

Imagerie ultrarapide à l'échelle nanométrique par diffraction XUV cohérente

Xunyou Ge

CEA Saclay/SPAM/AttoPhysique

Introduction

Dans de nombreux domaines de la science, nous cherchons à voir la matière évoluer en temps réel. Imager des objets aperiodiques à une échelle nanométrique (10^{-9} m) et à une échelle femtoseconde (10^{-15} s) est un vrai challenge. Très récemment, le développement des sources X cohérentes récentes de type « laser » nous permet d'atteindre des résolutions jusque-là inégalées. Les techniques d'imagerie « sans lentille » sont des moyens puissants pour répondre à ce besoin. En utilisant des sources ultrarapides (\sim fs) et cohérentes (e.g. les lasers à électron libre ou les lasers harmoniques d'ordres élevés), ces techniques permettent d'imager des objets à partir de leurs figures de diffraction, remplaçant les optiques conventionnelles du système d'imagerie par un algorithme numérique. C'est dans ce contexte que se situent les travaux de recherche de cette thèse effectués au Laboratoire Attophysique du CEA Saclay : Développer et améliorer une nouvelle source de lumière ultra-brèves, contrôlée, dans le domaine des rayons X, valider et analyser les techniques d'imagerie « sans lentille » sur cette source, afin d'imager des phénomènes physiques à une échelle spatiale nanométrique avec des résolutions temporelles femtoseconde.

Chapitre I : Le principe de l'imagerie « sans lentille »

Les systèmes d'imagerie conventionnels (e.g. microscopes optiques, appareils photo) sont usuellement basés sur l'utilisation d'un système de lentilles qui collectent le rayonnement diffusé par l'objet et forme son image (Fig. 1). Dans les systèmes d'imagerie plus compliqués, ce système lentille peut être constitué des optiques différentes : miroirs, lames, filtres, etc. Les optiques utilisés dans les systèmes de lentilles imposent de nombreuses contraintes de manipulation et de limitations sur la qualité de l'image (résolution, aberrations...). Dans le domaine de rayon X, les systèmes de lentilles plus avancés sont constitués par des lentilles de Fresnel, qui imposent les contraintes plus critiques de la résolution spatiale de l'image, de la fabrication de lentilles et de flux de lumière incident. Dans ce contexte, les techniques d'imagerie « sans lentille » qui ne nécessitent pas de système de lentille proposent une alternative avantageuse pour atteindre les résolutions ultimes, spatialement avec des rayons X et temporellement avec des impulsions ultra-brèves.

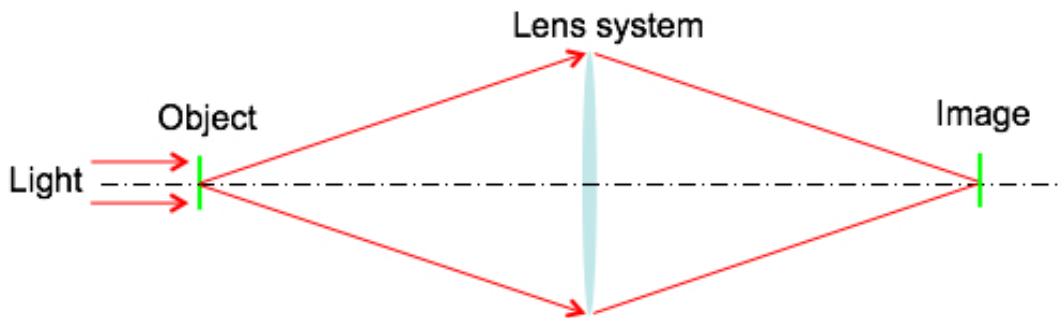


Figure 1. Système d'imagerie conventionnel. L'image de l'objet est formée par un système de lentille.

Ces techniques profitent d'un faisceau cohérent pour obtenir une figure de diffraction de l'objet et pour reconstruire l'objet à partir de la mesure de l'intensité de diffraction de l'objet en utilisant des algorithmes numériques. Le système de lentille est donc remplacé par des algorithmes numériques (Fig. 2).

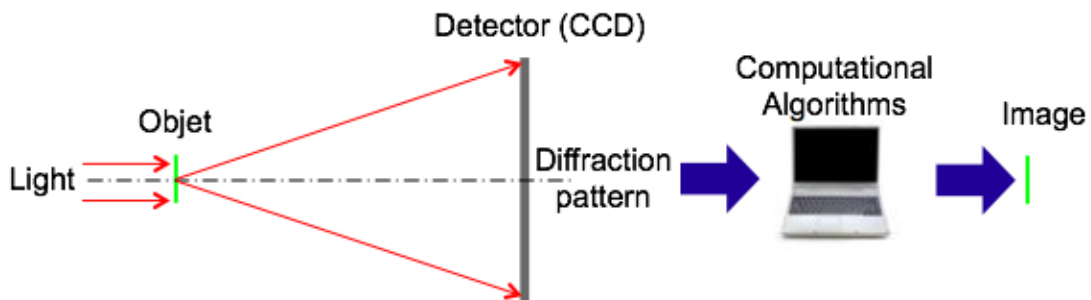


Figure 2. Système d'imagerie « sans lentille ». L'image de l'objet est formée par des algorithmes numériques à partir de sa figure de diffraction mesurée par une caméra CCD.

Lorsqu'un faisceau de lumière cohérente illumine un objet, la figure de diffraction dans le champ lointain (régime de Fraunhofer) est la transformée de Fourier des modifications en amplitude et/ou en phase de l'éclairage par l'objet. Théoriquement, une simple inversion de cette figure de diffraction donne lieu de l'image de l'objet. Malheureusement, la phase est perdue pendant la détection parce que la caméra CCD est uniquement sensible à l'intensité de la diffraction. C'est la fameuse « *problème de phase* ». Deux techniques principales sont proposées pour « *retrouver* » la phase et reconstruire l'objet : l'imagerie par diffraction cohérente (CDI) et l'holographie par transformée de Fourier (FTH).

Dans l'approche de l'imagerie par diffraction cohérente, on utilise une procédure itérative de reconstruction de la phase basée sur des conditions particulières d'échantillonnage et que l'objet soit isolé. Ce dernier signifie que l'objet reconstruit a une extension spatiale finie, inclus dans un support entouré de « zéros ». Ce support est usuellement calculé par la transformée de Fourier de la figure de diffraction détectée, qui est l'autocorrélation de l'objet. Avec la condition de sur-échantillonnage (par rapport au critère de Nyquist), ces deux considérations permettent d'assurer la convergence de l'algorithme de reconstruction de phase vers une solution unique, sans aucune autre connaissance sur l'objet a priori (Fig. 3). Notons que la qualité de l'image de l'objet est théoriquement déterminée par la limite de diffraction. En pratique, la résolution spatiale de la reconstruction est limitée par la longueur d'onde de lumière incidente et par la fréquence spatiale maximum de la figure de diffraction détectée.

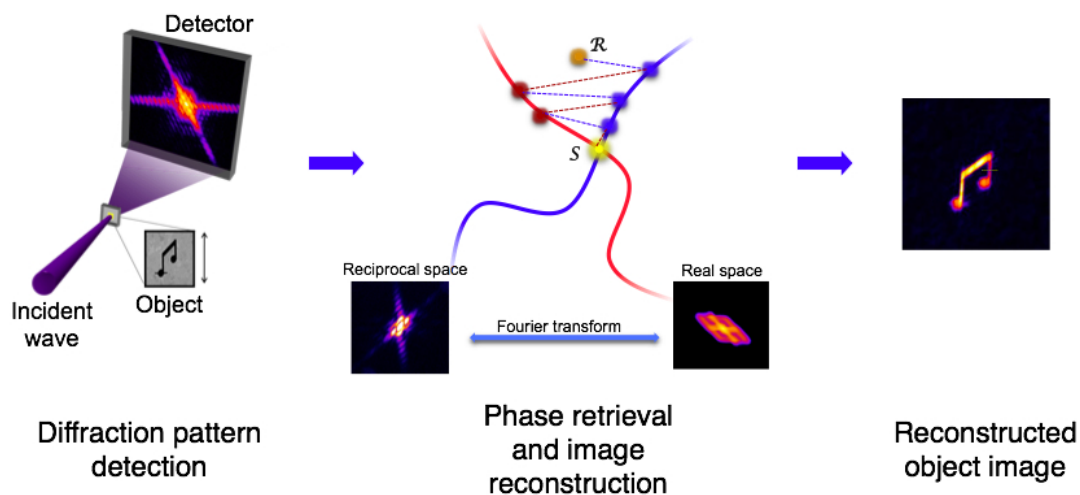


Figure 3. Principe de l'imagerie par diffraction cohérente.

