



Comprendre le monde,  
construire l'avenir®



UNIVERSITÉ PARIS-SUD

ÉCOLE DOCTORALE 288 :  
ONDES ET MATIÈRE

Effectuée au : Laboratoire Interactions, Dynamique et Lasers, IRAMIS, DSM  
Commissariat à l'Énergie Atomique, Saclay.

## SYNTHÈSE DE THÈSE

PHYSIQUE

Présentée par

**AURA INES GONZALEZ ANGARITA**

Single shot lensless imaging with coherence and wavefront  
characterization of harmonic and FEL sources

**Date de soutenance : 14/04/2015**

**Composition du jury :**

Directeur de thèse :  
Rapporteurs :

Examineurs :

M. Hamed MERDJI  
M. Eric MEVEL  
M. Sylvain RAVY  
M. Marc HANNA  
M. Gilles MAYNARD  
M. Jérôme PRIMOT

Ingénieur de Recherche CEA (LIDYL - CEA)  
Professeur (CELIA, Université Bordeaux)  
Directeur de recherche CNRS (Université Paris-Sud)  
Chargé de recherche CNRS (Institut d'Optique)  
Directeur de recherche CNRS (Université Paris-Sud)  
Directeur de recherche ONERA (ONERA - DOTA)



L'imagerie par diffraction cohérente (CDI) est une technique d'imagerie sans lentille basée directement sur la diffraction de la source sur l'objet. Par conséquent, la résolution spatiale de cette technique d'imagerie n'est limitée théoriquement que par la longueur d'onde de la source. Cette caractéristique fondamentale permet l'extension de la cristallographie par diffraction de rayons X à l'imagerie d'objets non cristallins. Cette technique a été l'un des moteurs pour le développement des nouvelles sources pulsées ultra brèves XUV et X que sont les lasers à électrons libres (FEL), les synchrotrons et les sources basées sur la génération d'harmoniques laser d'ordre élevé (HHG). Ces sources cohérentes, de courtes longueurs d'onde et ultra brèves sont les outils indispensables pour suivre les dynamiques ultrarapides à l'échelle nanométrique.

L'imagerie par diffraction cohérente a connu un développement remarquable depuis la première démonstration expérimentale sur synchrotron de l'imagerie d'un objet isolé à l'aide d'un algorithme itératif de reconstruction (Miao. et al. [33]). Pour avoir accès à une dynamique temporelle ultrarapide, il est important d'avoir un flux suffisant de photons en un tir unique ultrabref. Par conséquent, depuis 2006, l'accès à l'imagerie simple tir femtoseconde a été limité aux FEL. En 2009, le groupe Attophysique du CEA-Saclay a démontré l'imagerie XUV sans lentille en tir unique avec une résolution temporelle de l'ordre de 20 femtosecondes et une résolution spatiale nanométrique sur une source harmonique (table-top ~mètres) [17]. La première expérience d'imagerie par diffraction cohérente résolue en temps a été réalisée pour première fois par Barty et collaborateurs [2]. Ils ont utilisé un faisceau FEL (à FLASH, DESY) pour mesurer la dynamique d'ablation d'un échantillon test avec une résolution spatiale de 50 nm et une résolution temporelle de 10 ps. Pendant les dernières années, un développement remarquable des différentes techniques d'imagerie par diffraction cohérent avec différentes sources XUV et X a permis de démontrer l'applicabilité de ces techniques pour suivre des dynamiques à l'échelle nanométrique.

La détection de la figure de diffraction générée par un objet pose une contrainte importante. Seulement l'intensité de la figure de diffraction est détectée, et donc l'information de phase du champ diffracté est perdue. Cette contrainte est connue comme le problème de la phase. Ce problème est étudié depuis la fin des années 40s. En 1948 Gabor a proposé un système d'imagerie sans lentille basé sur une technique interférométrique pour éliminer les contraintes induites par la focalisation d'un faisceau d'électrons dans un microscope électronique [16]. Cette technique interférométrique, connue sous le nom d'imagerie holographique, encode l'information de phase dans l'interférence entre le champ diffracté par l'objet et une référence.

