

Progrès récents dans la production et l'utilisation de rayonnement X au-dessus du keV par plasma femtoseconde

J.C. Gauthier, P. Audebert, S. Bastiani et J.P. Geindre

Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses, École Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

Résumé: La production d'impulsions X ultra-brèves est une retombée importante de l'étude des plasmas produits par les lasers intenses de durée sub-picoseconde. Nous présentons quelques applications de ce type de rayonnement à la fluorescence X, à la spectroscopie de flancs K et à l'étude de la dynamique d'une réaction chimique avec une résolution temporelle picoseconde.

1 Introduction

Depuis quelques années, la possibilité d'engendrer des impulsions laser ultra-brèves allant d'une dizaine de picosecondes ($10^{-11}s$) à quelques femtosecondes ($10^{-15}s$) a considérablement accru les moyens d'études dans de nombreux domaines de la physique comme la physique non linéaire, la physique des solides et la physique moléculaire [1]. En effet, les mécanismes de relaxation de vibration, de transfert d'énergie électron-réseau, et les temps de fluorescence conduisent tous à des échelles de temps nettement inférieures à la dizaine de picosecondes, pouvant aller jusqu'à la centaine de femtosecondes.

En physique des plasmas, c'est seulement très récemment que des expériences d'interaction utilisant des impulsions ultra-brèves ont été réalisées. Ceci a nécessité le développement de nouvelles techniques d'amplification [2] permettant d'atteindre des énergies allant de quelques millijoules (en régime femtoseconde) au joule (en régime picoseconde) qui autorisent la création d'un plasma sur une cible solide [3, 4].

La génération d'impulsions X ultra-brèves et intenses dans le domaine d'énergie au dessus du keV [5, 6, 7], soit à une longueur d'onde inférieure à 1.25 nanomètre, est une retombée pleine de promesses de l'étude des plasmas ainsi créés. Quant aux applications, le rayonnement X subpicoseconde produit par un plasma laser peut faire progresser de nombreux domaines tels que la diffraction X résolue en temps, l'analyse dynamique des matériaux et l'étude de la cinétique des réactions moléculaires.

2 Interaction laser ultra-bref et matière

Les mécanismes de production d'un plasma dense et chaud par un laser intense dans le régime d'impulsion sub-picoseconde ont été décrits précédemment [8, 9]. Nous rappellerons brièvement ici la physique de l'interaction laser-matière en régime ultra-bref et nous présenterons les performances actuelles des sources plasma-laser dans le domaine des rayons X.

Le concept initial d'interaction en régime ultra-rapide répond à la nécessité de déposer l'énergie du laser dans une région de densité électronique élevée. Il est fondé sur la possibilité de chauffer la cible solide plus rapidement qu'elle n'a pas le temps de se détendre durant l'interaction. La densité électronique typique dans un solide est de quelques 10^{23}cm^{-3} . Le champ électromagnétique pénètre dans le solide dense sous la forme d'une onde évanescente sur une profondeur de $\approx 10 \text{nm}$. En comparant la vitesse de détente du plasma dans le vide (de l'ordre de la vitesse du son) avec l'épaisseur de peau, il faut des impulsions laser de l'ordre de 100 femtosecondes pour que l'onde de détente du plasma dans le vide ne parcoure pas plus que la profondeur de peau pendant la durée de l'interaction. En fait, la profondeur de cible effectivement chauffée est également déterminée par la conduction thermique électronique qui évacue l'énergie vers l'intérieur de la cible. Typiquement, l'épaisseur de la région fortement chauffée est de l'ordre de quelques centaines de nanomètres, c'est à dire une dizaine de fois l'épaisseur de peau. La température électronique dans cette région peut atteindre des valeurs proches de 500eV pour des intensités laser de 10^{17}W/cm^2 .

L'émission thermique du plasma dans le domaine des rayons X est la conséquence directe de sa haute température. La durée de l'émission thermique est contrôlée par les mécanismes de refroidissement du plasma décrits précédemment. Les lasers sub-picosecondes présentent un contraste impulsif difficile à maîtriser. Le contraste d'intensité entre l'impulsion principale du laser et le "pied" de l'impulsion est typiquement limité à des valeurs de l'ordre de 10^{-6} . Pour obtenir un rayonnement X d'une durée comparable à celle de l'impulsion laser, il ne doit donc pas y avoir d'expansion de la cible sous l'effet d'une préimpulsion avant l'arrivée de l'impulsion laser principale.

