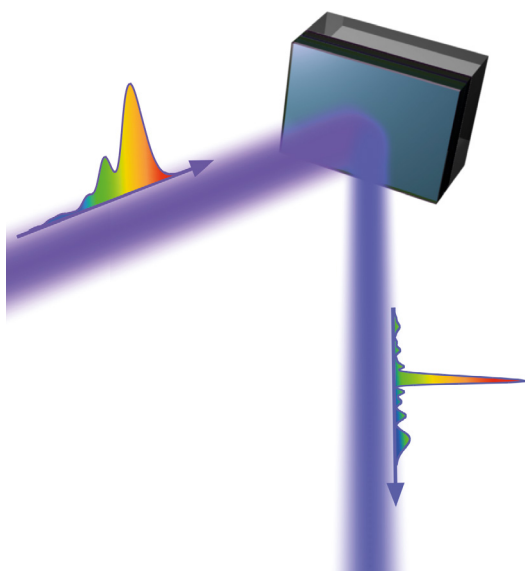


MIROIRS INTERFERENTIELS MULTICOUCHES POUR LES IMPULSIONS ATTOSECONDES

Franck DELMOTTE*, Sébastien de ROSSI, Charles BOURASSIN-BOUCHET

Université Paris-Saclay, Institut d'Optique Graduate School, CNRS, Laboratoire Charles Fabry, Palaiseau, France

*franck.delmotte@institutoptique.fr



Les impulsions attosecondes, découvertes il y a une vingtaine d'années et célébrées par les prix Nobel de physique 2023, ont suscité le développement de composants optiques spécifiques. Le spectre de ces impulsions ultrabrèves se situe dans l'extrême ultraviolet (EUV), domaine spectral où les revêtements interférentiels multicouches sont indispensables pour réfléchir efficacement la lumière. En optimisant la structure de ces empilements, il est possible de transporter et même de compresser temporellement ces impulsions ultrabrèves.

<https://doi.org/10.1051/photon/202513328>

Article publié en accès libre sous les conditions définies par la licence Creative Commons Attribution License CC-BY (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0>), qui autorise sans restrictions l'utilisation, la diffusion, et la reproduction sur quelque support que ce soit, sous réserve de citation correcte de la publication originale.

L'étude des phénomènes physiques ultrarapides est entrée dans une nouvelle ère avec l'avènement des impulsions de durée inférieure à 1 femtoseconde ($1\text{fs} = 10^{-15}\text{s}$) : l'ère de la physique attoseconde ($1\text{as} = 10^{-18}\text{s}$), célébrée par les prix Nobel de physique 2023. Des impulsions attosecondes peuvent aujourd'hui être produites dans le domaine spectral extrême ultraviolet (EUV, de 10nm à 100nm de longueur d'onde) par la génération d'harmoniques d'ordre élevé (HHG), un procédé basé sur l'interaction non linéaire d'un laser

femtoseconde infrarouge de haute puissance avec un gaz (Fig. 1). Malgré leur découverte relativement récente, les sources HHG sont déjà utilisées dans l'industrie des semi-conducteurs pour répondre à des besoins spécifiques dans le développement des optiques, des masques et des résines. Ces sources ont également révolutionné la physique fondamentale en permettant d'observer les mouvements des électrons dans la matière.

Ces recherches et ces applications nécessitent des composants optiques complexes aux spécifications exigeantes. Cependant, la réalisation de composants optiques pour

le domaine spectral EUV est rendue difficile par les propriétés optiques des matériaux à ces longueurs d'onde très courtes. D'une part, l'absorption est non nulle et augmente avec la longueur d'onde. D'autre part, la réfraction est faible et ne permet pas de réfléchir efficacement la lumière à une interface. Les revêtements interférentiels multicouches permettent de surmonter ces défis et constituent le seul moyen de réfléchir efficacement ce rayonnement à des incidences non rasantes. Obtenir des revêtements multicouches efficaces et stables est toutefois une tâche ardue car il faut maîtriser plusieurs

exigences très strictes et souvent contradictoires : un bon contraste optique, un contrôle des couches de l'ordre de la dimension atomique, des interfaces stables avec une interdiffusion minimale, de faibles contraintes mécaniques, et une bonne résistance aux processus de dégradation.

