversement proportionnelle à la durée d'impulsion à énergie fixée. Nous avons également remarqué l'importance de la qualité du contraste de l'impulsion laser, mesuré entre le pic principal et le pied de l'impulsion. En effet, des impulsions parasites d'intensité suffisante pour provoquer une ionisation partielle du milieu gazeux, sans pour autant générer efficacement des harmoniques, peuvent induire des effets

complexes de propagation et perturber l'accord de phase au passage de l'impulsion principale (voir chapitre 3). Enfin l'éclairement attendu au foyer du laser dépend fortement de la régularité du front de phase spatiale du faisceau.

Nous présentons à présent les différents éléments constituant la chaîne laser et pouvant influencer la génération d'harmoniques. La figure (2.2) montre un schéma de principe de l'installation laser de la salle rouge du LOA.

Le premier élément de la chaîne laser est constitué par l'oscillateur, qui délivre un train d'impulsions de quelques nJ de durée 15 femtosecondes à très haute cadence (100 MHz).

Avant amplification, l'impulsion est étirée jusqu'à 100 picosecondes par un étireur basé sur le principe d'un triplet de Offner [3]. L'intérêt de la technique CPA est d'étirer de façon parfaitement contrôlée les impulsions femtosecondes pour permettre de les amplifier sans que l'intensité crête atteinte n'induisse des effets non linéaires, voire une détérioration des différents éléments optiques constituant la chaîne laser (réseaux, miroirs, cristaux, etc.). Il suffira ensuite, en fin de chaîne, de comprimer l'impulsion à une durée de quelques dizaines de femtosecondes par le processus inverse de l'étirement.

Le triplet de Offner schématisé sur la figure (2.1), présente l'avantage sur d'autres systèmes d'étirement de fonctionner uniquement en réflexion. Par construction, il n'induit aucun défaut de phase autre que ceux qui sont liés à la qualité des optiques qui le composent.

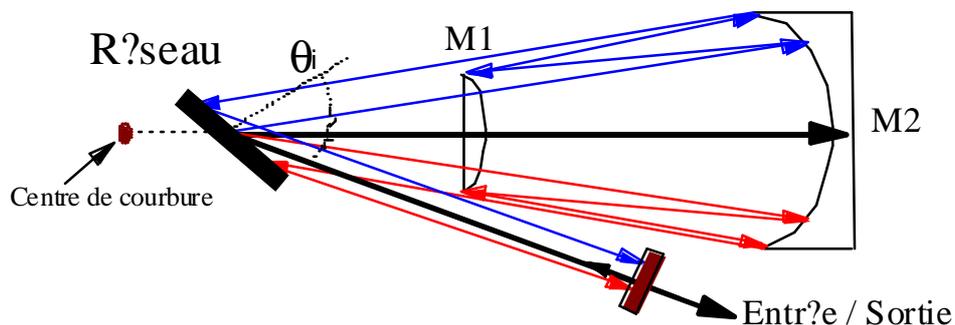
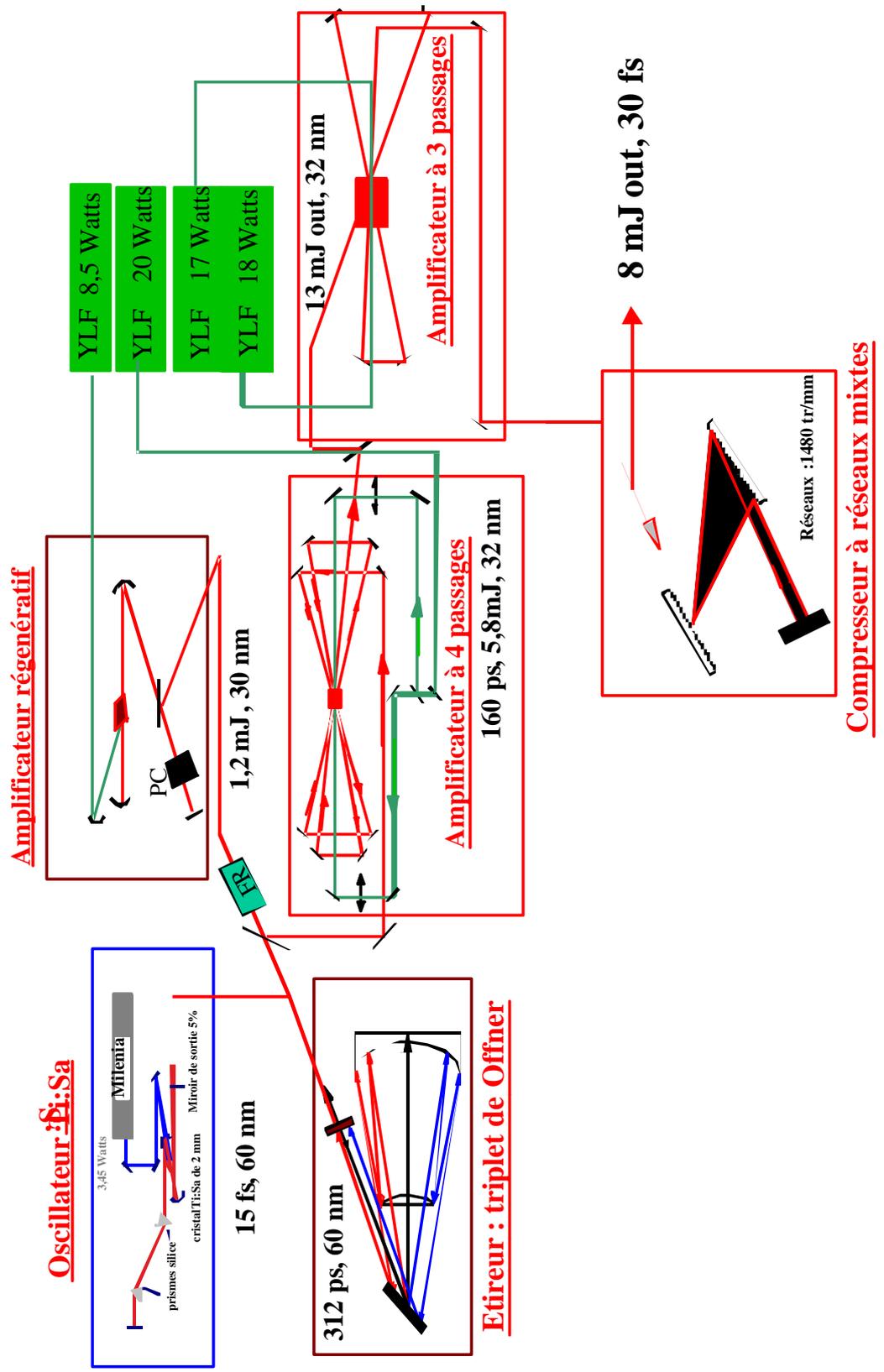


Figure 2.1 : Schéma de principe d'un étireur à triplet de Offner

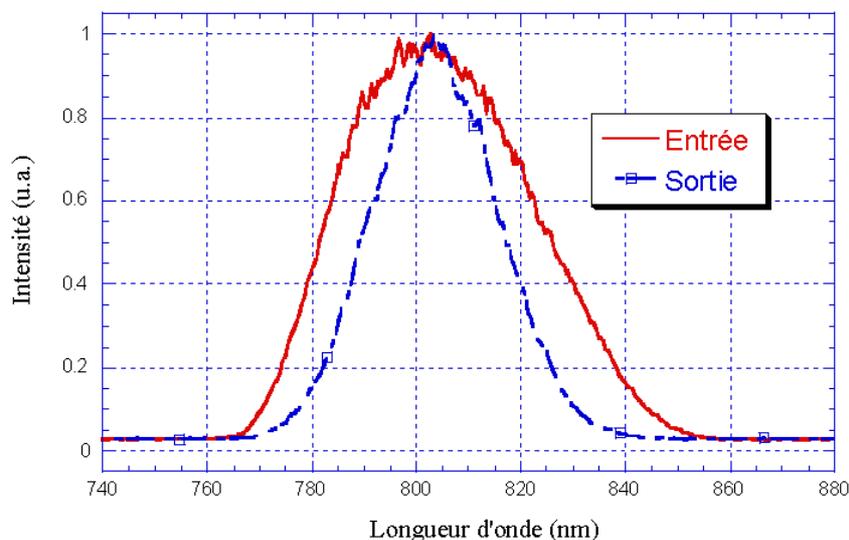


Page précédente : Figure 2.2 : Schéma de principe de la chaîne laser de la salle rouge.

Le compresseur situé en bout de chaîne est constitué de deux réseaux de diffraction fabriqués à Livermore. Leur haute réflectivité permet de limiter l'absorption d'énergie donc de diminuer les effets thermiques pouvant induire une détérioration de la forme temporelle et spatiale de l'impulsion. Ce compresseur permet de réaliser l'opération exactement inverse de celle de l'étireur.

### 2.1.2. Principe de fonctionnement de l'amplificateur régénératif

L'étage le plus important quant à son influence sur les caractéristiques temporelles de l'impulsion en sortie est le premier étage d'amplification, dit préamplificateur qui présente le gain le plus important. Pour cette chaîne kHz, il est basé sur le principe de l'amplificateur régénératif dont l'inversion de population est obtenue par pompage au kHz avec un laser à base de YLF doublé émettant dans le vert (laser commercial Thalès). Contrairement aux systèmes multipassages utilisés pour les amplificateurs de puissance, dans lesquels le faisceau à amplifier ne traverse qu'un nombre de fois limité le milieu, l'amplificateur régénératif est construit comme une cavité laser autonome : en l'absence d'un faisceau à amplifier, il se comporte comme un oscillateur et peut émettre un rayonnement laser. L'amplificateur régénératif permet donc de réaliser un nombre important de passages dans le milieu amplificateur (généralement plusieurs dizaines). En contrepartie, la figure (2.3) montre que le fort gain obtenu implique un rétrécissement plus important de la largeur du spectre (souvent appelé «rétrécissement par le gain»), donc par transformation de Fourier une impulsion plus longue après compression.



*Figure 2.3 : Effet de l'amplificateur régénératif sur le spectre de l'impulsion : on observe un net rétrécissement de la largeur du spectre impliquant après recompression une plus grande durée d'impulsion.*

Les avantages de ce dispositif sont une facilité de réglages accrue par rapport aux systèmes multipassages, et un meilleur mode spatial dû à la présence d'une cavité. Il est important d'insister sur le fonctionnement de ce système régénératif car il permet d'expliquer l'origine de nombreuses impulsions avant et après l'impulsion principale et qui sont responsables d'une moins bonne qualité du contraste du laser. La figure (2.4) montre le schéma de principe de ce type d'amplificateur.