L'imagerie par transformé de Fourier (FTH) a été démontrée avec succès sur des sources XUV et X (avec l'utilisation d'une référence ponctuelle ou étendue) [11, 17, 22, 30, 39]. La transformée de Fourier de l'hologramme  $\tilde{I}(\vec{\rho}, z)$  généré par un objet avec une fonction de transmittance  $o(\vec{r})$  placé à côté d'une référence  $r(\vec{r})$  est

$$\tilde{I}(\vec{\rho}, z) = o(\vec{r}) \otimes o(\vec{r}) + r(\vec{r}) \otimes r(\vec{r}) + o^*(-\vec{r}) \otimes r(\vec{r} - \vec{r}_0) + o(\vec{r}) \otimes r^*(\vec{r} + \vec{r}_0). \quad (1)$$

Les deux premiers termes à droite de l'Eq. 1 sont respectivement l'autocorrélation de l'objet et de la référence, et les deux dernier termes sont la corrélation entre l'objet et la référence et son complexe conjugué. Ce terme de corrélation entre l'objet et la référence est connu comme le terme holographique. Dans le cas d'une référence ponctuelle, le terme holographique donne une reconstruction directe de l'objet. Dans les faits, la taille de la référence limite la résolution de la reconstruction de l'image et, en même temps, détermine le flux de photons dans le faisceau de référence (lié au contraste des interférences sur le détecteur). Cette contrainte sur le flux de photons peut être compensée par l'utilisation d'une référence étendue [17, 22]. Dans ce cas, il faut une étape supplémentaire de dérivation afin d'effectuer la décorrélation de l'effet de la référence étendue dans le terme holographique.

Malgré tout, l'utilisation d'une référence est une contrainte expérimentale importante. La taille de la reconstruction est liée à la taille de la référence ponctuelle ou des extrémités de la référence étendue. En plus, la préparation de l'objet implique le positionnement d'une référence proche de l'objet, ce qui n'est pas toujours possible et représente donc une restriction pour l'usage de cette technique. Par conséquent, différentes méthodes ont été proposées pour résoudre le problème général : comme obtenir la reconstruction de l'objet (en amplitude et phase) à partir de l'amplitude de la figure de diffraction uniquement, sans l'utilisation d'une référence. Une des solutions les plus remarquables est l'algorithme itératif proposé par Gerchberg et Saxton [19] en 1972. Cet algorithme est basé sur la propagation du champ électrique vers le plan de détection et sa rétropropagation vers le plan objet, de façon itérative, afin de trouver la fonction de transmittance qui peut générer la figure de diffraction enregistrée. Cet algorithme prend comme contraintes la mesure de l'intensité de l'objet et l'intensité dans la figure de diffraction. En 1978, Fienup [15] propose un algorithme itératif basé sur celui de Gerchberg et Saxton [19] avec des contraintes différentes. Dans cet algorithme, nommé « approximation par réduction d'erreur », Fienup a changé la contrainte sur la mesure de l'intensité dans le plain objet. La nouvelle contrainte utilise le concept de « fonction de support de l'objet » (introduit par Fineup). Le support de l'objet est une région dans laquelle l'objet est contenu. Au lieu de connaître l'intensité sur le plan objet, la solution est de forcer la valeur du champ reconstruit dans ce plan à avoir une valeur nulle hors de ce support. Le support peut être estimé en utilisant l'autocorrélation de l'objet, i.e. la transformée de Fourier de la figure de diffraction mesurée. C'est pour cela que cet algorithme permet la reconstruction de l'objet en utilisant uniquement l'intensité de la figure de diffraction (Fig. 1).

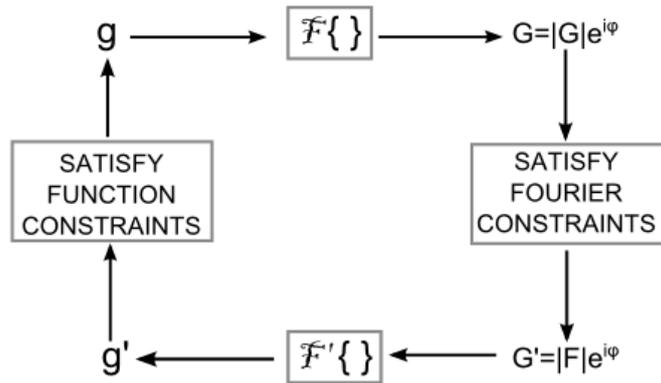


Fig 1. Diagramme de l'algorithme itératif par réduction d'erreur proposé par Fienup [15]

Initialement, l'algorithme de reconstruction par réduction d'erreur a été proposé comme une solution pour l'amélioration de la résolution des images astronomiques. À cause de leur nature, les objets dans l'algorithme initial de Fienup [15] ont été définis comme ayant une transmittance réelle et positive. Ceci impose une restriction pour la reconstruction des objets décrits par une fonction de transmittance complexe. En 1987, Fienup [14] a proposé une modification de son algorithme pour éliminer cette contrainte. Plusieurs modifications de l'algorithme itératif par réduction d'erreur ont été proposées par Fienup [13]. L'algorithme avec le temps de convergence le plus rapide est l'algorithme « hybrid input output » (HIO).

