

Dynamique d'ionisation et émission X des plasmas créés par laser

J. C. Gauthier

CNRS, Laboratoire de Physique des Milieux Ionisés, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau, France

Abstract: Conversion of laser light to soft x-rays is reviewed both in the nanosecond and subpicosecond laser duration regime. The basis of laser plasma emission modelling is presented with particular emphasis on radiative hydrodynamic simulations, collisional-radiative calculations of the ionization dynamics and generation of synthetic spectra for diagnostics and x-ray source design. Applications of laser-produced plasma x-rays will be shortly described.

Résumé: La conversion de lumière laser en rayons X mous dans les plasmas est passée en revue dans le domaine des impulsions nanoseconde et subpicoseconde. Les bases de la modélisation de l'émission X d'un plasma créé par laser sont présentées en insistant tout particulièrement sur les simulations hydrodynamiques, sur les calculs collisionnel-radiatifs décrivant la dynamique d'ionisation et sur la simulation de spectres pour l'application au diagnostic et à la mise en oeuvre d'une source X. Les applications des sources X par plasma laser seront passées brièvement en revue.

I. INTRODUCTION

Notre connaissance et notre compréhension des propriétés locales et globales des plasmas créés par laser provient principalement de l'analyse et de l'interprétation de leur signature spectrale dans le domaine des rayons X, sous forme de continua ou de rayonnement de raies. L'analyse démarre généralement par une caractérisation de la dynamique d'ionisation qui donne une description des différents processus atomiques et radiatifs responsables du peuplement de la distribution des niveaux excités des différents états d'ionisation. Le calcul des populations nécessite également la connaissance des paramètres du plasma, densité et température électronique, en chaque point. Enfin, l'intensité rayonnée peut être évaluée en tenant compte du transfert de rayonnement entre le point émetteur du plasma et le point d'observation.

La situation se complique lorsqu'on tient compte de l'échelle spatiale et temporelle du problème. La dimension transverse d'un plasma laser est typiquement de l'ordre du diamètre de la tache focale, soit environ 100 μm , et l'échelle de temps caractéristique peut aller de la centaine de femtosecondes à quelques nanosecondes. Dans l'axe du laser, l'expansion du plasma s'effectue à des vitesses dépassant 10⁸cm/s. Une description approximative de l'évolution des paramètres du plasma est donnée sur la figure 1. La zone appelée couronne peut atteindre des températures de plusieurs keV, mais la densité électronique reste inférieure à la densité critique $n_c = 10^{21} \text{cm}^{-3} / (\lambda/\mu\text{m})^2$. Par contre, dans la zone proche de la surface initiale de la cible, la densité est voisine de celle du solide et la température ne dépasse pas quelques dizaines d'eV. La région de forte température au voisinage de la densité critique est la zone principale de conversion de l'énergie laser en rayonnement X. Ce rayonnement s'échappe en dehors de la cible et vers la cible où il chauffe la matière. Cette région préchauffée peut également émettre, dans une gamme de rayons X moins énergétique, vers l'avant et l'arrière de la cible. Il y a donc une dégradation continue de l'énergie des photons X vers l'intérieur de la cible.