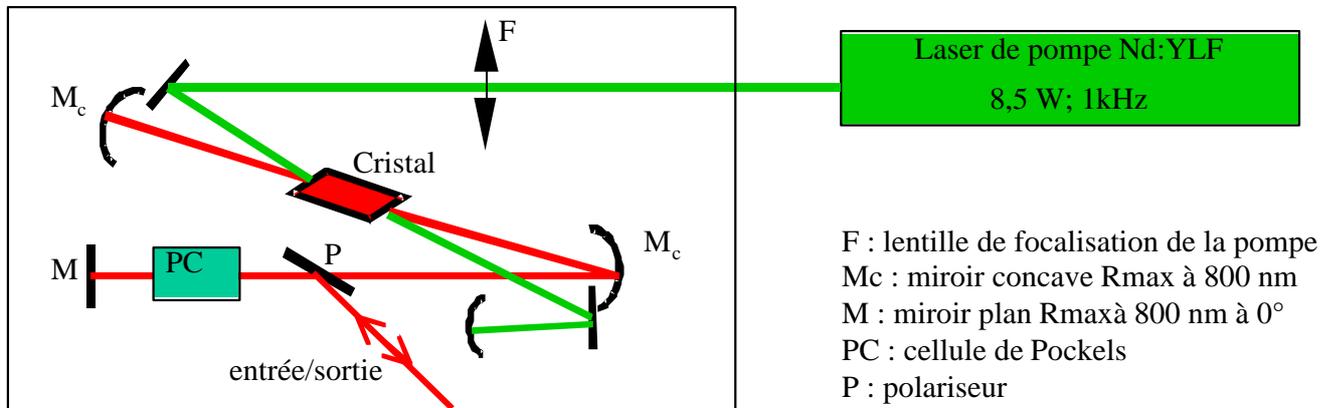


Figure 2.4 : Schéma de principe de l'amplificateur régénératif

L'amplificateur régénératif de la salle rouge est une cavité laser constituée de trois miroirs de réflectivité maximum contenant un cristal de Ti:Sa (dont les faces sont taillées à l'angle de Brewster), une cellule de Pockels et un polariseur. L'ensemble polariseur-cellule de Pockels constitue la porte optique permettant aux impulsions à amplifier d'entrer et de sortir de l'amplificateur. Les impulsions à l'entrée de l'amplificateur ont une polarisation verticale. Or, à cause du polariseur à l'intérieur de la cavité et des faces à Brewster du cristal de saphir dopé au titane, seules des impulsions de polarisation horizontale peuvent osciller dans la cavité. Chaque milliseconde, la cellule de Pockels sélectionne une impulsion en tournant sa polarisation de 90 degrés, ce qui permet à l'impulsion de rester piégée dans la cavité (le polariseur ne réfléchit plus l'impulsion, mais la transmet). Après plusieurs passages dans le milieu amplificateur (36 dans notre cas), lorsque le gain est optimisé, le processus inverse permet de sortir l'impulsion amplifiée grâce à une seconde rotation de la polarisation.

### 2.1.3. Problèmes de contraste liés à l'amplificateur régénératif

Dans une chaîne laser, on définit le contraste comme le rapport entre l'intensité crête de l'impulsion principale et celle de tout rayonnement parasite qui s'y superpose (émission spontanée amplifiée, pré ou post-impulsions, défauts de recompression, etc.)

La majorité des problèmes de contraste, et en particulier l'émission spontanée amplifiée (ASE) vient du préamplificateur à gain élevé, ceci quelle que soit la cadence de fonctionnement du laser. Dans le cas particulier de l'amplificateur régénératif de la chaîne kHz de la salle rouge, une étude de contraste a montré une valeur de quelques  $10^7$  vis à vis de l'ASE en sortie de chaîne.

En revanche, cette même étude a montré qu'il existe deux types de pics parasites, qui nuisent à la qualité du contraste, pouvant être induits par l'amplificateur régénératif : des impulsions distantes de 10 nanosecondes de l'impulsion principale et des impulsions situées à quelques picosecondes. Pour des raisons évidentes, les deuxièmes sont plus difficiles à détecter et à éliminer.

Les impulsions à 10 nanosecondes correspondent à une fraction de l'impulsion en voie d'amplification par la cavité qui est partiellement réfléchié par le polariseur, celui-ci n'étant pas une optique parfaite (10 ns correspondent au temps de parcours de l'impulsion dans la cavité, cette valeur sera bien sûr différente si on change la longueur de la cavité). On pallie ce problème par l'adjonction d'un filtrage temporel supplémentaire à l'échelle nanoseconde placé à la sortie de la cavité du régénératif, constitué d'une autre cellule de Pockels suivie d'un polariseur.

Un appareil plus sophistiqué permet de détecter par une corrélation du faisceau à  $3\omega$ , les impulsions séparées de quelques picosecondes de l'impulsion principale, indécélables sur un oscilloscope ou même une auto corrélation à  $2\omega$ . Ces dernières peuvent être dûes à des réflexions multiples sur les faces de la cellule de Pockels (ou sur toute autre optique du régénératif) ou à une coïncidence malencontreuse entre une impulsion de l'oscillateur et l'impulsion contenue dans la cavité du régénératif au moment où elle est injectée/réjectée. Ces effets ne peuvent se voir que sur une corrélation à trois oméga du signal en sortie de la chaîne laser, comme le montre la figure (2.5). Enfin, si l'axe du cristal n'est pas parfaitement aligné sur celui de la cellule de Pockels, des effets de biréfringence peuvent induire la formation d'un spectre cannelé dont la transposition dans le domaine temporel donne lieu à de nombreuses pré et post-impulsions. Une mesure de ce spectre permet alors de corriger l'alignement du cristal. Après optimisation du contraste par le contrôle de tous les paramètres cités ci-dessus, on aboutit à un contraste de quelques  $10^5$  pour les impulsions à 10 ns et de quelques  $10^4$  pour celles qui sont à quelques picosecondes.

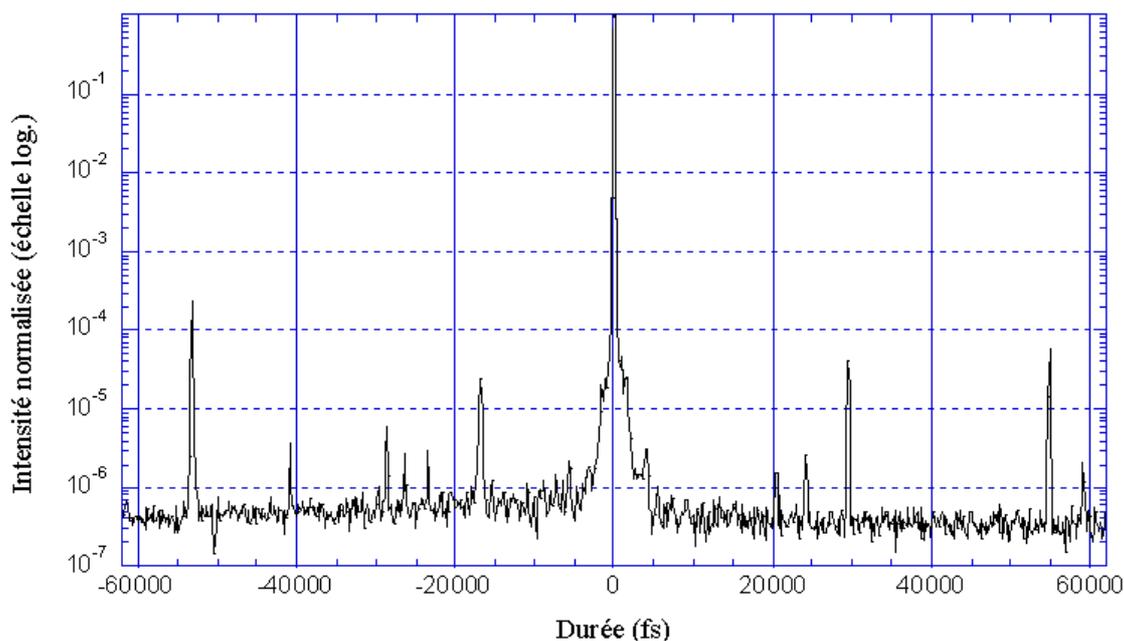


Figure 2.5 : Variation temporelle de l'intensité du laser de la salle rouge mesurée par un corrélateur à  $3\omega$  permettant de mettre en évidence un contraste temporel de  $10^4$  pour le laser de la salle rouge

## 2.2. Moyens de contrôle et de mesure des paramètres importants pour la génération d'harmoniques

### 2.2.1. Mesure de la durée d'impulsion et de la phase spectrale par SPIDER

La méthode SPIDER (pour «Spectral Phase Interferometer for Direct Electric Field Reconstruction») est une transposition dans le domaine temporel des méthodes d'interférométrie à décalage utilisées dans le domaine spatial, par exemple en astronomie [4]. Elle consiste à mesurer le spectre de l'impulsion étudiée et à reconstruire sa phase spectrale (exemple figure (2.6)) à partir de la mesure du battement entre deux répliques de l'impulsion de fréquences proches de cette impulsion. La connaissance de cette phase spectrale permet alors la reconstruction du profil temporel de l'impulsion de départ (exemple figure (2.7)).

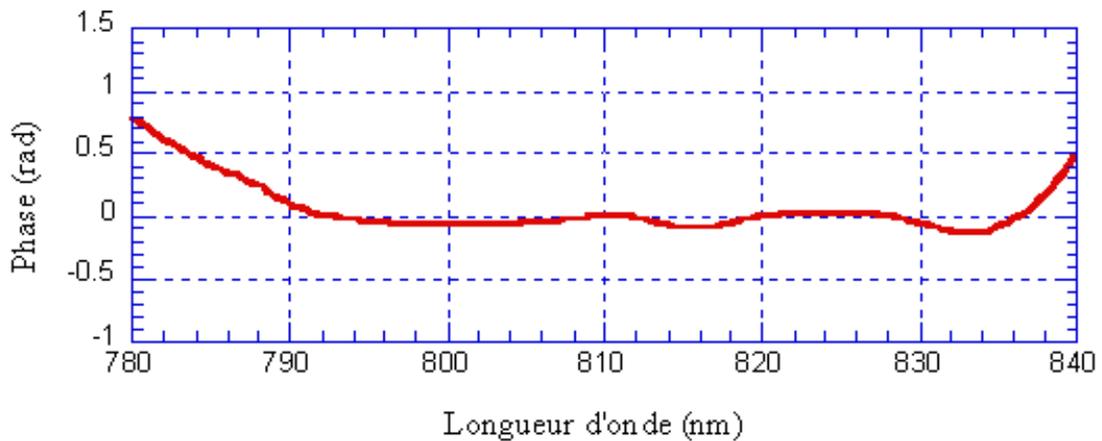


Figure 2.6 : Mesure SPIDER de la phase spectrale du laser : on observe une différence de phase inférieure à un radian.

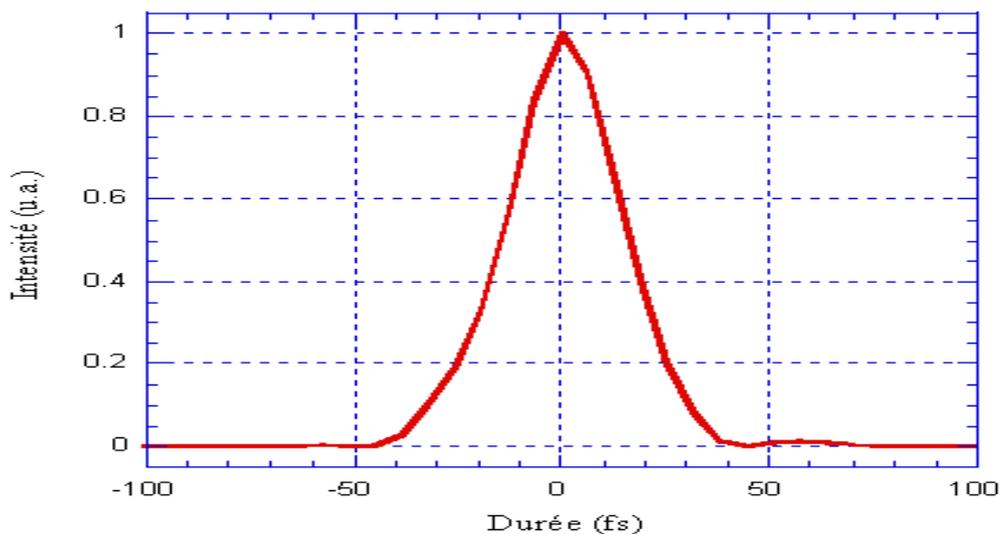


Figure 2.7 : Reconstruction de l'allure temporelle de l'impulsion du laser de la salle rouge : on observe une durée de 30 fs à mi-hauteur.