La contrainte du support proposée par Fienup [13] a été améliorée par l'introduction de l'algorithme Shrinkwrap, développé par Marchesini et al. [29]. Dans ce cas, au lieu d'utiliser le même support à chaque itération, le support est mis à jour pendant le processus de reconstruction. Ainsi, une première approximation du support est donnée par l'autocorrélation issue de la figure de diffraction et, à chaque itération, le support est amélioré par l'utilisation d'un seuil sur la meilleure reconstruction de l'objet. Cette solution a été utilisée expérimentalement avec succès [2, 3, 4, 28].

Le développement remarquable des différentes techniques d'imagerie sans lentille avec un faisceau cohérent de rayons X et XUV a permis d'obtenir des résolutions spatiales de quelques dizaines de nanomètres. Si la limite de diffraction est obtenue, les sources cohérentes de rayons X ont la capacité de générer une vision atomique. Cependant, pour aller au-delà de cette vision, les dernières sources permettent d'avoir en plus une résolution temporelle exceptionnelle permettant de « filmer » les processus les plus rapides jamais observés (femtosecondes  $-10^{-15}$  s- et attosecondes  $-10^{-18}$  s).

Pour suivre des mouvements rapides on a besoin d'obturateurs rapides, et l'obturateur le plus rapide est la lumière même. L'idée de l'utilisation de lasers avec des impulsions courtes a permis l'accès aux échelles femtosecondes. Pendant les deux dernières décennies, les lasers femtosecondes ont été utilisés avec un succès remarquable en femtochimie pour l'étude des dynamiques atomiques et moléculaires impliquées dans les réactions chimiques [42].

La durée temporelle des impulsions de rayons X a atteint l'échelle femtoseconde grâce au développement du laser à électrons libres [23]. Le FEL génère des rayonnements de haute puissance cohérents et accordables dans une grande gamme de longueurs d'onde, des millimètres à l'ultraviolet ou même aux rayons X (XFEL). La première démonstration d'imagerie en simple tir, faite en 2006 à FLASH [4], a ouvert la voie aux études à l'échelle nanométrique avec une résolution temporelle femtoseconde [2, 5].

Contrairement aux grandes installations nécessaires pour la génération du rayonnement FEL (de l'ordre du kilomètre), les rayonnements XUV et X mous cohérents peuvent être générés dans des installations plus compactes (et par conséquent beaucoup plus accessibles par rapport aux coûts élevés des FEL). L'une des voies est la génération d'harmoniques laser d'ordre élevé (HHG). La HHG est un processus non linéaire qui permet de produire un rayonnement cohérent XUV et X mous avec une durée d'impulsion de l'ordre de la femtoseconde jusqu'à attoseconde. Elle a été découverte simultanément au CEA-Saclay par Ferray et al. [12] et à Chicago par McPherson et al. [31] à la fin des années 1980. Ce rayonnement est généré par un processus fortement non linéaire induit dans un gaz atomique en présence d'un champ laser pulsé et intense. Le processus de génération peut être décrit par un modèle à trois étapes (voir les travaux de Corkum PB. [7], Lewenstein et al. [27] et Schafer et al. [38]) : une étape d'ionisation, suivie d'une étape d'accélération du paquet d'onde électronique sous l'influence du champ laser et une dernière étape de recombinaison du paquet électronique avec l'atome parent, au cours de laquelle l'électron libère l'énergie acquise sous forme d'émission XUV cohérente. Le flux HHG a un maximum de l'ordre de  $10^{11}$  photons par impulsion dans l'argon et  $10^9$  dans le néon. Les impulsions sont totalement synchronisées avec le faisceau IR de génération, ce qui élimine tout problème d'instabilité temporelle (inhérent par exemple au FEL). Par contre, les sources FEL peuvent atteindre une gamme allant de l'XUV jusqu'aux rayons X durs avec un flux de photons très élevé, jusqu'à  $10^{13}$  photons par impulsion. La durée temporelle des impulsions peut descendre jusqu'à quelques femtosecondes et une instabilité temporelle de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes.

