Lasers à rayons X

P. Jaeglé

*Laboratoire de Spectroscopie Atomique et Ionique, URA 775,
Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France*

Résumé : Ce texte résume d'abord les conditions générales nécessaires à l'obtention d'amplification du rayonnement dans le domaine des rayons X. Il décrit les principaux mécanismes de pompage des ions multichargés au sein de plasmas de grande température puis il expose les conditions de saturation de l'émission laser et décrit les moyens de les atteindre à l'aide de demi-cavités à miroir multicouche. Le texte présente le laser à 21,2 nm fonctionnant au Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses (Palaiseau) et compare les performances de ce laser à celles de deux autres systèmes installés dans des laboratoires étrangers. Le laser à 21,2 nm constitue une source X d'une brillance exceptionnelle. D'autre part la cohérence du rayonnement apparaît sur des figures de diffraction dont on donne un exemple et l'on montre que le faisceau des lasers X-UV peut être polarisé linéairement avec un taux de polarisation proche de 100%. Enfin l'extension de ces lasers vers des longueurs d'ondes encore plus courtes est brièvement discutée et quelques exemples de nombreuses applications potentielles sont données en conclusion.

1. INTRODUCTION

Les lasers se sont développés d'abord dans le domaine visible puis se sont étendus à toute la gamme de longueurs d'onde comprises entre l'ultraviolet d'environ 150 nm et l'infrarouge, un peu au delà de 10 μm . A cause de la relation bien connue d'Einstein entre les coefficients d'émission stimulée - qui est le processus dominant dans l'effet laser - et d'émission spontanée, l'idée de l'impossibilité du laser à des longueurs d'onde aussi courtes que celles des rayons X a longtemps prévalu. En effet diviser par 10 la longueur d'onde revient à réduire d'un facteur 1000 le rapport entre les coefficients d'émission stimulée et spontanée. On en déduisait qu'aux très courtes longueurs d'onde l'émission spontanée l'emporterait nécessairement sur l'émission stimulée, ce qui excluait la possibilité de l'émission laser.

Toutefois, si l'on considère plus attentivement un milieu formé d'un très grand nombre d'émetteurs, l'intensité du rayonnement qu'il est susceptible d'émettre n'est pas proportionnelle aux coefficients d'Einstein. L'intégration de l'équation différentielle de transport du rayonnement donne en effet une expression de la forme :

$$I = S (1 - \exp kl) \quad (1)$$

où l est la longueur de parcours dans le milieu émetteur. Pour une émission provenant d'une seule transition, la fonction source, S , est indépendante de la probabilité de transition et, par conséquent, des coefficients d'Einstein. k est proportionnel au coefficient d'Einstein pour

l'absorption et à la différence des populations du niveau inférieur et du niveau supérieur de la transition considérée. Le signe de k est fixé par celui de la différence de population entre les deux niveaux. Si les populations sont inversées, c'est à dire si le niveau supérieur est plus peuplé que le niveau inférieur, k est négatif. En changeant S en $-S$ et en définissant le coefficient de gain par $G = -k$, (1) peut être réécrit :

$$I = S(\exp G l - 1) \quad (2)$$

L'expression (1) décrit le comportement de l'intensité d'un rayonnement réabsorbé par le milieu et on voit aisément qu'elle fait tendre l'intensité vers une limite supérieure, S , lorsque l et k croissent. L'expression (2) décrit au contraire le comportement de croissance exponentielle qui est celui de l'intensité des lasers. Or, quelle que soit la longueur d'onde du rayonnement qui se propage, le passage de (1) à (2) ne dépend que de l'existence ou non d'une inversion de populations. En s'en tenant à l'essentiel, on peut donc dire que, pour réaliser un laser en rayons X, il suffit de savoir créer une inversion de populations entre les niveaux inférieur et supérieur d'une transition dont le rayonnement se produit dans le domaine X.

Pour y parvenir on se tourne vers les ions multichargés qui sont émetteurs de rayons X car les spectres optiques de ces ions sont d'autant plus décalés vers les UV puis vers les X que la charge des ions est plus élevée. Ces ions apparaissent dans les *plasmas* de haute température où la fréquence et l'énergie des collisions entre atomes dépouillent ceux-ci d'une partie de leurs électrons. Le plasma est formé des ions atomiques restants et du gaz d'électrons libres arrachés aux atomes. La réalisation des lasers X repose donc sur la création d'inversions de populations entre les niveaux d'ions multichargés présents dans les plasma chauds [1].

Le plasma doit avoir une densité suffisante pour que l'amplification puisse se produire sur une distance compatible avec la dimension d'un laboratoire. Ceci exclut les plasmas réalisés, par exemple, dans les machines à confinement magnétique, comme les TOKOMAKS, où le libre parcours des photons est de plusieurs centaines de mètres. Au contraire, dans un plasma produit par impact laser sur cible solide, la densité plus élevée de 6 à 8 ordres de grandeur rend l'amplification décelable après quelques millimètres de parcours seulement.

Tous les résultats importants obtenus jusqu'à présent pour la réalisation de lasers X reposent sur l'utilisation de plasmas produits *sous vide* par des lasers pulsés de grande puissance [2,3]. Ces plasmas sont susceptibles de fournir un coefficient de gain, G , allant de 1 à 5 cm⁻¹. L'intensité de saturation a déjà été atteinte pour plusieurs raies laser de longueur d'onde comprises entre 15 et 25 nm, c'est à dire dans le domaine X-UV. La limite d'observation du gain se situe aujourd'hui vers la longueur d'onde de 4 nm. Précisons que la durée d'amplification par les plasmas est du même ordre que celle de l'impulsion du laser "pilote" produisant ce plasma. Elle va d'une centaine de picosecondes à 1.5 nanoseconde.

Des tentatives, non couronnées de succès, ont été faites pour utiliser des plasmas de décharge produits selon la technique dite "Z-pinch". Des résultats encourageants ont été cependant obtenus récemment avec des décharges à l'intérieur de capillaires [4].