### 2.2.2. Contrôle de l'énergie laser par lame demi-onde suivie d'un polariseur

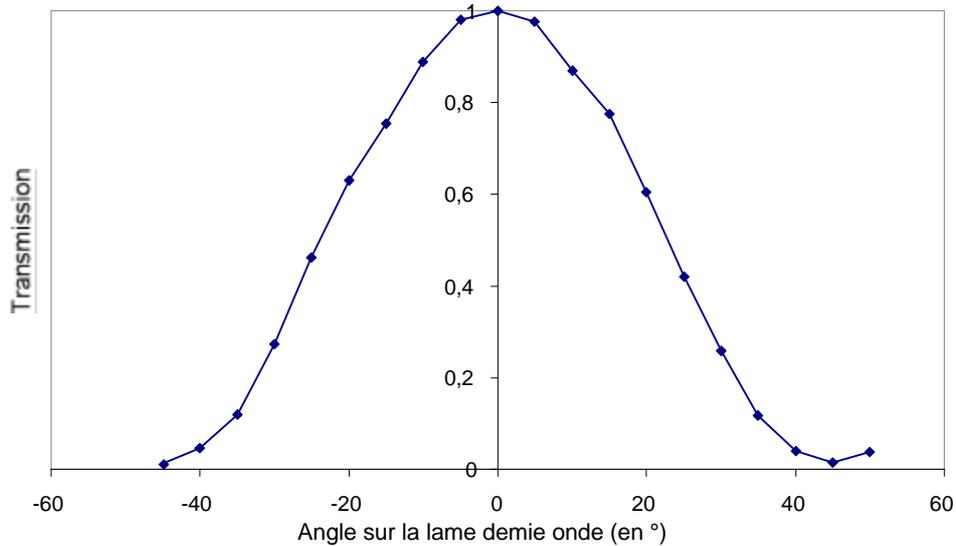


Figure 2.8 : Energie en transmission du laser en fonction de l'angle sur la lame demi-onde (mesure expérimentale)

Pour amener l'énergie du laser à une valeur souhaitée, on dispose une lame demi-onde placée avant les réseaux du compresseur. En régime de fonctionnement normal, la polarisation du laser est rectiligne horizontale et les réseaux du compresseur ont une efficacité de diffraction optimale pour cette polarisation. Le rôle de la lame demi-onde est de tourner la polarisation, c'est-à-dire d'introduire une composante verticale. Seule la composante horizontale du laser sera diffractée de façon appréciable par les réseaux et contribuera à l'énergie du laser mesurée en sortie. La composante verticale contribuera quant à elle à l'échauffement des réseaux par absorption. Nous avons pu constater les effets néfastes de l'échauffement sur la qualité spatiale du faisceau en faisant l'imagerie en temps réel de ce dernier au foyer d'une lentille. Sans lame demi-onde, l'image du faisceau présente une allure circulaire normale ; mais la présence de la lame demi-onde fortement tournée induit un étalement de la tâche et une forme très irrégulière du foyer. Les densités d'énergie atteintes au foyer sont considérablement diminuées par rapport à un faisceau limité par diffraction. On empêche l'échauffement des réseaux en éliminant, grâce à un polariseur de Glan, la composante verticale de la polarisation induite par la lame demi-onde avant l'arrivée de l'impulsion sur le compresseur. Cette technique s'est révélée très efficace et nous avons pu valider cette amélioration par imagerie du foyer dans les deux conditions. Certains effets thermiques modifient la propagation du faisceau, notamment lors de son passage dans les cristaux des étages de puissance pompés à haute cadence. Pour quantifier cette influence, on peut mesurer la phase et l'amplitude spatiales du faisceau laser avec un détecteur de front d'onde de Shack-Hartmann [5] et les comparer à celles d'un faisceau gaussien de référence.

### 2.2.3. Mesure du rapport de Strehl et la phase spatiale par Shack-Hartmann

La mesure de la phase spatiale d'un faisceau en champ lointain permet d'en déduire, par un calcul de diffraction, la taille du foyer ainsi que la répartition d'énergie laser en son voisinage. Si la phase est plate, c'est le cas d'un faisceau gaussien idéal, l'intensité obtenue sera maximale à l'énergie donnée. Dans le cas contraire, l'énergie ne sera pas parfaitement concentrée au foyer et il y

aura une forte diminution de l'intensité obtenue. Le rapport de Strehl est défini comme le rapport des intensités crête focalisées sur l'axe entre un faisceau réel et un faisceau gaussien :

$$r_{Strehl} = \frac{I_{\max}(réel)}{I_{\max}(gaussien)} \quad (2.1)$$

La phase et l'amplitude spatiales du faisceau de la salle rouge ont été mesurées par un capteur de front d'onde Shack-Hartmann et la figure (2.9) montre la variation de la phase sur une section transverse du faisceau, la répartition d'intensité est quant à elle proche de celle d'un faisceau gaussien.

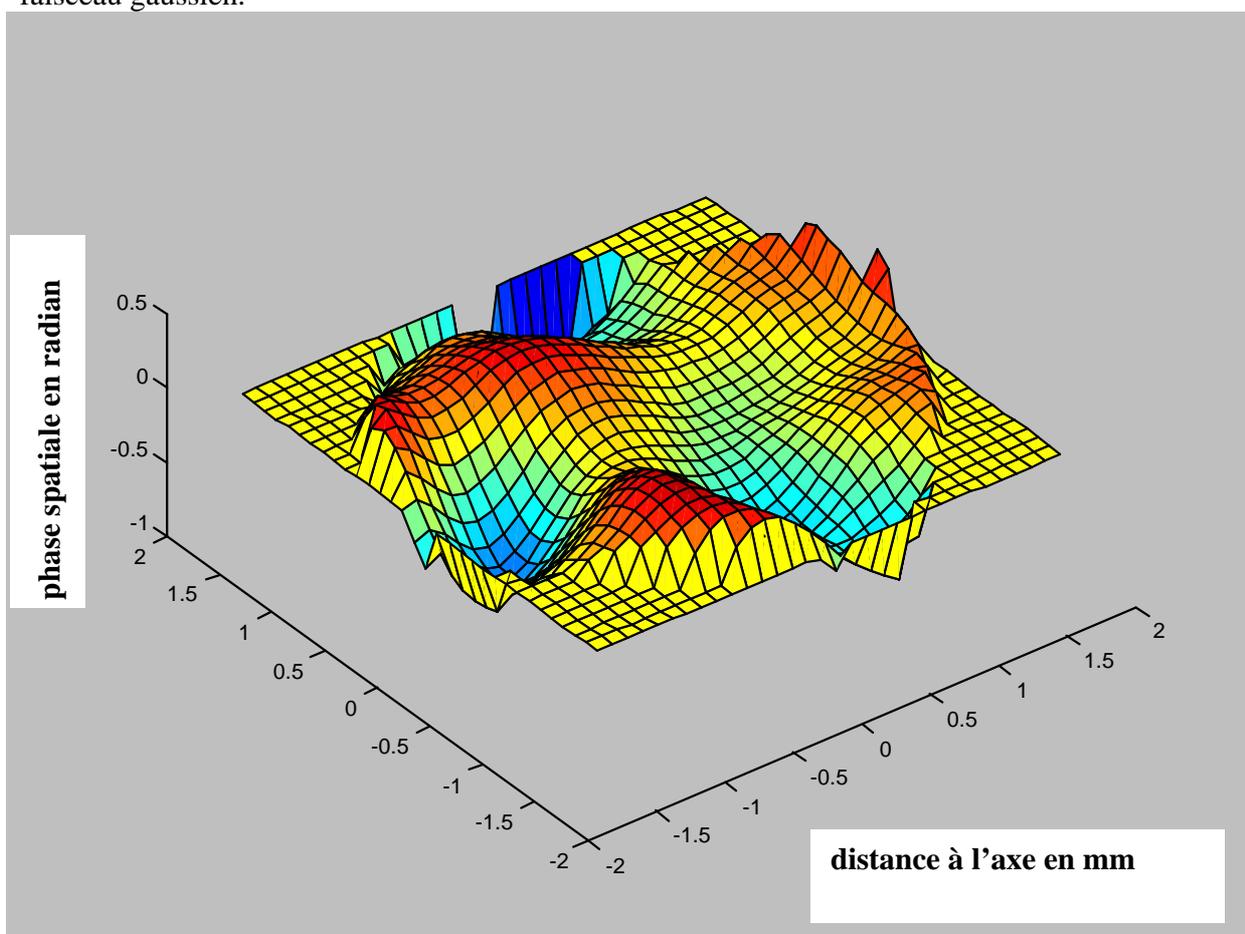
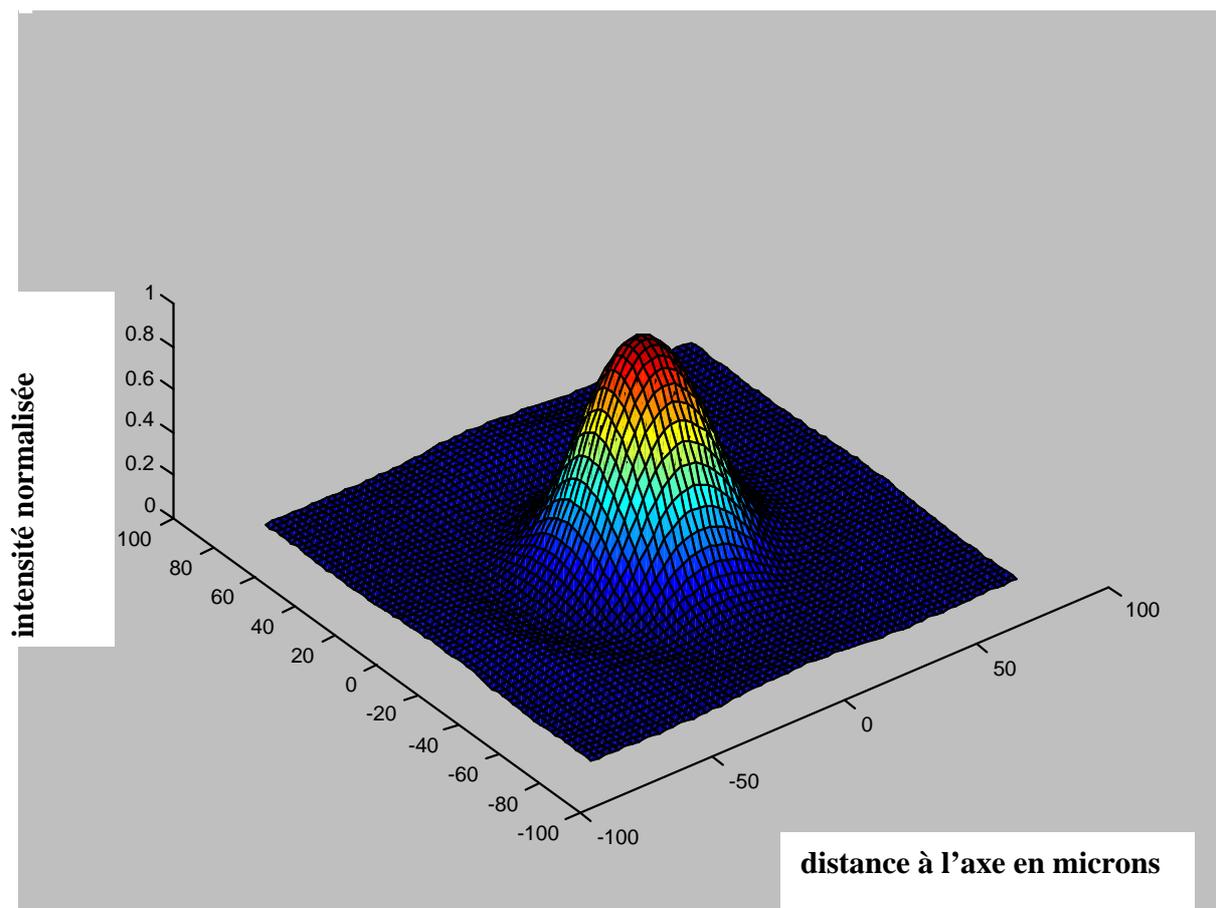


Figure 2.9 : Variation de la phase spatiale sur une section transverse du faisceau de taille caractéristique 3,8 mm. L'écart de phase maximal à la référence n'excède pas un radian.