Tout d'abord, la différence de flux a été une contrainte essentielle pour l'imagerie sans lentille en simple tir avec des sources HHG. En 2007, Richard Sandberg et al. [37] ont démontré expérimentalement l'imagerie CDI avec une résolution spatiale de 214 nm en utilisant une source HHG ayant une cadence de l'ordre du kHz. Les temps d'exposition pour cette première démonstration (de l'ordre de l'heure) étaient loin des applications en simple tir. En 2009, notre groupe de recherche au CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives) a démontré la première application d'imagerie CDI en simple tir avec une source HHG. La résolution spatiale de la reconstruction obtenue était de 119 nm en utilisant une unique impulsion de 20 fs. Après un important travail d'optimisation de la source, la résolution spatiale de l'imagerie en simple tir a été améliorée à 70 nm [18].

Atteindre la limite de diffraction impose des contraintes sur la qualité du faisceau. En effet, la qualité de la reconstruction de l'image par CDI est limitée par le rapport signal sur

bruit (SNR) de la figure de diffraction et par les propriétés du faisceau incident, particulièrement par son front d'onde et sa cohérence spatiale. La cohérence partielle du faisceau apparaît dans l'équation de la diffraction [21] et doit donc être prise en compte dans les algorithmes de reconstruction. De ce fait, une caractérisation de la cohérence spatiale de la source est nécessaire. La diffraction est également liée à l'amplitude et à la phase du faisceau incident sur l'objet. Toute variation dans la phase du faisceau incident (aberration) génère des erreurs dans la reconstruction de l'objet, les algorithmes ne considérant pour l'instant que le cas d'une onde plane. Dans le cas d'un faisceau totalement cohérent l'équation de diffraction dans l'approximation de Fraunhofer est [21]

$$V(\vec{\rho}, z) = \frac{-ie^{ikz}}{\lambda z} \int \int_{-\infty}^{\infty} V_0(\vec{r}) t(\vec{r}) e^{\frac{-2\pi i}{\lambda z}(\vec{\rho} \cdot \vec{r})} d\vec{r} . \quad (2)$$

Avec  $V_0(\vec{r})$  le champ du faisceau incident de longueur d'onde  $\lambda$ , diffracté par un objet avec une fonction de transmittance  $t(\vec{r})$ . La distance entre le plan objet ( $\vec{r}$ ) et le plan de détection ( $\vec{\rho}$ ) est donnée par  $z$ .

Toute variation dans le front d'onde du faisceau incident  $V_0(\vec{r})$  doit être prise en compte dans l'équation de diffraction (Eq. 2) afin de retrouver la fonction de transmittance de l'objet  $t(\vec{r})$ . Par conséquent, toute aberration induite par le système de focalisation du faisceau introduit une erreur dans la reconstruction de l'objet. La mesure du front d'onde, qui permet d'améliorer la qualité du faisceau généré par HHG et d'optimiser les systèmes de focalisation, est donc indispensable.

La première partie de cette thèse est consacrée à la caractérisation de la cohérence spatiale et du front d'onde des sources XUV générées par HHG et FEL.

Le chapitre 1 présente une nouvelle technique de caractérisation de la cohérence spatiale en simple tir ainsi que le formalisme théorique pour faire de l'imagerie holographique avec un faisceau partiellement cohérent. La caractérisation de la cohérence a plusieurs applications. D'un côté, la dépendance de la diffraction avec la cohérence de la source fait de la connaissance de la cohérence un facteur essentiel. De façon générale, les sources XUV générées par HHG ou FEL présentent une cohérence spatiale partielle [26, 40]. La dégradation de la résolution de l'image est liée à l'utilisation du formalisme de diffraction cohérente alors que le faisceau incident n'est que partiellement cohérent. Pour contrecarrer cet effet, la mesure de la cohérence spatiale de la source peut être utilisée comme un paramètre dans le processus de reconstruction. De plus, la caractérisation de la cohérence du faisceau XUV permet l'étude de la physique de la génération [8, 40]. La compréhension du processus de génération et sa relation avec la cohérence spatiale ouvre le chemin vers le façonnage des sources XUV.

Jusqu'à présent, toutes les méthodes de caractérisation de la cohérence spatiale exigent la connaissance de la distribution d'intensité du faisceau dans le plan à caractériser ou la

mesure de l'intensité en différents plans dans la direction de propagation (dans le cas d'une reconstruction tomographique de la fonction de Wigner). Une caractérisation en parallèle du profil d'intensité requiert l'utilisation de lames séparatrices dans l'XUV. Cependant, de telles lames ne sont pas disponibles dans ces gammes de longueurs d'onde. De plus, une technique de caractérisation de la cohérence en simple tir est nécessaire pour éliminer les erreurs induites par les fluctuations tir à tir des propriétés du faisceau.