La gamme de variation des paramètres du plasma est très étendue. Pour fixer les

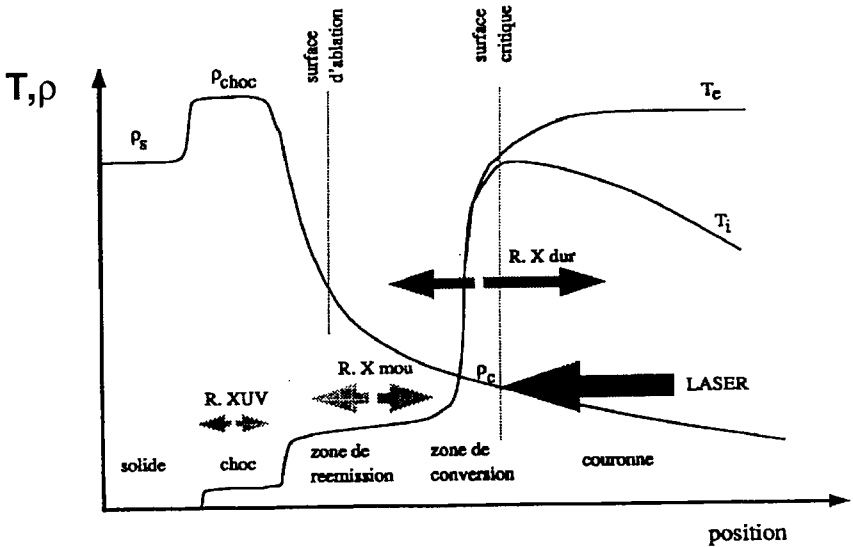


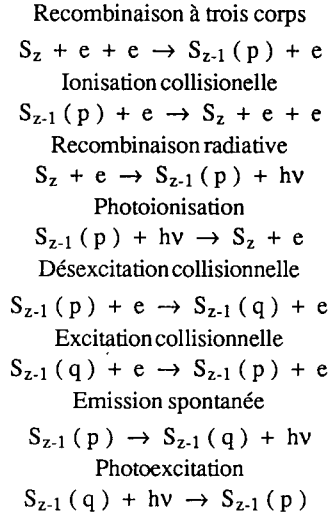
Fig. 1. Variation typique des paramètres du plasma le long de l'axe laser.
 [Typical variation of the plasma parameters along the laser axis]

idées, la température électronique peut varier de quelques eV à plusieurs keV alors que la densité électronique varie de 10^{18} à 10^{24} cm^{-3} . Sur une telle gamme de paramètres, l'importance des processus d'ionisation collisionnelle varie considérablement par rapport aux processus radiatifs et l'équilibre d'ionisation peut changer fortement. Les principaux types d'équilibre [1] dans les plasmas sont: l'équilibre thermodynamique local (ETL) valable à forte densité, l'équilibre coronal (CE) valable à très faible densité, et un équilibre intermédiaire, appelé collisionnel-radiatif (CRE) d'après Bates et.al. [2], qui est valable, en particulier, dans la zone de conversion. Les problèmes de modélisation de l'ionisation des plasmas laser sont particulièrement ardu car tous les équilibres précédemment décrits sont actifs simultanément en différents points du plasma.

La caractérisation du plasma laser en tant que source de rayons X passe par le calcul de l'intensité émise sur les raies et le continuum. Dans le cas du rayonnement de raies, l'intensité émise peut s'écrire $I(\nu) = N_i^Z A_{ij} h\nu_{ij} F(\nu)$ où A_{ij} est la probabilité de transition radiative, N_i^Z la population du niveau supérieur de la transition et $F(\nu)$ le profil de la raie. Cette équation est particulièrement intéressante car elle permet de bien mettre en évidence les différents ingrédients nécessaires pour la modélisation. La population de l'ion N_i^Z met en jeu la dynamique d'ionisation et les processus collisionnels-radiatifs de peuplement des états excités, le terme en A_{ij} met en jeu la physique atomique et les problèmes de structure et de probabilité radiative alors que le terme de profil de raie met en jeu la théorie de l'élargissement, le transfert radiatif et la perturbation des largeurs de raies par le champ ionique en plasma dense.

II. MODÉLISATION DE LA DYNAMIQUE D'IONISATION

Nous allons étudier l'évolution de la population d'un ion N_p^Z de charge Z dans l'état quantique p . Cette population est affectée par deux types de processus: 1) les processus d'ionisation et de recombinaison qui font passer d'un ion de charge Z à l'ion de charge $Z+1$, et 2) les processus d'excitation et de désexcitation qui ne mettent en jeu que des niveaux appartenant à un même ion. Ces processus sont détaillés ci-dessous:



L'équation décrivant l'évolution des populations peut se mettre sous la forme simplifiée:

$$\frac{dN_p^Z}{dt} = [R] N_p^Z \quad (1),$$

où [R] représente la matrice de réaction qui dépend des taux individuels de collision et de rayonnement. La solution exacte de cette équation est impossible à formuler dans le cas le plus général. En fait, pour les ions de charge élevée, le nombre de niveaux excités à prendre en compte peut facilement dépasser 10^6 . On a recours à différentes approximations pour ramener le problème à une taille compatible avec les moyens numériques actuellement disponibles. L'analyse des échelles de temps du problème permet de s'affranchir d'une bonne partie de la dépendance temporelle dans l'Eq.1. En admettant que les populations s'adaptent rapidement aux conditions imposées par l'évolution spatio-temporelle du plasma, on peut tout d'abord supposer que les populations restent stationnaires

$$\frac{dN_p^Z}{dt} = 0 \quad (2).$$

On peut alors sommer les N_p^Z sur les niveaux excités et le rapport entre les populations des deux ions de charge voisine est donné par [3]:

$$\frac{N_{Z+1}}{N_Z} = \frac{S_{Z,Z+1}^{\text{coll}} + \frac{S_{Z,Z+1}^{\text{photo}}}{n_e}}{R_{Z+1,Z}^{r+d+i} + n_e R_{Z+1,Z}^{3b}} \quad (3),$$

où les S et les R sont maintenant des coefficients globaux (tenant compte des états excités) d'ionisation et de recombinaison. En nous bornant à cette expression, on peut facilement retrouver les états d'équilibre ETL et CE dont nous avons parlé précédemment.

A forte densité (modèle ETL), c'est à dire pour [1] $n_e > 9.10^{17} \text{ (kT}_e/\text{Ryd)}^{1/2}$

$(E/Ryd)^3 cm^{-3}$ où E est l'énergie d'excitation du premier niveau de l'ion considéré et kT_e l'énergie électronique (toutes deux en eV), on obtient:

$$\frac{N_{Z+1}}{N_Z} = \frac{S_{Z,Z+1}^{coll}}{n_e R_{Z+1,Z}^{3b}} \quad (4),$$

qui, en tenant compte de la microréversibilité des processus, n'est autre que la loi de Saha-Boltzmann. A basse densité (modèle CE), en ne tenant pas compte de la photoionisation (notre présentation est très simplifiée car on ne tiendra pas compte du rayonnement dans le calcul des populations):

$$\frac{N_{Z+1}}{N_Z} = \frac{S_{Z,Z+1}^{coll}}{R_{Z+1,Z}^{r+d+i}} \quad (5),$$

qui est indépendant, en première approximation, de la densité électronique.

En fait, il existe deux échelles de temps assez différentes correspondant à l'excitation et à l'ionisation collisionnelle. En définissant le temps hydrodynamique t_{hyd} , le temps caractéristique d'ionisation t_{ion} et le temps caractéristique d'excitation t_{exc} , on aura, en régime d'impulsion laser nanoseconde, et pour des densités supérieures à la densité critique:

$$t_{exc} < t_{ion} < t_{hyd} \quad (6).$$

On peut alors admettre [4] une hypothèse de quasi-stationnarité (QSS) pour les niveaux excités de l'ion de charge Z , en équilibre de Saha avec l'ion de charge $Z+1$. Par contre, les niveaux fondamentaux des ions doivent être traités au moyen de l'Eq.1.

Dans le cas d'une impulsion laser picoseconde ou sub-picoseconde, la hiérarchie des temps donnée par l'Eq.6 peut être inversée, soit:

$$t_{exc} < t_{hyd} < t_{ion} \quad (7)$$

et l'on est ramené à la résolution de l'Eq.1 avec toute la dépendance temporelle.

Il existe une grande variété de méthodes numériques pour calculer les taux collisionnels-radiatifs dans la gamme de température électronique couverte par les plasmas chauds. Leur description détaillée dépasse le cadre de cet article: on trouvera une compilation récente très complète dans la référence 5. Dans les cas trop complexes, on peut simplifier le formidable problème numérique posé par l'Eq.1 en appliquant le modèle de l'ion moyen (décrit, par exemple, par R. More [6]) qui considère un ion unique, dont les couches atomiques sont peuplées de façon fractionnaire, qui rend compte des propriétés d'excitation et d'ionisation moyenne de l'atome considéré.