Le logiciel HASO lié à l'appareil [6] permet, à partir de la mesure précédente, de reconstruire directement la zone focale visible sur la figure suivante et d'en déduire le rapport de Strehl.



*Figure 2.10 : Variation de l'intensité laser autour du foyer à une lentille de focale 1 mètre reconstruite par un calcul de diffraction à partir des fichiers de phase et d'amplitude spatiales mesurées avec un Shack Hartmann.*

Les deux figures précédentes permettent de mettre en évidence de faibles écarts de phase spatiale qui induisent une répartition très régulière de l'énergie au foyer et donc un rapport de Strehl très élevé. Dans les conditions correspondant au laser de la salle rouge en octobre 2002, ce rapport atteint 90 % environ. Il convient de noter que cette valeur est réellement très bonne et n'est pas toujours atteinte. En effet, suivant les conditions laser, les rapports de Strehl peuvent ne pas dépasser 60 %, comme nous l'avons par exemple observé un an plus tôt par le même type de mesure (cf. figure (5.14)).

Ce rapport de Strehl a une grande importance dans la détermination réelle de l'intensité atteinte au foyer et peut expliquer souvent des divergences entre les données expérimentales et les valeurs issues de codes de calcul théoriques reposant sur la valeur numérique de l'intensité au foyer d'un faisceau gaussien parfait. Ce paramètre joue en effet un rôle extrêmement important dans le processus non-linéaire de la génération d'harmoniques.

### 2.3. Le dispositif de génération d'harmoniques

Les différentes installations harmoniques sont de types très variés et répondent à des exigences précises. Indépendamment du choix de la méthode de génération (capillaire, cellule, jet), la simple détection ou l'utilisation des harmoniques implique des choix technologiques spécifiques.

Le premier problème est celui de l'élimination du rayonnement infrarouge sur l'axe de propagation des harmoniques. Parmi les différentes techniques possibles, nous avons utilisé des filtres. Une alternative est également d'utiliser un détecteur insensible au rayonnement laser tout en restant sensible aux longueurs d'onde harmoniques, par exemple des galettes de micro-canaux (MCP en anglais pour *Micro-Channel-Plates*).

Enfin, suivant que l'on désire étudier les harmoniques dans leur ensemble (réseau de diffraction), ou sélectionner une seule harmonique (miroirs multicouches ou monochromateurs), ou maximiser le flux total harmonique, les instrumentations à choisir sont différentes.

Nous avons utilisé une cellule comme cible gazeuse et différents types de spectrographes que nous décrirons par la suite. Le type de détecteur est alors choisi en fonction de la longueur d'onde étudiée et dépend de l'utilisation de filtres.

#### 2.3.1. Schéma de principe

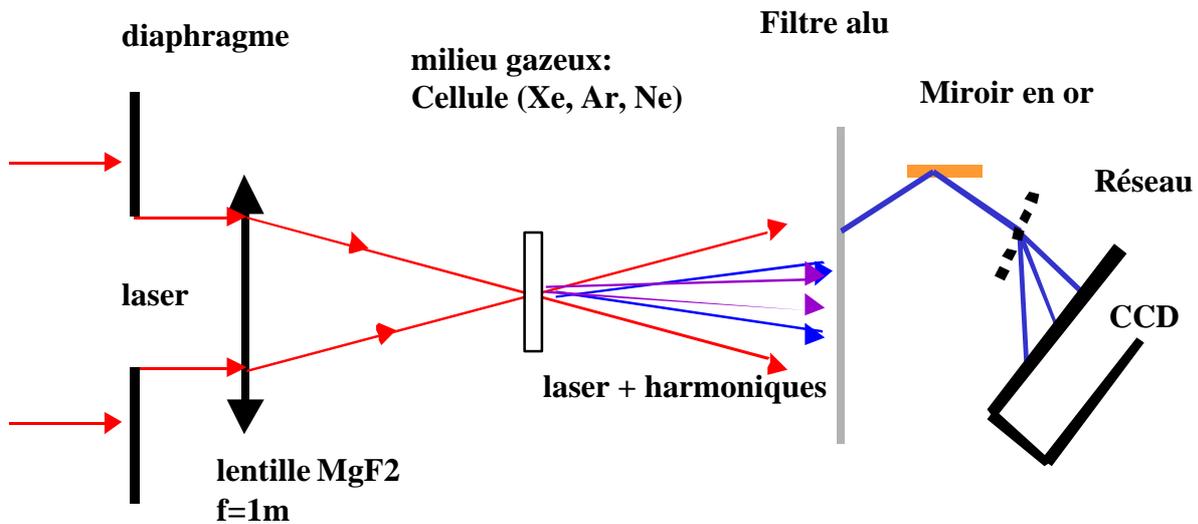


Figure 2.11 : Schéma de principe de l'installation harmoniques de la salle rouge

Le schéma de l'expérience de génération d'harmoniques est présenté sur la figure (2.11) et permet de constater que faisceau laser de la salle rouge est tout d'abord diaphragmé pour ajuster l'énergie ou la géométrie du foyer puis est focalisé par une lentille de focale 1 mètre en MgF<sub>2</sub>, matériau qui permet d'éviter d'éventuels effets non linéaires de type effet Kerr. Le foyer du laser se trouve à proximité d'une cellule de gaz qui est placée sous vide. Les harmoniques émises colinéairement au faisceau infrarouge se propagent sous vide sur une distance d'1 mètre environ avant de traverser les filtres en aluminium. Ils sont disposés le plus loin possible du foyer du laser pour éviter une détérioration due à l'intensité laser. On place ensuite soit un dispositif d'analyse

(spectrographe), soit une expérience utilisant les harmoniques comme source XUV. Le premier spectromètre utilisé est constitué d'un miroir sphérique en or utilisé en incidence rasante et d'un réseau à transmission qui permet de séparer les différents ordres harmoniques. Le détecteur peut tout aussi bien être une caméra CCD XUV, ou des galettes de micro-canaux ou bien encore un multiplicateur d'électrons secondaires.

### 2.3.2. L'utilisation d'une cellule comme cible gazeuse

La cellule de gaz est une cible parfaitement bien adaptée au type de laser infrarouge que nous utilisons pour générer des harmoniques. En effet, indépendamment des critères d'accord de phase dont nous discuterons dans les chapitres suivants, elle convient bien à une cadence kHz. Les jets utilisés jusqu'alors ont des cadences d'ouverture plus basses et l'utilisation d'un jet continu impliquerait de nombreuses pertes de gaz. Les capillaires nécessitent quant à eux un très bon alignement du faisceau laser et une grande stabilité de pointé. De plus, le type d'accord de phase qu'ils permettent d'obtenir correspond mieux à des énergies plus faibles (de l'ordre de  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>).

Les cellules de gaz présentent aussi l'avantage de permettre le contrôle simple de la longueur du milieu sous vide et de garantir une pression homogène contrairement aux jets. Enfin, l'alignement en est beaucoup moins critique que pour les capillaires car c'est le faisceau laser lui-même qui perce l'entrée et la fin de la cellule fermée par des clinquants en fer.

La cellule que nous avons utilisée est représentée par son schéma mécanique figure (2.12), elle est constituée d'un tube rempli de gaz dont l'extrémité aval est motorisée sous vide pour en faire varier la longueur. La position de la lentille de focalisation est elle même modifiable pour amener le foyer du laser à la position désirée par rapport à l'entrée de la cellule.

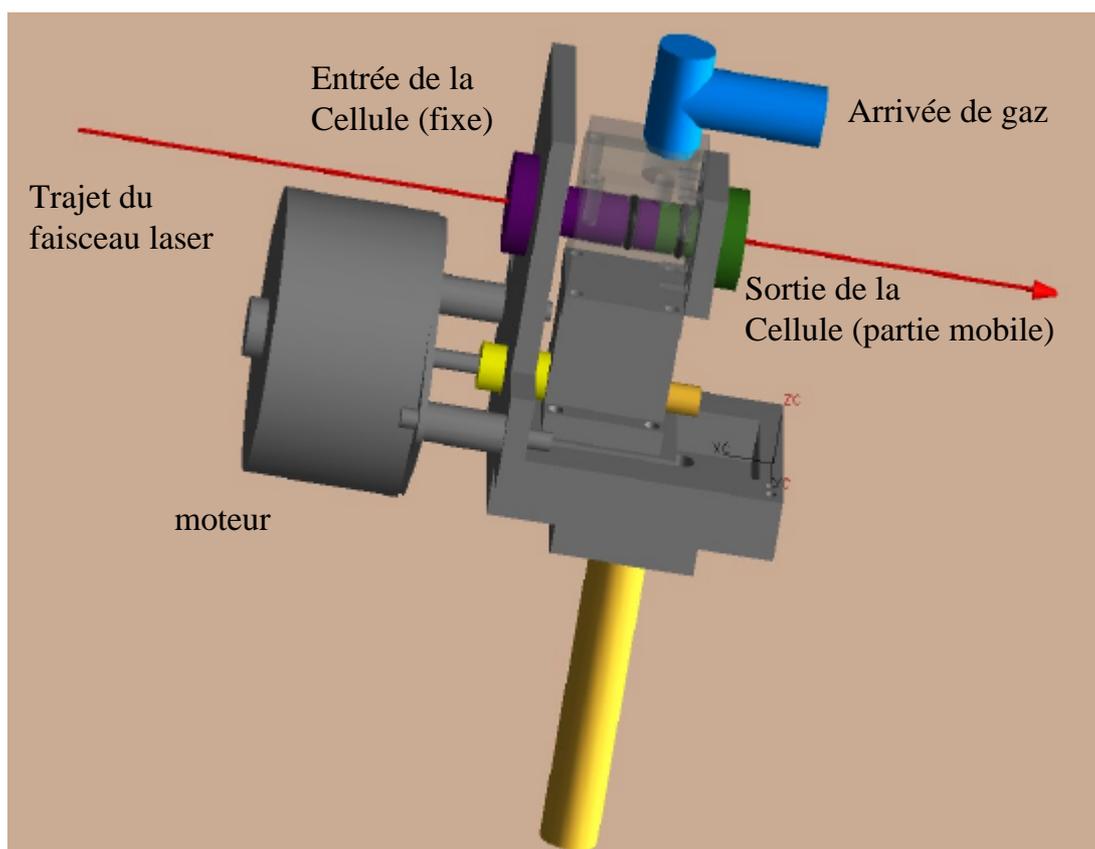


Figure 2.12 : Schéma de construction mécanique de la cellule de gaz. La cellule est ici représentée avec une longueur nulle, dans le cas réel, le gaz se trouve entre les embouts amont (en violet) et aval (en vert), les clinquants sont collés à cet endroit avant d'être percés par le laser (dessin D. Douillet).

