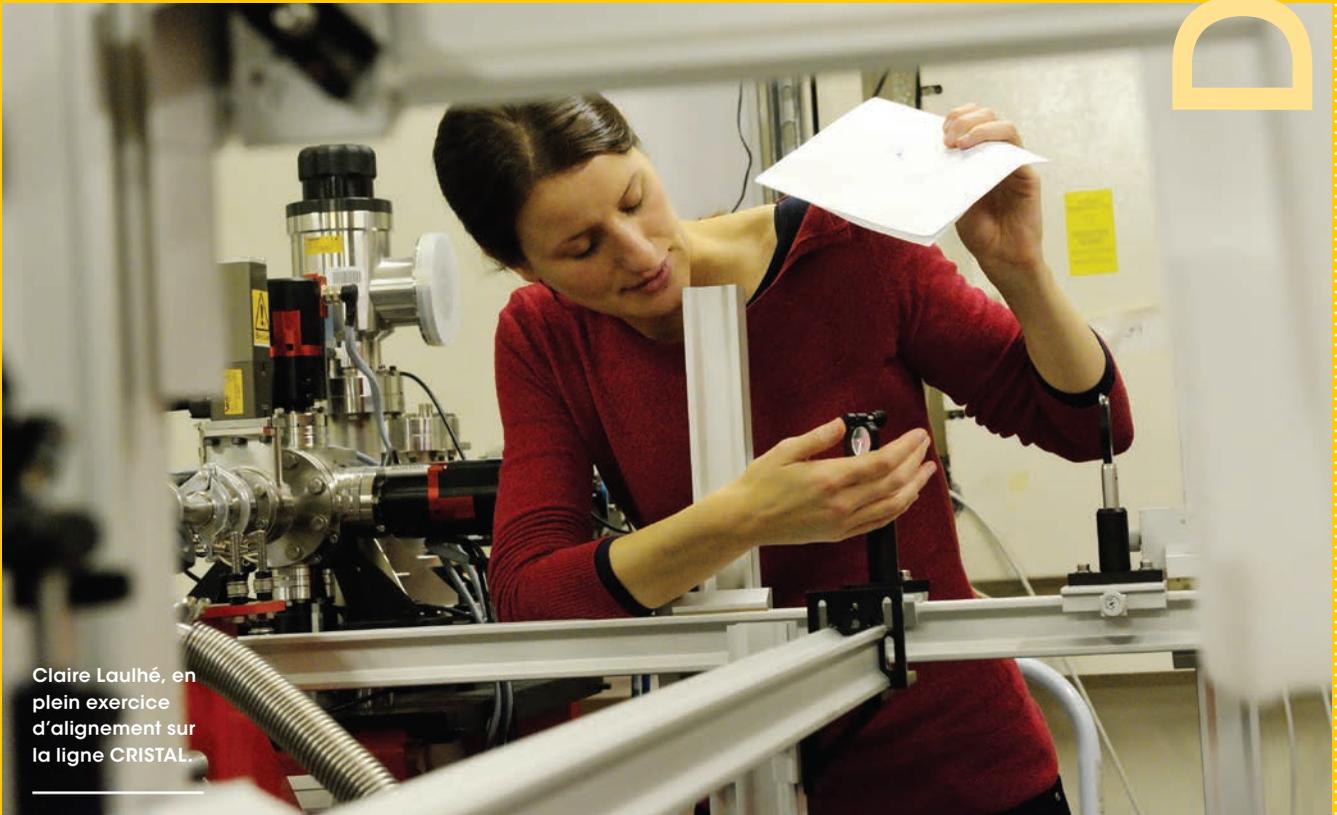


SOLEIL, la lumière comme instrument



Claire Lauthé, en plein exercice d'alignement sur la ligne CRISTAL.

2015 sera l'Année Internationale de la Lumière, qui est au cœur de la science menée à SOLEIL. Au synchrotron, la lumière est produite, mise en forme, et toutes ses propriétés sont exploitées. Voici quelques exemples choisis qui balayent le champ des recherches à SOLEIL.





29 Septembre 2014, en salle de contrôle, les scientifiques observent pour la première fois le signal d'interaction Térahertz du projet Slicing.