Aux fortes intensités laser, les processus non linéaires tels que l'absorption résonnante [10] ou l'effet Brunel [11] convertissent une fraction importante de l'intensité laser en électrons rapides. Ces électrons, peu sensibles aux collisions, peuvent sortir de la région de formation et pénétrer en profondeur dans la cible où ils éjectent des électrons liés des couches internes des atomes ou des ions. Si le temps de ralentissement des électrons rapides est inférieur à la durée de l'impulsion laser, la durée de l'émission X des raies $K\alpha$ sera pratiquement égale à cette dernière. La position, la structure et la largeur spectrale des raies de résonance et des raies satellites diélectroniques des ions des séries isoélectroniques de l'hélium et de l'hydrogène étant sensibles aux paramètres du plasma, le spectre X nous permet de mesurer l'état d'ionisation du plasma ainsi que la densité et la température électronique [12, 13, 14, 15].

En collaboration avec le Laboratoire d'Optique Appliquée de l'École Nationale des Sciences et Techniques Avancées à Palaiseau, nous avons initié, depuis 1989, un programme

expérimental d'étude de l'émission X des plasmas créés par des lasers intenses dont la durée d'impulsion est voisine de 100 femtosecondes.

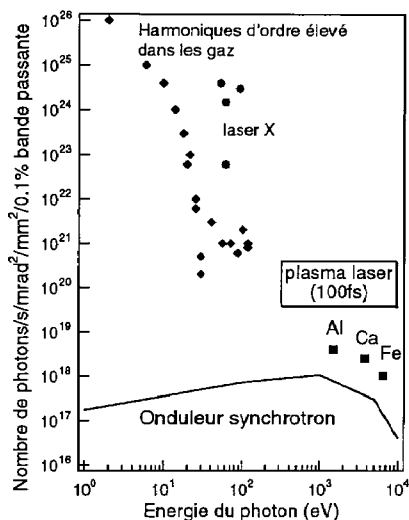


Figure 1: Comparaison de la brillance de différentes sources de rayonnement X. Génération d'harmoniques (losanges), laser X (cercles) et onduleur synchrotron (trait plein). Nos résultats expérimentaux sont représentés par des carrés.

Les études réalisées jusqu'à présent ont utilisé successivement un laser à colorants ($\lambda=620\text{nm}$, $E=2\text{mJ}$, $\tau=60\text{fs}$) et un laser Titane:Saphir ($\lambda=800\text{nm}$, $E=50\text{mJ}$, $\tau=120\text{fs}$) développés dans ce Laboratoire. La cadence de répétition de ces lasers est de 10 tirs par seconde. L'intensité sur cible peut atteindre 10^{18}W/cm^2 avec une tache focale de quelques microns de largeur à mi-hauteur, proche de la limite de diffraction. Une étude détaillée des spectres obtenus à l'aide de ces plasmas et une calibration absolue de l'intensité émise ont été menées à bien [7, 13, 14, 15]. Il nous a semblé intéressant de comparer la brillance de cette nouvelle source de rayonnement X bref et pulsé avec les sources existantes. Les résultats expérimentaux en fonction du numéro atomique de la cible (Al=13, Ca=20, Fe=26) sont reportés sur la figure 1. Nous avons comparé nos résultats à ceux d'autres sources modernes de rayonnement X: un onduleur sur une machine à rayonnement synchrotron, la génération d'harmoniques d'ordre élevé dans les gaz par des lasers en impulsions brèves et le laser X. Les unités utilisées pour la brillance sont bien adaptées aux caractéristiques de l'émission synchrotron. Du point de vue de la cadence de répétition des impulsions X, les harmoniques et les plasmas laser peuvent atteindre le kHz avec la technologie laser actuelle. Le laser X est limité à des cadences très faibles, de l'ordre du tir toutes les 30 mn. A brillance comparable, dans la gamme

d'énergie supérieure au keV, les sources X par plasma laser en impulsions brèves présentent l'avantage d'atteindre des durées d'émission sub-picosecondes comparées aux durées de l'ordre de 50 picosecondes de l'émission synchrotron. Cet avantage devrait s'avérer décisif pour les études de la dynamique de la réactivité moléculaire où un photon laser visible (pompe) excite un édifice moléculaire et un photon X (sonde) teste les changements de structure ou de conformation à différents instants après la perturbation.

3 Quelques applications

3.1 Fluorescence X

Nous avons effectué la première démonstration de l'utilisation du rayonnement X produit par un plasma laser femtoseconde en réalisant une expérience simple de fluorescence X au dessus du keV. La technique de fluorescence X est utilisée de manière courante auprès des installations de rayonnement synchrotron pour l'analyse des matériaux.