### 2.3.3. L'utilisation de filtres métalliques

L'élimination du rayonnement infrarouge avant détection des harmoniques est un problème récurrent. En effet, l'énergie contenue dans le faisceau infrarouge est considérablement plus importante que celle convertie en rayonnement harmonique. Si les détecteurs ne sont pas tout simplement endommagés par les éclaircements infrarouges atteints, ils peuvent être saturés au point de ne plus pouvoir distinguer le rayonnement XUV. La solution technique que nous avons utilisée est celle des filtres en aluminium, qui est aussi employée par d'autres équipes travaillant sur les harmoniques. L'aluminium présente l'avantage de transmettre les longueurs d'onde qui nous intéressent (entre 17,5 et 80 nm) et de couper totalement le rayonnement infrarouge. Chaque filtre est composé de deux films d'aluminium accolés de 125 nm, plutôt qu'un seul d'épaisseur double. Si la transmission théorique est la même, l'intérêt d'utiliser deux films au lieu d'un est que cela permet de limiter au maximum les fuites dues à des micro-trous, inévitables pour des films aussi minces. Le site Internet du CXRO associé au « Center for X-Ray Optics of the Lawrence Berkeley National Laboratory » [7] permet de connaître les transmissions théoriques des filtres d'aluminium comme le montre la figure (2.13) :

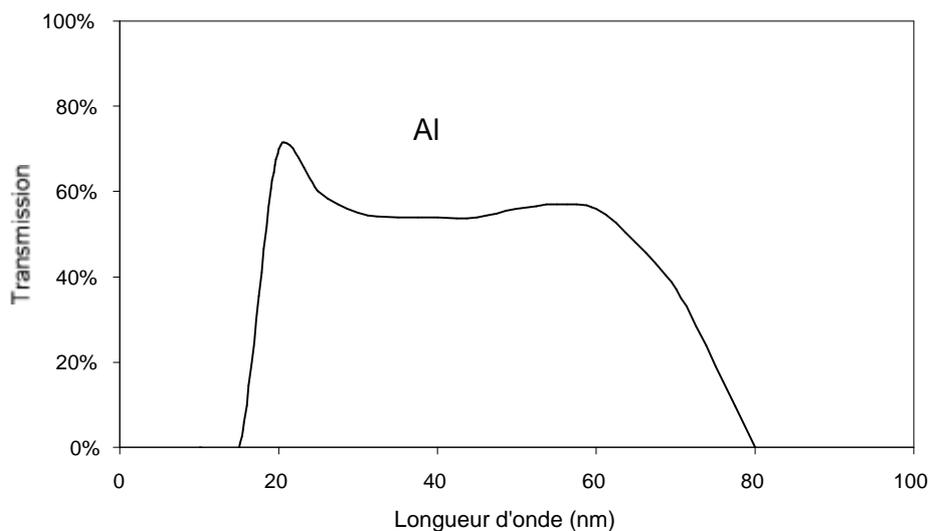


Figure 2.13 : Transmission théorique de 250 nm d'aluminium pur en fonction de la longueur d'onde (en nm)

Ces valeurs théoriques ne correspondent pas exactement à celles que nous avons pu mesurer expérimentalement sur les filtres d'aluminium de  $2 \times 125$  nm avec lesquels nous travaillons. Cette mesure a été possible grâce au fait que chacun des filtres est amovible sous vide : la transmission d'un filtre étant le rapport entre le flux harmonique transmis par deux filtres et le flux harmonique transmis par un seul d'entre eux.

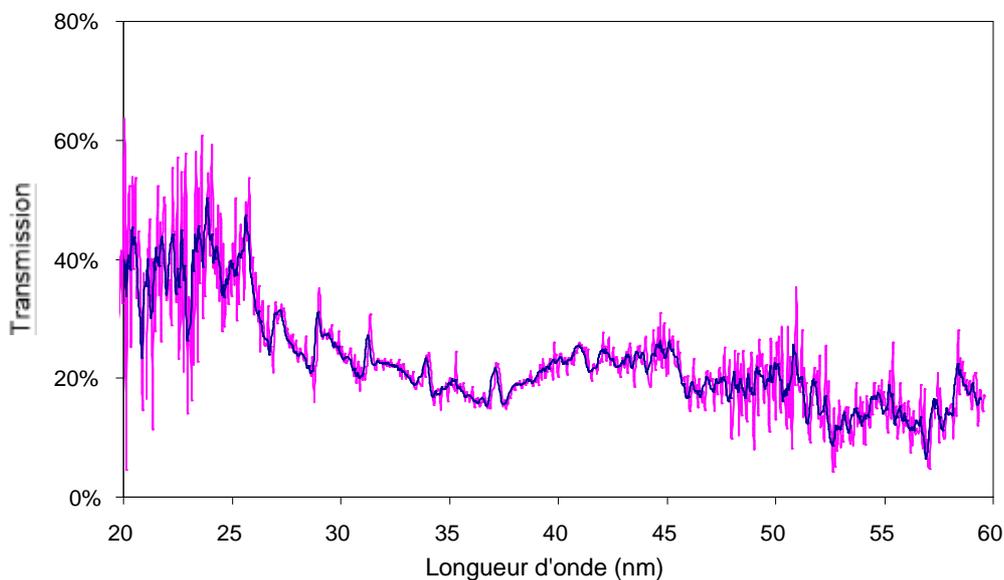


Figure 2.14 : Transmission mesurée expérimentalement d'un filtre composé de 2 pellicules de 125 nm d'aluminium chacun.

La courbe présentée figure (2.14) présente le résultat de la mesure de la transmission d'un filtre aluminium. On constate que la transmission est double (40 %) pour les longueurs d'onde situées vers 20 nm par rapport au voisinage de 40 nm (plutôt 20 %). Les données sont très bruitées à cause du caractère instable du flux tir à tir des harmoniques dû aux multiples sources de fluctuations du laser, mais une tendance claire se dégage. La valeur moyenne de la transmission

est moins bonne que celle prédite par les données théoriques et l'on observe un creusement de la transmission vers 40 nm plus important que ne le prédit la figure (2.15). Tout cela est compatible avec l'hypothèse qu'une fine couche d'oxyde d'aluminium ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) se forme à la surface des filtres, malgré leur stockage sous vide. Par comparaison entre la transmission mesurée et la transmission théorique de l'oxyde d'aluminium, on déduit que l'épaisseur d'oxyde compatible avec l'expérience est d'environ 15 nm.

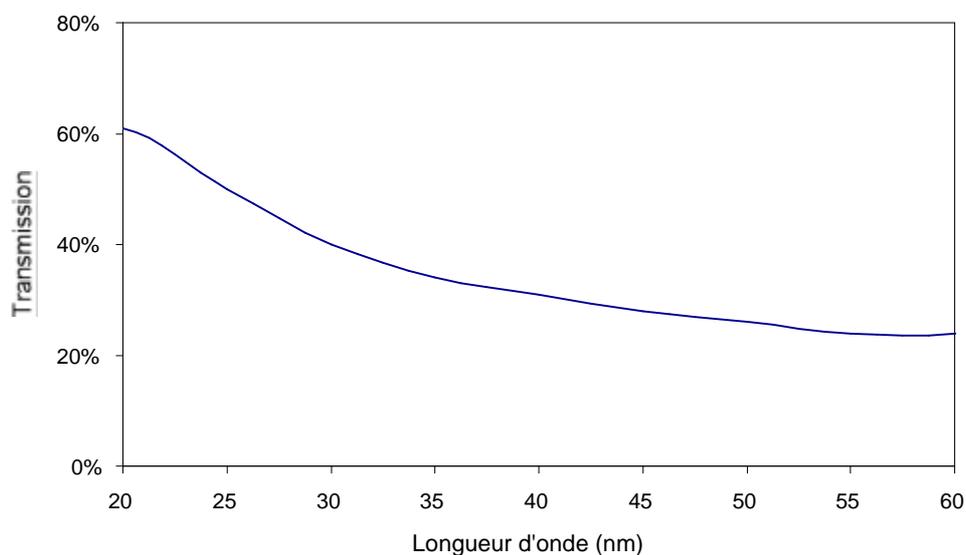


Figure 2.15 : Transmission théorique d'une couche d'oxyde d'aluminium de 15 nanomètres en fonction de la longueur d'onde en nm

L'étude de longueurs d'onde plus courtes pourrait se faire en utilisant des filtres ayant une transmission spectrale différente : les deux principaux candidats sont le zirconium et le titane, comme le montre la double courbe de transmission spectrale ci-dessous.

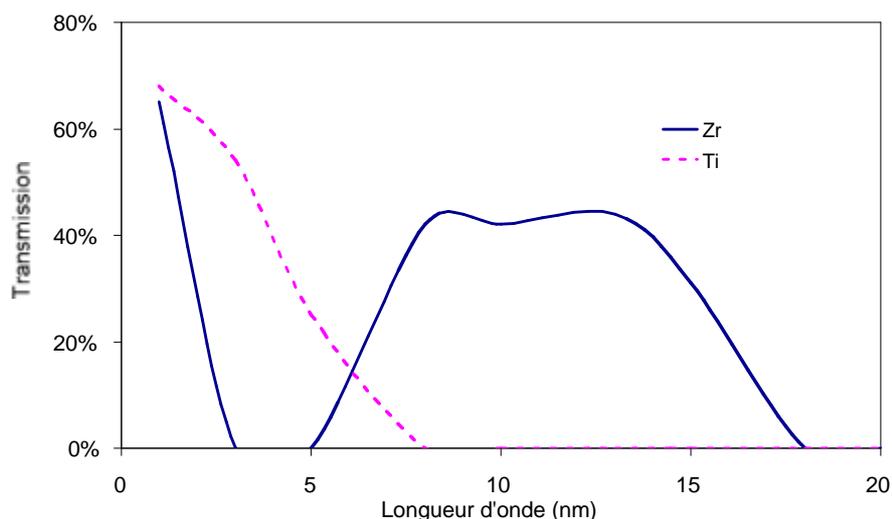


Figure 2.16 : Transmission théorique de 250 nm de zirconium (trait plein) et de titane (trait pointillé) en fonction de la longueur d'onde.

On remarque ainsi que les fenêtres de transmissions des filtres sont très complémentaires. L'utilisation de filtres en zirconium semble adaptée à la gamme de longueur d'onde de 13 nm, zone d'intérêt majeur pour les projets de lithographie X, tandis que le titane présente une transmission très importante vers la fenêtre de l'eau (vers 4 nm). Cette gamme de longueurs d'onde est très prometteuse pour la microscopie d'échantillons biologiques car l'absorption par les molécules d'eau est relativement importante par rapport à celle des molécules carbonées. Un très bon contraste est alors attendu pour ce genre de microscopie.

Les essais que nous avons réalisés ont montré que le zirconium et le titane ne résistent pas à un flux laser trop important. En fait le laser 5mJ, 30 fs, 1kHz est capable de les vaporiser en quelques secondes même en propagation de faisceau parallèle. À l'inverse, les filtres ont résisté aux tests réalisés sur la chaîne multiterawatt du LOA (1 J, 30 fs, 10 Hz), ce qui met en évidence l'influence du taux de répétition sur le chauffage des filtres. Le processus d'endommagement des filtres semble donc être une simple fusion, liée à l'élévation de température du métal par absorption d'énergie laser. Sous vide, le filtre ne peut se refroidir que par conduction ; le coefficient critique permettant d'évaluer la résistance d'un filtre est donc sa conductivité thermique. L'aluminium présente logiquement la plus forte conductivité thermique : 2,37 W/cm/K; alors que celles du titane et du zirconium sont respectivement 0,2 W/cm/K et 0,3 W/cm/K. Les filtres aluminium, quoique plus résistants ne doivent pas être exposés plus de quelques secondes de suite sous peine d'observer une zone surfondue en leur centre. L'évacuation de la chaleur induite par l'énergie laser devra être étudiée si l'on veut maintenir la technologie « filtres » dans les expériences d'harmoniques hautes énergie/haute.