Le rayonnement synchrotron a maintenant une longue histoire. Elle a débuté par une première utilisation au début des années 60 avec de premières mesures spectroscopiques, qui ont été suivies par un apport considérable à la détermination de la structure de la matière et l'usage étendu de la diffraction de la lumière pour étudier la matière ordonnée. De nos jours, l'intérêt pour les études synchrotron a été largement renouvelé du fait que la cohérence et la structure temporelle sont de plus en plus utilisées, grâce aux progrès effectués sur les machines d'une part et aux avancées dans le contrôle du faisceau de photons et les performances des optiques d'autre part.

SOLEIL, source de lumière polyvalente

« 2015, Année Internationale de la Lumière » nous offre l'occasion idéale de nous attarder sur la manière dont SOLEIL bénéficie déjà de ces avancées grâce à différents exemples choisis d'imagerie directe ou indirecte, de spectroscopie hautement résolue et de mesures résolues en temps. Côté machine, depuis ses débuts en 2006, l'anneau de stockage de SOLEIL a sans cesse évolué pour répondre aux nouveaux besoins et défis des lignes de lumière. Il peut en ce sens être vu comme une source polyvalente. Différentes options de remplissage sont en effet proposées en mode d'injection Top-up afin de satis-

Suite page 18...

NANOSCOPIUM

Nanofocalisation sur la ligne NANOSCOPIUM

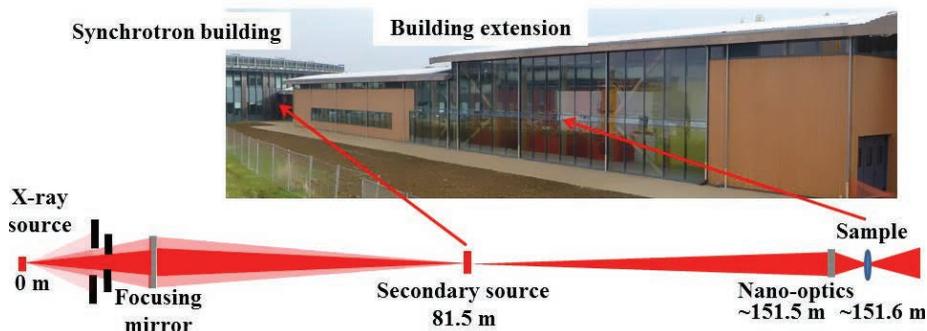


Figure 1. Schéma optique de nano-focalisation sur NANOSCOPIUM. La démagnification est déterminée par le rapport entre la taille de la nano-optique au point SS et la distance optique-échantillon.

De nombreux domaines de recherche à fort impact sociétal, comme la biologie, les sciences de la terre et de l'environnement ou les bio-nanotechnologies essaient d'obtenir des informations à l'échelle nanométrique sur des systèmes hétérogènes, en conditions naturelles ou *in operando*. La nano-imagerie à balayage de rayons X durs présente un intérêt croissant pour ces recherches, fournissant des informations de structure et de composition chimique. Les rayons X ont aussi un grand pouvoir de pénétration ce qui les rend tout à fait adaptés aux études *in situ*.

Dans la microscopie X à balayage, l'échantillon est balayé par l'intense nano-faisceau généré à l'aide d'une optique de très grande qualité. Outre la focalisation géométrique de la source X, une limitation physique de la taille de faisceau est liée à la diffraction des rayons X. Cette taille « limitée par la diffraction » est proportionnelle à la longueur d'onde et caractérise la résolution spatiale finale de l'optique. La résolution que l'on peut atteindre avec des microscopes à rayons X est meilleure que celles des microscopes à lumière visible.

La fabrication d'optiques de haute précision est une étape cruciale pour atteindre la nano-focalisation et soulève des défis méthodologiques et de fabrication, qui ont été relevés avec succès par les dernières technologies de nano-fabrication. Les systèmes récents de focalisation des rayons X, comme les « lentilles de Fresnel » (FZPs en anglais) constituées de centaines d'anneaux

concentriques d'épaisseur décroissante, les systèmes à double miroirs elliptiques taillés ultra-précisément, ou encore les nouvelles classes d'optiques X comme les lentilles multicouches de type Laue (MLL), permettent d'atteindre une focalisation proche de la limite de diffraction.

