

Étude expérimentale et modélisation des lasers à excimère XeCl photo-déclenchés

S. Pasquiers, M.-C. Bordage*, M. Legentil, V. Puech, R. Riva⁽¹⁾ et P. Ségur*

Laboratoire de Physique des Gaz et des Plasmas, URA 073 du CNRS, Bât. 212, Université Paris-Sud, 91405 Orsay cedex, France

**Laboratoire des Décharges dans les Gaz, URA 277 du CNRS, Université Paul Sabatier, 118 route de Narbonne, 31062 Toulouse cedex, France*

Abstract: We have experimentally and theoretically studied the phototriggered XeCl laser. A complete set of time resolved experimental diagnostics has been implemented on a small active volume laser, and the measurements compared with a 0D-model predictions. This model includes a detailed kinetic of the XeCl molecule, and the effect of the gas temperature growth during the development of the discharge. The Boltzmann equation is solved using a two-term expansion method which has been shown to be accurate with short CPU-time. A coherent set of electron-HCl collision cross sections has been also established and used in the calculation. The applicability limits of such a 0D-model have been precisely checked, and the performances of larger active volume lasers have been predicted.

1. INTRODUCTION

La décharge photo-déclenchée est un excellent moyen d'excitation des lasers à excimère [1-8]. Ce concept de décharge a été proposé au début des années 1980 par les chercheurs de la Division Laser des Laboratoires de Marcoussis, devenue depuis la société LASERDOT filiale du groupe Aérospatiale. Ceci a permis de supprimer l'élément le moins fiable des lasers: le commutateur de puissance. Nous avons étudié ce type de décharge en collaboration avec LASERDOT, dans le cadre du GdR 919 du CNRS et du programme de recherche européen EUREKA Eurolaser EU205 sur les lasers à excimère.

Le principe de fonctionnement de la décharge photo-déclenchée consiste à charger un banc de condensateurs dont les bornes sont directement connectées aux électrodes de la cellule de décharge, pendant un temps d'environ 10 μ s. Une fois la tension de charge V_0 atteinte, une impulsion de rayons X ou de photons UV de très courte durée, ≤ 10 ns, pré-ionise le gaz (ou le mélange de gaz), et la décharge se déclenche après un temps de retard dépendant des paramètres de fonctionnement choisis [8] (composition du mélange et pression totale, tension V_0 , impédance du circuit de décharge). Pour le laser XeCl (émission à 308 nm, mélange Ne/Xe/HCl), la

⁽¹⁾ actuellement au Centro Técnico Aeroespacial, IEAv São José dos Campos (SP), Brazil

décharge photo-déclenchée a récemment permis d'obtenir une puissance moyenne de 500 W grâce à un dispositif fonctionnant à haute cadence de répétition [5]. Une énergie spécifique de 7,6 J/l [8] et un rendement de 4% [3] ont également été atteints, et une énergie supérieure à 10 J par impulsion a été délivrée par des lasers de grand volume [6,7].

L'étude paramétrique basée sur la variation des valeurs des paramètres de fonctionnement peut conduire à l'optimisation des performances d'un laser de puissance. Toutefois une telle méthode empirique est longue à mettre en oeuvre et d'un coût élevé. Une meilleure méthode consiste à utiliser un modèle capable de prédire l'émission laser, ce modèle ayant été précédemment validé par confrontation avec des mesures expérimentales pour un laser de volume actif donné. Ainsi nous avons implanté un ensemble de diagnostics résolus en temps sur un laser de faible volume, 50 cm³, installé à Orsay: mesures électriques (tension et courant) et optiques (puissance laser, densités d'espèces excitées par spectroscopies d'émission et d'absorption laser). Pour une gamme de valeurs de paramètres aussi large que possible, les résultats des mesures ont été comparés à ceux d'un modèle 0D que nous avons par ailleurs élaboré. Le domaine de validité du modèle et la nature des processus physiques qui limitent son applicabilité ont été déterminés, puis les performances de lasers de plus grand volume actif ont pu être prédites.