Un problème difficile se pose pour la réalisation des dispositifs optiques, notamment des miroirs, qu'incorpore en général la construction de lasers. En effet l'optique des rayons X est caractérisée par un indice de réfraction voisin de l'unité, avec une valeur qui est, en fait, un peu inférieure à 1. Le coefficient de réflexion des matériaux en incidence normale est de l'ordre de 10⁻⁴, ce qui exclut la réalisation de cavités avec des miroirs ordinaires. La réflectivité peut être accrue par le choix de l'incidence rasante mais le nombre de réflexions nécessaires pour fermer la cavité est alors trop grand pour que le dispositif reste efficace. On peut heureusement utiliser des miroirs interférentiels multicouches formés de quelques dizaines de paires de couches minces, par exemple de molybdène et de silicium, dont l'épaisseur est voisine du 1/4 de la longueur d'onde réfléchi. Leur coefficient de réflexion sous incidence normale est en général compris entre 20% et 60%.

Nous décrivons ci-dessous le principe du pompage des lasers X-UV. Nous expliquerons ensuite comment s'obtiennent les grandes intensités, notamment grâce à l'emploi de "demi-cavités" à miroir multicouche. Le laser à plasma de zinc, réalisé au Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses, à Palaiseau, sera présenté comme exemple avec un bref exposé des problèmes

relatifs à la polarisation et à la cohérence du rayonnement. Une brève revue d'applications possibles des lasers X-UV terminera cette présentation.

2. MÉCANISMES DE POMPAGE DES LASERS EN RAYONS X

L'expérience a permis d'identifier deux types de mécanismes de pompage des plasmas produits par laser. Ils ont en commun de ne pas nécessiter d'apport d'énergie - sous forme de rayonnement ou de particules - autre que celui nécessaire au chauffage de la matière en vue de la production du plasma. Ils utilisent en effet la propriété des plasmas-laser d'être hors d'équilibre et fortement dissipatifs au sens de la thermodynamique. Le pompage dépend de la nature du matériau et du mode de production du plasma, notamment de sa température.

La figure 1 montre le principe de la production de la colonne de plasma chargée d'amplifier le rayonnement. Le faisceau d'un laser verre/Nd ($\lambda = 1.06$ ou $0.53 \mu\text{m}$) est focalisé sur une cible solide au moyen d'une combinaison de lentilles à géométrie cylindrique. La longueur du plasma est de 1 à quelques cm. Sa dimension, dans la direction perpendiculaire à la cible, est de quelques centaines de microns. On peut voir, à droite de la figure 1, des courbes représentant l'allure de la variation de la densité électronique et de la température du plasma en fonction de la distance à la cible. En pratique la production du plasma donne lieu à de nombreuses variantes dépendant du nombre des faisceaux à focaliser et de la structure de la cible qui peut être soit une plaque plane et massive, soit un mince ruban déposé sur un support massif, soit aussi une feuille très mince déposée sur un support mince soit encore une fibre de petit diamètre.

Figure 1 : Principe de la production d'une colonne de plasma par focalisation cylindrique d'un faisceau laser sur une cible solide. Le rayonnement du laser "pilote" vient de la droite. Sa focalisation cylindrique sur la cible crée le plasma. Le faisceau laser X se propage dans l'axe de la colonne de plasma. Les courbes de gauche donnent l'allure des variations de la densité et de la température du plasma lorsqu'on s'éloigne de la cible.

2.1 Pompage collisionnel des ions néonoïdes et nickeloïdes

Dans un plasma formé d'ions néonoïdes, c'est à dire d'ions comportant 10 électrons liés, les collisions entre les électrons libres du plasma et les ions dans l'état fondamental $1s^2 2s^2 2p^2$ produisent un grand nombre de transitions vers les niveaux 3s, 3p, 3d. La figure 2 montre le diagramme atomique correspondant à ces transitions. De plus la désexcitation radiative $3p \rightarrow 2p$ est interdite alors que la désexcitation radiative $3s \rightarrow 2p$ est très rapide. Il en résulte l'apparition d'une inversion de populations entre les niveaux 3p et 3s. Cette inversion est renforcée par les cascades collisionnelles et radiatives du niveau 3d vers le niveau 3p. Tel est, en substance, le mécanisme de pompage par collision. Il conduit à des coefficients de gain généralement compris entre 2 et 5 cm^{-1} .

Figure 2 : Schéma de principe du pompage d'ions néonoïdes par collision entre les électrons libres et les ions du plasma. Les flèches montantes représentent des excitations collisionnelles. La flèche descendante, en bas à gauche, représente la désexcitation radiative des niveaux 3s.

La réalité du pompage est plus complexe parce que les niveaux mentionnés se subdivisent en sous-niveaux qui donnent lieu à plusieurs raies lasers dont les intensités relatives varient selon les éléments et les conditions expérimentales. D'autre part les recombinaisons "diélectroniques" qui s'effectuent à partir de niveaux autoionisants des ions néonoïdes contribuent à la population de certains des niveaux supérieurs des raies lasers et font intervenir la densité du plasma, non seulement en ions néonoïdes, mais aussi en ions de charge une fois supérieure, c'est à dire en ions fluoroides. Enfin la création d'inversions de populations n'a lieu que dans une plage déterminée de densité et de température du plasma et dépend par conséquent de l'évolution hydrodynamique de celui-ci. Le pompage se produit dans une région de densité de $10^{20} - 10^{21}$ électrons par cm^{-3} . La création d'ions néonoïdes émettant dans la région de 15 à 25 nm nécessite, selon le matériau utilisé, une température de 500 à 800 eV. ($1 \text{ eV} \approx 1.1 \cdot 10^4$ degrés). Le flux de chauffage, apporté par le rayonnement du laser pilote, doit être de $10^{13} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Un mécanisme analogue permet le pompage des ions nickeloïdes qui possèdent 28 électrons liés au lieu de 10. Les transitions lasers correspondent alors aux niveaux 4d-4p à la place de 3p-3s. Des ions d'or nickeloïdes (Au^{51+}) ont ainsi permis d'amplifier du rayonnement dans la région de 4 nm. Le chauffage du plasma nécessitait dans ce cas une puissance extrêmement élevée du laser pilote.