La microscopie à rayons X atteignant une résolution de quelques dizaines de nanomètres, voire même en deçà selon des travaux récents, offre des possibilités de recherches inédites. La ligne NANOSCOPIUM¹, longue de 155 m, est dédiée à la nano-imagerie 2D / 3D par balayage avec pour objectif d'atteindre une résolution spatiale de 30 nm. La grande distance de 60-70 m entre les optiques nano-focalisantes à pointe et la source secondaire (SS) assure une grande démagnification (autour de 0,0015, cf. Fig. 1), nécessaire à l'obtention de faisceau nanométrique (i.e. une taille de 10 μm de SS correspond à 10 nm au niveau de l'échantillon). La qualité optique exceptionnelle des systèmes à double miroirs elliptiques (Fig. 2a) (JTEC, Japon) est déterminante pour atteindre une focalisation descendant à 50-100 nm. La surface du miroir est taillée avec une précision inférieure à 0,5 nm, soit presque à l'échelle atomique! Des tailles de faisceaux jusqu'à 30 nm seront obtenues grâce à des FZPs (Fig. 2b) développés par le groupe de C. David² (PSI, Villigen, Suisse).

Avec ces nano-optiques, NANOSCOPIUM offrira les méthodes d'imagerie, avec des nano-faisceaux stables et très intenses, qui pourront couvrir la gamme de taille

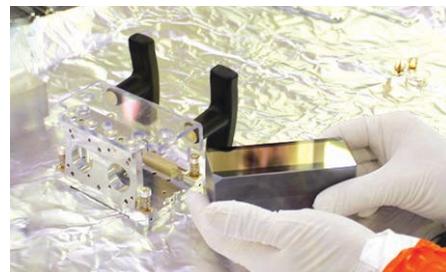
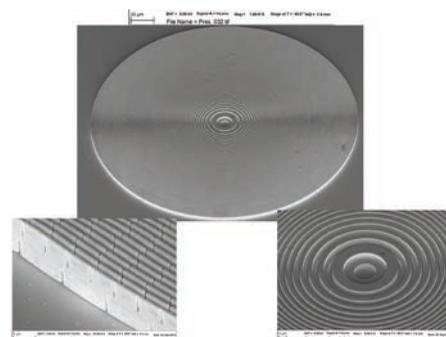


Figure 2a (haut). Miroir nanofocalisant d'ultra haute qualité (Kirkpatrick-Baez, KB).

Figure 2b (bas). Réseau zoné de Fresnel nanofocalisant.



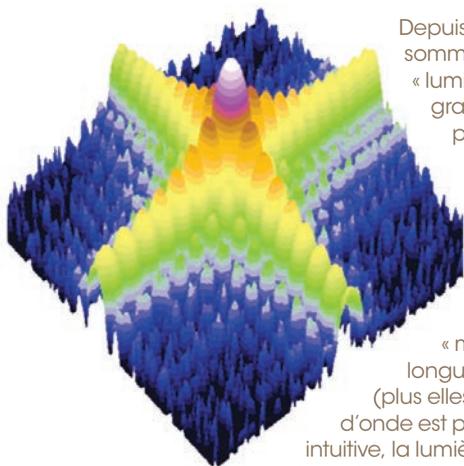
30-500 nm en fonction des besoins expérimentaux. Par ailleurs, un balayage rapide continu³ rend possible l'imagerie multimodale et la tomographie. La combinaison des techniques complémentaires (fluorescence X, absorption, contraste de phase et diffusé) fournira des informations quantitatives complètes sur la structure d'un échantillon, sa composition et sa nature chimique, pour le meilleur de la science.

→ **Contact:**
andrea.somogyi@synchrotron-soleil.fr

Références :

- ¹ A. Somogyi et al. Instruments and Methods, 885104 (2013).
- ² I. Mohacsi et al. Journal of Synchrotron Radiation, 21, 497-5 (2014).
- ³ K. Medjoubi et al. Journal of Synchrotron Radiation, 20(2), 293 (2013).