Des optiques à haute efficacité, présentant une bande passante et une phase spectrale contrôlées ainsi qu'une bonne stabilité temporelle sont des composants clés pour manipuler les impulsions ultracourtes générées par des sources cohérentes EUV/X, telles que les sources HHG ou les lasers à électrons libres [1]. Dans cet article, nous décrivons les principes fondamentaux ainsi que les principaux résultats que nous avons obtenus au cours de nos recherches sur le développement de miroirs interférentiels pour les impulsions ultrabrèves au cours de ces 20 dernières années.

PRINCIPE DES MIROIRS INTERFÉRENTIELS MULTICOUCHES POUR L'EXTRÊME ULTRAUVIOLET

L'idée d'utiliser des revêtements interférentiels multicouches en incidence normale pour réfléchir efficacement le rayonnement EUV a été proposée en 1972 par Eberhard Spiller (IBM, USA). Du fait de l'absence de matériaux transparents dans ce domaine

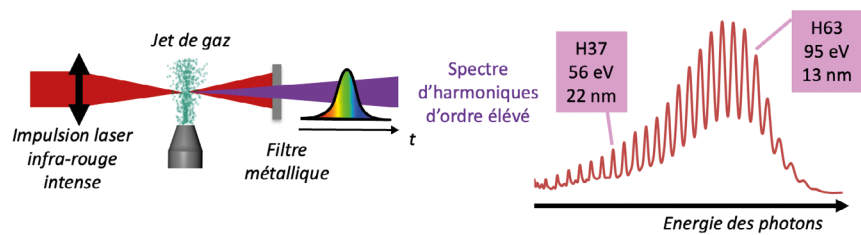


Figure 1. Principe de fonctionnement d'une source HHG et exemple de spectre EUV produit.

spectral, l'efficacité de ces revêtements reste limitée en comparaison au domaine visible/IR pour lequel les empilements multi diélectriques permettent de réfléchir plus de 99% du rayonnement incident. Il faudra attendre 1985 pour la découverte de miroirs multicouches EUV qui réfléchissent plus de 50% en incidence normale : c'est la combinaison molybdène/silicium (Mo/Si) proposée pour la première fois par Troy W. Barbee Jr (LLNL, USA). Ce résultat a ouvert la voie à de nombreuses applications dans le domaine EUV : lithographie EUV, astrophysique, microscopie, etc.

Pour un empilement périodique, seules les longueurs d'onde pour lesquels les ondes réfléchies à chaque période interfèrent constructivement sont réfléchies efficacement par le miroir. La loi de Bragg (modifiée pour tenir compte de la réfraction) permet de relier la période d de l'empilement à la longueur d'onde

λ_{Bragg} du pic de réflectivité (on parle de pic de Bragg) pour un angle d'incidence donné. En incidence normale, on a $d \approx \lambda_{\text{Bragg}}/2$. La largeur du pic de Bragg est déterminée par le nombre d'ondes qui interfèrent, c'est-à-dire par le nombre de périodes dans l'empilement (c'est l'équivalent du facteur de qualité d'un système résonnant). Ainsi, plus le nombre d'interfaces est élevé, plus le pic de Bragg sera étroit. Nous verrons dans la section suivante qu'il est nécessaire de disposer d'une large bande spectrale pour pouvoir manipuler des impulsions attosecondes. Une première approche pourrait consister à utiliser un miroir multicouche périodique et à réduire suffisamment le nombre de périodes pour élargir le pic de Bragg. Cependant cela se fait au détriment de l'efficacité du miroir et le flux de photons réfléchi par le miroir ●●●



**LA FLEXIBILITÉ ET L'EXPERTISE
AU SERVICE DE L'INNOVATION**

LED UV

**LED / MODULES LED
VERSION STANDARD ET CUSTOM
POUR PETITES À GRANDES SÉRIES**

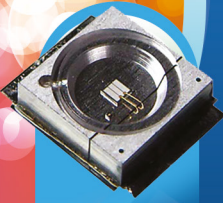
- De 237 à 405 nm
- Large choix de puissances et d'angles
- Boîtiers CMS ou traversants