Le pompage collisionnel est bien compris dans ses grandes lignes [5]. Il fait l'objet de modélisations numériques précises nécessitant l'emploi de gros calculateurs. On a observé cependant que, de façon non prévue par le calcul, certaines raies lasers ne sont émises que si l'impulsion principale du laser pilote est précédée, plusieurs nanosecondes auparavant, d'une pré-impulsion de faible énergie [6]. Ce résultat, d'une grande importance pratique, n'est pas complètement expliqué par la théorie.

2.2 Pompage par recombinaison des ions lithiumoïdes et hydrogéoïdes.

Les recombinaisons entre les électrons libres et les ions qui se produisent en grand nombre au moment où le plasma se refroidit créent des inversions de population. Supposons par exemple un plasma de carbone. Chauffé à 400 eV environ il contient en majorité des noyaux atomiques nus. A la fin de l'impulsion du laser pilote le plasma se refroidit rapidement. Des électrons libres sont capturés par les noyaux qui se transforment alors en ions "hydrogéoïdes"

- à un seul électron lié - de carbone. Les captures ont lieu préférentiellement sur des niveaux de grande énergie - proches de la limite d'ionisation de l'ion hydrogéoïde - alors que les niveaux de moindre énergie, moins rapidement peuplés, ont en même temps une forte probabilité de désexcitation radiative. Ainsi peuvent se créer les inversions de population entre niveaux supérieurs et inférieurs. Elles apparaissent notamment entre les niveaux de nombre quantique 3 et 2 qui, dans le cas du carbone, donnent une raie laser à 18.2 nm.

Figure 3 : Schéma de pompage par recombinaison du plasma

La figure 3 montre un mécanisme analogue dans le cas un peu plus complexe des ions lithumoides possédant 3 électrons liés. Les niveaux supérieurs de l'ion capturent les électrons par un processus à trois corps, très efficace dans un plasma de forte densité électronique. Des cascades collisionnelles et radiatives transfèrent les populations vers des niveaux situés un peu plus bas, de nombre quantique principal 5 et 4. Les inversions de population apparaissent entre les niveaux 5 et 3, 4 et 3, mais aussi 4 et 5. Celles-ci ont été étudiées pour de nombreux éléments tels que l'aluminium, le silicium, le calcium et le titane. Pour les ions lithumoides le flux de chauffage est inférieur d'un ordre de grandeur à celui demandé par le pompage collisionnel des ions néonoïdes.

Le pompage par recombinaison demande donc moins d'énergie du laser pilote que le pompage collisionnel. Il peut en principe être étendu à des longueurs d'onde inférieures à 1 nanomètre, plus courtes par conséquent qu'avec le pompage collisionnel dont la limite est à environ 3 nm. Mais ce mode de pompage fournit des valeurs de coefficients de gain plus faibles que le précédent. Il nécessite donc des colonnes de plasma plus longues alors que l'on ne sait pas encore bien maintenir la valeur du gain sur une longueur supérieure à 1-2 cm. Les recherches se poursuivent pour améliorer l'homogénéité du plasma et pour augmenter le coefficient de gain en réduisant à quelques picosecondes la durée d'impulsion du laser pilote.

De nombreux autres mécanismes de pompage ont été suggérés mais ils n'ont pas donné jusqu'à présent de résultats probants. C'est le cas par exemple du pompage par photo-excitation résonnante pour lequel on cherche à réaliser le pompage optique d'un plasma au moyen du rayonnement d'un autre plasma. Des recherches très actives se développent par ailleurs sur l'utilisation de lasers pilotes à impulsions ultracourtes (100 - 300 fs) [7]. Ceux-ci permettraient, en cas de succès, de réaliser des lasers X compacts, à haut taux de répétition.

3. LASERS X DE FORTE BRILLANCE

On désigne souvent par amplification d'émission spontanée (A. S. E.) le mécanisme d'émission obéissant à la loi exprimée par la relation (2). La croissance de l'intensité est exponentielle en fonction de la longueur du plasma jusqu'à ce qu'apparaisse la saturation de l'émission. Un laser X-UV de forte brillance peut être réalisé sans autre composant que le plasma amplificateur lui-même à la condition que le facteur de gain, G_l , puisse être augmenté jusqu'au point où l'intensité approche la valeur de saturation. Nous verrons que cela n'est pas toujours possible en l'absence de cavité. La réalisation de "demi-cavités", comportant un seul miroir, apporte une solution à ce problème.

3.1 Saturation de l'émission laser

Le coefficient de gain qui intervient dans l'expression (2) de l'intensité due à l'A.S.E. s'exprime en fonction de la différence entre les populations N_u du niveau supérieur et N_l du niveau inférieur de la transition laser par la relation :

$$G = \left(N_u - \frac{g_u}{g_l} N_l \right) \frac{A_{ul} \lambda^4}{8\pi c} \frac{1}{\Delta\lambda} \quad (3)$$

où g_u et g_l sont les poids statistiques des niveaux, A_{ul} est la probabilité d'émission spontanée de la transition, λ est la longueur d'onde, $\Delta\lambda$, la largeur spectrale de la raie.

$$\Delta N = N_u - \frac{g_u}{g_l} N_l \quad (3bis)$$

est la densité d'inversion de populations.