2. MODELISATION DU LASER XeCl PHOTO-DECLENCHE

Le modèle suppose la décharge homogène. Il est auto-cohérent et couple les équations du circuit électrique, la cinétique réactionnelle du milieu actif, les équations relatives à l'émission laser, l'équation d'évolution de la température du gaz, et la solution de l'équation de Boltzmann (fonction de distribution en énergie des électrons, ou FDEE). Par ailleurs le modèle se place dans l'approximation de champ local: les électrons sont en équilibre avec le champ électrique.

2.1. Cinétique des particules lourdes

La cinétique réactionnelle des particules lourdes fait interagir entre elles 30 espèces au travers de 300 réactions. Le néon est décrit par deux états atomiques excités effectifs Ne*(3s) et Ne**(autres), les ions Ne⁺ et Ne₂⁺, et l'eximère Ne₂*. Le xénon est décrit par les états Xe*(6s), Xe**(6s',6p) et Xe***(autres), Xe⁺ et Xe₂⁺, ainsi que Xe₂*. Les niveaux d'énergie suivants sont pris en compte pour HCl: les niveaux de quantum v=0,1 et 2 de l'état X, deux états électroniques excités HCl(A) et HCl(B+C), et l'ion HCl⁺. Sont également inclus dans le modèle: NeXe⁺, Cl⁻, Xe₂Cl*, H et Cl.

A partir d'une analyse critique des données spectroscopiques et cinétiques publiées, nous avons représenté XeCl en six états d'énergie: le fondamental X quasi-dissociatif (état inférieur de la transition laser), le niveau v=0 de l'état B (état supérieur de la transition laser), un état incluant les niveaux (B,v≥1), l'état C pour lequel les niveaux v=0,1 sont regroupés pour être distingués de l'état (C,v≥2), et un état effectif XeCl** qui représente les niveaux vibrationnels de B et C ayant une énergie proche de la dissociation. La molécule XeCl est formée initialement dans l'état XeCl**, principalement par neutralisation ion-ion du type: A⁺+Cl⁻+Ne→XeCl**+Ne (avec A⁺: Xe⁺, NeXe⁺, ou Xe₂⁺), puis cet état se désexcite par collision pour en former de plus basse énergie, dont XeCl(B,v=0).

Sans entrer dans le détail de la cinétique [8], deux points importants sont toutefois à souligner. L'ion Cl^- , créé par attachement dissociatif du type $e^- + \text{HCl}(v) \rightarrow \text{H} + \text{Cl}^-$, joue un rôle important dans la dynamique de la décharge et la production de XeCl . Or l'étude des décharges en mélange Ne/HCl a montré qu'il n'est pas nécessaire d'intégrer dans le modèle les niveaux $v > 2$ de $\text{HCl}(X)$ pour décrire correctement la création de Cl^- . De plus la représentation de XeCl en six états permet de décrire de façon réaliste la production de $\text{XeCl}(B, v=0)$, en tenant compte des quenching et de la cinétique vibrationnelle de l'excimère.

2.2. Emission laser

Nous avons calculé la section efficace d'émission stimulée (SES) sans hypothèse *a priori* sur la fonction de distribution vibrationnelle des états électroniques. Par ailleurs, l'augmentation de la température du gaz T_g pendant le développement de la décharge a une influence sur l'émission laser car la SES est une fonction décroissante de T_g : à 4 bars elle passe de 8.0 \AA^2 à 5.0 \AA^2 pour T_g variant de 300 K à 600 K [8], cette valeur de température pouvant être atteinte dans le plasma d'un laser de faible volume actif. De plus les taux de formation de XeCl^{**} sont des fonctions sensibles de T_g , de sorte que la production de $\text{XeCl}(B, v=0)$ dépend de la température. Ainsi l'émission laser sera d'autant moins importante que la température est élevée.

2.3. FDEE et sections efficaces de collision e^- -HCl

Un élément important du modèle concerne la cinétique électronique traitée par l'équation de Boltzmann, et la connaissance précise des sections efficaces de collision e^- -molécule.