L'holographie par la transformée de Fourier utilise une source ponctuelle juxtaposée à l'objet pour encoder l'information de la phase par interférence dans la figure de diffraction (appelé hologramme). Donc, une simple inversion du hologramme fournit l'image de l'objet (Fig. 4). Cette technique utilise le même

schéma expérimental que le CDI sauf que une référence ponctuelle est ajoutée à côté de l'objet. Les avantages de FTH sont la reconstruction directe et rapide, et plus important que la reconstruction est sans ambiguïté. Par contre, la résolution spatiale est dans ce cas aussi limitée par le signal aux larges angles de diffraction, mais dépend de plus de la taille de la référence. Plus la référence est petite, meilleure sera la résolution spatiale théorique, au détriment cependant de la qualité du signal, donc la résolution spatiale pratique. Pour contourner cette difficulté, une technique dérivée de la FTH propose d'utiliser des références étendues combinées à des opérateurs différentiels adaptés à la forme de ces références. L'idée de cette technique, appelée HERALDO (pour Holography with Extended Reference by Autocorrelation Linear Differential Operation), consiste à utiliser une ou plusieurs dérivations afin d'obtenir un équivalent de références ponctuelles à partir de références plus larges, telles que des fentes ou des carrés (Fig. 4). Cela permet de enregistrer un hologramme avec de signal aux plus larges angles tout en conservant une bonne résolution spatiale.

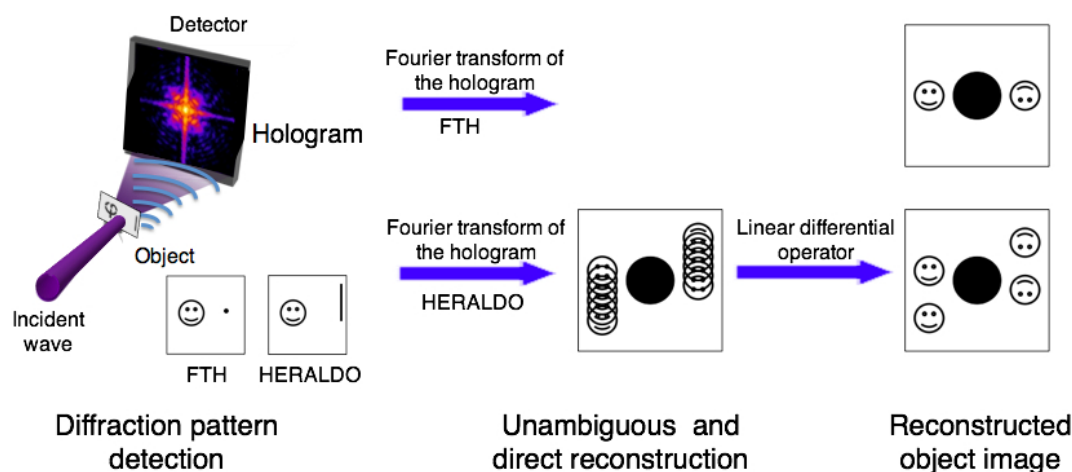


Figure 4. Principes de l'holographie par la transformée de Fourier et de l'holographie par la transformée de Fourier avec référence étendue.

Quelles que soient les techniques utilisées pour imager un objet, la qualité de la figure de diffraction détermine la qualité de la reconstruction. Pour obtenir une meilleure figure de diffraction, le faisceau incident doit avoir la meilleure qualité sur les aspects suivants : la cohérence et le flux. Cependant pour atteindre des résolutions ultimes spatialement et temporellement, le faisceau doit avoir une courte longueur d'onde et une durée d'impulsion ultrarapide. Les lasers à électrons libres (FEL) sont les sources idéales pour des études résolues en temps par l'imagerie « sans lentille ». Néanmoins, le coût très élevé de ces machines ne les rend accessibles qu'à quelques pays avec un temps de faisceau très limité. Il est donc important de disposer pour ces études de sources de laboratoire. Grâce aux avancements récents de la génération d'harmoniques d'ordres élevés, les sources harmoniques d'ordres élevés deviennent une alternative importante de

FEL, qui satisfait tous les critères de l'imagerie par diffraction cohérente (cohérence, impulsions femtosecondes voire attosecondes, large couverture spectrale...). Cependant, le flux d'harmonique reste toujours une des limitations importantes de la qualité de reconstruction. Ainsi, l'optimisation de la génération d'harmonique a été et reste un enjeu majeur.

Chapitre II : La source harmonique à flux élevé

La source de lumière utilisée pour les expériences d'imagerie cohérente est issue du dispositif appelé « High flux harmonic beamline » (la source harmonique à flux élevé), basée sur la génération d'harmoniques d'ordre élevé à « haute énergie laser ». L'objectif de ce dispositif est de générer plus de photons harmoniques possible, sans oublier la qualité spatiale et la cohérence du faisceau harmonique, pour avoir des figures de diffraction de haute qualité dans les expériences d'imagerie. La conception est de créer un grand volume d'interaction pour coupler plus de l'énergie laser possible dans le milieu atomique générateur. Cette ligne de lumière est initialement construite dans les années 2005 à 2007 au laboratoire Attophysique du CEA Saclay. La première expérience d'imagerie cohérente est faite en 2009 sur un objet dit « note musicale ». La reconstruction d'image est réalisée avec une résolution spatiale de 119 nm en simple-tir (durée d'impulsion = 20 fs) et 62 nm en 40-tirs (2s de temps de illumination) (Fig. 5). L'harmonique utilisé est H25 ($\lambda=32\text{nm}$) généré dans l'argon.

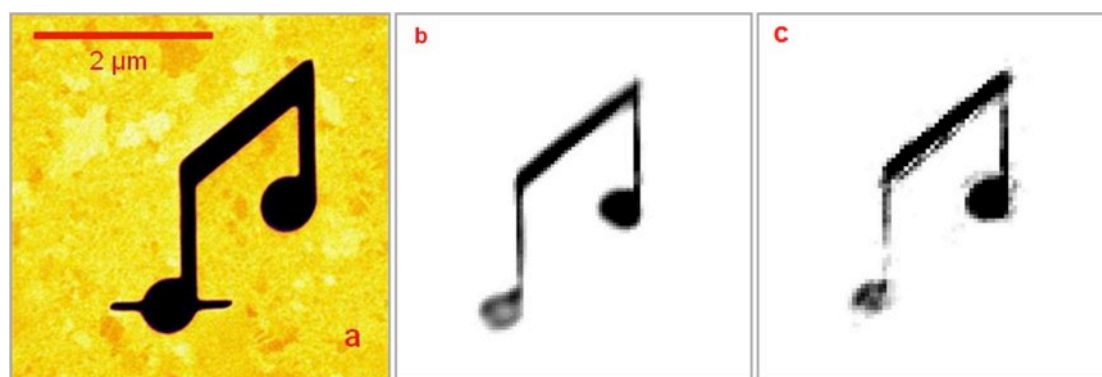


Figure 5. (a) Image de MEB de la note musicale. (b) La reconstruction d'une figure de diffraction accumulée de 40 tirs. (c) La reconstruction d'une figure de diffraction d'un simple tir.

Ce premier résultat est le point de départ de ce travail de thèse. L'objectif principal est de réaliser des visualisations dynamiques (2D et/ou 3D) de phénomènes physiques ultrarapides à l'échelle femtoseconde avec une résolution spatiale nanométrique. Évidemment, la qualité de reconstruction en simple-tir (Fig. 5c) ne suffit pas pour atteindre la haute résolution. En plus, la source harmonique n'était pas stable en flux et/ou en distribution spatiale du faisceau harmonique pendant les heures d'expérience. Il est aussi difficile de reproduire un faisceau harmonique de même qualité d'un jour à l'autre.

La première partie du travail de thèse est consacrée à l'optimisation de la ligne harmonique pour établir une source harmonique puissante, stable et reproductible pour les applications d'imagerie. Cette optimisation est réalisée en trois étapes : 1) la génération d'harmonique d'ordres élevés, 2) la focalisation du faisceau harmonique sur l'objet à imager, 3) la qualité du faisceau pompe infrarouge de la génération d'harmonique.