Large gamme de **Photodiodes UV** également disponible



HTDS
Hi-Tech Detection Systems



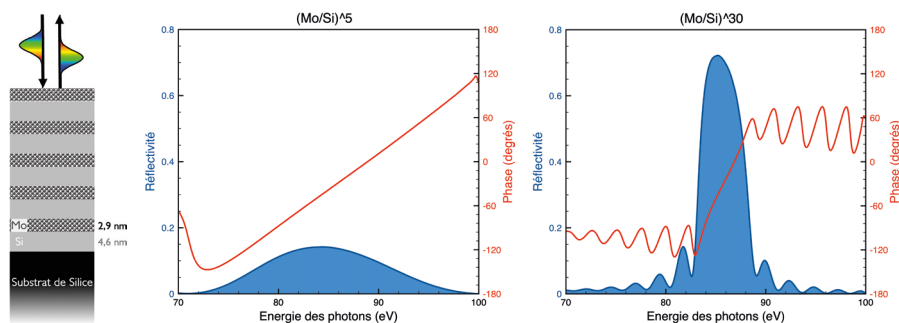


APPLICATIONS

Décontamination - Stérilisation surfaces, fluides et air -
Analyse de gaz - Spectroscopie - Curing - Fluorescence -
Effets spéciaux - Forensic - Détection de contrefaçon...

Suivez nous ! 

www.htds.fr
info@htds.fr



sera alors très faible (Fig. 2).

En 2005, notre laboratoire a démontré expérimentalement l'intérêt d'ajouter un troisième matériau dans les empilements multicouches EUV [2] : en ajoutant une interface supplémentaire dans chaque période de l'empilement, on peut réfléchir plus efficacement le rayonnement EUV incident avant qu'il ne soit absorbé. En sélectionnant bien les 3 matériaux et l'ordre dans lequel on les dépose (pour bénéficier des interférences constructives) on peut augmenter significativement le pic de réflectivité du miroir ainsi que sa bande passante (la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg). Ce double effet « tri-matériaux » est particulièrement intéressant pour manipuler des impulsions attosecondes.

Lorsque l'on manipule des impulsions attosecondes, il est également nécessaire de s'intéresser à la dimension temporelle : la forme temporelle de l'impulsion va-t-elle changer après réflexion sur le miroir multicouche ? Un simple calcul du temps que met la lumière pour se propager au travers d'une période laisse penser que oui : pour un miroir centré à 15 nm de longueur d'onde, il faudra environ 25 as à la lumière pour parcourir une période de l'empilement. Il pourrait alors apparaître des retards de certaines composantes spectrales par rapport à d'autres au cours du processus de réflexion et donc une déformation de la forme temporelle de l'impulsion. Il sera donc indispensable de s'intéresser à la phase spectrale de l'empilement multicouche (en plus de l'intensité réfléchie) si l'on veut manipuler des impulsions ultrabrèves.

Figure 2. Spectres de réflectivité et de phase calculés pour un miroir multicouche Mo/Si composé de 5 périodes (à gauche) et de 30 périodes (à droite).

En première approximation, pour un empilement périodique, la phase spectrale a un comportement linéaire dans le pic de Bragg (Fig. 2). Nous verrons qu'il est cependant possible de contrôler la phase spectrale du miroir multicouche en utilisant des empilements non périodiques.