Généralement, dans la modélisation des lasers à excimère, la résolution de l'équation de Boltzmann exprimée sous sa forme temporelle est basée sur le développement de la FDEE en série de polynômes de Legendre limité aux deux premiers termes (« approximation à deux termes »). La forme temporelle conduisant à des temps de calcul longs est remplacée, avec l'hypothèse de champ local, par une écriture plus simple de l'équation de Boltzmann: la forme stationnaire. De plus, l'approximation à deux termes ne permet pas de rendre compte correctement de l'anisotropie de la FDEE. Pour un gaz donné ce phénomène est important lorsque le champ électrique réduit E/N est élevé (N : densité de neutres), et pour E/N faible si les sections efficaces d'excitation à faible énergie sont du même ordre de grandeur que la section efficace de transfert de la quantité de mouvement élastique σ_{ei} . Or, pour HCl , σ_{ei} est très voisine de la section efficace d'excitation du niveau $v=1$ pour une énergie comprise entre 1 et 2 eV. C'est pourquoi les paramètres de transport électroniques (vitesse de dérive, taux d'excitation, taux de production et de disparition d'électrons) ont été calculé sans approximation sur la distribution angulaire de la FDEE [9], dans le HCl pur et les mélanges $\text{Ne}/\text{Xe}/\text{HCl}$. Les comparaisons de ces calculs avec ceux obtenus de l'approximation à deux termes ont mis en évidence des écarts faibles [10] sur l'ensemble des paramètres. Cette approximation peut donc être utilisée en confiance pour ce qui concerne le laser XeCl . Ainsi notre modèle utilise une méthode de calcul de la FDEE qui allie précision et rapidité de calcul.

Par ailleurs, la disparité des valeurs des sections efficaces de collision e^- -HCl précédemment publiées nous a amenés à établir un ensemble cohérent de ces données fondamentales au développement d'un modèle de laser XeCl : les valeurs des

paramètres de transport calculés en utilisant les divers ensembles de sections efficaces de la littérature peuvent différer d'un ordre de grandeur pour un même E/N .

Les déterminations directes de sections efficaces (mesures ou calculs quantiques) sont trop peu nombreuses pour permettre de construire un ensemble complet de données. Par contre une méthode indirecte peut être mise en oeuvre pour obtenir cet ensemble. Cette technique s'appuie sur la déconvolution des valeurs expérimentales des paramètres de transport par l'intermédiaire de la résolution de l'équation de Boltzmann [11], dans laquelle interviennent les sections efficaces. Elle permet, grâce au grand nombre de paramètres mesurés et à la précision de ces mesures, d'obtenir une bonne estimation quantitative des sections efficaces. La méthode que nous utilisons consiste à modifier ces sections (fig.1) jusqu'à obtenir l'accord entre les valeurs des paramètres de transport calculées et mesurées. Du fait de l'importance des processus d'excitation vibrationnelle de HCl, et de l'attachement dissociatif à partir de ces états pour produire Cl^- , précurseur de XeCl^{**} , nous avons porté une attention toute particulière aux sections efficaces de ces processus.

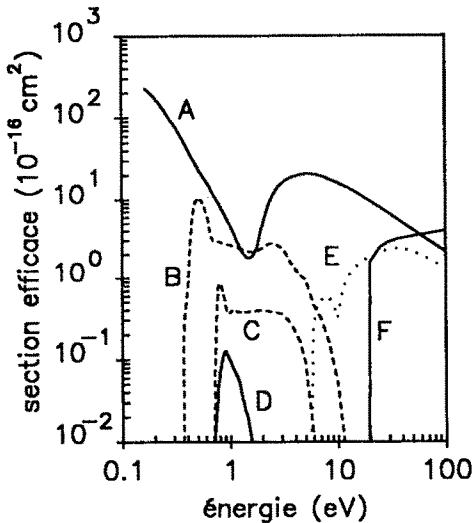


Figure 1. Sections efficaces de HCl. A: transfert de quantité de mouvement. B: excitation du $v=1$. C: excitation du $v=2$. D: attachement sur $v=0$. E: excitation électronique. F: ionisation.