L'état final de la ligne harmonique est présenté dans la figure 6. Le dispositif « hollow-core fiber » (fibre creuse) a été mis en place après les deux premières étapes d'optimisation. Pour optimiser la génération d'harmonique et la focalisation du faisceau harmonique, on a utilisé un analyseur de front d'onde de type Hartmann (travaillant dans le domaine XUV) pour mesurer le front d'onde et l'intensité de notre faisceau harmonique en champ lointain. En utilisant les fonctions retro-propagation, on a reconstruit les profils spatiaux de faisceau au foyer. Ces derniers nous permettent d'évaluer la qualité du faisceau harmonique.

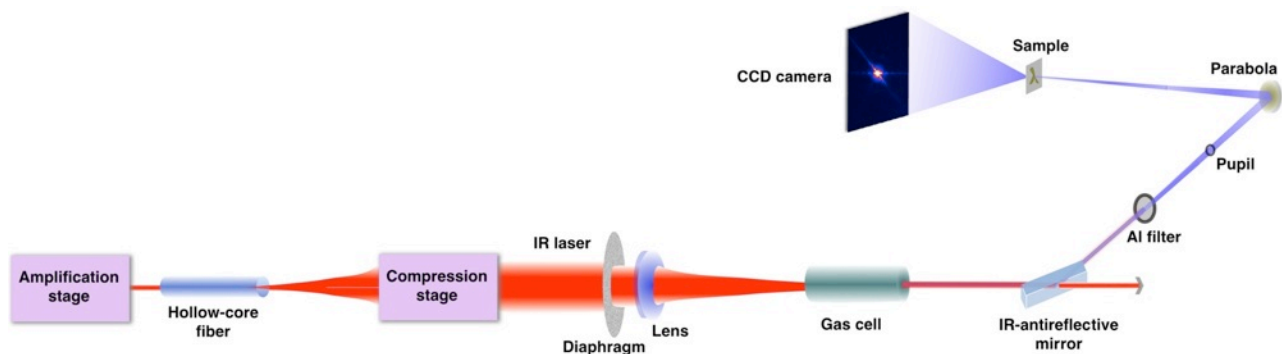


Figure 6. Schéma de la ligne d'harmonique après l'optimisation.

Dans la première étape, on a parcouru systématiquement les paramètres de génération d'harmonique (l'ouverture du faisceau IR, l'énergie du faisceau IR, la longueur de la cellule de génération, la pression de gaz). L'analyseur de front d'onde (placé à la position 1 dans Fig. 7) a détecté et enregistré le front d'onde de notre faisceau harmonique. Le critère que l'on a choisi pour évaluer la qualité de front d'onde est la valeur RMS (Root-Mean-Square) de l'amplitude du front d'onde. Cette valeur décrit comment le front d'onde mesuré est déformé par rapport à une onde plane. Selon la théorie de Maréchal, un faisceau est limité par la diffraction à une longueur d'onde λ , si sa valeur RMS de l'amplitude de front d'onde est inférieure à $\lambda/14$. En variant un paramètre de génération à la fois, on a étudié l'évolution de l'intensité et du front d'onde du faisceau harmonique en fonction de chaque paramètre (voir les résultats dans la thèse). On a conclu une région optimale de ces paramètres de génération : l'ouverture du faisceau IR = 20 ~ 21 mm, l'énergie du faisceau IR = 15 ~ 20 mJ/impulsion, la longueur de cellule = 5 ~ 8 cm et la pression de gaz = 8 ~ 9 mbar. Dans cette région optimale, on a obtenu le minimum de la valeur RMS du faisceau harmonique à $\lambda/9$, proche

du limité par la diffraction. Notons que l'intensité du faisceau est maximisée quand la valeur RMS est minimum. Cette cohérence entre l'intensité et la qualité du front d'onde est très favorable pour l'imagerie sans lentille. Le minimum de la valeur RMS correspond aussi à une meilleure distribution spatiale du faisceau harmonique (spot quasi-circulaire, uniforme). Ce dernier est un facteur important pour la phase éclairage de l'objet pendant les expériences.

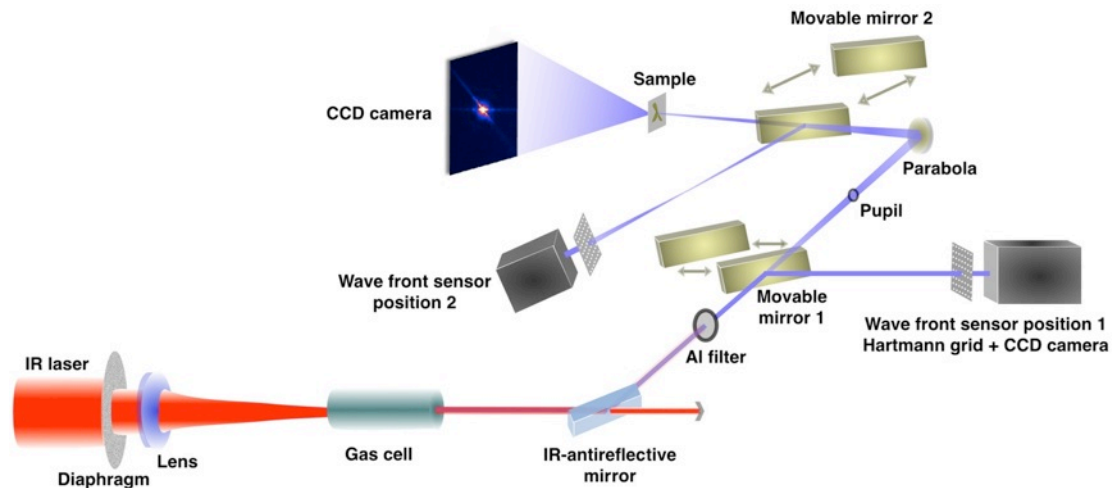


Figure 7. Schéma de l'optimisation de la ligne d'harmonique en utilisant un analyseur de front d'onde. Dans la première étape, l'analyseur de front d'onde est placé à la position 1 pour mesurer directement le faisceau harmonique après la génération. Dans la deuxième étape, l'analyseur est placé à la position 2 pour caractériser la focalisation du faisceau harmonique après la parabole multicouche.

Dans la seconde étape, on s'intéresse à améliorer la focalisation du faisceau harmonique. Il s'agit d'une fine tune du réglage de la parabole multicouche. Ce réglage est critique pour avoir une bonne focalisation de faisceau. Une petite déviation de réglage de la parabole peut introduire des aberrations significatives (Fig. 8a). La valeur RMS de ce dernier est $\lambda/3$. Fig. 8b montre un foyer du faisceau harmonique avec le réglage de parabole optimisé correspondant à une valeur $RMS = \lambda/6$, qui est deux fois du critère limité par la diffraction. Le diamètre du foyer est mesuré à $5 \mu\text{m}$, par rapport au faisceau de $20 \mu\text{m}$ utilisé pour imager la « note musique ». En comptant le gain en intensité et en taille du faisceau, on a augmenté le nombre de photons effective (c.à.d. les photons interagissent avec l'objet) par un facteur 25. En fin, on a placé une pupille à 10 cm devant la parabole comme une filtre spatiale du faisceau pour avoir un foyer plus circulaire et uniforme (Fig. 8c).