## **2.4. Les spectrographes d'analyse**

Nous avons travaillé avec deux géométries différentes de spectrographes : l'un utilisant un réseau de diffraction en transmission qui présente l'avantage d'avoir une réponse spectrale plate, et l'autre en réflexion conçu pour étudier plus précisément les longueurs d'onde très courtes (entre 4 et 8 nm).

### **2.4.1. Le spectrographe en transmission**

Ce spectrographe est constitué d'un miroir sphérique recouvert d'or utilisé en incidence quasi rasante, suivi d'un réseau à transmission, l'image de la source X se trouvant sur notre détecteur. Le réseau de 2000 traits par mm est utilisé à l'ordre un, sa transmission de 3 %, elle est issue d'une caractérisation sur synchrotron. Le miroir image la zone émissive des harmoniques, mais focalise le rayonnement dans une seule direction, ce qui permet de mesurer la distribution angulaire et donc la divergence du faisceau harmonique. La calibration en longueur d'onde est permise par la diffraction d'un laser Hélium Néon d'alignement sur la grille du réseau support (58,8 traits par mm). On a ainsi accès au nombre de pixels sur la caméra qui séparent deux ordres consécutifs du réseau ce qui permet ensuite de déduire la loi de longueur d'onde en fonction du numéro de pixel, de la loi des réseaux. La présence de ce réseau support peut devenir un inconvénient quand on observe des harmoniques assez élevées (présence d'ordres diffractés par le support).

### **2.4.2. Le spectrographe à réflexion**

Ce spectrographe représenté figure (2.17) est composé d'un miroir torique recouvert d'or utilisé en incidence rasante ( $i=81,31^\circ$ ), il est suivi d'un réseau plan en réflexion de 600 traits par mm. Le signal de l'ordre 1 est recueilli sur une caméra CCD mobile sur un axe distant de 767,1 mm du centre du réseau.

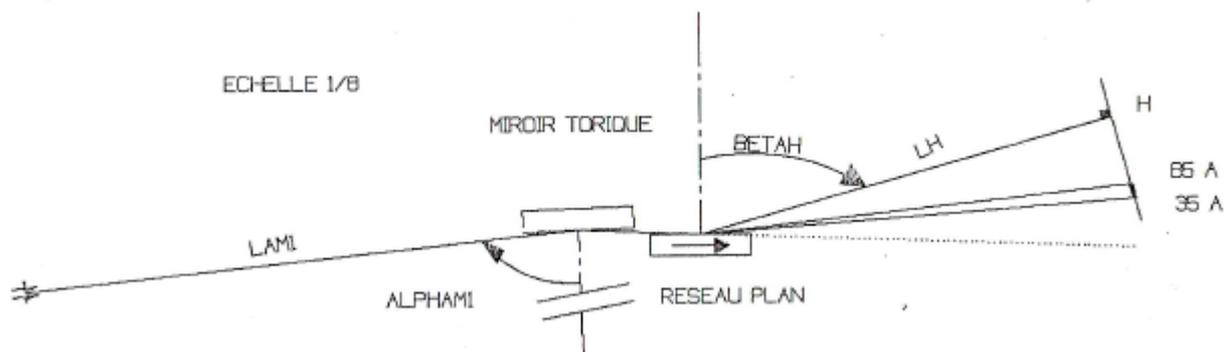


Figure 2.17 : Schéma de principe optique du spectrographe à réflexion.

Le spectrographe à réflexion est adapté à l'étude de longueurs d'onde très courtes (4 nm à 8 nm) correspondant aux ordres harmoniques supérieurs à 100. En effet, la réflectivité du réseau à l'ordre 1, de même que la géométrie angulaire au niveau du détecteur, sont optimisées pour cette gamme spectrale.

#### 2.4.3. Le dispositif de détection du rayonnement XUV

Plusieurs types de détecteurs sont sensibles aux longueurs d'onde harmoniques et chacun est adapté à un type d'étude particulière. On peut distinguer ceux qui sont calibrés en absolu comme les caméras CCD XUV ou les photodiodes calibrées. Ils présentent l'avantage de donner directement les nombres de photons harmoniques par tir. La photodiode placée sur le faisceau avant le spectromètre intègrera le signal présent sur tout le spectre alors que la caméra XUV placée après un réseau de diffraction permettra de distinguer la contribution de chaque harmonique au flux total. L'inconvénient de ces deux détecteurs étant qu'ils sont sensibles au rayonnement infrarouge et qu'ils nécessitent donc une très bonne isolation photonique de l'expérience (emploi de filtres par exemple).

Les galettes de micro-canaux (MCP) sont elles très peu sensibles au rayonnement infrarouge et peuvent être utilisées sans filtres, ce qui permet d'augmenter considérablement la quantité de photons harmoniques qui arrivent sur le détecteur et d'observer des gammes spectrales interdites par les filtres (en dessous de 17,5 nm pour les filtres aluminium). Elles exigent un bon vide pour fonctionner correctement ( $10^{-6}$  torr).

Les flux de photons et les efficacités de conversion donnés ci-dessous ont été déterminés en utilisant une caméra CCD XUV calibrée : le nombre de coups enregistrés par pixel est proportionnel à l'énergie d'un photon incident moyennant une amplification électronique interne. Tous les autres éléments susceptibles d'atténuer le rayonnement infrarouge ont été rigoureusement étudiés afin de parvenir à des données les plus fiables possibles. Cela nous permet de comparer les efficacités de conversion publiées récemment par d'autres équipes à celles que nous avons obtenues.

## 2.5. La calibration des flux de photons et des efficacités de conversion

Le paragraphe ci-dessous décrit précisément comment nous avons obtenu les chiffres d'efficacité de conversion énoncés en conclusion de ce chapitre avant de citer les valeurs des équipes européennes, japonaises et américaines travaillant sur le sujet.

### 2.5.1. Les flux de photons

Une calibration de flux de photons se fait à partir d'une image de spectre harmonique enregistrée par la caméra CCD (cf figure (2.18)). Chaque pic correspond à un ordre impair, c'est-à-dire une longueur d'onde qui est un sous-multiple impair de la longueur d'onde du laser.

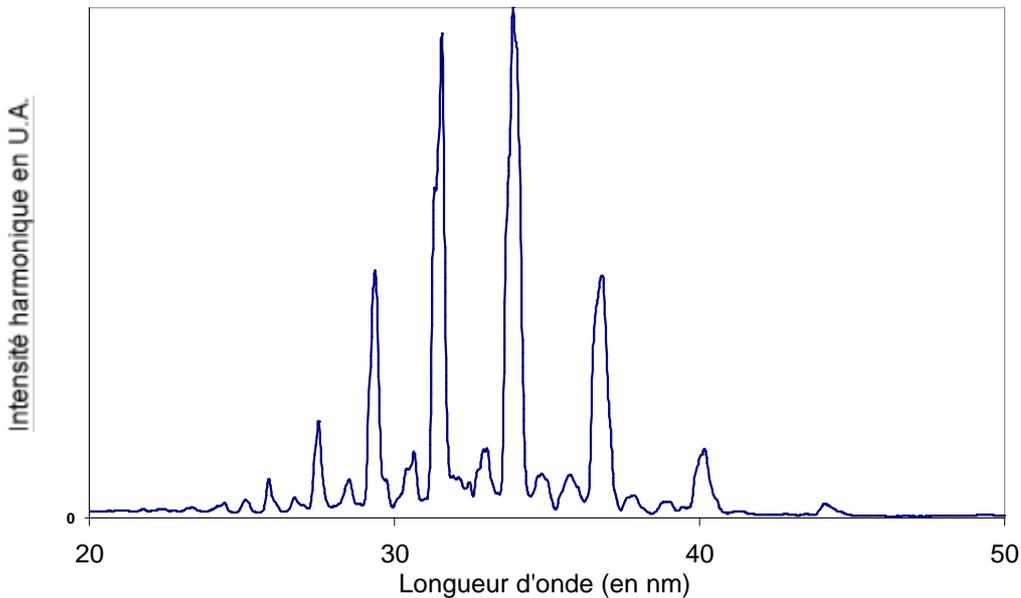


Figure 2.18 : Allure de spectre caractéristique de l'argon qui sert de point de départ à la calibration en absolu (échelle linéaire).

On intègre le nombre de coups correspondant à une harmonique donnée, pendant un temps donné. L'acquisition a été faite en général sur 0,1 seconde, ce qui correspond à 100 tirs (cadence kHz). Le nombre de coups par tir et par harmonique peut se ramener à un nombre de photons. D'après les données du fabricant, seuls 40 % des photons incidents sur la caméra seront absorbés par la surface sensible. Un photon absorbé créera une paire électron-trou avec un rendement quantique de 0,3 électrons par électron-volt de photon incident. Chaque photon de l'harmonique  $q$  transporte une énergie  $E_q = q \cdot 1,55$  eV. (1,55 eV est l'énergie transportée par un photon du laser infrarouge et correspond à une longueur d'onde de 800 nanomètres). Le résultat peut s'exprimer sous la forme suivante :

$$N_q = \frac{(\text{nombre de coups total})}{0,3 E_q R_{\text{miroir}} T_{\text{réseau}} T_{\text{filtres}} N_{\text{tirs}}}$$

R et T représentent respectivement les réflectivité et transmission du miroir en or, du réseau et des filtres.

$N_{\text{tirs}}$  est le nombre de tirs enregistrés lié au temps d'acquisition

Enfin  $N_q$  donne le nombre de photons par harmonique et par tir qui permet de calculer ensuite les efficacités de conversion.

### 2.5.2. Les efficacités de conversion

Par définition, c'est le rapport entre l'énergie contenue dans une harmonique et l'énergie laser qu'il a fallu dépenser pour la produire. Les lasers utilisés n'étant pas toujours parfaits tout comme les composants de l'expérience, on donne en général le rapport entre l'énergie harmonique produite et l'énergie laser arrivant sur cible et étant susceptible de réellement générer des harmoniques. Les différences entre ces deux efficacités de conversion peuvent être notables. La deuxième valeur permet de mieux comparer différentes équipes en se ramenant à l'optimisation de la génération proprement dite et non celle du laser de pompe. Les rendements sont plutôt faibles en raison de l'ordre très élevé de la génération d'harmoniques (autour de  $10^{-5}$  actuellement).

### 2.5.3. Résultats de l'optimisation

Nous avons travaillé avec les trois gaz rares suivants : néon, argon et xénon. Chaque gaz a donné lieu à une optimisation spécifique. Les conditions « idéales » pour les trois gaz correspondent en général à une cellule placée plusieurs millimètres voire centimètres après le foyer du laser. Le laser lui-même est diaphragmé le plus possible pour se placer en configuration longue focale. La longueur de cellule est de quelques millimètres et la pression est d'environ 15 à 40 torr. Les spectres correspondant aux meilleures efficacités de conversion mesurées sont ici présentés sur les figures (2.19), (2.20), (2.21).