CRISTAL

Cohérence extrême

Représentation en perspective de la figure de diffraction de rayons X cohérents par des fentes de $5 \times 5 \mu\text{m}^2$, obtenue sur la ligne de lumière CRISTAL. Les intensités sont en échelle logarithmique. L'existence de franges démontre la cohérence du faisceau.

Depuis l'avènement du laser, nous sommes habitués à parler de « lumière cohérente », une lumière de grande qualité caractérisée par sa pureté spectrale et la régularité de son front d'onde (plan ou sphérique). Les physiciens caractérisent ces propriétés à l'aide de deux longueurs : la longueur de cohérence longitudinale (plus elle est grande, plus l'onde est « monochromatique »), et les deux longueurs de cohérence transverses (plus elles sont grandes, plus le front d'onde est parfait). De façon plutôt contre-intuitive, la lumière synchrotron n'est pas aussi cohérente que l'on pourrait le croire, en particulier dans la gamme des rayons X. Voyons pourquoi.

Les sources synchrotron de 3^e génération utilisent (ou fonctionnent grâce à) des onduleurs, dans lesquels des paquets de plusieurs milliards d'électrons (paquets mesurant quelques centimètres, i.e. quelques dizaines de picosecondes à la vitesse de la lumière) ondulent des centaines de fois. Chaque électron de ces paquets génère une onde plane d'une centaine d'oscillations (ce qui représente environ 100 nm pour les rayons X). Comme tous les électrons émettent de la lumière de **manière indépendante**, la lumière synchrotron est en fait une impulsion de quelques dizaines de picosecondes, avec une cohérence longitudinale de l'ordre de 100 nm ; les longueurs de cohérence transverses, elles, dépendent des dimensions transverses du paquet : plus il est petit, plus les longueurs sont grandes. En pratique, elles mesurent quelques dizaines de microns. Comme la taille du faisceau est plus élevée (de l'ordre de 100 μm), le faisceau est partiellement cohérent. Comment alors utiliser les propriétés de cohérence d'un tel faisceau ?

La première astuce réside dans l'utilisation d'un monochromateur, qui améliore la qualité spectrale du faisceau et donc augmente la longueur de cohérence longitudinale, jusqu'au micron. La seconde est de placer une ouverture d'environ $10 \times 10 \mu\text{m}^2$ près de l'échantillon afin de ne garder que la partie cohérente du faisceau. De cette manière on obtient un faisceau cohérent, comme en témoigne la figure de diffraction à gauche, mesurée après l'ouverture, ici une paire de fentes. Malheureusement, tout ceci se fait au dépend de l'intensité : un facteur 10000 est perdu dans l'opération. Toutefois, cela permet de réaliser des expériences de diffraction dite cohérente. Sur la ligne CRISTAL, la diffraction cohérente permet d'étudier des nanocristaux et des composés multi-phasés.

Comment atteindre une plus grande cohérence ? La première idée consiste à diminuer la dimension transverse du paquet en diminuant l'émission du faisceau d'électrons jusqu'à son minimum : la **limite de diffraction**. Ce sera prochainement le cas dans certains centres de rayonnement synchrotron, qui deviendront alors des « Diffraction Limited Synchrotron Rings » (DLSR). La seconde possibilité est d'agrandir les onduleurs jusqu'à atteindre une émission stimulée auto-amplifiée (SASE en anglais), pour laquelle tous les électrons du paquet émettent ensemble de la lumière, qui est alors cohérente. C'est le principe des lasers à électrons libres, qui ont émergé depuis une dizaine d'années mais ne fonctionnent pas encore dans ces conditions idéales. Il n'empêche, la cohérence extrême frappe à la porte !

→ **Contact :**
sylvain.ravy@synchrotron-soleil.fr

Référence :
V. Jacques et al.
Phys. Rev. B86, 144117 (2012).