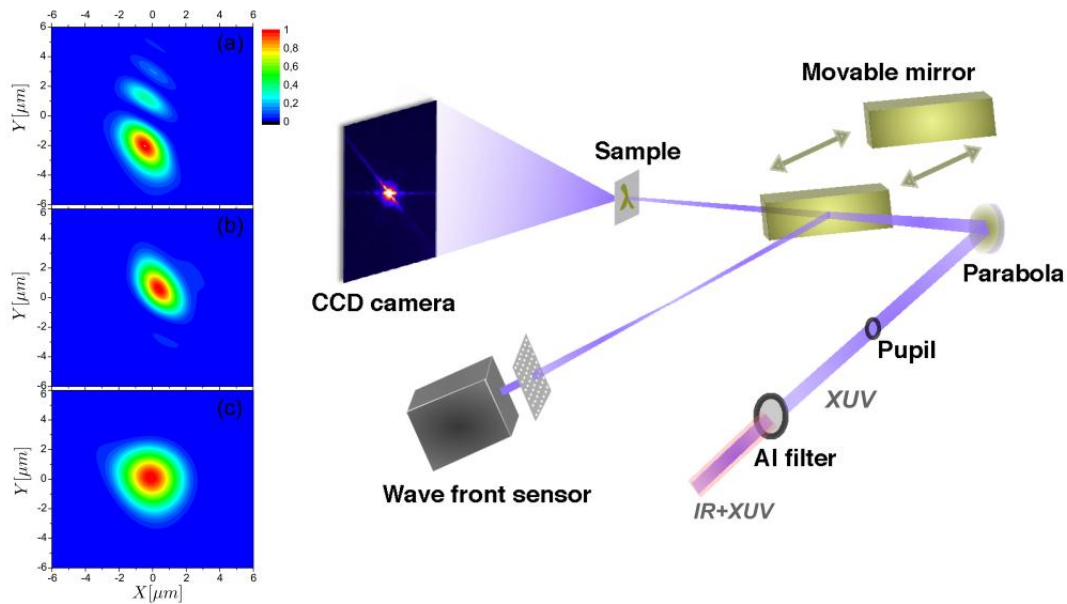


Figure 8. L'optimisation de la focalisation du faisceau harmonique à l'aide d'un analyseur de front d'onde. (a) Réglage de parabole non optimisé présente un foyer d'aberration forte. (b) Le foyer après l'optimisation sans pupille. (c) Le foyer final après l'optimisation avec pupille.

Dans la troisième étape, on a mis en place un dispositif « filtrage modal » dans le laser IR entre la phase « amplification » et la phase « compression ». Ce dispositif est une fibre creuse dans un conteneur vide pour coupler les modes laser IR au mode de fibre. Le couplage donne un faisceau à quasi-monomode EH_{11} (un mode très proche de mode gaussien) à l'issue de la fibre creuse (Fig. 9a). La valeur RMS mesuré du faisceau filtré est $\lambda/59$ ($\lambda=795\text{nm}$), par rapport à $\lambda/12$ avant l'injection (Fig. 9b). La transmission d'énergie varie de 60% à 70% en fonction de l'énergie incidente. Cette amélioration du front d'onde est aussi observée après la compression du faisceau (Fig. 9c,d). La valeur RMS passe de $\lambda/5$ à $\lambda/14$ (limité par la diffraction). Notons que la transmission d'énergie du stage « compression » est $\sim 40\%$. La comparaison la plus intéressante est sur le foyer du faisceau IR où la génération d'harmonique déclenche. On a reconstruit les profils au foyer du faisceau IR avec et sans filtrage avec les fonctions de propagations (Fig. 9e-h). Pour quantifier les profils reconstruits, on utilise souvent le ratio Strehl, le ratio entre un profil reconstruit et un faisceau parfait, que un faisceau limité par la diffraction a un ratio Strehl égale ou supérieur à 0.8. Dans notre cas, le ratio Strehl est augmenté de 0.33 à 0.83 (pour un faisceau IR non diaphragmé) présentant une amélioration significative. Notons que le diaphragme devant la lentille de focalisation joue un rôle important sur la qualité du foyer IR. Quand on ferme ce diaphragme à 22 mm, les profils reconstruits du faisceau sans et avec filtrage se ressemblent, mais avec une transmission de 50% sans filtrage et 60% avec filtrage. Si le diaphragme est plus grand que 22 mm, le profil reconstruit sans filtrage dégrade rapidement.

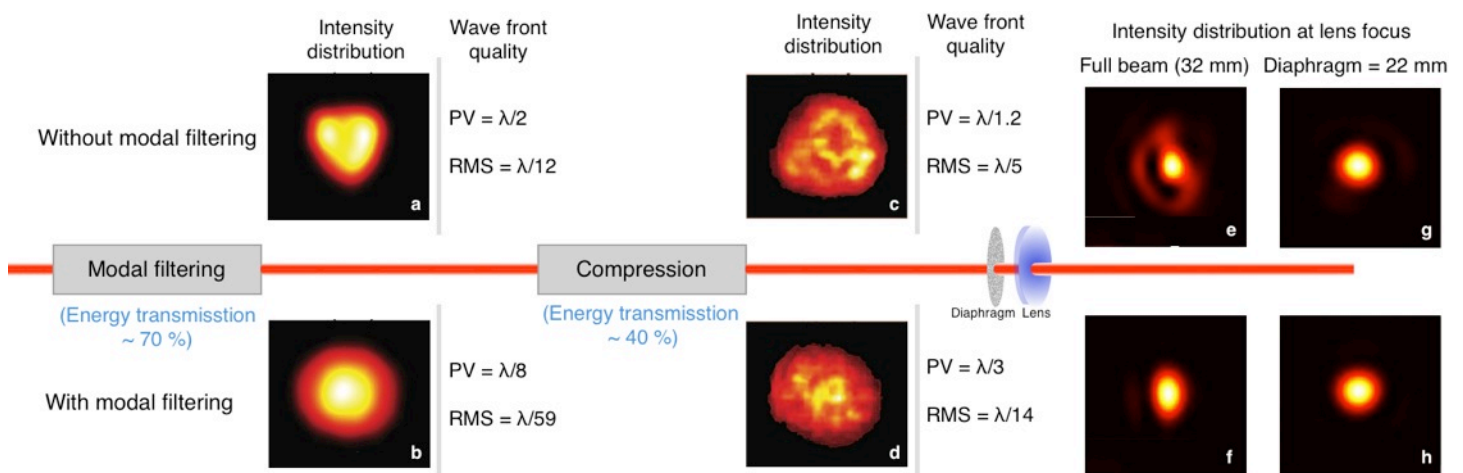


Figure 9. Synthèse de comparaison du faisceau IR sans et avec filtrage à différentes positions de la ligne lumière.

Au point de vue de système laser, ce dispositif « filtrage modal » est un succès d'optimisation de faisceau en qualité de front d'onde. Une campagne de génération d'harmonique avec filtrage est ensuite réalisée pour vérifier l'effet de ce dispositif sur la génération d'harmonique. Deux types de gazes sont utilisés : l'argon et le néon. Grâce à un meilleur front d'onde avec le filtrage, l'efficacité de génération d'harmonique est augmentée par un facteur de 2.5 dans l'argon et 6 dans le néon. Notons que l'intensité du faisceau harmonique optimal généré dans l'argon n'est pas augmentée avec le filtrage. Comme le faisceau IR filtré dépasse facilement l'intensité de saturation dans l'argon, on peut obtenir un faisceau harmonique avec l'intensité plus élevée que un faisceau optimal mais en revanche d'un profil spatiale déformé. Parce que l'imagerie sans lentille demande à la fois une intensité élevée et un bon profil spatial du faisceau incident, on n'est obligé de faire un compromis entre l'intensité et le profil spatial. Pour cette raison, le faisceau optimal avec filtrage ne présente pas plus d'intensité que celui dans le cas sans filtrage. Par contre, l'intensité du faisceau harmonique optimal est bien augmentée par un facteur de 4 dans le néon comme l'intensité de saturation dans le néon est plus élevée que dans l'argon. Dans les deux gazes, on a observé une meilleure distribution spatiale du faisceau harmonique généré. Ces résultats montrent bien que le filtrage modal est un moyen efficace d'amélioration de laser IR et de la génération d'harmonique.

Chapitre III : Imagerie par diffraction cohérente et holographie.

Les expériences d'imagerie sans lentille dans ce chapitre sont effectuées sur les objets de testes fabriquées par sonde ionisée focalisée. Les objets sont gravés sur les membranes de nitrure de silicium supportés par des substrats de silicium. La taille des objets varie de $\sim 2 \mu\text{m}$ à $\sim 4 \mu\text{m}$, correspondent à la taille du faisceau harmonique de $5 \mu\text{m}$ de diamètre.