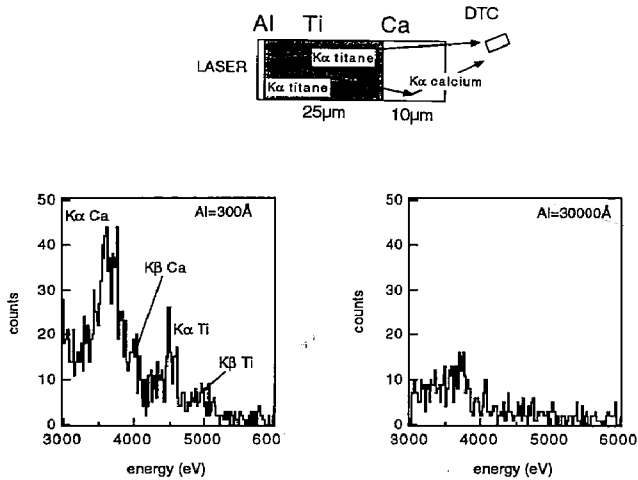


Figure 2: Schéma de la cible et signal de fluorescence X du calcium (raies $K\alpha$ et $K\beta$) photo-ionisé par le rayonnement X d'une source plasma-laser ultra-brève de titane à 4.5 keV.

Elle consiste à perturber l'échantillon avec un rayonnement X suffisamment énergétique pour photo-ioniser l'élément atomique à sonder et à détecter la fluorescence X résultante. Ne disposant pas encore de détecteurs sensibles aux rayons X avec une résolution temporelle subpicoseconde, nous n'avons pas exploité, dans cette expérience,

la brièveté de l'émission du plasma. Les résultats expérimentaux et une vue schématique du type de cible utilisé sont présentés sur la figure 2. Notre but est de mesurer la fluorescence d'un échantillon de calcium ($Z=20$) ionisé par la raie $K\alpha$ du titane ($Z=22$). L'énergie de cette raie est située au-dessus du seuil de photoionisation du calcium neutre. La source de rayonnement X est constituée d'une cible de titane, recouverte d'une fine couche d'aluminium. Les électrons rapides créés par le laser en interaction avec la couche d'aluminium pénètrent dans la couche de titane en produisant un rayonnement $K\alpha$ caractéristique à 4.5 keV. L'échantillon de calcium est placé immédiatement devant la source. L'épaisseur de la source est optimisée pour empêcher les électrons rapides d'atteindre l'échantillon. La figure 2 montre l'évolution du signal de fluorescence du calcium, mesuré à l'aide de notre caméra à DTC refroidie, lorsque l'on filtre plus ou moins l'énergie des électrons excitateurs en augmentant l'épaisseur d'aluminium. Le rapport d'intensité de la raie excitatrice (Ti) et de la raie de fluorescence (Ca) et la réduction de l'intensité de la fluorescence avec le filtrage d'aluminium sont en bon accord avec une simulation numérique par la méthode de Monte Carlo [7, 16].

3.2 Focalisation du rayonnement X et spectroscopie de flancs K

Actuellement, les meilleures performances atteintes pour l'intensité X émise par un plasma produit par un laser sub-picoseconde, exprimée en nombre de photons par tir et par unité d'angle solide, sont de l'ordre de $10^{10} - 10^{11}$ pour une durée d'impulsion de 0.5ps.

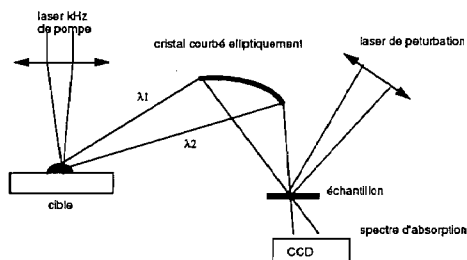


Figure 3: Schéma de principe d'une expérience de spectroscopie de flanc K ou d'EXAFS avec focalisation de la source X.

Ces valeurs sont encore insuffisantes pour pouvoir réaliser une expérience de diffraction de Laue résolue en temps sur un échantillon de molécules biologiques. Plusieurs méthodes existent pour améliorer l'absorption du laser et augmenter le rendement de conversion en rayonnement X. L'utilisation de cibles structurées sous forme de réseaux de diffraction [17, 18] permet d'atteindre ce but en couplant une partie de l'onde incidente en une onde de surface répondant aux conditions de résonance du réseau. Une autre voie consiste à focaliser le rayonnement incident [19] à l'aide d'un cristal courbé elliptiquement; la source

X et l'échantillon sont placés respectivement à chacun des foyers de l'ellipsoïde défini par la courbure du cristal. Un tel dispositif, dont le schéma de principe est donné sur la figure 3, permet de collecter un angle solide important et de focaliser le rayonnement sur une tache focale de l'ordre de $50\mu m$ [19].