... Suite de la page 16

faire les attentes des utilisateurs en termes de brillance intense, de structure temporelle et de durée des expériences. Le nombre de lignes de lumière a été augmenté par l'utilisation d'onduleurs cantés installés sur les sections droites de l'anneau. La haute fiabilité et grande stabilité du faisceau de photons produit par le synchrotron SOLEIL permettent de proposer des modes d'opération variés, adaptés aux différents besoins des utilisateurs. L'une des spécificités de SOLEIL est sa capacité à disposer d'un courant multi paquets atteignant 500 mA, et de stocker plus de 20 mA dans un seul paquet pour les expériences résolues en temps. En plus du mode où tous les paquets

possibles (au nombre de 416) sont remplis, les modes d'opération de l'anneau de stockage de SOLEIL permettent de mettre un accent fort sur l'exploitation de la structure temporelle. Le mode hybride consiste en une série de 312 paquets d'électrons avec un courant total de 425 mA sur $\frac{3}{4}$ de la circonférence de l'anneau, complétée par un paquet supplémentaire de 5 mA au milieu du dernier quartier. Chaque année, deux semaines sont également consacrées au mode dit « 8 paquets » avec un courant total de 90 mA, un espacement inter-paquets de 148 ns et une longueur de paquet de 25 ps en valeur efficace. Par ailleurs, une autre quinzaine est consacrée à un mode

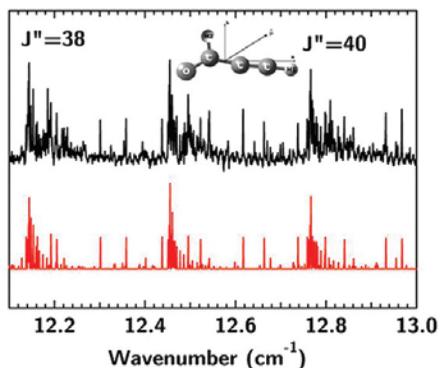
AILES

De la Spectroscopie THz à haute résolution avec l'émission synchrotron cohérente à SOLEIL

Un nouveau mode de fonctionnement est maintenant au point et offert aux utilisateurs de SOLEIL : le mode d'émission dit « low alpha » dans lequel les électrons émettant le rayonnement synchrotron sont comprimés en paquets très courts. Ce mode permet des avancées sur certaines lignes en matière de résolution temporelle pour étudier des phénomènes rapides, mais a aussi été exploité par les chercheurs de la ligne AILES pour mesurer des signatures spectrales de molécules dans le domaine charnière entre les rayonnements micro-ondes et infrarouge. En effet, un accroissement considérable du flux lumineux se produit lorsque les longueurs d'onde de la lumière émise sont du même ordre que la longueur des paquets d'électrons circulant dans le synchrotron. Schématiquement, dans les paquets « longs » des modes de fonctionnement normal, chaque électron agit comme une source de lumière isolée, et l'intensité émise par les ondes lumineuses évolue proportionnellement au nombre d'électrons par paquet. Avec des paquets courts, du même ordre de grandeur que les longueurs d'onde émises, les électrons sont suffisamment proches pour émettre leurs ondes électriques en phase. L'émission, dite alors « cohérente », a une intensité proportionnelle au carré du nombre d'électrons par paquet, résultant en une émission 10000 fois plus intense. Ce phénomène peut être produit dans le domaine de longueurs d'onde d'environ 0,3 à 1 mm (entre 250 et 750 GHz). Ce

domaine est important car il recouvre celui des mouvements de rotation pure des molécules dans les milieux raréfiés, sondés par exemple par les instruments modernes de radioastronomie (le satellite Herschel, ALMA) récemment développés et demandeurs de données de référence prises en laboratoire.

À SOLEIL, les physiciens du groupe machine ont su « jongler » avec leurs instruments pour maîtriser l'instabilité naturelle de ce type de fonctionnement. Grâce à des dispositifs de détection améliorés pour compenser les instabilités résiduelles du faisceau lumineux, le



Détail du spectre expérimental (noir) de rotation pure de la molécule de Propynal (schéma en insert) comparé avec la simulation tirée de ces résultats (rouge), véritable « empreinte digitale » de la molécule pour son identification en radioastronomie.

spectre de rotation pure d'une molécule organique, déjà détectée dans certains nuages interstellaires a pu être enregistré en quelques heures de mesure sur tout le domaine d'intérêt. L'analyse de ces données permet d'améliorer la quantification de telles molécules dans ces milieux difficiles d'accès... En effet, ce domaine spectral permet d'identifier de nombreuses molécules organiques, jusqu'à récemment, encore insoupçonnées dans l'espace interstellaire. Chaque molécule a une signature spectrale constituée de milliers de raies d'absorption et, même si une molécule a déjà été identifiée auparavant, il reste important de repérer son spectre pour dégager de nouvelles identifications au milieu de cette forêt.