La figure 4 montre schématiquement la transition, $u \rightarrow l$. Le niveau supérieur u est peuplé, comme on l'a vu (§ 2-1), par les collisions des ions avec les électrons libres. Soit τ le temps caractéristique de création (ou de restauration) de l'inversion de populations entre les niveaux u et l . Les mécanismes de peuplement du niveau u sont en compétition avec la dépeuplement d'autant plus rapide que l'intensité du rayonnement augmente. En effet chaque photon désexcite le niveau u avec une probabilité proportionnelle à l'intensité I et au coefficient d'Einstein B_{ul} . Il existe un seuil d'intensité au delà duquel l'inversion de populations ne peut plus être maintenue par les mécanismes de pompage. La diminution de l'inversion de populations se traduit par celle du coefficient de gain (relations 3). Il y a alors "saturation" de l'émission laser. Celle-ci se constate expérimentalement par le changement de la loi de croissance de l'intensité en fonction de la longueur du plasma qu'exprime la relation (2). Au delà de la longueur de plasma pour laquelle la saturation est atteinte, la croissance de l'intensité cesse d'être exponentielle. Nous en verrons un exemple au paragraphe suivant. On montre que le seuil de saturation correspond à la valeur du facteur de gain $G_{I_{sat}}$ donnée par [8] :

$$\exp G_{I_{sat}} = 4\pi \left(1 - \frac{N_l}{N_u} \frac{g_u}{g_l} \right) \frac{\alpha}{A_{ul} \tau \Theta} \quad (4)$$

A_{ul} et τ ne peuvent pas être déterminés directement. On utilise des valeurs obtenues par des calculs atomiques et des calculs de cinétique de population. Θ est l'angle solide du faisceau laser. α est le facteur de rétrécissement de raie dont la valeur est proche de 4 à la saturation. L'ordre de grandeur de $G_{I_{sat}}$ est de 15. On obtient alors $10^{12} - 10^{14}$ photons par impulsion du laser X, soit en quelques centaines de picosecondes.

Figure 4 : Transition radiative entre les niveaux u et l ; A_{ul} et B_{ul} sont les coefficients d'Einstein pour l'émission spontanée et l'émission stimulée. Lorsque le champ de photons devient très grand, l'émission stimulée réduit la population N_u et par conséquent aussi le coefficient de gain G [relation(3)].

3.2 Cavités

Pour atteindre les fortes intensités qui viennent d'être évoquées il faut pouvoir augmenter le facteur de gain au moins jusqu'aux approches de la saturation. Le coefficient G étant fixé par les propriétés du milieu amplificateur, pour augmenter le facteur de gain on ne peut agir que sur la longueur du plasma. Or l'énergie nécessaire au chauffage du plasma augmente proportionnellement à sa longueur. Aussi est-il difficile d'atteindre la saturation directement de cette manière. Cela a cependant été réalisé avec le très gros laser NOVA du L.L.N.L (U.S.A.) dans le cas d'un plasma d'yttrium qui possède une forte raie laser à 15,5 nm [9].

De plus l'existence, dans le plasma amplificateur, d'un fort gradient de densité transverse (figure 1) est la cause d'une courbure du faisceau laser par réfraction (figure 5). La déviation est de 5 - 15 mrad après un parcours de 2 cm dans le plasma. Elle entraîne un déplacement transverse du faisceau de 100 - 300 μm , ce qui est du même ordre que la dimension transverse de la région amplificatrice. En d'autres termes, la réfraction tend à éjecter le faisceau de la région amplificatrice et il ne servirait à rien de chercher à augmenter la longueur du plasma au delà de la valeur qui est compatible avec le maintien du faisceau dans cette région.

a) Demi-cavités et longueur effective de parcours dans le plasma

La réflexion par un miroir multicouche placé près de l'une des extrémités du plasma permet d'allonger le trajet dans le milieu amplificateur sans augmenter la longueur réelle de la colonne de plasma. La brièveté de l'émission laser X (100 - 400 ps dans le cas du pompage collisionnel) ne permet pas en général de réaliser plusieurs aller-retour du rayonnement entre deux miroirs. En effet la distance minimum entre les miroirs est d'environ 4 cm ce qui correspond à une durée de parcours de la lumière de 133 ps. Deux aller-retour nécessitent donc plus de 500 ps ce qui est supérieur à la durée de vie de l'inversion de populations dans le plasma. C'est pourquoi on utilise en général une "demi-cavité" comportant un seul miroir. Le pompage par recombinaison permettra peut-être dans l'avenir l'utilisation de cavités complètes grâce à sa durée d'inversion plus longue. Le principe du double passage utilisant une demi-cavité est représenté sur la figure 4.

Figure 4 : Schéma de principe d'une "demi-cavité" à miroir multicouche pour laser X.

Lorsque l'on a une demi-cavité on peut définir une longueur effective, l_{eff} , du trajet du rayonnement à travers le plasma. On montre que l'on peut prendre pour définition :

$$l_{\text{eff}} = 2l + \frac{1}{G} \ln R_{\text{eff}} \quad (5)$$

où le deuxième terme représente les pertes dues à la réflexion sur le miroir. R_{eff} est un coefficient de réflexion effectif du miroir, généralement inférieur au coefficient R mesuré par réflectométrie. La valeur de R_{eff} est discutée au prochain paragraphe. La relation (5) montre que - grâce aux grandes valeurs de coefficients de gain obtenues dans les plasmas - une demi-cavité suffit à augmenter considérablement l'intensité de l'émission laser X. Si on a par exemple un coefficient de gain de 4 cm^{-1} , une longueur de plasma de 2,5 cm et un coefficient de réflexion

effectif de seulement 5%, l'accroissement d'intensité produit par le miroir est supérieur à 1000 (cela suppose évidemment que l'intensité ne dépasse pas le seuil de saturation).

L'augmentation de longueur effective due au miroir, contrairement à l'augmentation de longueur réelle du plasma, ne conduit pas à l'éjection du faisceau laser hors de la zone d'amplification. La demi-cavité doit être réglée de façon à ce que la surface du miroir soit normale à la direction du faisceau réfracté. Dès lors, aux modifications près du plasma dans l'intervalle de temps qui sépare le trajet retour du trajet aller, le retour suit exactement le même chemin que l'aller. C'est ce que l'on a représenté sur la figure 5.

Figure 5 : En haut : parcours modifié par la réfraction à travers le plasma ; on voit, à droite, le rayonnement quitter la zone amplificatrice lorsqu'on augmente la longueur parcourue. En bas : allongement du parcours sans éjection de la zone de gain, grâce à une demi-cavité.

b) Couplage miroir-amplificateur

La mesure du coefficient de réflexion des miroirs multicouches à l'aide, par exemple, du rayonnement synchrotron montre que la réflectivité s'étend dans une bande spectrale dont la largeur est approximativement 10% de la longueur d'onde centrale. Au centre, le coefficient de réflexion peut atteindre quelques dizaines de pourcent si le polissage du support est de très haute qualité. On observe cependant que le retour du faisceau laser X dans la demi-cavité s'effectue avec une perte bien supérieure à celle que laisse prévoir le coefficient de réflexion mesuré.