A part des objets de testes à imager, on a aussi gravé une série de trous d'Young et fentes d'Young, qui se servent de caractériser la cohérence du faisceau harmonique. On a fait une campagne d'expérience de fentes d'Young pour quantifier l'influence de la cohérence du faisceau incident sur la qualité de reconstruction de l'imagerie par diffraction cohérente. Les fentes d'Young sont mises au foyer de la parabole et la caméra CCD détecte les franges d'interférence en champ lointain. Comme dans l'optimisation de la génération d'harmonique, on a systématiquement parcouru les paramètres de génération. L'évolution de la visibilité des franges (donc la cohérence spatiale du faisceau) en fonction de paramètres de génération suit celle de l'intensité du faisceau. La visibilité des franges mesurée peut montrer jusqu'à $0.8 \sim 0.84$ dans les conditions optimales de la génération et descendre en dessous de 0.5 dans certaines conditions. Les reconstructions des franges ne sont pas possibles pour les figures de diffraction ayant une visibilité en dessous de 0.5 même si l'intensité de faisceau est suffisamment élevée. Cependant, les reconstructions ne sont toujours pas possibles avec une bonne visibilité des franges mais une intensité modeste. Pour les reconstructions réussites, la résolution spatiale est à la fois sensible à l'intensité du faisceau et à la visibilité des franges (donc la cohérence spatiale). Fig. 10a présente une évolution de la cohérence spatiale, de l'intensité du faisceau et de la résolution spatiale de reconstruction des franges en fonction de la pression de gaz. Dans la condition optimale (pression de gaz = 13 mbar), on atteint le maximum de l'intensité et la meilleure visibilité des franges que la reconstruction des franges a une résolution spatiale de 138 nm . Cette résolution est estimée par la fonction transfère de « phase retrieval » (PRTF) (Fig. 10b). On peut conclure de cette étude que la cohérence, l'intensité et le profil spatial du faisceau incident sont les trois clés de l'imagerie par diffraction cohérente. Un faisceau est optimal pour l'imagerie si ces trois facteurs sont à la fois optimisés.

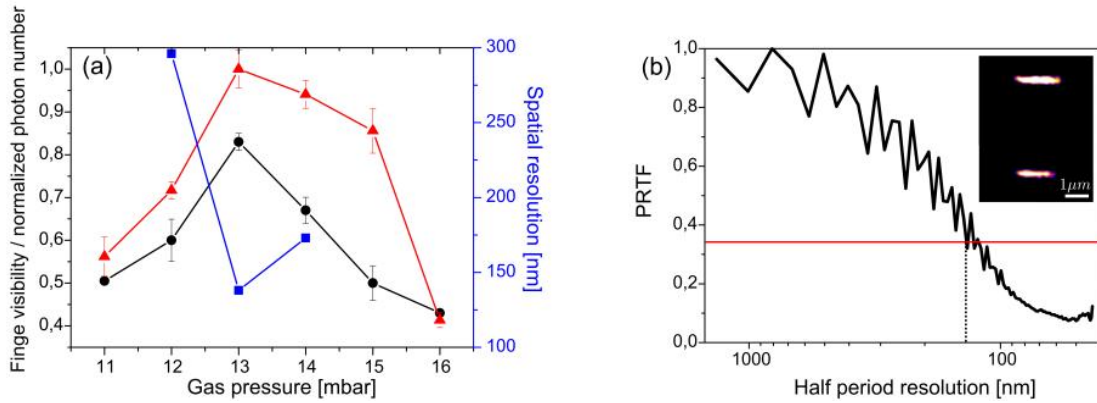


Figure 10. (a) L'évolution de la visibilité des franges (en noir), de l'intensité du faisceau (en rouge) et de la résolution spatiale de reconstruction des fentes (en bleu) en fonction de la pression de gaz. La courbe d'intensité est normalisée par rapport au maximum de l'intensité mesurée à la pression de gaz = 13 mbar. (b) La reconstruction des franges de la figure de diffraction mesurée à la pression de gaz = 13 mbar dont la visibilité des franges est 0.85. Et sa PRTF présente une résolution spatiale de 138 nm.

Trois techniques d'imageries sont étudiées dans ce travail de thèse : 1) l'imagerie par diffraction cohérente (CDI), 2) l'holographie par la transformée de Fourier (FTH) et 3) l'holographie avec une référence étendue (HERALDO). Ces expériences se déroulent sur la ligne d'harmonique après l'optimisation (sans filtrage, le dispositif est mis en place après ces expériences). CDI et FTH sont les deux branches principales de l'imagerie sans lentille, et HERALDO est une technique dérivée de FTH. Nombreux objets de design varié sont testés avec ces techniques pour mieux comprendre les critères, les avantages et les contraintes de chaque technique et l'adaptation de ces techniques à notre ligne d'harmonique.

Pour CDI, on a réussi de reconstruire un objet « lambda » de $\sim 4 \mu\text{m}$ avec une résolution spatiale de 78 nm et une résolution temporelle de 20 fs (Fig. 11b). Fig. 11a présente la figure de diffraction en simple tir (durée d'impulsion = 20 fs) enregistrée par la caméra CCD dont la fréquence spatiale maximum est $8.88 \mu\text{m}^{-1}$, correspondant à une résolution théorique de 56 nm. La résolution effective estimée par la PRTF (Fig. 11c) est $\sim 2.5 \lambda$ ($\lambda=32\text{nm}$). Par rapport à la résolution de « note musique » qui est 119 nm en simple tir et 62 nm en accumulation de 40 tirs, l'optimisation de la ligne d'harmonique a joué un rôle important. Malgré que la résolution à 78 nm soit toujours limitée par le rapport signal sur bruit de la figure de diffraction mesurée et la cohérence du faisceau harmonique, on est maintenant prêt à visualiser des objets et/ou des phénomènes dans des applications physiques en utilisant la technique CDI à l'échelle nanométrique et femtoseconde.

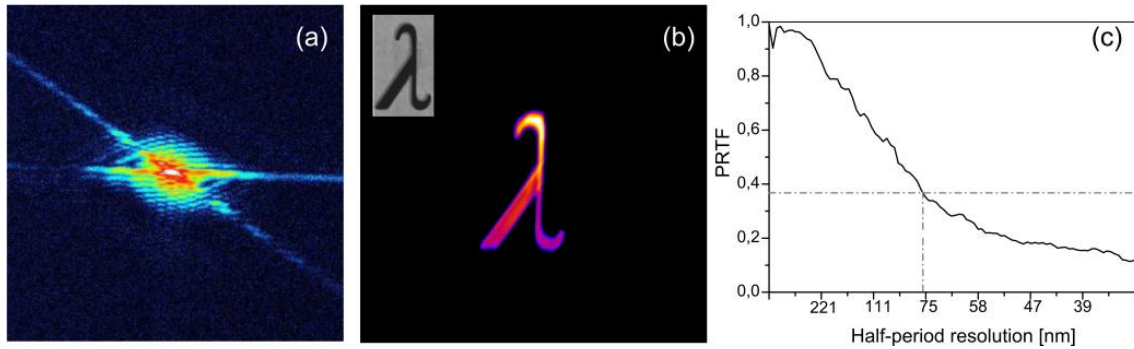


Figure 11. (a) Figure de diffraction en simple tir mesurée par la caméra CCD. (b) Reconstruction de l'objet par CDI et l'image MEB de l'objet (en haut à gauche). (c) PRTF de la reconstruction estime la résolution à 78 nm.

Les objets de teste de la technique FTH sont les objets de $\sim 2 \mu\text{m}$ avec deux petites trous (quelques centaines nm de diamètre) à côté qui servent comme références Dirac. La reconstruction de l'objet est directe et simple. En revanche, la résolution obtenue est limitée par la taille de référence (trou). Dans notre cas, on reconstruit les objets avec une résolution de 100 à 200 nm en fonction de la taille de trou. Encore une fois, la cohérence joue un rôle indispensable dans la FTH. Par exemple, Fig. 12a et d sont deux figures de diffractions de l'objet présenté dans Fig. 12g, enregistré dans la même condition expérimentale. Fig. 12d a un niveau de signal 1.5 fois plus élevé que Fig. 12a, mais sa visibilité des franges est moins claire. Dans les reconstructions de ces deux figures (Fig. 12b, e), on observe une perte d'information de l'objet dans celle de Fig. 12d (Fig. 12f). Cependant, l'objet est bien résolu dans la reconstruction de Fig. 12a (Fig. 12c).