Nous présentons ainsi dans ce chapitre une nouvelle méthode de caractérisation de la cohérence spatiale. Il s'agit d'une technique en tir unique, basée sur l'utilisation d'un ensemble d'ouvertures non redondant (NRA) [20, 32]. L'utilisation d'un NRA permet de mesurer la cohérence spatiale pour différents vecteurs de séparation  $\mathbf{d}_{nm}$  et d'intensité (normalisée) de chaque ouverture  $(n,m)$ . Ainsi, le problème d'une mesure en parallèle de la distribution d'intensité du faisceau incident est éliminé. Nous avons validé la technique par des mesures de la cohérence spatiale d'un faisceau XUV généré par HHG (harmonique 33 d'un laser IR,  $\lambda=24$  nm) sur la source du CEA. La comparaison de ces résultats expérimentaux avec des simulations valident cette nouvelle technique de caractérisation en simple tir. Nous présentons aussi les résultats d'étude des implications de la technique sur l'évaluation de la cohérence lorsque le signal mesuré est issu de l'accumulation de multiples impulsions.

Une description théorique développée pour l'application de la méthode en régime de diffraction de Fresnel est ensuite présentée. Cette description ouvre la possibilité de l'utilisation de cette technique comme une méthode de caractérisation en temps réel sur des installations XFEL.

Les travaux de cette thèse montrent aussi le lien entre la cohérence spatiale (partielle) et les algorithmes de reconstruction par transformée de Fourier. Une relation analytique donnant la relation entre la reconstruction de l'objet et la cohérence spatiale de la source est démontrée. Après avoir caractérisé la cohérence de la source, il est donc possible de compenser la modulation induite dans la reconstruction de l'objet. Cette technique est facilement applicable aux sources de rayonnement XUV partiellement cohérents que sont les HHG ou FEL. Elle permettra aussi de limiter la perte de flux de photons lors de mesures sur les synchrotrons. En effet, la cohérence spatiale d'un rayonnement synchrotron augmente en fonction de l'inverse de la taille de la source et de la distance de propagation. Il est donc nécessaire d'utiliser des petites ouvertures pour gagner en cohérence par propagation, au détriment d'une perte de flux important. Un compromis entre le flux de photons et le facteur de cohérence spatiale de la source peut être fait en sachant que la perte de qualité de la reconstruction de l'objet peut être compensée avec la relation analytique présentée dans ce chapitre.

Le chapitre 2 est dédié à la mesure du front d'onde des sources XUV et X mous. Pendant cette thèse, l'expertise du groupe Attophysique du CEA-Saclay sur la caractérisation du front d'onde d'une source XUV générée par HHG a été étendue aux sources de rayons X mous

généralisés par FEL. Dans ce chapitre, deux applications principales sont présentées. La première consiste en l'optimisation d'un système de focalisation Kirkpatrick-Baez (système KB) via un senseur de front d'onde. Cette technique a été appliquée avec succès sur deux lignes de lumière différentes, à savoir la ligne AMO à LCLS (SLAC, Stanford) et la ligne d'imagerie DiProl à FERMI (ELETTRA, Trieste). Outre les mesures de front d'onde après le KB sur Diprol, des mesures directes du faisceau FEL (après réflexion sur une seule optique) ont été réalisées afin de caractériser les différents régimes de génération du rayonnement FEL. Les résultats des mesures d'intensité ont montré expérimentalement l'existence de différents modes d'émission FEL, un mode avec une amplitude transversale Gaussienne et un autre mode très particulier composé de deux modes principaux, un mode Gaussien et un mode annulaire.

La deuxième application correspond à la mesure du front d'onde d'un champ XUV généré par HHG pour suivre les dynamiques de plasma pendant les premières étapes de chauffage (sub-ps) induits par un FEL (à LCLS, Stanford). L'état du matériel est intrinsèquement différent de celui des plasmas générés par un laser optique. En effet, dans le cas d'une impulsion X intense, le dépôt d'énergie est hautement uniforme. Un diagnostic par transmission d'un plasma proche de la densité du solide requiert l'utilisation de longueurs d'onde courtes. Par conséquent, un faisceau pulsé XUV (15- 60 nm) avec une courte durée d'impulsions (<40 fs) généré par HHG a été utilisé. Lors de sa propagation dans la cible, le champ incident est absorbé et rétrodiffusé dans la direction contraire à la propagation du faisceau incident. De plus, l'indice optique du milieu varie au court du temps. La propagation dans ce milieu perturbé induit une variation dans de phase spatiale. Le senseur du front d'onde a été utilisé pour suivre cette variation de phase.