La solution du modèle collisionnel-radiatif donné par l'Eq.1 a été poussée assez loin [7-14] pour les atomes de Z faible (par exemple, l'aluminium) depuis les travaux pionniers de Bates et al. [2] pour les ions hydrogénoïdes. Pour les atomes de Z plus élevé, aucune solution satisfaisante n'a encore été trouvée hors des situations à l'ETL [15]. On a le plus souvent recours à des taux d'excitation et d'ionisation quasi-hydrogénoïdes [6]. Toutefois, pour la modélisation collisionnelle-radiative des inversions de population dans la recherche sur le laser X, des modélisations assez détaillées ont pu être réalisées sur des ions très particuliers de la série isoélectronique du lithium [16], du néon et du nickel [17-18].

Afin d'illustrer les problèmes posés par l'évolution temporelle des niveaux excités dans la modélisation de la dynamique d'ionisation, nous avons représenté sur la figure 2

les variations temporelles des niveaux d'un plasma de magnésium à une densité électronique fixe de 5.10^{22}cm^{-3} soumis à une impulsion de température de 250 eV de 150 fs de largeur temporelle à mi-hauteur. Nous sommes alors typiquement dans le cas de la hiérarchie d'échelle de temps donnée par l'Eq.7.

On voit nettement que l'ion héliumoïde (Mg^{10+}) n'a pas le temps d'atteindre un

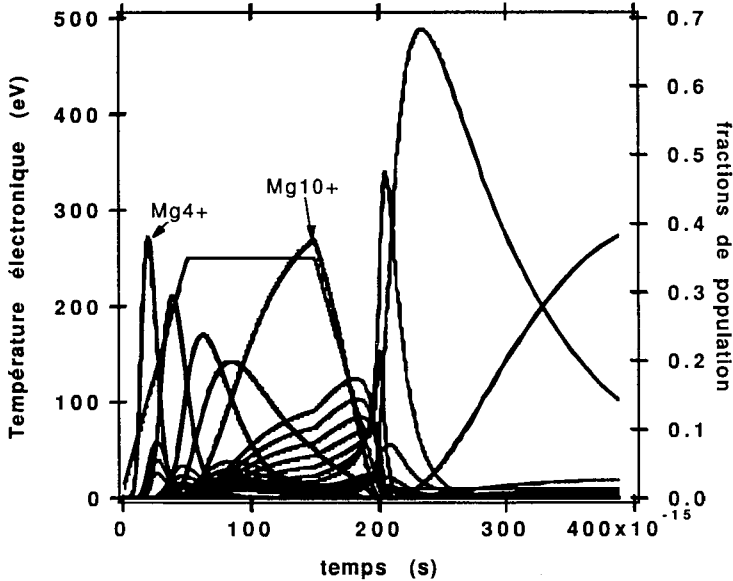


Fig. 2. Evolution temporelle des niveaux excités du magnésium soumis à une impulsion de température de 150 fs
[Temporal evolution of magnesium excited levels when the ions are submitted to a 150fs temperature pulse].

régime d'équilibre durant l'impulsion de température. Aucun niveau excité de cet ion n'est présent dans la simulation. Les ions de charge inférieure présentent de fortes inversions de population durant la phase de recombinaison.

III. SIMULATION HYDRODYNAMIQUE

Jusqu'à présent, nous avons vu comment calculer les populations des niveaux excités des ions en connaissant les paramètres fondamentaux du plasma. Dans ce chapitre, nous allons voir rapidement comment les calculer. Les équations fluides en formulation Lagrangienne traduisent la conservation de la densité, de la vitesse et de l'énergie:

$$\begin{aligned} \rho D_t \bar{v} &= -\nabla P - \bar{R} \\ \rho D_t e &= -P \nabla \cdot \bar{v} - \nabla \cdot \bar{q} - Q + S \\ D_t &= \frac{\partial}{\partial t} + \bar{v} \cdot \nabla \end{aligned}$$

où ρ désigne la densité, v la vitesse, e l'énergie interne, P la pression, q le flux de chaleur, S le terme de source d'énergie dû au laser et S et R décrivent les apports d'énergie et de

pression dus au champ de rayonnement. Contrairement aux équations d'évolution des populations, où l'on peut en première approximation négliger l'influence du rayonnement [19], les fortes valeurs du rendement de conversion obligent à tenir compte de celui-ci dans les équations de l'hydrodynamique.