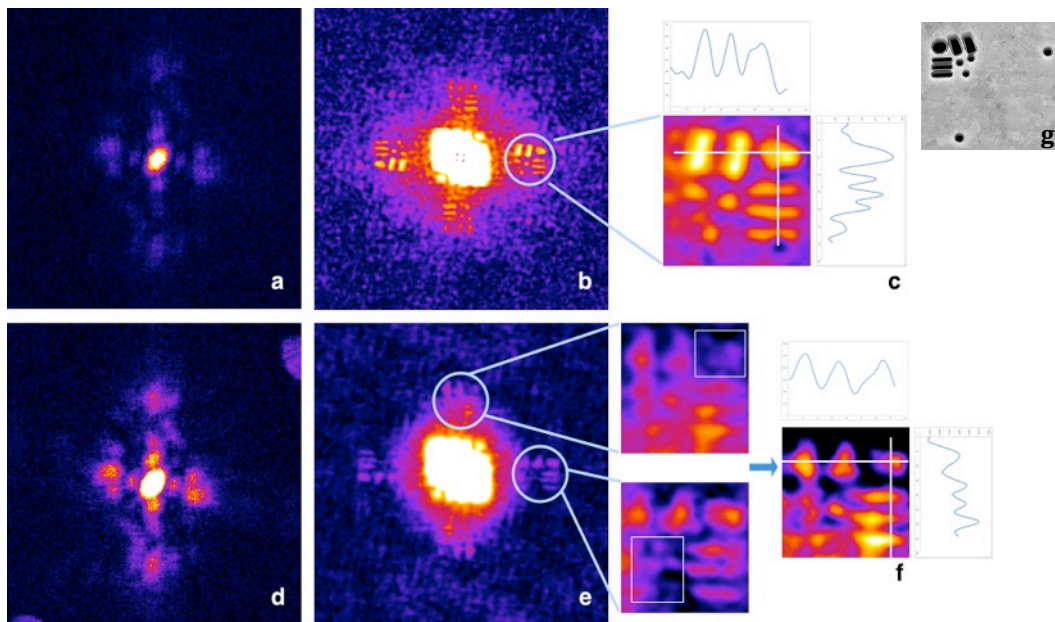


Figure 12. (a,d) Figures de diffraction de l'objet (g) en simple tir. (b,e) Reconstructions des figures de diffraction. (c,f) Zoom des reconstructions.

Dans la campagne d'expérience de HERALDO, on a testé différentes références : les fentes, les triangles, les carrés avec différentes configurations géométriques. Les fentes sont les références à une dimension qui demande une dérivation linéaire suivant la direction de fente. Les autres références sont à deux dimension qui demande une combinaison de deux dérivation suivant les directions de bords des références. Par exemple, Fig. 13a présent un objet « Phi » avec deux fentes verticale et horizontale. La transformée de Fourier de la figure de diffraction de l'échantillon (objet + les fentes) est composé des termes de convolution de objet-fente, objet-objet et fente-fente (Fig. 13b). Si on applique une dérivation suivant la fente verticale, on obtient deux reconstructions de l'objet associées à la fente verticale (Fig. 13d). Pareil, une dérivation suivant la fente horizontale donne aussi deux reconstructions indépendantes de l'objet (Fig. 13c). Notons qu'il y a quatre « phi » dans chaque image de reconstruction, mais qu'il y en a deux indépendantes et deux complexe conjuguées. Une somme cohérente de ces quatre reconstructions indépendantes (deux de Fig. 13c et deux de Fig. 13d) est présentée dans la Fig. 14a. La résolution spatiale est estimée à 110 nm avec une résolution temporelle de 20 fs.

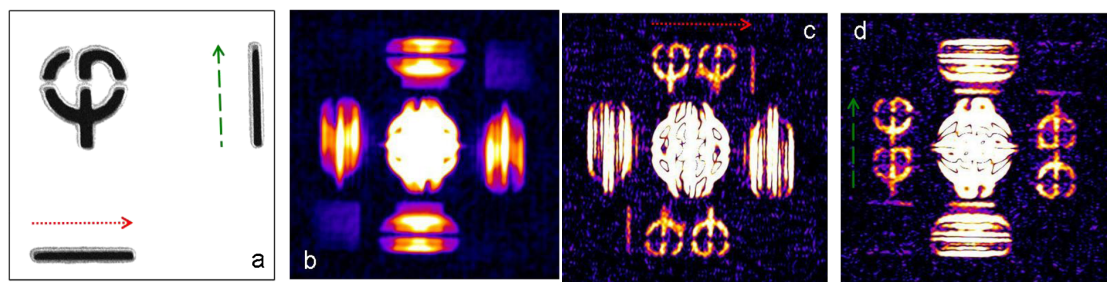


Figure 13. (a) L'objet « phi » avec deux fentes. (b) La transformée de Fourier de la figure de diffraction de (a). (c) Reconstruction associée à la fente horizontale. (d) Reconstruction associée à la fente verticale.

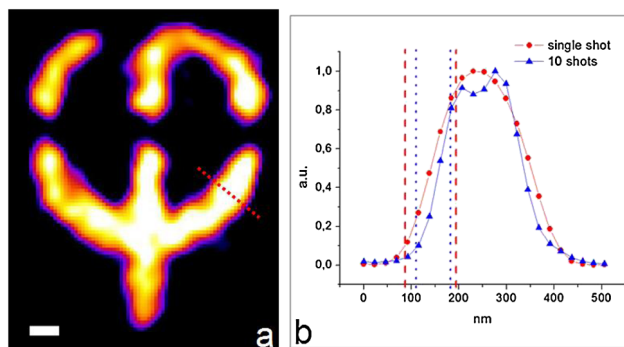


Figure 14. (a) Reconstruction finale de l'objet présenté dans Fig. 13a. (b) Profil de la reconstruction. La résolution spatiale est estimée d'après le critère de Rayleigh.

Les analyses et reconstructions des autres objets avec références 2D sont présentées dans le manuscrit de thèse. Plus important, les différentes sources de bruit et leurs influences sont analysées et discutés. On a conclu que la fente est la

référence la plus adaptée à notre ligne d'harmonique parce que le bruit de lecture de la caméra CCD domine la figure de diffraction. Par contre, les références 2D seront plus favorables si le bruit de photon domine.

En comparant CDI et HERALDO, chaque technique possède des avantages et contraintes. HERALDO peut amplifier le signal diffracté par l'objet à l'aide des références, donc moins d'exigence sur le flux du faisceau incident. La rapidité et simplicité du processus de reconstruction de HERALDO sont aussi un avantage par rapport au long processus itérative de CDI. En revanche, CDI ne demande pas de référence. Dans certaine applications, il est impossible de fabriquer une référence ou l'encombrement géométrique ne permet pas de mettre une référence à côté de l'objet. Ces analyses nous permettent de choisir une meilleure technique d'imagerie pour chaque application différente.

Chapitre IV : Application : Dynamique magnétique

La première application effectuée sur notre ligne d'harmonique est dans le domaine magnétique. Les interactions magnétiques se déroulent sur l'échelle temporelle de plusieurs nanosecondes à quelques femtosecondes. Le nano-magnétisme est un nouveau membre dans la vieille famille de magnétisme. Il s'agit de l'interaction « spin-orbit » (SO) et l'interaction d' « échange » (EX) sur l'échelle femtoseconde qui est beaucoup plus rapide que le champ magnétique. Les objets concernés sont les structures de dimension submicronique. Pour pouvoir imager les nano-domaines magnétique de ces structures et ses évolutions à cause de l'effet magnétique, thermique ou autre raison, il faut un système qui peut atteindre la résolution spatiale nanométrique à l'échelle femtoseconde. Les techniques d'imagerie développées sur notre ligne d'harmonique sont qualifiées pour les études de nano-magnétisme.

Les cibles magnétiques sont préparées sur les multicouches de [Co/Pd] supportés par un substrat de silicium. Les nano-domaines magnétiques peuvent présenter deux types de structures : structure aléatoire ou aligné en fonction de la procédure de fabrication (Fig. 15). Les parties noires et blanches dans les images de Fig. 15 présentent les nano-domaines magnétiques opposés (« spin up et down »). La taille caractéristique de nano-domaine magnétique varie de quelques dizaines nanomètres à ~ 100 nm en fonction de la composition de multicouches. La procédure de fabrication est reproductible que l'on peut préparer plusieurs échantillons identiques pour les études de phénomènes irréversibles.