Une autre propriété fondamentale des sources XUV générés par HHG et FEL est la courte durée des impulsions. A ce jour, les impulsions les plus courtes ont été générées par HHG. Au début du 21<sup>ème</sup> siècle, la première mesure expérimentale d'un train d'impulsions de 250 attoseconds a été réalisée [24, 35], débutant ainsi l'ère de la physique attoseconde, dédiée à l'étude des mouvements des électrons. Les trains d'impulsions attoseconds sont issus de la superposition d'harmoniques consécutives. Les premières expériences d'application s'attachèrent aux mesures des temps de vie des trous dans la couche M du krypton [10], aux dynamiques électroniques intra-atomiques transitoires [25] et à l'observation du mouvement d'un paquet d'onde vibrationnelle D2+ avec une précision d'environ 200 attoseconds [34]. Cependant, des mesures expérimentales combinant l'échelle des distances atomiques (résolution sub-nanométrique) et une résolution temporelles de l'ordre de l'attoseconde n'ont pas été démontrées. Ce grand défi requière l'invention de nouvelles techniques d'imagerie compatibles avec des sources de large bande spectrale permettant d'atteindre une résolution subatomique simultanément en espace et en temps. Les mouvements 3D des électrons pourront alors être accessibles. Cette évolution ouvrira de nouvelles applications en physique, chimique, biologie et dans des technologies futures.

La deuxième partie de cette thèse est dédiée au développement de nouvelles techniques d'imagerie, l'imagerie 3D en simple tir et l'imagerie avec une source de large bande spectrale.

Dans le chapitre 3 nous présentons une extension des techniques d'imagerie ultrarapide 2D pour l'obtention d'images 3D. Les techniques d'imagerie en simple tir sont une solution pour suivre des dynamiques dans le cas où le faisceau incident sur l'objet génère des transformations irréversibles ou même la destruction de l'objet. La technique d'imagerie stéréographique 3D en simple tir que nous avons développée offre une perception 3D de l'objet tout en minimisant l'impact de l'irradiation de l'objet par le faisceau incident. L'imagerie stéréographique est basée sur l'observation de l'objet en deux angles différents, de façon similaire à la vision humaine. Pour conserver la caractéristique d'imagerie en simple tir nous proposons la génération de deux sources de rayons XUV mutuellement cohérentes, avec une superposition temporelle et spatiale. Dans ce chapitre nous présentons différentes solutions expérimentales pour la génération de ces deux sources. La technique d'imagerie proposée est basée sur l'application de l'imagerie sans lentille 2D pour chacun des faisceaux. La détection des deux figures de diffraction de l'objet, générées par les deux faisceaux, est faite simultanément sur une unique caméra CCD. Des résultats expérimentaux obtenus sur notre ligne de lumière harmoniques au CEA-Saclay sont présentés.

Le chapitre 4 est dédié à l'imagerie avec une source cohérente XUV de large bande spectrale. Pendant les dernières années l'imagerie XUV sans lentille a été démontrée avec succès en utilisant des sources monochromatiques [2, 11, 17, 22, 36]. Le problème d'imagerie avec une source monochromatique réduit des paramètres additionnels liés à l'utilisation d'une source de large bande spectrale. Cependant, l'utilisation d'une source de large bande spectrale a plusieurs avantages par rapport aux sources monochromatiques. La monochromatisation du champ XUV implique une réduction substantielle du flux de photons XUV incident. Dans le cas d'une source XUV issu de la HHG, le spectre de la source XUV est composé de plusieurs ordres harmoniques qui présentent une amplitude presque constante dans la région du plateau. La sélection d'une seule harmonique implique une perte de plus du 70% de l'énergie générée. De plus, l'accès aux résolutions temporelles attosecondes implique l'utilisation d'un faisceau avec une large bande spectrale.

Récemment, plusieurs études ont démontré la reconstruction d'une image en utilisant des techniques d'imagerie sans lentille pour sources polychromatiques, à l'aide d'algorithmes itératifs [1, 6, 9], ou en utilisant un scan de deux impulsions générés par division d'amplitude et retardées temporellement [41]. Ces techniques utilisent comme paramètre d'entrée un spectre discret connu.

Dans ce chapitre des résultats expérimentaux d'une nouvelle technique d'imagerie XUV sans lentille avec une source de large bande spectrale sont présentés. Cette technique d'imagerie a été développée en collaboration avec le groupe de Marta Fajardo du laboratoire GoLP de l'Institut de recherche de Plasma et Fusion Nucléaire (Université

Technique de Lisbonne, Portugal), et le groupe de Philippe Zeitoun au Laboratoire d'Optique Appliquée LOA (ENSTA - ParisTech, France).