Les équations fluides sont résolues sur ordinateur en géométrie mono-dimensionnelle dans la plupart des cas. En bi-dimensionnel, il est préférable de résoudre

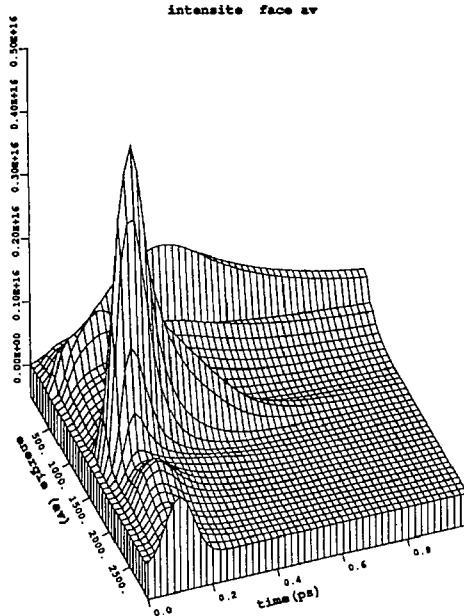


Fig. 3. Spectre émis par le samarium calculé à l'aide du code XRAD. [XRAD samarium spectrum under femtosecond laser irradiation].

actuellement poursuivi au Laboratoire d'Optique Appliquée. Les résultats expérimentaux obtenus confirment la durée sub-picoseconde de l'émission au dessus de 1.5 keV.[22-23].

IV. APPLICATIONS DES PLASMAS LASER AUX SOURCE DE RAYONS X

Les applications des sources X qui nécessitent une faible taille de source, une brillance très élevée, une faible durée d'impulsion et une bonne accordabilité en énergie de photons sont particulièrement bien adaptées à l'emploi d'une source par plasma laser. Parmi celles-ci la lithographie par rayons X est bien placée. On envisage deux directions où les rayons X pourront apporter un avantage décisif: la gravure de structures sub-microniques pour la réalisation d'engrenages, capteurs, actionneurs et la microélectronique. Pour la microélectronique, l'augmentation exponentielle de la taille des mémoires dynamiques (DRAM) montre assez clairement que l'approche conventionnelle de la lithographie par projection optique, même poussée dans ses retranchements avec l'emploi de l'UV profond, est limitée à des tailles de traits de l'ordre de 0.2 μm en production.

La caractérisation d'une source plasma laser avec application à la lithographie X en microélectronique a réellement débuté avec les travaux pionniers de A. Chaker et ses

les équations fluides dans le repère eulérien à l'aide de schémas numériques appropriés [20]. La figure 3 donne les résultats typiques d'une simulation effectuée avec le code XRAD [21] pour un laser de 100 fs, d'intensité 10^{16} W/cm² sur une cible de samarium (Z=62). Nous avons représenté le spectre émis par la face avant de la cible en fonction du temps. La forme de l'impulsion laser est donnée en avant de la figure. Le pic à 1500 eV correspond à l'émission n=4 vers n=3. Cette émission dure un peu plus longtemps que l'impulsion laser. Par contre, l'émission en dessous du keV est beaucoup plus longue: elle correspond aux ions peu chargés du plasma qui émettent fortement durant la phase de recombinaison. Ces résultats sont potentiellement intéressants pour la génération de rayons X ultra-brefs. Un programme expérimental centré sur l'étude des rayons X émis par des matériaux solides sous irradiation laser femtoseconde ultra-intense est

collaborateurs [24-27] au Québec et de I. Toubhans en France [28]. De grands laboratoires américains, tels le LLNL, ont suivi la même voie, surtout dans la perspective de développer la microlithographie à rayons X par projection [29-30]. Dans ces travaux, la modélisation de l'intensité émise par la source est réalisée avec des modèles simples quasi-empiriques, tel le modèle XSOURCE [26]. En fait, les résultats de ces modèles se