→ Contacts :

pascale.roy@synchrotron-soleil.fr
laurent.manceron@synchrotron-soleil.fr

Références :

- ¹ J. Barros et al.
Rev. Sci. Inst. 84, 033102, (2013).
- ² J. Barros et al.
J. Mol. Spectrosc. submitted (2014).

« paquet unique » avec un courant de 16 mA et une durée entre deux passages des électrons de 1,18 μ s.

Des techniques d'imagerie prometteuses

Sur la ligne NANOSCOPIUM, il est possible de réaliser une imagerie 2D/3D à l'aide d'optiques de pointe. Un impact considérable est attendu en biologie, sciences de la terre et de l'environnement, pour lesquels des systèmes inhomogènes, candidats de choix pour ce type de technique, sont monnaie courante. Depuis janvier 2012, l'anneau de stockage fonctionne avec de nouvelles optiques, dont un triplet de quadrupôles qui crée une double foca-

lisation du faisceau d'électrons dans l'une des longues sections droites, et une chicane de 4 aimants pour adapter deux onduleurs cantés sous vide avec une séparation angulaire de 6,5 mrad qui produisent deux faisceaux de lumière dissociés. Les deux onduleurs avec un gap de 5,5 mm produisent des rayons X indépendants dans les deux lignes longues (180 m) NANOSCOPIUM et ANATOMIX qui sont utilisées pour l'imagerie par contraste de phase et d'absorption et la diffraction cohérente. Par ailleurs, l'usage intense de la diffraction cohérente sur la ligne CRISTAL donne accès à l'étude de nanocristaux et

Des impulsions X ultra courtes générées à partir de lumière visible femtoseconde

Le 29 septembre 2014, le premier slicing femtoseconde d'un paquet d'électrons a été observé dans l'anneau de stockage de SOLEIL. Cet événement ouvre la voie à des études de phénomènes structurels et électroniques ultrarapides à SOLEIL. Le principe du femto-slicing repose sur l'interaction entre une impulsion laser femtoseconde et un paquet d'électrons circulant dans l'anneau de stockage*.

*Voir Rayon de SOLEIL 20, p11-12.



Figure 1. En salle de contrôle, Marie Labat et Marie-Agnès Tordeux observent le signal de l'interaction entre le laser et le faisceau d'électrons.

- Faisceau laser et cabane laser (LS) ■
- Faisceau de rayons X « slicés » ■
- Faisceau d'électrons dans l'anneau de stockage ■
- Signal Térhertz ■