Nous avons réalisé, en collaboration avec l'équipe du Professeur Förster de Iéna, une expérience de démonstration utilisant les propriétés focalisantes d'un cristal courbé, de surface toroïdale.

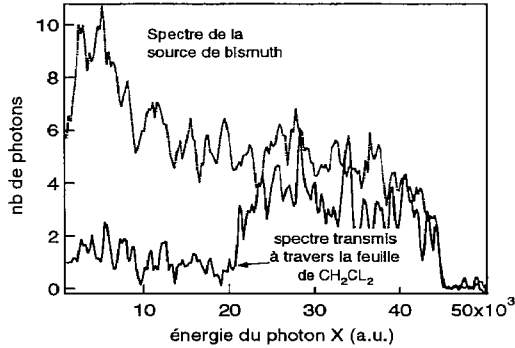


Figure 4: Absorption du spectre du bismuth à 2.8 keV au voisinage du flanc K du chlore.

Une source X obtenue à l'aide d'une cible de bismuth ($Z = 83$) irradiée par 50 mJ d'énergie laser en 120 fs est focalisée sur un échantillon de plastique chloré. Le rayonnement transmis à travers l'échantillon est détecté par une caméra à DTC. Les résultats sont montrés sur la figure 4. On voit le spectre X du bismuth dans la région spectrale $2.7 - 2.9\text{ keV}$ et le spectre transmis à travers la feuille de CH_2Cl_2 . Le flanc K du chlore à 2.83 keV est clairement visible. L'intérêt de ce type d'expérience réside dans la possibilité de perturber l'échantillon avec un laser visible ultra-rapide (voir Fig. 3) afin d'avoir accès aux modifications de la forme spectrale du flanc K et des structures voisines (XANES et EXAFS) qui renseignent sur les effets de corrélation et de conformation entre l'atome sondé et son environnement atomique.

Il faut noter qu'une expérience très récente [20] a permis d'exploiter pleinement cette idée dans le domaine de la physique moléculaire. La résonance de forme de SF_6 au voisinage du flanc K du soufre est bien connue [21]. Elle se manifeste sous la forme d'un pic d'absorption très intense à une énergie très légèrement inférieure à celle du flanc K. Elle est due à la proximité des 6 atomes de fluor (effet de conformation) au voisinage de l'atome de soufre. La photo-fragmentation d'une telle molécule est très rapide ($< 100\text{ fs}$): elle peut être étudiée par la méthode pompe/sonde décrite précédemment. Un premier laser intense produit une source X quasi-continue sur une cible de molybdène (émission de

la bande L) dont la durée d'émission mesurée (résolution temporelle $\approx 2ps$) est inférieure à $3ps$. Ce rayonnement traverse un jet de gaz de SF_6 avant détection à l'aide d'un film X. Le jet est photo-dissocié par un deuxième laser rapide, synchrone du premier, dont le délai par rapport au laser de production de la source X peut être varié arbitrairement. Les résultats [20] sont très impressionnants et montrent que la durée de dissociation est très inférieure à la durée d'émission de la source X.

4 Perspectives et évolution

Dès à présent, avec quelques millijoules d'énergie laser, nos résultats montrent que notre source est plus brillante que le rayonnement synchrotron, dans la gamme de 1 à 10 keV. Les autres sources performantes sont, quant à elles, limitées au domaine XUV. Avec sa faible durée d'impulsion, notre source est adaptée aux applications demandant une résolution temporelle meilleure que la picoseconde. Parmi celles-ci, on peut en distinguer deux qui nous paraissent particulièrement prometteuses: la mesure d'un diagramme de diffraction de Laue d'un matériau cristallin sous choc avec une résolution temporelle picoseconde et la mesure du changement de conformation moléculaire d'une molécule biologique perturbée par un rayonnement ultra-bref visible et sondée par la mesure du "décalage chimique" du seuil de photoionisation de la couche K de l'atome impliqué dans la réaction, généralement un ion métallique tel le Fer. Pour la première application, une expérience vient d'être réussie à l'European Synchrotron Radiation Facility à Grenoble qui démontre la possibilité d'enregistrer le diagramme de diffraction d'un cristal moléculaire complexe en mono-impulsion X, avec une résolution temporelle limitée à 50 picosecondes. Dans la deuxième application, le nombre de photons disponibles actuellement avec notre source conduit à un signal encore trop faible pour être détecté. Compte tenu des énergies laser bientôt accessibles et en tablant sur une augmentation du rendement de conversion X résultant d'une meilleure optimisation de l'absorption de l'énergie laser, un gain de trois ordres de grandeur sur les intensités X peut être espéré dans les prochaines années.