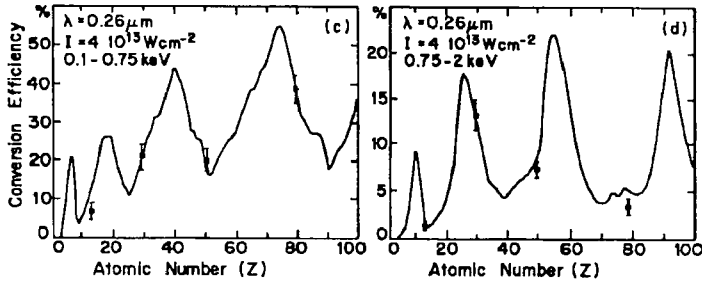


Fig. 4. Rendement de conversion calculé à l'aide du modèle XSOURCE à $0.26 \mu\text{m}$ en fonction du Z du matériau. [Conversion efficiency as a function of the Z of the material.]

comparent très bien [31] avec les résultats de calculs beaucoup plus complexes, tels XRAD ou LASNEX [30]. La figure 4 montre le rendement de conversion calculé à l'aide de XSOURCE pour une impulsion laser de 0.6 ns à $1.06 \mu\text{m}$, un flux de 4.10^{13}W/cm^2 , dans les gammes sub-keV et keV. On constate que le rendement moyen peut atteindre 30% dans la gamme sub-keV et qu'il varie assez fortement avec le Z du matériau considéré. La source laser est donc une source relativement accordable en longueur d'onde. La figure 5 montre l'évolution du rendement de conversion avec le flux laser dans le cuivre ($Z=29$). Au dessus de 10^{13}W/cm^2 , le rendement global est de l'ordre de 10%. La courbe de gauche donne les points expérimentaux alors que la courbe de droite correspond aux résultats de calcul du code hydrodynamique radiatif XRAD.

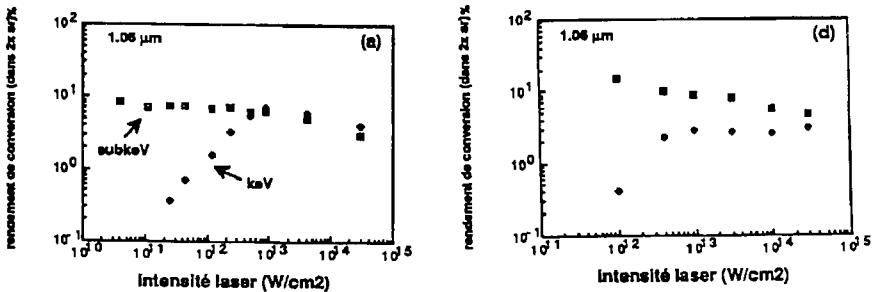


Fig. 5. Variation du rendement de conversion avec le flux dans la gamme sub-keV (carrés) et dans la gamme keV (losanges). Gauche: expérience. Droite: calculé avec XRAD. [Conversion efficiency as a function of laser intensity. Sub-keV range: squares, keV range: diamonds. The left curve is the experiment and the right curve is from XRAD.]

En conclusion, l'étude des propriétés radiatives d'un plasma laser passe forcément par la modélisation numérique. Les données atomiques, l'hydrodynamique radiative et la solution de l'équation collisionnelle-radiative sont les ingrédients principaux de ce type de modélisation. D'abord mis au point pour le diagnostic des plasmas chauds, ces outils complexes trouvent maintenant des applications nouvelles dans la mise au point de

sources de rayons X qui peuvent concurrencer les sources plus conventionnelles comme le rayonnement synchrotron.