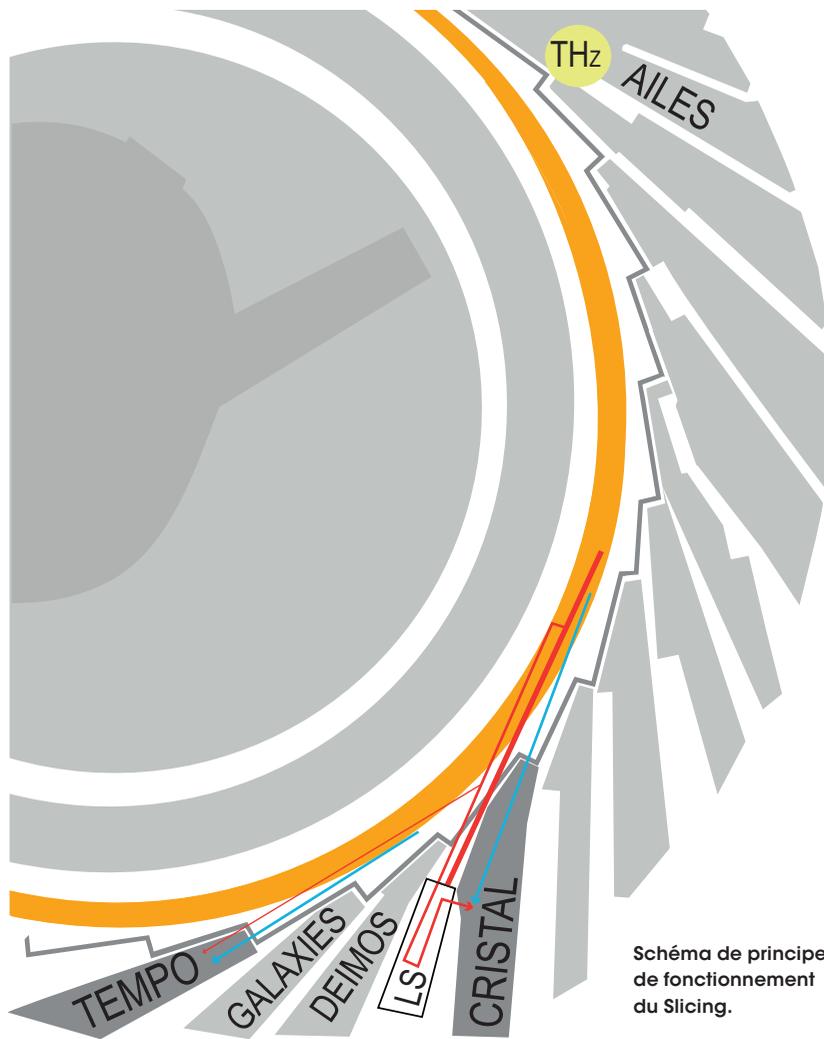


Schéma de principe de fonctionnement du Slicing.

... Suite de la page 19

de composés multiphasés (cf. p. 18). Grâce à la technique de ptychographie il est possible d'augmenter la taille de l'échantillon étudié. L'étude des processus de diffraction de Bragg en régime cohérent devrait également avoir un impact considérable sur la science des matériaux, car ces processus permettent de caractériser des contraintes locales (contraintes, défauts...). Sur la ligne de lumière AILES, cette propriété de cohérence est utilisée différemment. Elle permet d'accéder à une résolution extrême dans le régime Térhertz grâce à une émission renforcée CSR (émission synchrotron cohérente), obtenue lorsque la dimension du faisceau d'électrons est du même ordre de

grandeur que la longueur d'onde des photons émis. C'est ainsi qu'ont été développées des études spectroscopiques visant à déterminer la signature spectrale de molécules d'intérêt pour l'astrophysique. Ces expériences sur la ligne AILES s'appuient sur un mode dit "low alpha", qui produit des impulsions de lumière de quelques picosecondes de long, disponible lui aussi deux semaines par an (cf. p. 19).

Suivre des phénomènes toujours plus courts

Le prochain mode développé sera celui du femto-slicing mis à disposition sur quelques lignes. Des impulsions de rayons X d'une centaine de femtosecondes seront en effet

Le dispositif du slicing à SOLEIL fournira des impulsions de rayons X femtosecondes et, contrairement aux autres machines à travers le monde, à plusieurs lignes de lumière. La gamme d'énergie des photons X sera ainsi entièrement couverte pour une seule installation de femto-slicing, et la résolution temporelle femtoseconde viendra s'ajouter à une grande variété de puissantes techniques de rayons X. Lors de la phase de déploiement du dispositif, des expériences seront menées sur les lignes CRISTAL et TEMPO (voir figure 1). Puis de futurs développements devraient permettre également aux lignes DEIMOS et GALAXIES de bénéficier de cette technologie.

Les contraintes de stabilité spatiale et temporelle sont extrêmes : à titre de comparaison cela revient à devoir pointer un laser depuis Paris jusqu'à la Statue de la Liberté à côté de New-York, et ce pendant des jours, durée moyenne d'une expérience de femto-slicing. Afin de satisfaire ces exigences, il a fallu la contribution de toutes les divisions de SOLEIL. Pour n'en citer que quelques-unes, le laser a dû être synchronisé avec l'horloge RF maître de SOLEIL ; une chambre à vide compatible a été installée pour le transport du laser Infrarouge afin d'éviter les variations de température ou les effets de turbulence susceptibles de perturber la position du laser ou sa durée de transport ; des systèmes de diagnostic ont été développés pour caractériser la position du faisceau IR, son profil, son énergie, sa divergence ou encore sa durée d'impulsion tout au long de son transport.