La technique d'imagerie utilisée est basée sur l'holographie par transformée de Fourier, adaptée pour prendre en compte la large bande spectrale. En contrôlant la distance entre la référence et l'objet, il est possible d'avoir un contrôle sur la distance entre les reconstructions de l'image associées à chaque longueur d'onde. Deux applications particulières avec un spectre discret sont proposées. La première est l'imagerie XUV résolue spectralement (4D), dans laquelle les reconstructions pour chaque composante spectrale sont séparées. La deuxième est l'imagerie XUV sub-femtoseconde, qui nécessite la superposition dans l'espace de Fourier de chacune des reconstructions issues des différentes composantes spectrales. Des résultats expérimentaux utilisant une source harmonique avec un spectre discret composé des harmoniques H27, H25 et H23 ( $\lambda = 30\text{nm}$ ,  $32\text{nm}$ ,  $35\text{nm}$ ) d'un laser IR ( $\lambda = 800\text{nm}$ ) sont présentés. Ils démontrent avec succès les deux applications proposées. Dans l'application de l'imagerie résolue spectralement, une résolution moyenne de l'ordre de  $100\text{nm}$  a été obtenue pour chaque composante du spectre. Dans le cas de l'imagerie par superposition des reconstructions liées aux différents ordres harmoniques, un effet de flou est généré sur la reconstruction. Cet effet est intrinsèque à la superposition des reconstructions dans l'espace de Fourier. Dans l'espace de Fourier, la taille et la position de la reconstruction sont proportionnelles à la longueur d'onde du faisceau. Cette variation de taille et de position de chaque reconstruction brouille alors la reconstruction. On propose une définition du facteur de brouillage afin de quantifier cet effet en fonction de  $\Delta\lambda / \bar{\lambda}$ . On démontre que le facteur de brouillage a des caractéristiques vectorielles. Sa magnitude dépend de  $\Delta\lambda / \bar{\lambda}$  et sa direction est donnée par le vecteur de séparation référence – objet. Les résultats expérimentaux ont confirmé l'effet que le facteur de brouillage a sur la résolution spatiale de la reconstruction. Conformément aux prédictions théoriques, la résolution spatiale de la reconstruction varie de  $\sim 4\lambda$  dans la direction perpendiculaire au vecteur de séparation référence – objet jusqu'à  $20\lambda$  dans la direction de séparation référence – objet. Grâce au facteur de brouillage il est possible de prévoir la résolution minimale attendue avec une illumination par un train d'impulsions attosecondes (spectre polychromatique discret) ou par une impulsion attoseconde unique (i.e. dont le spectre est continu et non pas constitué d'harmoniques discrètes) en fonction de  $\Delta\lambda / \bar{\lambda}$ . Des nouvelles sources attosecondes isolées avec un spectre centré aux très courtes longueurs d'onde (de l'ordre du nanomètre) sont requises pour diminuer l'effet de flou sur la reconstruction de l'image.

A la fin du manuscrit des conclusions générales du travail fait pendant la thèse, ainsi que des perspectives sont présentées.

## Références

- [1] Abbey B. et al. *Lensless imaging using broadband X-ray sources*. Nature Photonics **5**, 420 – 424 (2011).
- [2] Barty A. et al. *Ultrafast single-shot diffraction imaging of nanoscale dynamics*. Nature Photonics **2**, 415 – 419 (2008).
- [3] Barty A. et al. *Three-dimensional coherent x-ray diffraction imaging of a ceramic nanofoam: determination of structural deformation mechanisms*. Physical review letters **101**, 055501 (2008).
- [4] Chapman HN. et al. *Femtosecond diffractive imaging with a soft-X-ray free-electron laser*. Nature Physics **2**, 839 – 843 (2006).
- [5] Chapman HN. et al. *Femtosecond time-delay X-ray holography*. Nature **448**, 676 – 9 (2007).
- [6] Chen B. et al. *Multiple wavelength diffractive imaging*. Physical Review A **79**, 023809 (2009).
- [7] Corkum PB. *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*. Physical Review Letters **71**, 1994–1997 (1993).
- [8] Deroff LL. et al. *Temporal and spatial coherence of high order harmonics*. Laser Physics **10**, 294 – 302 (2000).
- [9] Dilanian R. et al. *Diffractive imaging using a polychromatic high-harmonic generation soft-x-ray source*. Journal of Applied Physics **106**, 023110 (2009).
- [10] Drescher M. et al. *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*. Nature **419**, 803–807 (2002).
- [11] Eisebitt S. et al. *Lensless imaging of magnetic nanostructures by X-ray spectroholography*. Nature **432**, 885–888 (2004).
- [12] Ferray M. et al. *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*. Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **21**, L31–L35 (1988).
- [13] Fienup J. *Phase retrieval algorithms: a comparison*. Applied optics **21** (1982).
- [14] Fienup J. *Reconstruction of a complex-valued object from the modulus of its Fourier transform using a support constraint*. JOSA A **4**, 118–123 (1987).
- [15] Fienup JR. *Reconstruction of an object from the modulus*. Opt. Lett. **3**, 27–29 (1978).