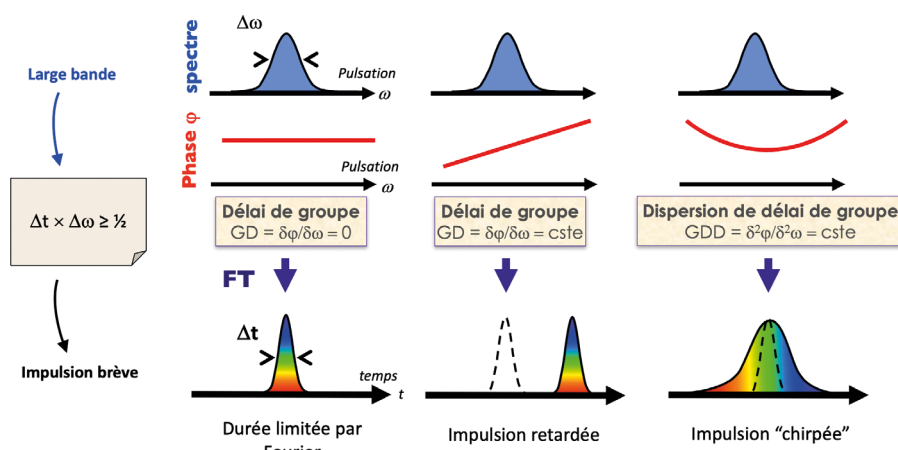
PROBLÉMATIQUE DES IMPULSIONS ULTRABRÈVES

Générer une impulsion ultrabrève requiert deux conditions : (i) que le spectre en fréquence de la source soit suffisamment large et (ii) qu'une relation de phase existe entre toutes les composantes du spectre (Fig. 3). La condition (i) est expliquée dans l'encart ci-contre : plus la bande spectrale est large, plus la durée d'impulsion

pourra être courte. La condition (ii) peut se vérifier en traçant la phase spectrale de l'impulsion : si la phase spectrale est linéaire, alors le délai de groupe (c'est-à-dire la dérivée de la phase spectrale) sera le même pour toutes les pulsations et l'impulsion sera dite « limitée par Fourier ». C'est la plus courte impulsion que l'on puisse obtenir pour la largeur de spectre considérée. Si la phase spectrale est parabolique, alors une dispersion du délai de groupe apparaît et l'impulsion sera étirée temporellement : les différentes composantes spectrales ne sont plus synchronisées. On parle alors d'impulsion « chirpée ».

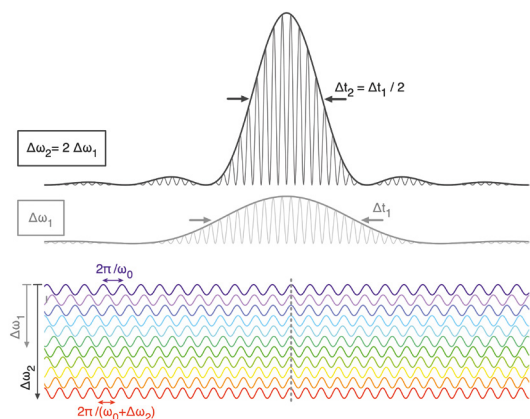
Le processus de génération des sources HHG présentées sur la Figure 1 peut être décrit par un modèle semi-classique en 3 étapes : (i) le champ laser intense crée l'ionisation par effet tunnel d'un atome du gaz et libère ainsi un électron, (ii) le champ laser sinusoïdal accélère l'électron et le ramène sur l'ion, (iii) le processus de recombinaison avec l'ion convertit l'énergie cinétique acquise par l'électron en un photon de haute énergie, dans le domaine extrême ultra-violet. Le calcul de la trajectoire des électrons dans ce modèle permet de montrer que les photons d'énergies différentes ne sont pas émis simultanément. L'impulsion générée par une source HHG sera donc une ●●●

Figure 3. Représentation d'une impulsion ultrabrève dans le domaine spectral et dans le domaine temporel



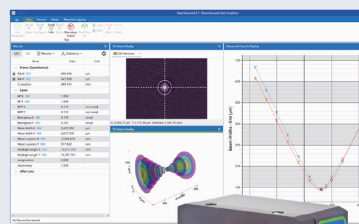
Une impulsion lumineuse peut être décrite comme une superposition d'ondes planes monochromatiques. Le champ électromagnétique associé à cette impulsion peut donc être calculé en additionnant les champs électriques sinusoïdaux correspondant à chaque fréquence (ou longueur d'onde) présente dans le spectre de l'impulsion. Sur la figure ci-contre, on considère 2 impulsions composées d'ondes planes monochromatiques d'amplitudes identiques et de pulsations comprises entre ω_0 et $\omega_0 + \Delta\omega$. Le champ électrique associé à l'impulsion est alors la somme des sinusoïdes représentées en bas de la figure. On peut définir la durée de l'impulsion comme la largeur à mi-hauteur de l'enveloppe du carré de ce champ électrique (représenté en haut de la figure). On note alors qu'une impulsion avec une largeur de spectre $\Delta\omega_1$ est deux fois plus longue qu'une impulsion de largeur de spectre double ($\Delta\omega_2 = 2\Delta\omega_1$). Autrement dit, plus le spectre de l'impulsion est large et plus l'impulsion sera brève. Toutefois cette condition ne suffit pas à créer une impulsion lumineuse. Il faut également que toutes les composantes du spectre respectent une relation de phase à un instant donné. Le trait pointillé sur la figure indique l'instant où toutes les composantes ont une phase identique. Lorsque l'on s'éloigne de cet instant, les différentes sinusoïdes ne sont plus en phase et interfèrent destructivement.