On doit donc utiliser un coefficient de réflexion effectif, R_{eff} , que l'on détermine en comparant les intensités du laser X avec et sans miroir, pour une même longueur de plasma. Il est évident que, pour cette mesure, le seuil de saturation ne doit pas être dépassé. Si GI est le facteur de gain sans miroir, R_{eff} est donné par :

$$R_{\text{eff}} = \frac{I_{\text{double-passage}}}{I_{\text{simple-passage}}} e^{-GI} \quad (6)$$

Cette relation est utilisable si :

$$6 < GI < 10$$

où 6 est la limite inférieure de validité des approximations faites pour établir (5) et 10 est une valeur certainement inférieure au seuil de saturation. L'expérience donne alors pour R_{eff} des valeurs inférieures de 10 fois environ au coefficient de réflexion R mesuré par réflectométrie.

Cette différence a d'abord été attribuée aux dommages causés au miroir par le rayonnement du laser. On s'est donc efforcé d'améliorer le seuil de résistance des miroirs. Ces améliorations n'ont pas produit l'effet escompté sur R_{eff} . En fait la différence observée s'explique, dans la plupart des cas, par l'imperfection du couplage géométrique entre le miroir et la zone amplificatrice du plasma. Considérons en effet la figure 6. Soit r , le rayon de la zone amplificatrice. Le faisceau réfléchi couvre, à l'extrémité du plasma côté miroir, une surface de

rayon $r' \neq r$ qui, pour r fixé, dépend du rayon de courbure du miroir, de la distance entre l'extrémité du plasma et la surface du miroir et de la longueur du plasma.

Figure 6 : Schéma montrant le défaut de couplage entre la zone amplificatrice du plasma (en grisé sur la figure) et le miroir de demi-cavité.

On peut définir un coefficient de couplage géométrique, F , par :

$$F = \left(\frac{r}{r'} \right)^2 \quad (7)$$

si $r < r'$ et $F = 1$, dans le cas contraire. On calcule alors :

$$R_{\text{eff}} = F R \quad (8)$$

La figure 7 donne un exemple de la variation de R_{eff} en fonction du rayon de courbure du miroir et de la dimension de la zone amplificatrice. On voit que R_{eff} diminue rapidement lorsque le rayon de courbure du miroir s'écarte d'une valeur optimale qui, dans le cas de la figure, est voisine de 3 cm. Il est facile de voir que le meilleur couplage se produit lorsque le centre de courbure du miroir est proche du milieu de la colonne de plasma. Plus précisément, ρ étant le rayon de courbure du miroir, on doit avoir :

$$\rho \approx d + \frac{r}{\alpha} \quad (9)$$

où α est la divergence du faisceau du laser X.

Figure 7 : Calcul du coefficient de réflexion effectif (en %) du miroir de demi-cavité, en fonction de son rayon de courbure (cm) et de la largeur de la zone amplificatrice dans le plasma (μm). Le coefficient mesuré par réflectométrie est de 40%. La longueur du plasma est fixée à 2 cm.

Comme d est petit, la condition (9) peut être difficile à réaliser en pratique. En conséquence, pour les demi-cavités fonctionnant actuellement, la valeur de $\ln R_{\text{eff}}$ dans la relation (5) est de -3 à -4 . On voit alors que pour obtenir un facteur de gain effectif G_{eff} de 15, c'est à dire pour approcher fortement le seuil de saturation, il faut que le facteur de gain G obtenu sans demi-cavité soit de 9 à 10. Les grands coefficients de gain fournis par le pompage des ions néonoïdes permettent d'atteindre ces valeurs.

4. LE LASER X DE LULI *

Les programmes de recherche sur le laser à rayons X ont été jusqu'à présent fortement dépendants de l'énergie des lasers disponibles pour produire le plasma amplificateur. A durée d'impulsion comparable (~ 1 ns) l'énergie des machines existantes dans le monde se distribue entre 0,2 kJ et une dizaine de kJ. L'intervalle entre deux tirs varie d'une quinzaine de minutes pour les petites machines à plus de deux heures pour les plus grosses. Il faut savoir que ces machines ont été construites, non pour pomper des lasers X, mais pour étudier le confinement inertiel des plasmas et son application à la fusion thermonucléaire. Leurs spécifications ne sont donc pas optimisées pour une utilisation comme lasers pilotes de lasers à rayons X.

Le laser de LULI (Palaiseau, France) délivre 0,4 - 0,5 kJ en 0,6 ns. L'énergie est répartie en 6 faisceaux de 90 mm de diamètre. Le flux de chauffage disponible n'atteint la limite indiquée plus haut pour le pompage collisionnel (& 2-1) qu'à la condition d'utiliser simultanément les 6 faisceaux. L'énergie délivrée par un seul faisceau a cependant permis de nombreuses études sur le pompage par recombinaison [10]. Une installation récemment réalisée, visible sur la photographie de la figure 8, permet d'utiliser toute l'énergie du laser. Cette installation a été utilisée avec succès à partir de 1993 pour réaliser un laser à pompage collisionnel, fonctionnant à l'intensité de saturation, à la longueur d'onde de 21,2 nm, dans un plasma de zinc néonoïde (Zn^{20+}) [11].

Figure 8 : Le laser X de LULI ; la photographie montre la chambre d'interaction et la configuration d'arrivée des 6 faisceaux du laser à 1.06 μm de LULI.

* Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France;

4.1 Raies laser du zinc néonoïde

L'ion Zn^{20+} possède trois raies laser principales, correspondant aux transitions $2p^5 3p (1/2, 1/2)_{J=0} - 2p^5 3s (1/2, 1/2)_{J=1}$, à 21,2 nm, $2p^5 3p (3/2, 3/2)_{J=2} - 2p^5 3s (3/2, 1/2)_{J=1}$, à 26,2 nm et $2p^5 3p (1/2, 3/2)_{J=2} - 2p^5 3s (1/2, 1/2)_{J=1}$ à 26,7 nm [12]. On peut voir ces trois raies sur la densitométrie photographique de la figure 9. Ce spectre a été obtenu avec un spectrographe à réseau concave sous incidence rasante (montage de Rowland). La longueur de la colonne de plasma est de 2 cm.

Figure 9 : Photographie du spectre des raies lasantes du zinc néonoïde à 21,2, 26,2 et 26,7 nm. Leur intensité est à comparer avec celle des nombreuses raies d'émission spontanée visibles dans le rayonnement de fond.

Les principales mesures effectuées sur ces raies portent sur le coefficient de gain, sur la durée des émissions, sur la divergence du rayonnement, sur les angles de réfraction ainsi que sur la région émettrice du plasma.

Il est important de noter à ce propos que la région émettrice n'est pas la même pour la raie à 21,2 nm ($J=0-1$) et pour les raies à 26,2 et 26,7 nm ($J=2-1$). La première est émise par une mince couche de plasma, très proche de la cible. Son maximum d'intensité provient en effet d'une zone située à 20 - 30 μm de la surface de la cible et la raie disparaît lorsque la distance est supérieure à 50 μm . Au contraire, les raies à 26,2 et 26,7 nm ont leur maximum d'émission à 100 μm de la cible et leur émission s'étend jusqu'à plus de 250 μm . D'autre part la durée d'émission à 21,2 nm est d'environ 100 ps ce qui est trois fois plus court que les durées observées pour les raies à 26,2 et 26,7 nm. Ces différences, bien reproduites par les calculs [13], correspondent à des différences dans le détail du mécanisme de pompage de chacune des raies. L'optimum de pompage n'a pas lieu dans les trois cas pour les mêmes valeurs de densité et de température de plasma.

Ces différences ont une conséquence pratique très importante. On observe en effet que la raie $J=0-1$ à 21,2 nm, quoique prévue par le calcul avec l'intensité que lui montre la figure 9, n'est pas émise si l'on ne prend pas la précaution de faire précéder l'impulsion du laser pilote d'une petite *pré-impulsion* - ou d'une série de pré-impulsions - dont l'énergie est environ mille fois plus faible que celle de l'impulsion principale et qui doit parvenir à la cible plusieurs nanosecondes avant elle. Les caractéristiques de cette pré-impulsion peuvent dépendre des conditions expérimentales (structure de la cible, nature du matériau de la cible, laser pilote...) mais elle semble toujours nécessaire pour une raie de type $J=0-1$ [6]. Son rôle n'est pas encore complètement élucidé. On peut cependant remarquer que la zone d'émission de la raie $J=0-1$ étant très étroite (< 50 μm) et très proche de la cible, de petites inhomogénéités du plasma

peuvent la fractionner de telle sorte que l'amplification se trouve fortement réduite. De telles inhomogénéités sont une conséquence bien connue des défauts d'uniformité de la répartition d'intensité dans les faisceaux du laser pilote. Un petit pré-plasma disposant de plusieurs nanosecondes pour s'étaler au contact de la cible pourrait alors favoriser un chauffage plus uniforme au moment de l'impulsion principale et permettre ainsi à une amplification beaucoup plus forte de se produire.

La figure 10 montre la croissance exponentielle de l'intensité pour les trois raies en fonction de la longueur du plasma. L'impulsion principale délivre environ 350 J en 0.65 ns. Elle est précédée d'un train de petites pré-impulsions séparées les unes des autres de 10 ns et transportant une énergie inférieure à 100 mJ. Les courbes de croissance de la figure 10 sont le moyen de déterminer les coefficients de gain. On utilise pour cela la relation [14]:

$$I(l) \propto \frac{(\exp(Gl) - 1)^{\frac{3}{2}}}{(Gl \exp(Gl))^{\frac{1}{2}}} \quad (10)$$

où $I(l)$ est l'intensité intégrée sur la largeur de la raie. Cette relation tient compte du rétrécissement de la largeur de raie dû à l'amplification. On voit que, pour la raie à 21,2 nm, le coefficient de gain a une valeur remarquablement grande, proche de 5 cm^{-1} . Il est deux fois plus petit pour les raies à 26,2 et 26,7 nm. Ajoutons que la divergence est de 2,5 mrad, avec un angle de réfraction de 7 mrad, pour le rayonnement à 21,2 nm. Le profil angulaire des émissions à 26,2 et 26,7 nm est plus plat, avec une divergence d'environ 10 nm, et il montre une déviation due à la réfraction plus prononcée ($\approx 15 \text{ mrad}$).

Figure 10 : Courbes de croissance de l'intensité en fonction de la longueur du plasma pour les trois raies lasantes du zinc néonoïde. Ces courbes permettent de déterminer les coefficients de gain; ceux-ci sont indiqués sur la figure pour chaque raie.

4.2 Saturation de l'émission en demi-cavité, à 21,2 nm

On vient de voir qu'un plasma de zinc de 2 cm de longueur permet d'obtenir un facteur de gain $GI \approx 10$ à 21,2 nm. A 26,2 et 26,7 nm le facteur de gain n'est que de 5 environ. A l'aide des relations du § 3-2 il est facile de prévoir maintenant l'accroissement du facteur de gain permis par l'utilisation de demi-cavités pour ces raies. En tenant compte des pertes prévisibles dues à l'imperfection du couplage géométrique ($\ln R_{\text{eff}} = -3, -4$), la relation (5) montre que GI_{eff} doit atteindre 16 ou 17 à 21,2 nm mais seulement 6 ou 7 pour les deux autres longueurs d'onde. Par conséquent seule la première raie permet de réaliser un laser de forte brillance.