- [16] Gabor D. *A new microscopic principle*. Nature **161**, 777–778 (1948).
- [17] Gauthier D. et al. *Single-shot Femtosecond X-Ray Holography Using Extended References*. Physical Review Letters **105**, 093901 (2010).
- [18] Ge X et al. *Impact of wave front and coherence optimization in coherent diffractive imaging*. Optics express **21**, 11441–7 (2013).
- [19] Gerchberg RW and Saxton WO. *Practical algorithm for determination of phase from image and diffraction plane pictures*. Optik **35**, 237 – 246 (1972).
- [20] González AI and Mejía Y. *Nonredundant array of apertures to measure the spatial coherence in two dimensions with only one interferogram*. Journal of the Optical Society of America. A, Optics, image science, and vision **28**, 1107–1113 (2011).
- [21] Goodman JW. *Introduction to Fourier Optics*. McGraw-Hill Series in Electrical and Computer Engineering: Communications and Signal Processing. McGraw-Hill (1996). ISBN 9780070242548.
- [22] Guizar-Sicairos M and Fienup JR. *Holography with extended reference by autocorrelation linear differential operation*. Optics express **15**, 17592–612 (2007).
- [23] Hasegawa A. *Free Electron Laser*. Bell System Technical Journal **57**, 3069–3089 (1978).
- [24] Hentschel M. et al. *Attosecond metrology*. Nature **414**, 509 – 513 (2001).
- [25] Kienberger R and Goulielmakis E. *Atomic transient recorder*. Nature **427**, 817 – 821 (2004).
- [26] Le Déroff L. et al. *Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a Fresnel-mirror interferometer*. Physical Review A **61**, 1–9 (2000).
- [27] Lewenstein M. et al. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Physical Review A **49**, 2117–2132 (1994).
- [28] Maia F. R. N. C. et al. *Structural variability and the incoherent addition of scattered intensities in single-particle diffraction*. Physical review. E, Statistical, nonlinear, and soft matter physics **80**, 031905 (2009).
- [29] Marchesini S. et al. *X-ray image reconstruction from a diffraction pattern alone*. Physical Review B **68**, 1 – 4 (2003).
- [30] McNulty I. et al. *High-resolution imaging by Fourier transform x-ray holography*. Science **256**, 1009 – 1011 (1992).
- [31] Mcpherson A et al. *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*. Journal of Optical Society of America B **4**, 595–601 (1987).

- [32] Mejía Y and González AI. *Measuring spatial coherence by using a mask with multiple apertures*. Optics Communications **273**, 428–434 (2007).
- [33] Miao J. et al. *Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens*. Nature **400**, 342 – 344 (1999).
- [34] Niikura H. et al. *Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wave packet pairs*. Nature **421**, 826 – 829 (2003).
- [35] Paul PM. et al. *Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation*. Science (New York, N.Y.) **292**, 1689 – 92 (2001).
- [36] Ravasio A. et al. *Single-Shot Diffractive Imaging with a Table-Top Femtosecond Soft X-Ray Laser- Harmonics Source*. Physical Review Letters **103**, 028104 (2009).
- [37] Sandberg R. et al. *Lensless Diffractive Imaging Using Tabletop Coherent High- Harmonic Soft-X-Ray Beams*. Physical Review Letters **99**, 098103 (2007).
- [38] Schafer K. et al. *Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff*. Physical Review Letters **44**, 2021–2022 (1997).
- [39] Stroke GW and Gabor D. *An introduction to coherent optics and holography*. Academic Press (1969).
- [40] Vartanyants I. et al. *Coherence Properties of Individual Femtosecond Pulses of an X-Ray Free-Electron Laser*. Physical Review Letters **107**, 144801 (2011).
- [41] Witte S. et al. *Lensless diffractive imaging with ultra-broadband table-top sources: from infrared to extreme-ultraviolet wavelengths*. Light: Science & Applications **3**, e163 (2014).
- [42] Zewail A.H. *Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond*. Journal of Physical Chemistry A **104**, 5660–5694 (2000).