Finalement, dans les conditions de cette illustration, l'impulsion lumineuse s'étend temporellement sur plusieurs périodes ($T = 2\pi/\omega_0$) des sinusoïdes qui la composent. Dans le domaine visible ou infra-rouge, la période T des ondes électromagnétiques est toujours supérieure à 1 femtoseconde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$). Il est donc impossible de générer une impulsion attoseconde ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) avec de la lumière visible. La seule solution pour générer des impulsions aussi brèves est d'utiliser le rayonnement extrême ultraviolet ou les rayons X qui ont des périodes T bien plus courtes.

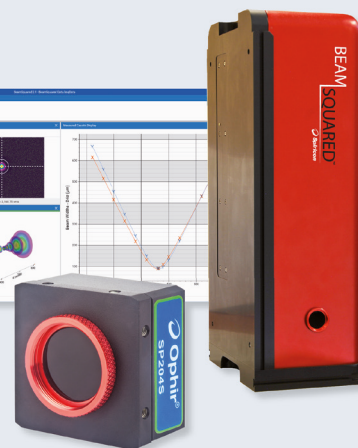


NOUVEAU

DÉFINIR LA NORME D'EXCELLENCE DE PRÉCISION



BeamSquared®
SP204S-PRO



Analysez la propagation de vos faisceaux laser en toute autonomie et avec une précision exceptionnelle – de l'UV au NIR. Bénéficiez d'une analyse de l'astigmatisme à la pointe de la précision industrielle.

- Précision extrême de la localisation de la taille du faisceau, idéale pour les faisceaux UV
- Précision de 3 % de l'astigmatisme laser
- Cohérence exceptionnelle entre les appareils, moins de 5 %
- Supporte les lasers à longue portée Rayleigh jusqu'à 40 mètres
- Couvre le spectre 266-1100nm (CW ou pulsés)
- Caméra haute sensibilité et haute résolution
- Mesures conformes à la norme ISO en moins d'une minute

Appelez-nous **+33 6 01 01 27 32**

ou visitez notre site web:

www.ophiropt.com/photonics



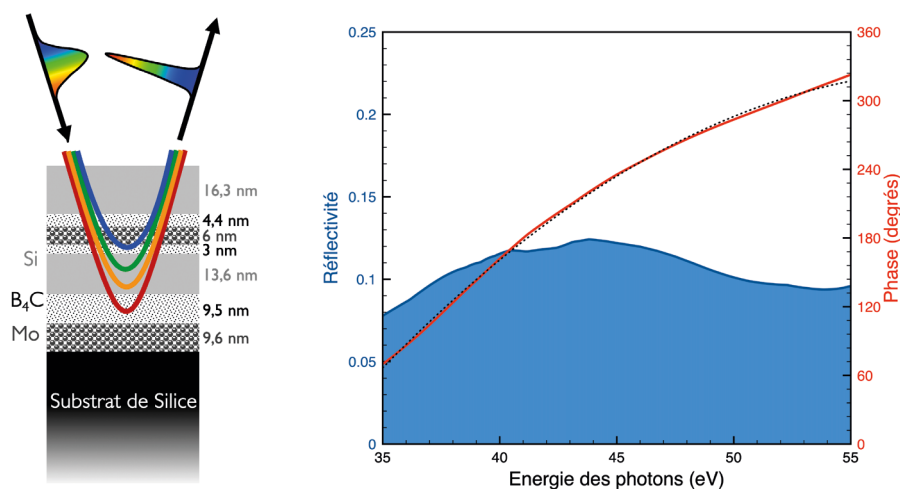


Figure 4. Principe de la compression d'impulsions attosecondes par un miroir multicouche.

impulsion chirpée. La dispersion du délai de groupe qui apparaît est intrinsèque au processus de génération et est appelée « attochirp ».