#### 2.5.3.1. Xénon

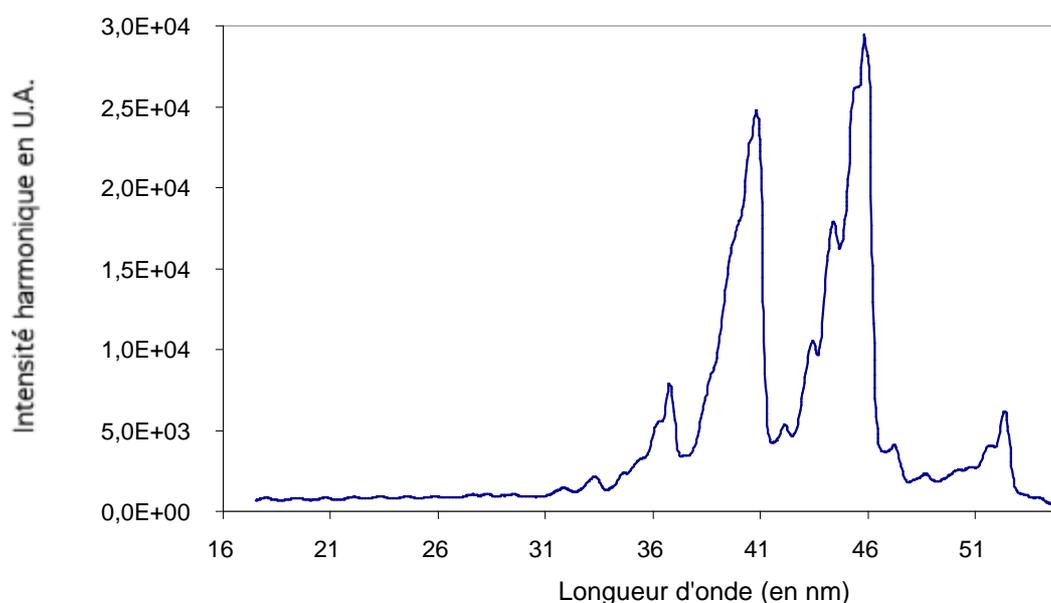


Figure 2.19 : Spectre harmonique obtenu dans le xénon pour 3 mm de cellule, une pression de 15 torr et un foyer placé 7 mm avant la cellule

Le nombre de photon maximal obtenu par tir et pour **l'harmonique 17** (46 nm) est de  $1.5 \cdot 10^{10}$  ce qui correspond à une efficacité de conversion mesurée de  $2 \cdot 10^{-5}$ . Il a été obtenu pour une cellule de 3 mm de long, placée 7 mm après le foyer du laser. La pression était de 15 torr.

### 2.5.3.2. Argon

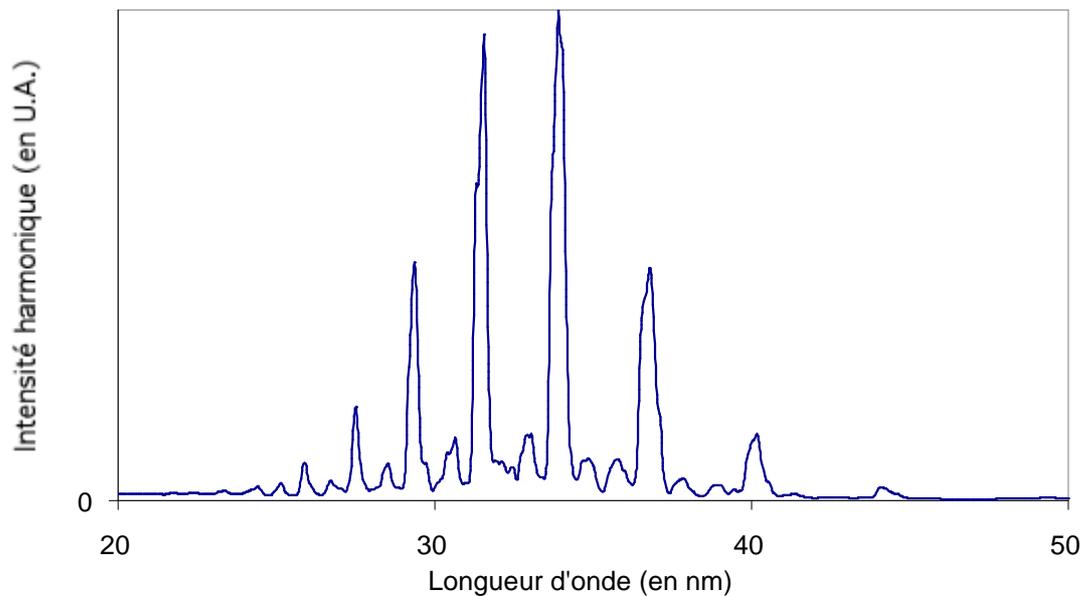


Figure 2.20 : Spectre harmonique obtenu dans l'argon pour 2mm de cellule, une pression de 30 torr et une cellule placée 5 mm après le foyer (échelle linéaire).

Le nombre de photon maximal obtenu par tir et pour **l'harmonique 23** (34 nm) est de  $10^{10}$  ce qui correspond à une efficacité de conversion de  $3 \cdot 10^{-5}$ . Il a été obtenu pour une cellule de 2 mm de long, placée 5 mm après le foyer du laser. La pression était de 30 torr.

On peut remarquer que l'efficacité de conversion dans l'argon est similaire à celle obtenue dans le xénon, cela est dû en partie au fait que les photons produits dans le xénon sont moins énergétiques, mais surtout l'énergie laser nécessaire pour optimiser les flux de photons dans le xénon est légèrement plus grande. Ce résultat, contraire à l'intuition sera expliqué dans le chapitre 5 au paragraphe 5.2.4.

### 2.5.3.3. Néon

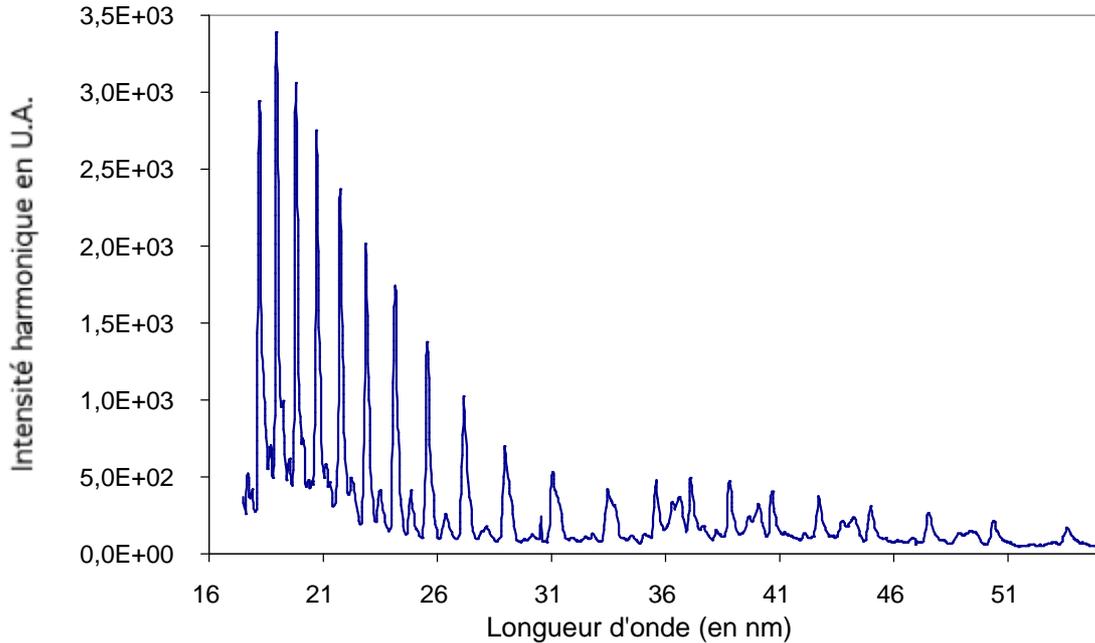


Figure 2.21 : Spectre harmonique obtenu dans le néon pour une cellule de 2 mm, une pression de 25 torr et un foyer placé 15 mm avant la cellule.

Le nombre de photon maximal obtenu par tir et pour **l'harmonique 43** (19 nm) est de  $1.10^7$  ce qui correspond à une efficacité de conversion de  $3,5.10^{-8}$ . Il a été obtenu pour une cellule de 2 mm de long, placée 15 mm après le foyer du laser. La pression était de 25 torr.

L'extension du spectre vers les courtes longueurs d'onde est uniquement limitée par la coupure induite par le filtre en aluminium à 17,5 nanomètres. C'est pourquoi l'étude des gammes spectrales correspondant à des énergies de photons plus élevées requiert un autre type de détection.

### 2.5.4. Le flux à 13 nm

Dans le cadre des nombreux travaux en vue de la lithographie à 13 nm, nous avons enregistré un spectre dans le néon à cette gamme de longueur d'onde. Les filtres aluminium ne pouvaient pas être utilisés à cause de leur coupure à 17,5 nm. Le spectre présenté a donc été enregistré à l'aide d'une galette micro-canaux (MCP) dont la réponse n'est pas calibrée, suivie d'une caméra CCD et sans utiliser de filtres en aluminium car les galettes sont aveugles au rayonnement infrarouge. Par contre, la chute brutale de la transmission du filtre à cette longueur d'onde (elle passe de  $10^{-4}$  à 17 nm à 46 % à 17,2 nm) nous a permis de déterminer avec certitude les ordres harmoniques correspondant au spectre suivant :

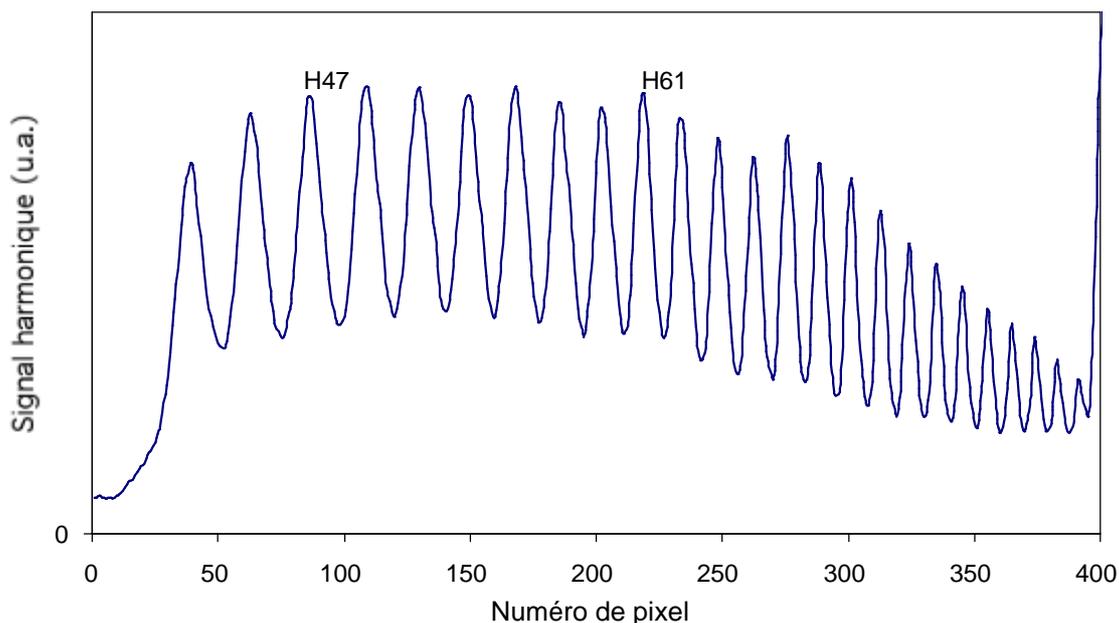


Figure 2.22 : Spectre harmonique obtenu dans le néon et observé sans filtre aluminium par des galettes de micro-canaux (MCP) - échelle linéaire. H47 est la troisième harmonique en partant des faibles numéro de pixel (échelle linéaire).

Le spectrographe d'étude dans ce cas est le spectrographe en réflexion, mieux adapté aux courtes longueurs d'onde. Cependant, par comparaison des spectres des figures (2.22) et (2.23), on constate que le nombre de photons à 13 nm (H61) est similaire à celui des harmoniques proches de la coupure de l'aluminium (H47), ce qui permet d'estimer le nombre de photons par tir à cette longueur d'onde à  $1.10^7$ , d'où un nombre de photons par seconde de  $1.10^{10}$ . On remarque aussi que les flux de photons à des ordres aussi élevés que 91 ne sont pas négligeables non plus, ceci dans des conditions quotidiennes de génération d'harmoniques.