Remerciements: Nous tenons à saluer le travail des étudiants qui nous ont aidés à initier ce travail: A. Rousse, F. Falliès et à remercier nos collègues du Laboratoire d'Optique Appliquée de l'ENSTA/Polytechnique: G. Grillon, G. Hamoniaux, A. Dos-Santos, A. Mysyrowicz et A. Antonetti. Nos deux laboratoires sont financés par le CNRS. Ce travail a été réalisé avec le support de la DRET sous contrat 90/057 et par l'Union Européenne sous contrat "Grandes Facilités" CHGE-CT93-0021 et sous contrat "Réseaux" CHRX-CT93-0338.

References

- [1] O. Atabek et A. Giusti-Suzor "Fragmentation d'une molécule habillée", Images de la Physique (CNRS, Paris, 1994), p. 10-17.
- [2] G. Mourou et D. Umstadter, Phys. Fluids B 4, 2315 (1992).

- [3] M. M. Murnane, H. C. Kapteyn et R. W. Falcone, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **25**, 2417 (1989).
- [4] M. M. Murnane, H. C. Kaypten, M. D. Rosen et R. W. Falcone, *Science*, **251**, 531 (1991).
- [5] J.D. Kmetec, *I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics*, **28**, 2382 (1992).
- [6] J. C. Kieffer, M. Chaker, J. P. Matte, H. Pépin, Y. Côté, Y. Beaudoin, T. W. Johnston, C. Y. Chien, S. Coe, G. Mourou et O. Peyrusse, *Phys. Fluids*, **B5**, 2330 (1993).
- [7] A. Rousse, P. Audebert, J. P. Geindre, F. Fallières, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, G. Grillon et A. Antonetti, *Phy. Rev.* **E50**, 2200 (1994).
- [8] J.P Geindre, P. Audebert et J.C. Gauthier, *Ann. de Physique*, **19**, 103 (1994).
- [9] J.-P. Geindre et J.-C. Gauthier "Rayonnement X ultra-bref de plasmas produits par laser", *Images de la Physique* (CNRS, Paris, 1996), p. 128-136.
- [10] V.L. Ginzburg, "The Propagation of EM Waves in Plasmas", (Pergamon, New York, 1970), Chap. 2, p. 100.
- [11] F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 52 (1987).
- [12] O. Peyrusse, J. C. Kieffer, C. Y. Côté et M. Chaker, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **26**, L511 (1993).
- [13] R.C. Mancini, P. Audebert, J.P. Geindre, A. Rousse, F. Fallières, J.C. Gauthier, A. Mysyrowicz, J.P. Chambaret et A. Antonetti, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, 1671 (1994).
- [14] P. Audebert, J.P. Geindre, A. Rousse, F. Fallières, J.C. Gauthier, A. Mysyrowicz, G. Grillon et A. Antonetti, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, 3303 (1994).
- [15] J.C. Gauthier, J.P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, A. Dos Santos, G. Grillon, A. Antonetti, et R.C. Mancini, *Phys. Rev.* **E 52**, 2963 (1995).
- [16] A. Rousse, A. Antonetti, P. Audebert, A. Dos Santos, F. Fallières, J.P. Geindre, G. Grillon, A. Mysyrowicz, et J.C. Gauthier, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **27**, L697 (1994).
- [17] M.M. Murnane *et al.*, *Appl.Phys. Lett.* **62**, 1068 (1993).
- [18] C. Bouvet, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier, A. Héron, et J.C. Adam, "Onde de surface et absorption résonnante dans l'interaction d'un faisceau laser sur un réseau", *Rapport LULI94*, p. 38-52.
- [19] J.P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, J.C. Gauthier, A. Ya. Faenov, T.A. Pikuz, S.A. Pikuz, et T.A. Shelkovenko, *Physica Scripta* **53**, 645 (1996).
- [20] F. Ráksi, K.R. Wilson, Z. Jiang, A. Ikhlef, C.Y. Côté, et J.C. Kieffer, *J. Chem. Phys.* **104**, 6066 (1996).
- [21] J. Stöhr, "NEXAFS Spectroscopy" (Springer-Verlag, Berlin, 1992).