La problématique des miroirs pour manipuler des impulsions attosecondes est donc double : il faut être capable d'une part d'atteindre une réflectivité élevée sur une large bande spectrale (la Figure 2 montre que ces 2 grandeurs ne peuvent pas facilement être optimisées simultanément) et d'autre part de contrôler la phase spectrale du miroir interférentiel sur cette bande spectrale. Un revêtement large bande à phase linéaire pourra réfléchir une impulsion sans la déformer temporellement. Un revêtement large bande à phase parabolique pourra être utilisé pour comprimer l'impulsion si la dispersion du délai de groupe du miroir compense l'attochirp.

DÉVELOPPEMENT DE MIROIRS INTERFÉRENTIELS MULTICOUCHES POUR LES IMPULSIONS ATTOSECONDES

En 2005, les premières mesures de la phase spectrale de l'impulsion avant et après réflexion sur un miroir multicouche large bande synthétisé dans notre laboratoire ont été réalisées au Centre Laser de Lund en collaboration avec Anne L'Huillier, prix Nobel de Physique 2023. Cette expérience a permis de démontrer

expérimentalement pour la première fois que ce type de miroir interférentiel ne rallonge pas la durée de l'impulsion initiale [3]. Le miroir utilisé dans cette expérience était constitué d'un empilement de 2 multicouches périodiques à 3 matériaux (B₄C/Mo/Si) déposé par pulvérisation cathodique magnétron.

Suite à ces premiers résultats, nous avons conçu et réalisé des empilements aperiodiques afin de contrôler la phase spectrale du miroir (Fig. 4). En optimisant les épaisseurs individuelles des couches de l'empilement de manière à ce que la phase spectrale soit parabolique et compense l'attochirp de la source HHG, il est possible de réduire d'un facteur 2 la durée de l'impulsion attoseconde initiale. Ce type d'empilement a permis la première démonstration expérimentale d'une compression de la durée des

impulsions attosecondes sur une source attoseconde du CEA Saclay [4].

Ce savoir-faire nous a permis de développer et de fabriquer des revêtements multicouches spécifiques pour la station ATTOLAB, plateforme expérimentale (opérée par le LIDYL) ouverte aux utilisateurs et dédiée aux études de dynamique électronique ultrarapide. Ces optiques sont aujourd'hui installées sur la station ATTOLAB et ont permis des premières expériences de type pompe-sonde pour l'étude des phénomènes de décohérence dans les processus de physique attoseconde [5].

CONCLUSION

Au cours de ces 20 dernières années, nous avons conçu et développé des miroirs interférentiels multicouches permettant de manipuler les impulsions ultracourtes générées par des sources cohérentes EUV, telles que la génération d'harmoniques d'ordre élevé. Ces revêtements sont constitués d'un empilement aperiodique de couches minces optimisé pour maximiser l'efficacité sur une bande passante définie et pour produire une phase spectrale spécifique. Nous avons démontré qu'il est possible de compresser d'un facteur 2 des impulsions attosecondes EUV en utilisant ce type de miroirs multicouches.

Aujourd'hui, les recherches dans ce domaine se poursuivent pour étendre cette approche à des énergies de photons plus élevées, dans le domaine des rayons X mous et en particulier dans la fenêtre de l'eau. ●

RÉFÉRENCES

- [1] *Multilayer mirrors for coherent XUV sources*, C. Bourassin-Bouchet, S. de Rossi, and F. Delmotte in Springer book vol. 197 (2015) *Optical technologies for extreme-ultraviolet and soft X-ray coherent sources*, Luca Poletto and Federico Canova (eds.)
- [2] J. Gautier et al., Appl. Opt. **44**, 384 (2005)
- [3] A.-S. Morlens et al., Opt. Lett. **31**, 1558 (2006)
- [4] C. Bourassin-Bouchet et al., Opt. Express **19**, 3809 (2011)
- [5] D. Bresteau et al., Eur. Phys. J.:Spec. Top. **232**, 2011 (2023)