On utilise, pour la demi-cavité, des miroirs multicouches Mo/Si dont la réflectivité est voisine de 40% à 21,2 nm [15]. Leur rayon de courbure est de 13 cm. La mesure du rapport d'intensités avec et sans miroir pour une longueur de plasma de 1,5 cm indique que le coefficient de réflexion effectif R_{eff} est de 4% ($F=0,1$). La figure 11 représente l'accroissement de l'intensité en fonction du facteur de gain. Pour $GI < 10$ les points sont ceux obtenus avec un simple passage, sans le miroir (figure 10). Pour $GI > 10$ l'intensité est portée en fonction du facteur de gain effectif qui tient compte des pertes de la demi-cavité [relation (5)]. On constate que, lorsque le facteur de gain atteint sa valeur maximum de 16,4, la croissance de l'intensité n'est plus exponentielle. Ce ralentissement de croissance montre la réduction du coefficient de gain G due à la saturation de l'émission (§ 3-1).

Figure 11 : Courbe de croissance de l'intensité de la raie à 21,2 nm montrant l'apparition de la saturation - à droite sur la figure - aux fortes intensités obtenues avec la demi-cavité.

La mesure absolue du nombre de photons est alors réalisée à l'aide d'une caméra CCD "amincie" sur sa face arrière, étalonnée à l'aide du rayonnement synchrotron [16]. On obtient environ $4 \cdot 10^{13}$ photons par impulsion de 80 ps. La puissance correspondante du faisceau X est de 5 MW. Elle se propage dans un angle solide de $2,5 \cdot 10^{-5}$ stéradian. Ces valeurs font du laser à 21,2 nm de LULI l'une des plus brillantes sources de rayonnement X-UV jamais réalisée en laboratoire. C'est ce que montre le tableau 1 qui donne les principales caractéristiques de trois lasers X pour lesquels des études quantitatives précises ont été faites.

Cible	Germanium (Ge^{22+})	Zinc (Zn^{20+})	Yttrium (Y^{29+})
Laser pilote	VULCAN (G.B.)	LULI (Fr.)	NOVA (U.S.A.)
Énergie pompe	1 KJ	0.4 KJ	20 KJ
Demi-cavité	Oui	Oui	Non
Longueur d'onde	23.6 nm	21.2 nm	15.5 nm
Photons/impulsion	$5 \cdot 10^{12}$	$4 \cdot 10^{13}$	$5 \cdot 10^{14}$
Energie X-UV	0.04 mJ	0.4 mJ	7 mJ
Durée impulsion	250 ps	80 ps	200 ps
Puissance	160 KW	5 MW	32 MW
Angle solide (stérad.)	$2 \cdot 10^{-5}$	$2.5 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-4}$
Brillance ($\text{W}/\text{cm}^2/\text{stérad}$)	$1.3 \cdot 10^{14}$	$4 \cdot 10^{15}$	$1.4 \cdot 10^{15}$

Table 1 : Principales caractéristiques de trois lasers X fonctionnant par pompage collisionnel d'ions néonoïdes (réf.[17] pour le germanium, réf. [9] pour l'yttrium)

Outre leur très grande brillance les lasers X ci-dessus montrent des propriétés de cohérence. Des détails sur les méthodes utilisées pour étudier la cohérence du faisceau X peuvent être trouvés en [18] [19]. La figure 12, obtenue au cours d'un travail en coopération réunissant le laboratoire de Livermore [20] le LULI [21] et le LSAI, montre les interférences produites par le laser X de LULI sur un dispositif optique composé d'une croisée de fils et d'un miroir multicouche et situé à 50 cm de l'extrémité du laser. On voit des franges de bord d'écran et des anneaux dus à de petits défauts de la surface du miroir. Il s'agit dans les deux cas de figures de diffraction de Fresnel dont l'image est formée sur une caméra CCD au moyen d'un miroir multicouche concave.

Figure 12 : Diffraction de Fresnel produite par le laser à 21,2 nm de LULI sur une croisée de fils et sur des défauts de surface d'un miroir situés à 50 cm de l'extrémité du laser.

Il est enfin possible de polariser linéairement le faisceau du laser X. La démonstration en a été donnée au cours d'une étude sur le laser à germanium du Laboratoire Rutherford (G.B.) [22]. Les polariseurs - aussi bien que les analyseurs - sont formés de miroirs multicouches plans, inclinés à 45° , c'est à dire à l'angle de Brewster correspondant à une structure formée d'une série d'interfaces diélectriques [23]. Avec deux réflexions successives sur le même miroir on observe un taux de polarisation linéaire de $\sim 98\%$. De plus ce taux de polarisation est entièrement conservé lorsque l'on injecte le faisceau polarisé dans un deuxième plasma afin de lui faire subir une nouvelle amplification.

5. CONCLUSION

Malgré les difficultés inhérentes à leur pompage et aux particularités des lois de l'optique aux très courtes longueurs d'onde, des lasers X sont maintenant capables de fournir des faisceaux de grande brillance, cohérents et polarisés dans la région de longueur d'onde de 15 - 25 nm.

Les lasers chargés de produire le plasma amplificateur, sont des lasers pulsés de grande puissance émettant dans l'infrarouge. L'énergie minimum requise pour le pompage des lasers X a été réduite d'un facteur supérieur à 10 au cours des deux dernières années. La poursuite de cette évolution et les progrès technologiques dans la réalisation des lasers infrarouges pulsés conduiront bientôt à des installations suffisamment compactes pour pouvoir prendre place dans de nombreux laboratoires. Leur taux de répétition sera considérablement augmenté.

L'extension du laser X vers les courtes longueurs d'onde est possible avec le pompage collisionnel, jusqu'à 4 nm environ, mais demeure très coûteuse. Des progrès importants sur ce point pourraient venir du pompage par recombinaison lorsque les difficultés rencontrées pour atteindre de grandes valeurs de facteur de gain seront surmontées.