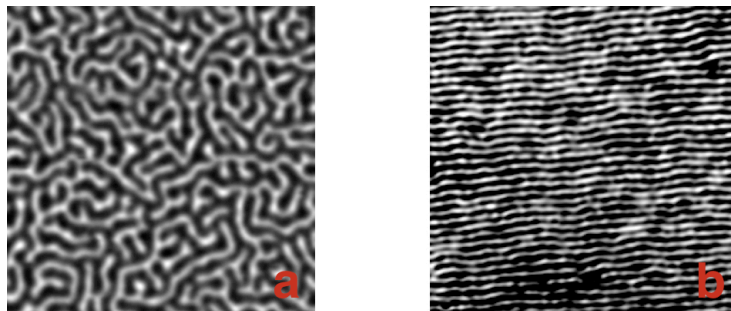


Figure 15. (a) Image MFM de nano-domaines magnétiques avec un structure aléatoire de multicouche [Co/Pd]. (b) Image MFM de nano-domaines magnétiques avec un structure aligné.

La visualisation de nano-domaines magnétiques par les techniques d'imagerie sans lentilles est basée sur les interactions SO et EX entre les états de valence et de base. Les indices optiques de nano-domaines opposés (n_+ et n_-) sont différents :

$$n_{\pm} = 1 - (\beta \pm \Delta\beta) + i(\delta \pm \Delta\delta)$$

Où $\Delta\beta$ présent la différence du terme dispersion entre les deux nano-domaines opposés et $\Delta\delta$ présent la différence du terme absorption. Notons que cette technique est « élément spécifique » d'après son mécanisme. Dans la figure de diffraction d'un échantillon magnétique, le niveau du signal diffusé est en fonction de l'efficacité de diffusion magnétique. Ce dernier est défini par « $\Delta\beta^2 + \Delta\delta^2$ ». Fig. 16 présent l'efficacité de diffusion (valeur théorique) du Cobalt autour de son seuil M à 60 eV. Dans la configuration de notre ligne d'harmonique, les harmonique H35, H37, H39, H41 sont situés autour du pic de la courbe d'efficacité de diffusion. H39 (60.5 eV) et H37 (57.4 eV) sont les deux ordres d'harmonique correspondant plus d'efficacité de diffusion, donc plus de signal diffracté possible dans la figure de diffraction. Un autre candidat pour cet étude est l'harmonique H38 (58.9 eV). Comme la génération d'harmonique classique ne génère que les harmoniques d'ordres impaires, une configuration de génération d'harmonique à deux couleurs est nécessaire pour générer les harmoniques d'ordres paires.

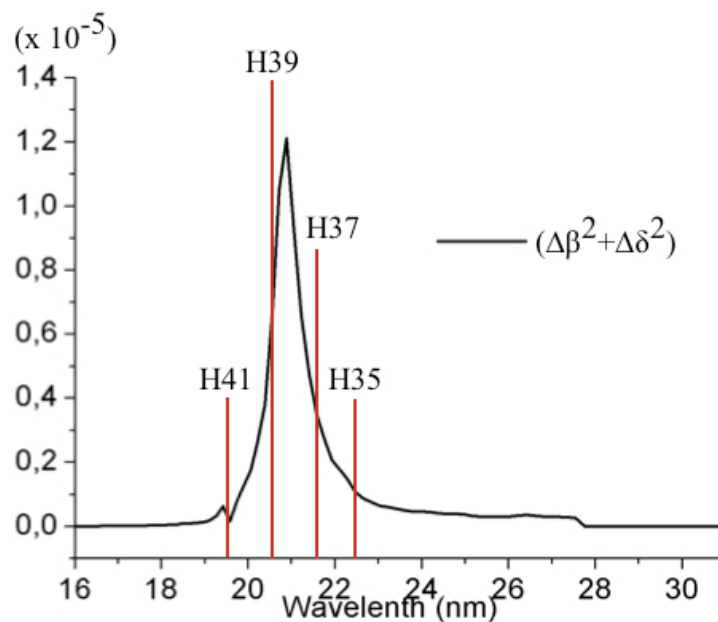


Figure 16. L'efficacité de diffusion magnétique du Cobalt autour de son seuil M à 60 eV. Les harmoniques H37 et H39 sont situés sur le pic de la courbe.

Pour identifier la meilleure harmonique (c.à.d. plus de signal diffusé), on a fait une étude spectrale des échantillons magnétiques avec deux configurations de génération d'harmonique différentes. On a changé le setup de la ligne d'harmonique à une configuration spectrale (Fig. 17). Le miroir antireflet IR est remplacé par un miroir torique et un réseau. Le réseau est un monochromateur du faisceau harmonique et le miroir torique est mis dans la configuration 2F-2F pour focaliser le faisceau harmonique sur l'échantillon. Un cristal BBO peut être

inséré dans le trajet de faisceau IR (ω) devant la cellule de gaz pour générer un faisceau à 400 nm (2ω), donc une génération d'harmonique de « $\omega+2\omega$ ».

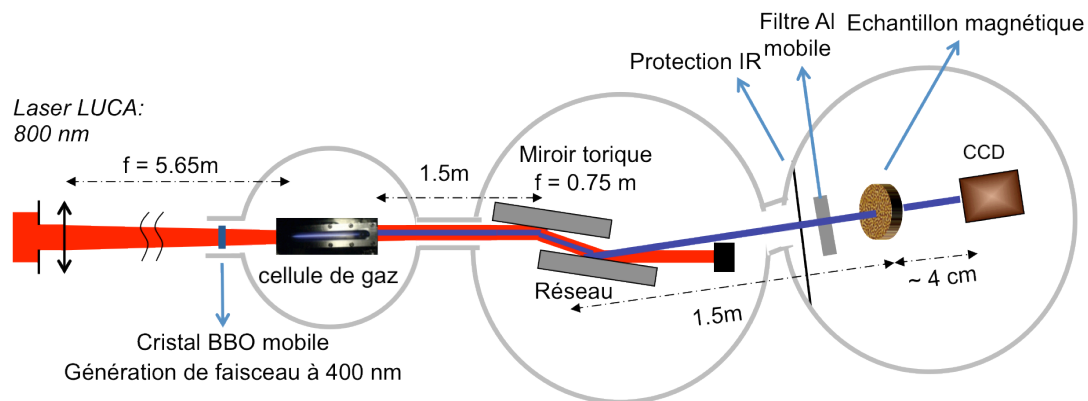


Figure 17. Setup de la ligne d'harmonique dans la configuration spectrale.

Plusieurs échantillons magnétiques sont étudiés dans cette configuration avec les harmoniques de H27 à H51. Les échantillons varient en épaisseurs de matériau et en composition de matériau. L'efficacité de diffusion magnétique (D) est ensuite déterminée par la relation suivante :

$$D \sim T*(E*d)^2*(\Delta\beta^2+\Delta\delta^2)$$

Où T est la transmission d'échantillon, E est l'énergie de photon et d est l'épaisseur d'échantillon. Fig. 18 présent un exemple typique de l'efficacité de diffusion mesurée. La courbe noire est la valeur théorique de l'efficacité de diffusion magnétique du Cobalt. Les points rouges sont les efficacités mesurées correspondant aux harmoniques impaires. Les points bleus sont les harmoniques paires. Ces points sont mesurés par moyen statistique d'accumulation de plusieurs centaines tirs. Les valeurs mesurées correspondent bien à la courbe théorique du Cobalt, sauf le petit pic autour de H33 qui n'est pas prévu dans l'expérience. Ce pic correspond au seuil N de Palladium à 51 eV. D'après les experts de magnétisme, les couches de Palladium dans les échantillons ne doivent pas être magnétiques selon leurs expériences. Cette mesure de l'efficacité de diffusion magnétique qui résolve les seuils de Cobalt et de Palladium peut être expliqué par la phénomène que les couches Palladium sont partiellement ou entièrement magnétisées par les couches Cobalt adjointes. On peut aussi déduire de ces mesures que les efficacités à H38 et H39 sont au même niveau. Par contre, le signal de la génération d'harmonique de « $\omega+2\omega$ » est en général un ordre de grandeur inférieur à la génération d'harmonique classique. Donc, l'harmonique H39 est le meilleur candidat pour faire l'imagerie des nano-domaines magnétiques.