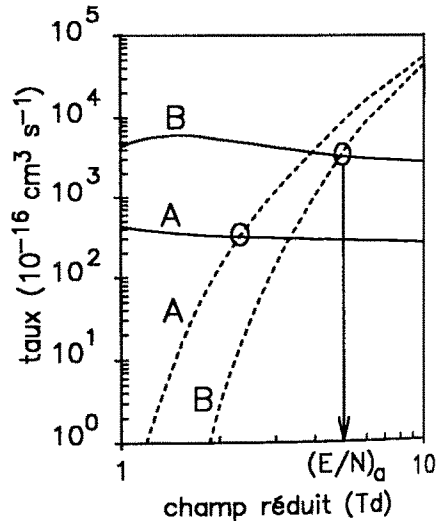


Figure 2. Taux d'attachement (—) et d'ionisation (---) pour un mélange de néon avec $\text{Xe}/\text{HCl}(\%)=0.5/0.05$ (A) et $0.5/0.5$ (B). $(E/N)_a$ est le champ d'auto-entretien (O).

Une fois déterminé cet ensemble de sections efficaces, le calcul des taux d'ionisation et d'attachement dans le mélange laser permet de déterminer le champ d'auto-entretien $(E/N)_a$ de la décharge, défini par l'égalité de ces taux. Typiquement ce champ est de quelques Td ($1 \text{ Td}=10^{-17} \text{ Vcm}^2$), et dépend des proportions du mélange (fig.2): il est d'autant plus élevé que la concentration en HCl est importante.

3. CONFRONTATION DES PREDICTIONS AUX MESURES

Une description détaillée de la structure laser expérimentale et des diagnostics électriques et optiques qui y ont été implantés a précédemment été publiée [8].

Signalons simplement que la pré-ionisation est obtenue par rayons X, que la distance inter-électrode est $d=1$ cm pour une longueur $L=50$ cm, le profil des électrodes étant plat sur $l=1$ cm. Les valeurs des paramètres sont: un mélange $Ne/Xe/HCl=0.9933/0.005/0.0017$, une pression totale comprise entre 2 et 6 bars, une tension V_0 pouvant aller jusqu'à 20 kV, une capacité C et une inductance L comprises respectivement entre 36 et 144 nF, 2.9 et 8.8 nH.

3.1. Energie et puissance laser

La figure 3 montre l'évolution de l'énergie laser et de la puissance crête en fonction du champ E/N initial (correspondant à V_0), pour deux configurations de circuit (couple C,L) et trois valeurs de pression. La modélisation 0D prédit correctement l'évolution de la puissance crête quelles que soient les valeurs des paramètres, ainsi que celle de l'énergie, mis à part le cas d'une faible capacité (36 nF) et d'un fort champ.