Il est intéressant de constater que cette valeur est notablement supérieure à celle publiée par le groupe de l'université de Vienne [8] qui annonce un flux de photons moyen par seconde de  $10^{10}$  dans la bande de réflectivité maximale d'un miroir multicouche Mo:Si centrée à 13,4 nm et qui contient donc 3 harmoniques (H57, H59, H61).

## 2.6. Les efficacités de conversion dans les différentes équipes mondiales

La mise en évidence récente de l'importance de la réabsorption dans la génération d'harmoniques a conduit certains auteurs à insister sur l'existence d'une limite maximale à l'efficacité de conversion dite « en limite d'absorption » pour laquelle l'accord de phase a lieu sur une distance de milieu supérieure à plusieurs fois la longueur d'absorption (distance au cours de laquelle un rayonnement UV est atténué d'un facteur e). La discussion théorique de la pertinence de cette affirmation sera faite dans les chapitres suivants, mais une étude des efficacités de conversion publiées peut d'ores et déjà permettre de constater des divergences notables entre ces valeurs. L'année 1999 a vu la parution simultanée de nombreux articles [8], [9], [10] traitant de l'importance de la limite d'absorption qui proposaient des méthodes différentes pour l'atteindre, chacune exploitant au mieux les conditions laser et adaptant la configuration de génération

d'harmoniques pour optimiser les efficacités de conversion. On se propose de présenter brièvement chacune de ces méthodes en donnant les chiffres d'efficacités de conversion qui sont rarement donnés clairement, en raison de nombreuses difficultés techniques dues à la calibration des flux de photons dans la gamme spectrale XUV. Enfin, l'accroissement de l'énergie disponible par impulsion en sortie de chaînes laser a permis tout récemment d'améliorer les nombres de photons par harmonique par tir d'au moins un ordre de grandeur ; tout en maintenant, voire augmentant les efficacités de conversion [11], [12],[13].

#### 2.6.1. La configuration capillaires creux (équipe de H. Kapteyn et M. Murnane-USA)

Cette configuration est bien adaptée aux lasers de faible énergie qui peuvent avoir l'avantage d'une cadence plus élevée. Les chiffres publiés récemment dans la revue Science [14] correspondent à un laser de 0,8 mJ de durée 25 femtosecondes avec un taux de répétition de 5 kHz. L'utilisation d'un capillaire rempli de quelques dizaines de torrs au plus de gaz et pouvant aller jusqu'à 10 cm de long permet un bon accord de phase par un contrôle total de la propagation du faisceau. Leur dernière efficacité de conversion citée, correspondant à  $10^8$  photons par harmonique et par tir pour l'argon vers 30 nm, est égale à  $1,5 \cdot 10^{-6}$ .

#### 2.6.2. La configuration haute pression, haute intensité (Vienne)

Le milieu gazeux est composé d'un tube percé dans lequel est focalisé le laser de durée d'impulsion ultracourte (7 femtosecondes) contenant 0,8 mJ par impulsion [8]. La focalisation est telle ( $f=300\text{mm}$ ) que les intensités atteintes peuvent être assez élevées (quelques  $10^{15} \text{ W/cm}^2$ ). Les efficacités de conversion obtenues sont de  $3 \cdot 10^{-8}$  dans le néon vers 13 nm ( $2 \cdot 10^6$  photons par harmonique et par tir) ; et de  $3 \cdot 10^{-6}$  dans l'argon vers 30 nm ( $2 \cdot 10^8$  photons par harmonique et par tir). Cette technique semble être efficace pour les ordres élevés. L'accord de phase obtenu dans ces conditions est extrêmement transitoire à cause de la faible durée d'impulsion et des conditions d'ionisation très précises pour que la longueur de déphasage devienne infinie.

#### 2.6.3. La configuration focalisation douce de lasers de quelques mJ-20 à 30 fs (France : LOA-CELIA)

Le laser utilisé pour ces expériences de génération d'harmoniques contient assez d'énergie pour permettre une focalisation douce et obtenir une zone accrue de génération. Dans ces conditions la configuration en cellule de gaz se rapproche beaucoup de la configuration en capillaires, les ordres de grandeur des différentes longueurs impliquées sont semblables de même que les intensités atteintes et les taux d'ionisation correspondants. Dans le cas particulier de la propagation libre (en cellule ou en jet) la phase atomique peut jouer un rôle positif pour l'accord de phase si la cellule est placée après le foyer du laser. Les efficacités de conversion publiées dans l'article [9] sont de  $7,5 \cdot 10^{-6}$  dans l'argon vers 30 nm (soit  $10^9$  photons par harmonique et par tir), dans le xénon, elle vaut  $4 \cdot 10^{-5}$  (soit  $1,5 \cdot 10^{10}$  photons par harmonique et par tir). Les valeurs que nous avons nous-même obtenues et avons données dans le paragraphe précédent sont à inclure sous cette rubrique.

#### 2.6.4. L'utilisation de lasers très énergétiques (plusieurs dizaines de mJ) (CEA Saclay et équipe japonaise)

Deux articles récents publiés par deux équipes différentes montrent que l'efficacité de conversion peut être notablement augmentée par utilisation de lasers de pompe de plus en plus énergétiques focalisés par des lentilles de très longues focales (jusqu'à 5 mètres). La cible gazeuse est une cellule ou un jet de longueur quelques millimètres, voire centimètres pour les Japonais, la pression qui y règne est modérée (quelques dizaines de torrs). L'effet qui explique un bon accord de phase malgré les intensités relativement hautes est l'autoguidage du faisceau par ionisation. Dans ces conditions, les meilleures efficacités de conversion seront obtenues pour une cellule placée avant le foyer du laser. Pour la référence du CEA, elles valent  $10^{-6}$  pour l'argon vers 30 nm (soit  $10^9$  photons par harmonique et par tir),  $7 \cdot 10^{-8}$  pour le néon vers 13 nm (soit  $4 \cdot 10^7$  photons par harmonique et par tir), et enfin un record de  $7 \cdot 10^{-5}$  pour le xénon vers 55 nm (soit  $5 \cdot 10^{11}$  photons par harmonique et par tir). Pour la référence [15], l'efficacité de conversion est donnée pour l'argon vers 30 nm et vaut  $1,5 \cdot 10^{-5}$  (soit  $3,7 \cdot 10^{10}$  photons par harmonique et par tir). La même équipe a auparavant publié dans la référence [16]  $1 \cdot 10^8$  photons par harmonique et par tir dans le néon résultant en une efficacité de conversion de  $1 \cdot 10^{-6}$ .

### 2.6.5. Conclusion du chapitre : Schéma récapitulatif

Pour plus de clarté, nous allons résumer ces valeurs dans le graphique suivant. Il convient de préciser que les conditions de mesure des nombres de photons sont très soumises aux aléas de l'expérience (difficulté de mesure de la transmission des filtres) et aux instabilités de la source harmonique liées à celle du laser. C'est pourquoi une marge d'erreur relativement importante de 30 % est généralement admise par les auteurs. Cela explique aussi que certains auteurs hésitent à donner ces valeurs qui seules permettent de comparer les performances des différentes sources en présence. Nous montrons figure (2.23) le cas de l'argon vers 30 nm pour lequel nous avons pu recueillir le maximum de données chiffrées. Il se trouve également que ce gaz nous a permis de démontrer les meilleures efficacités de conversion.

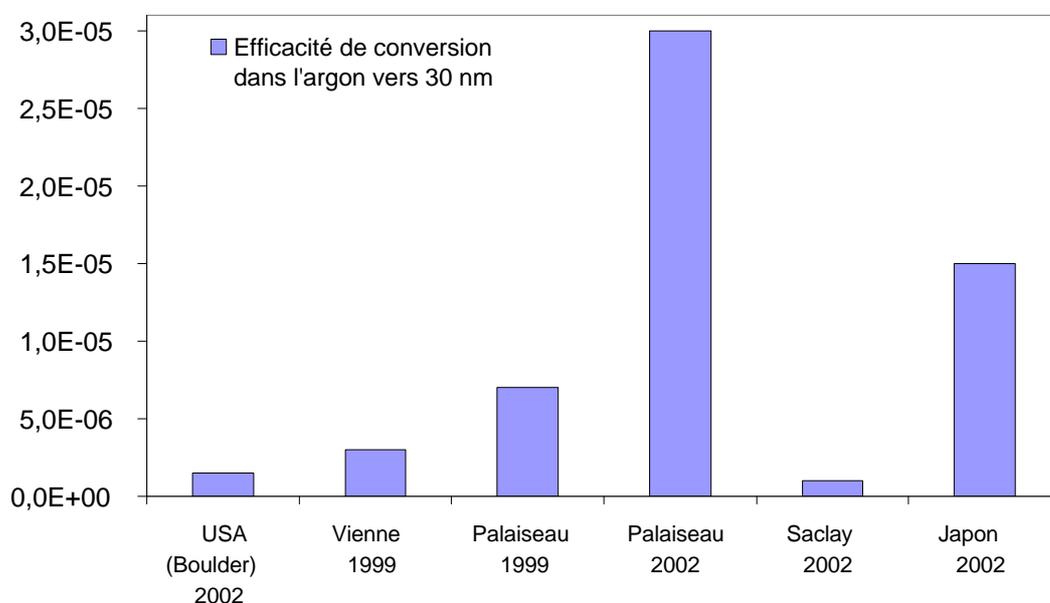


Figure 2.23 : Graphique récapitulatif des efficacités de conversion publiées pour le néon vers 30 nm par différentes équipes mondiales (données récentes).

Cette étude comparative nous permet de situer notre installation harmoniques parmi les meilleures efficacités de conversion publiées à ce jour. L'argon semble être le gaz le mieux approprié à nos conditions laser. On remarque cependant des disparités dans ces valeurs pourtant toutes obtenues en limite d'absorption comme on le montrera dans le chapitre suivant en essayant de comprendre les raisons de ces différences. Il semble désormais utile d'exposer les mécanismes microscopiques et macroscopiques qui expliquent la génération d'harmoniques.

## **2.7. Références du chapitre 2 :**

### 2.7.1. Pour l'installation laser

- [1] Salin, Thèse de doctorat de l'Université Paris Sud (1987)
- [2] Leblanc, Thèse de doctorat de l'école Polytechnique (1993)
- [3] Chériaux et al., Optics Letters, **21** 414 (1996)
- [4] Dorrer et al., Optics Letters, **24**, n°21 (1999)
- [5] Tyson, « Adaptative optics engineering handbook », (Marcel Dekker, Inc., 2000) 123
- [6] Société Oxalis, renseignements disponibles sur le site : <http://www.oxalis-laser.com>

### 2.7.2. Pour la partie génération d'harmoniques

- [7] Site du CXRO: <http://www-cxro.lbl.gov>
- [8] Schnürer et al. Phys. Rev. Lett. **83**, 722 (1999)
- [9] Constant et al. Phys. Rev. Lett. **82**, 1668 (1999)
- [10] Durfee et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 2187 (1999)
- [11] Takahashi et al., Phys. Rev. A **66**, 021802 (2002) (Rapid Communications)
- [12] Hergott et al., Phys. Rev. A **66**, 021801(R) (2002)
- [13] Kazamias et al., Eur. Phys. Journal D, sur le site de edpscience.fr (septembre 2002)
- [14] Bartels et al., Science **297**, 376 (2002)
- [15] Tamaki et al. Phys. Rev. A **62**, 063802 (2000)
- [16] Tamaki et al., Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999)