Remerciements: Je tiens à remercier tous les membres de mon équipe qui ont participé à ce travail: J.P. Geindre, C. Chenais-Popovics, P. Audebert, C. Back, P. Renaudin, C. Fievet, A. Rousse et F. Fallières.

RÉFÉRENCES

- [1] Griem H.R. "Plasma Spectroscopy" (Mac Graw-Hill, New-York, 1964).
- [2] Bates D. R., Kingston A. E. and McWhirter R. W. P., Proc. Roy. Soc A267 (1962) 297 ; A270 (1962) 155.
- [3] Salzmann D., Phys. Rev. A20 (1979) 1704.
- [4] Gauthier J.C. , Geindre J.P., Grandjouan N. and Virmont J., J.Phys.D 16 (1983) 321.
- [5] Jacquemot S., Rapport CEA R-5463 (1988).
- [6] More R.M. "*Handbuch of Plasma Physics: Physics of Laser Plasma*" Eds. A Rubenchick and S. Witkowski (Noth-Holland, Amsterdam, 1991), p. 63.
- [7] Whitney K.G. and Davis J., J. Appl. Phys. 45 (1974) 5294.
- [8] Davis J. and Whitney K. G. , J. Appl. Phys. 47 (1976) 1426 .
- [9] Duston D. and Davis J., Phys. Rev. 21 (1980) 1664.
- [10] Duston D. and Davis J., Phys. Rev. 23 (1981) 2602.
- [11] McWhirter R. W. P., "Plasma Diagnostic Techniques" Eds. R. D. Huddleston and A. L. Leonard, Academic Press, New York, 201-264 (1965).
- [12] Stone R. and Weisheit J.C., UCID Rept. - 20262, Nov (1984).
- [13] Duston D., Clark R., Davis J. and Apruzese J., Phys. Rev. 27 (1983) 1441.
- [14] Duston D. and Davis J., Phys. Rev. 21 (1980) 932; Apruzese J., Davis J. , Duston D., and Kepple P, JQSRT 23 (1980) 479 .
- [15] Bar-Shalom A., Oreg J., Goldstein W., Shvarts D. and Zigler A., Phys.Rev. A40 (1989) 3183.
- [16] Carillon A. et.al. J. Phys B 23 (1990) 147.
- [17] Elton R.C. , "X-ray lasers" (Academic, New-york, 1990).
- [18] "X-ray lasers 1990", Ed. Tallents G.J. (IOP, Bristol,1991).
- [19] Bayle S., Thèse de Doctorat de l'Université Paris-Sud (1991).
- [20] Grandjouan N., Journal of Computational Physics 91 (1990) 424.
- [21] Gauthier J.C. et Geindre J.P., Rapports PMI n° 1971 and 1974 (1988,unpublished), available upon request to the authors.
- [22] Gauthier J.C., Audebert P., Rousse P., Geindre J.P., UV and X-ray Spectroscopy of Astrophysical and Laboratory Plasmas, Berkeley (Février 1992, sous presse).
- [23] Benattar R., Geindre J.P., Audebert P., Gauthier J.C., Chambaret J.P., Mysyrowicz A., Antonetti A., Optics Communications 88(1992) 376 .
- [24] Chaker M. et.al. Proceedings of the SPIE, 923 (1988) 20.
- [25] Chaker M. et.al. Microelectronic Engineering, 11 (1990) 313.
- [26] Chaker M. et.al. J. Appl. Phys. 63 (1988) 892.
- [27] Chaker M. et.al. Microelectronic Engineering, 10 (1990) 91.
- [28] Toubhans I. Thèse de Doctorat de l'Ecole Polytechnique (1989).
- [29] Ceglio N.M. and Hawryluk A.M., OSA Proceedings on Soft-X-ray Projection Lithography 12 (1991) 5.
- [30] Cerjan C. and Rosen M.D., OSA Proceedings on Soft-X-ray Projection Lithography 12 (1991) 72.
- [31] Boily S. et Gauthier J.C. Rapport LULI 1990, page 105.