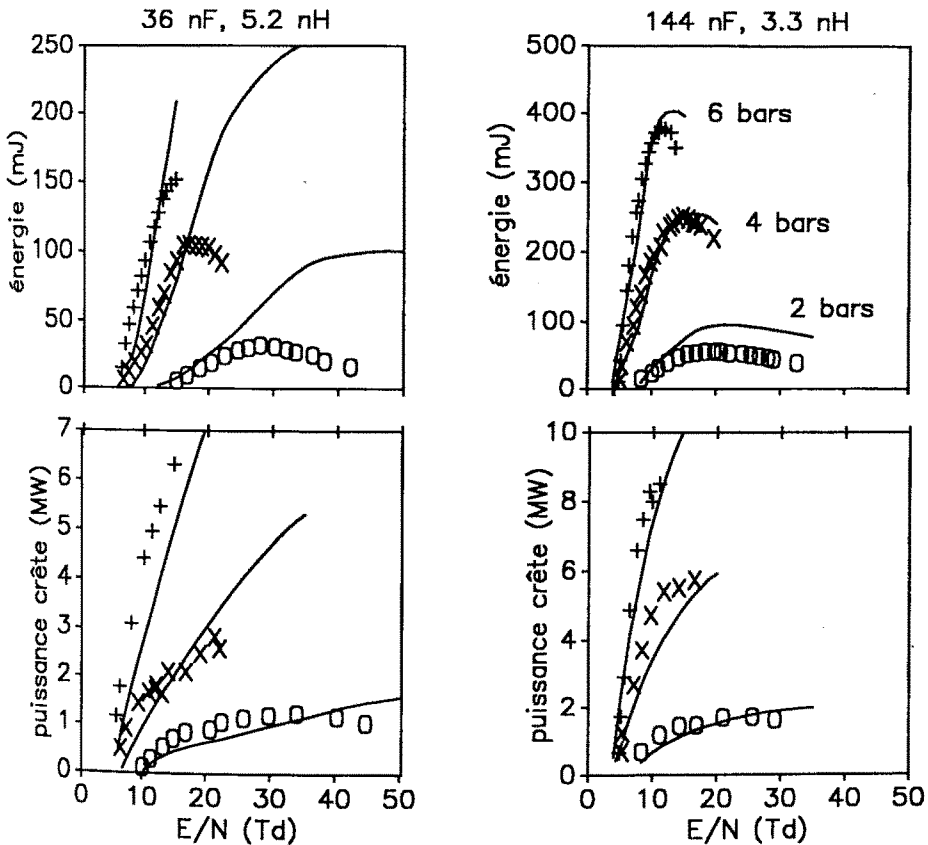


Figure 3. Energie laser et puissance crête. Symboles: mesures; (—): prédictions.

Quand E/N croit, l'énergie mesurée atteint un maximum pour une valeur critique $(E/N)_c$ de E/N , puis décroît pour $E/N > (E/N)_c$. Cet effet est prédit par le modèle mais, pour C faible, le champ critique est plus élevé que celui déterminé par

les mesures. Ceci ne peut être compris qu'en examinant l'évolution temporelle $P(t)$ de la puissance laser. Deux exemples typiques de cette évolution sont représentés sur la figure 4, pour $C=36$ nF, $p=4$ bars, et deux valeurs de E/N respectivement inférieure et supérieure à $(E/N)_c$; cette figure montre aussi l'évolution temporelle du courant. Pour $E/N < (E/N)_c$ le modèle prédit correctement $P(t)$ dont les oscillations sont corrélées à celles du courant (fig.4A). Pour $E/N > (E/N)_c$, alors que les oscillations de courant s'accroissent par rapport au cas $E/N < (E/N)_c$, la mesure montre un écroulement des oscillations de puissance (fig.4B) qui explique la saturation de l'énergie constatée sur la figure 3. Toutefois le modèle surestime les oscillations de puissance dans ce cas d'une faible capacité et d'un fort champ. Par contre à forte capacité (144 nF) le modèle prédit l'écroulement de puissance [8], ce qui explique que le maximum de l'énergie laser calculée est atteint pour la même valeur de champ critique que celle de l'énergie mesurée.

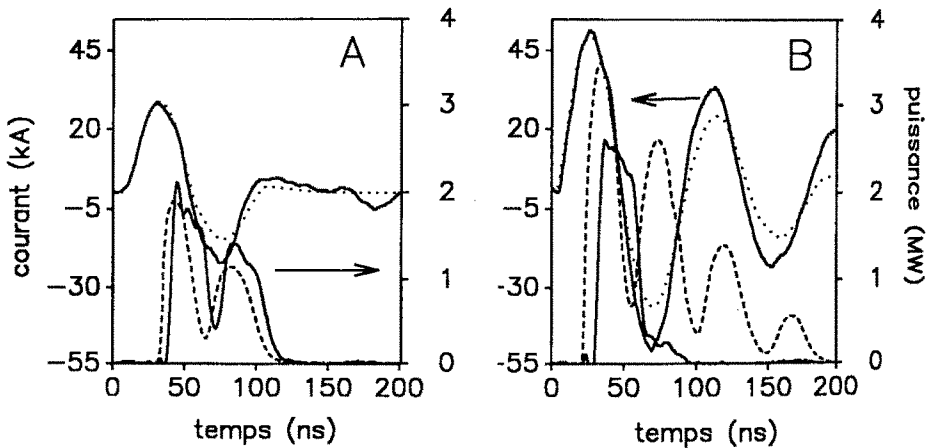


Figure 4. Puissance laser et courant pour $C=36$ nF et $p=4$ bars. Les traits continus sont les mesures, les pointillés et les tirets les prédictions du modèle. A: $E/N=14.2$ Td. B: $E/N=22.3$ Td. $(E/N)_c=15$ Td.