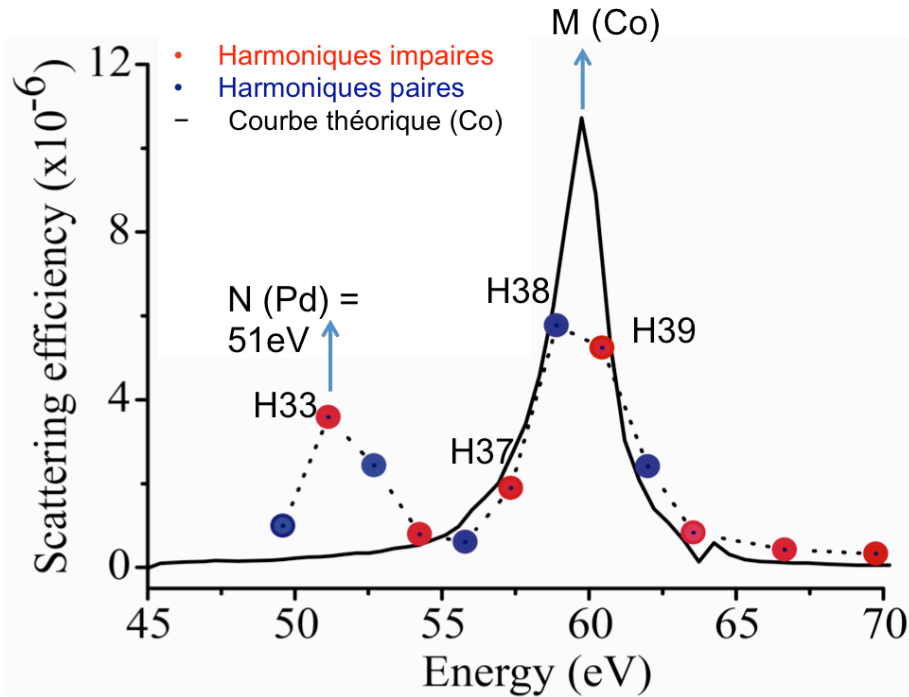


Figure 18. L'efficacité de diffusion magnétique mesurée avec les harmoniques de H31 à H47 (harmoniques paires et impaires). La courbe noire est l'efficacité théorique du Cobalt. Le pic à H33 correspond au seuil N de Palladium à 51 eV. L'échantillon ciblé est $[\text{Co}(4 \text{ \AA})/\text{Pd}(6 \text{ \AA})]_{20}$ avec une orientation alignée des nano-domaines magnétiques.

Une étude de diffusion magnétique en simple tir est ensuite effectuée en utilisant l'harmonique H39. Fig. 19 présente une figure typique de diffusion magnétique en simple tir à H39. L'échantillon ciblé est $[\text{Co}(4 \text{ \AA})/\text{Pd}(8 \text{ \AA})]_{15}$ avec orientation alignée de nano-domaines magnétiques. La fréquence zéro de la diffusion est bloquée par un « beam block » pour protéger la caméra CCD. Les deux lobes centre-symétriques sont les diffusions magnétiques de l'échantillon. On peut déduire la taille caractéristique et sa dispersion à partir de la fréquence (q) et la dispersion (Φ) des lobes de diffusion magnétiques (Fig. 19a). Pour cet échantillon, la taille de nano-domaines est mesurée à $62.5 \text{ nm} \pm 7 \text{ nm}$ pour accumulation de 400 tirs et à $62.5 \text{ nm} \pm 10 \text{ nm}$ pour le simple tir, correspond bien à la valeur estimée de l'image MFM de l'échantillon ($70 \text{ nm} \pm 5 \text{ nm}$). La comparaison de profils des lobes enregistrés en accumulation de 400 tirs et en simple tir (Fig. 19e,f) montre la robustesse de notre mesure en simple tir. Notons que la qualité de focalisation du miroir torique ne satisfait pas la condition d'« oversampling » de CDI, donc les figures de diffusion enregistrées en configuration spectrale ne sont pas qualifiées pour la reconstruction d'image de nano-domaines magnétiques. L'imagerie des nano-domaines magnétiques sera réalisée en configuration diffraction (avec la parabole multicouche). L'expérience de l'imagerie est en cours.

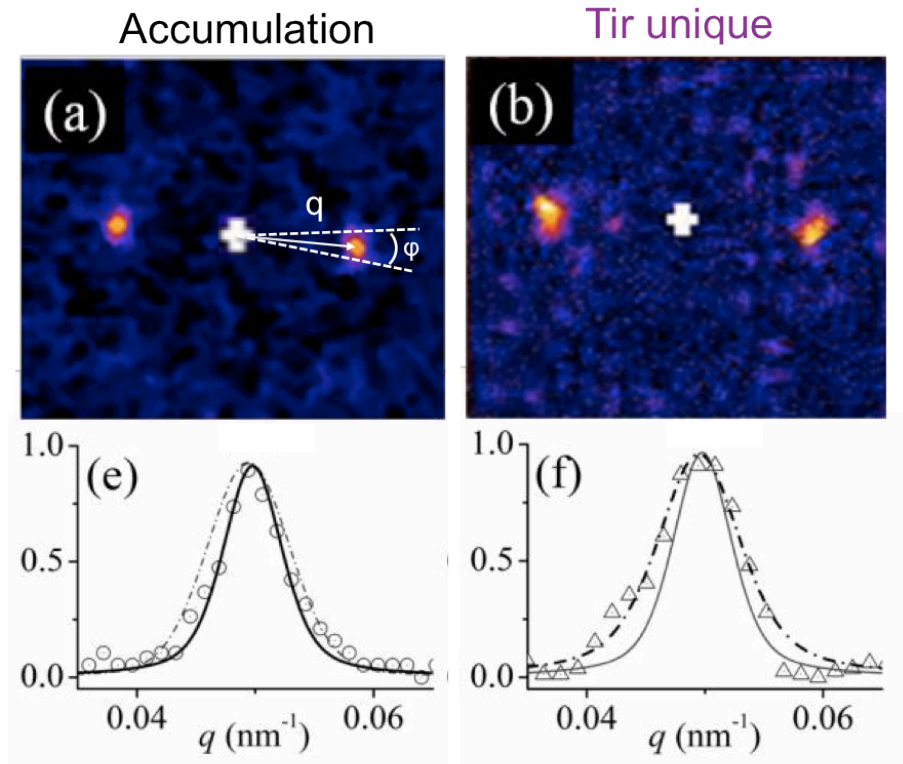


Figure 19. (a,b) Figures de diffusion magnétique de l'échantillon $[\text{Co}(4 \text{ \AA})/\text{Pd}(8 \text{ \AA})]_{15}$ en accumulation de 400 tirs et en simple tir. (e,f) Les profils des lobes de diffusion en fonction de fréquence spatiale.

Conclusion et perspectives

L'objectif de ce travail de thèse est de développer et analyser différentes techniques d'imageries sans lentilles en utilisant les impulsions XUV ultrabrèves et de démontrer une première application physique sur la ligne d'harmonique. Le travail est composé en principe de trois grandes axes : 1) Le développement de la ligne de lumière, 2) Etude des techniques d'imagerie : CDI, FTH et HERALDO, 3) Démonstration d'une première application dans le domaine nanomagnétisme. A la fin de la thèse, on a établi une ligne d'harmonique à flux intensif et impulsion femtoseconde avec stabilité, reproductibilité et solidité. Les démonstrations des techniques CDI et HERALDO montrent la capacité de visualiser les objets micrométriques avec les résolutions spatiales nanométriques (sub 100 nm) et temporelle (20 fs) inégalées. La flexibilité en longueur d'onde de la ligne d'harmonique est puissante pour résoudre les phénomènes physiques avec une large bande spectrale, par exemple l'efficacité de diffusion magnétique des échantillons multicouches de nano-domaines magnétiques. Les démonstrations de l'imagerie en simple tir (20 fs) nous permettent d'ouvrir la porte de l'imagerie résolue en temps à l'échelle femtoseconde.

Les perspectives de ce travail de thèse sont portés sur trois parties : 1) Augmenter le flux du faisceau harmonique par une génération d'harmonique dans un gaz pré-ionisé. Et caractériser la cohérence du faisceau avec une version avancée de trous d'Young. 2) Etudier les techniques d'imagerie 3D: l'ankylographie et stéréo 3D. 3) Visualiser les aimantations et/ou les désaimantations de nano-domaines magnétiques avec une résolution spatiale nanométrique à l'échelle femtoseconde. Autres applications physique, biologiques ou chimiques sont aussi les bienvenues.