Les lasers X sont susceptibles de très nombreuses applications. L'exceptionnelle brillance du faisceau et la brièveté des impulsions en font des sources entièrement nouvelles pour les études d'interaction laser-matière, surtout pour des processus rapides et à faible taux d'émission. Ainsi le laser X peut ouvrir de nouvelles perspectives aux études de fluorescence induite par le rayonnement X qui se développent actuellement à l'aide du rayonnement synchrotron. On peut s'attendre aussi à ce que l'existence d'une source cohérente intense stimule dans un proche avenir la réalisation d'interféromètres pour le domaine X-UV. De tels interféromètres pourraient être utilisés pour l'étude de surfaces et d'interfaces ainsi que pour des études sur les gaz. La diffraction du faisceau par des particules de dimension submicronique, en suspension dans des vapeurs par exemple, pourrait être une source d'information sur leur nombre et leur taille. Dans les plasmas, par ailleurs, le faisceau d'un laser X pénètre jusqu'à une densité beaucoup plus grande qu'un faisceau visible ou UV. Aussi est-il déjà utilisé comme sonde à des densités que les sources habituelles ne permettent pas d'atteindre.

L'imagerie en rayons X est un autre domaine d'application important du laser X. L'imagerie d'échantillons biologiques vivants, en particulier la réalisation d'hologrammes destinés à l'imagerie en trois dimensions, nécessite une longueur d'onde d'environ 4 nm qui est encore difficile à obtenir, comme nous l'avons vu. D'autres applications, d'intérêt médical, sont cependant concevables avec les lasers à 20 nm. Les progrès de l'optique des rayons X permettent d'envisager de plus le développement de nouveaux microscopes pour lesquels le laser X sera une source incomparable. Ces progrès permettent aussi de considérer attentivement la possibilité d'utiliser les applications du laser X à la microlithographie.

Avec les lasers X, la longueur d'onde des lasers se trouve divisée par 10 par rapport aux lasers usuels mais de grandes zones vides subsistent entre 200 nm et 20 nm. Les processus qui se sont montrés efficaces pour la réalisation des lasers à 20 nm existent aussi à des longueurs d'onde plus grandes. Pour les utiliser il suffit en principe de diminuer le numéro atomique de l'élément qui constitue la cible produisant le plasma dans le laser X. Par conséquent rien ne s'oppose, semble-t-il, à la réalisation de nombreux lasers dans le domaine actuellement inoccupé. Dans le cas des grandes longueurs d'onde, contrairement à ce qui arrive pour aller vers les courtes longueurs d'onde, la taille, la complexité et le prix de l'installation décroissent rapidement. La principale conséquence du succès de la réalisation de lasers X pourrait donc être l'apparition prochaine d'une nouvelle génération de lasers dans l'ultraviolet lointain et extrême.

Ce travail a bénéficié d'un support financier de la DRET sous contrat N° 91/109.

Références

- [1] Dugay M., Rentzepis P. M., *Appl. Phys. Lett.*, **10** (1967) 350
- [2] Jaeglé P., Carillon A., Dhez P., Jamelot G., Sureau A., Cukier M., *Phys. Lett. A*, **36** (1971) 167

- [3] Consulter :
 - a) Proceedings of International Colloquium on "X-Ray Lasers", ed. par Jaegler P. et Sureau A., Colloque C6, 47 Journal de Physique (1986),
 - b) "X-Ray Lasers", ed. par Tallents G.J., IOP Conference Series N° 116, (IOP Publishing 1990),
 - c) "X-Ray Lasers", ed. par Fill E.E, IOP Conference N° 125 (IOP Publishing 1992),
 - d) "The Generation of Coherent X-UV and Soft-X-Ray Radiation", *J. Opt. Soc. Am. B* **4** (1987),
 - e) "X-Ray Lasers" Williamsburg 1994, ed. par Eder D. et Matthews D., AIP Proceeding, sous presse,
 - f) Elton R.C, "X-Ray Lasers", (Academic Press, San Diego, Calif., 1990).
- [4] Rocca J.J et al., in 3 - e, à paraître.
- [5] Voir par ex.: Matthews D. et al in 3 - d, p. 575.
- [6] a) Nielsen J., Moreno J.C, MacGowan B.J., Koch J.A., (*Appl. Phys. B* 57 1993) p 309
 - b) Cairn G. et al. in 3 - e, à paraître
 - c) Jaeglé P. et al., in 3 - e, à paraître
- [7] Eder D. et al., in 3 - c, p. 177
- [8] Sureau A., in 3 - c, p. 251
- [9] Da Silva L. B., MacGowan B. J., Mrowka S., Koch J. A., London R. A., Matthews D.L., Underwood J. H., *Optics Letters*, **18** (1993) 1174
- [10] Jaeglé P., Jamelot G., Carillon A., Klinsnick A., Sureau A., Guennou H., *J. Opt. Soc. Am. B*, **4** (1987) 563
- [11] Jaeglé P. et al., in 3 - e, à paraître
- [12] Rus B., Carillon A., Gauthé B., Goettkindt P., Jaeglé P., Jamelot G., Klisnick A., Sureau A., Zeitoun P., *J. Opt. Soc. Am. B*, **11**. (1994) 564
- [13] Jacquemot S., in 3 - e, à paraître
- [14] Lindford G. J., Peressini E.R., Sooy W.R., Spaeth M.L., *Appl. Opt.* **13** (1974) 379
- [15] Les miroirs ont été réalisés à l'I.O.T.A. (Orsay) par Chauvineau J.P. et son équipe
Leur réflectivité a été mesurée par Lucatorto T., Tarrio C. et Watts R. N., au N.I.S.T. (Gaithersburg, Md, U.S.A.)
- [16] Mens A., Mazataud D., C.E.A - Limeil
- [17] a) O'Neil D. M. et al. in 3 - c, p. 41
 - b) Carillon A. et al, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 2917
- [18] Trebbes J., in 3 - c, p. 265
- [19] Cairns G. et al., in 3 - e, sous presse
- [20] Da Silva L. B., Cauble R., Matthews D., Lawrence Livermore National Laboratory (U.S.A.)
- [21] Baldis H. (L.U.L.I.)
- [22] Rus B. et al., in 3 - e, à paraître ; *Phys. Rev. A*, accepté pour publication
- [23] Dhez P., *Phys. Rev (v) A* 261 (1987) 66