Tous ces efforts ont permis d'observer pour la première fois le signal Téràhertz (THz, cf. figure 1), étape indispensable indiquant que le faisceau d'électron et le laser interagissent bien spatialement et temporellement. Depuis, l'ensemble des paramètres a été optimisé afin d'améliorer cette interaction et de la conserver sur une plus grande durée.

La prochaine étape sera donc la détection des impulsions X femtosecondes sur la ligne CRISTAL. En attendant les expériences de femto-slicing, les scientifiques de CRISTAL et de TEMPO ont déjà réalisé des expériences pompe (IR) / sonde (rayons X) résolues

en temps, exploitant la résolution temporelle disponible actuellement, soit de 10 à quelques dizaines de picosecondes. La stimulation de tels systèmes hors équilibre par irradiation avec des impulsions laser ultracourtes engendre des transitions électroniques à une échelle à laquelle la maille est considérée comme gelée. De tels états excités sont par nature dynamiques, et impliquent des évolutions sur une large échelle de temps et de distance. À l'échelle atomique, les phénomènes dynamiques les plus rapides se présentent sous la forme de vibrations atomiques ayant une période de l'ordre de 100 fs. Par exemple, la figure 2 montre l'évolution de l'intensité d'un pic de Bragg de 1T-TaS₂ pendant une phase de transition induite par un laser. La résolution femtoseconde est clairement indispensable pour avoir plus d'informations sur la baisse d'intensité initiale (région en vert). Cette phase de transition de 1T-TaS₂ illustre bien l'apport d'une résolution temporelle femtoseconde.

→ **Contacts :**
philippe.hollander@synchrotron-soleil.fr
jan.luning@upmc.fr

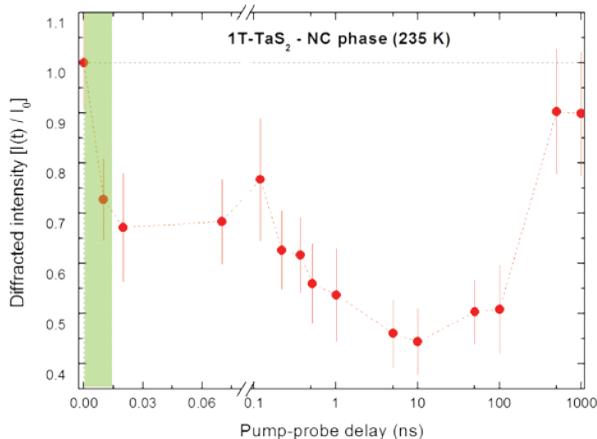


Figure 2. Intensité d'une réflexion de Bragg en fonction du temps après excitation laser. La baisse d'intensité est une signature directe de la transformation structurale à l'intérieur du matériau. La première chute d'intensité se produit après 10ps, (zone verte), ce qui correspond à la durée des impulsions X donnant la résolution temporelle de cette mesure.

délivrées d'abord sur les lignes CRISTAL et TEMPO ; la possibilité de l'étendre dans un second temps aux lignes DEIMOS et GALAXIES est à l'étude. Ces impulsions ultra courtes permettront d'étudier des phénomènes dynamiques extrêmement rapides (électroniques ou structuraux) qui se produisent dans un matériau excité. Bien que le flux de photons ainsi obtenu ne permette pas de réaliser des expériences à un seul paquet (comme c'est le cas pour les Lasers à Electrons libres, ou FEL), la stabilité des faisceaux est idéale pour étudier des phénomènes réversibles (répétitifs) comme les transitions de phases induites dans les solides, ou la dynamique de magnétisation dans des

composés magnétiques visant à optimiser le stockage de l'information. Comme dans d'autres centres de recherche synchrotron dans le monde, des discussions sont en cours pour faire évoluer SOLEIL vers un anneau de stockage limité par la diffraction (DLSR). Ses caractéristiques : une émittance des rayons X proche de la limite de diffraction, un flux de photons avec une longueur de cohérence transverse accrue et une brillance spectrale 10 à 100 fois supérieure à celle des sources de lumière synchrotron 3^e génération actuelles. La technologie synchrotron devrait donc être exploitée encore de longues années au service d'une recherche toujours plus exigeante.