3.2. Densités de particules

Une étude détaillée de l'évolution temporelle des densités d'états excités et ionisés du xénon, par comparaison entre prédictions et mesures spectroscopiques, montre que la cinétique de ces états, précurseurs à la formation de XeCl, est bien décrite par le modèle [8]. Par contre, les mesures ont mis en évidence un comportement très particulier, non prédit par le modèle, des densités des états excités du néon atomique. Ces densités se sont révélées être très sensibles à la dynamique de la décharge, en particulier à l'apparition d'instabilités [12]. La figure 5 montre un exemple d'évolution temporelle de la densité de l'état métastable $3s(1s_2)$ du néon, mesurée par absorption laser. Pour $E/N > (E/N)_c$ (fig.5B), le développement de l'instabilité se traduit par de fortes oscillations de la densité qui apparaissent en coïncidence avec la fin de l'émission laser (flèche sur la figure); dans le même temps, la seconde impulsion de puissance s'écroule par rapport à celle mesurée pour $E/N < (E/N)_c$, du fait du développement d'inhomogénéités du milieu actif liées à l'instabilité. Le développement de la gaine cathodique joue un rôle dans l'apparition

de ce type d'instabilité, qui est également lié à des sur-consommations locales de HCl dont les causes peuvent être des inhomogénéités de pré-ionisation ou de champ électrique [13]. Ainsi la saturation de l'énergie ne peut être prédite par une modélisation 0D pour une faible capacité et un fort champ.

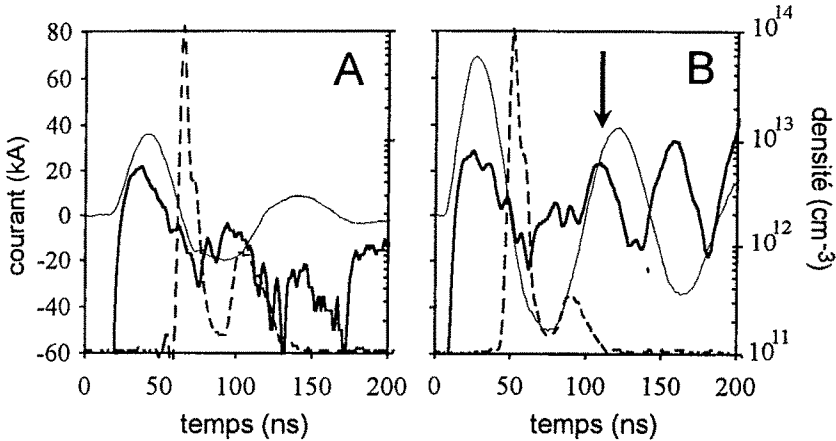


Figure 5. Courant (—), puissance laser (---, u.a.) et densité d'état $\text{Ne}^*(1s_5)$ (—) pour $C=72$ nF, $p=2$ bars. A: $E/N=17.2$ Td, B: $E/N=35.1$ Td. $(E/N)_c=24$ Td.

4. EXPLOITATION

L'étude du laser de 50 cm³ a montré que les conditions de non-applicabilité du modèle sont assez marginales (faible capacité et fort champ). Ce modèle peut être utilisé pour prédire l'émission laser pour la plupart des valeurs des paramètres de fonctionnement. La figure 6 illustre ses possibilités d'exploitation pour l'optimisation des performances des lasers XeCl photo-déclenchés. Elle présente des prédictions d'énergie obtenue pour une structure laser de plus grand volume: 450 cm³ ($d=1=2.5$ cm, $L=50$ cm). Les valeurs des paramètres sont données en légende. On peut

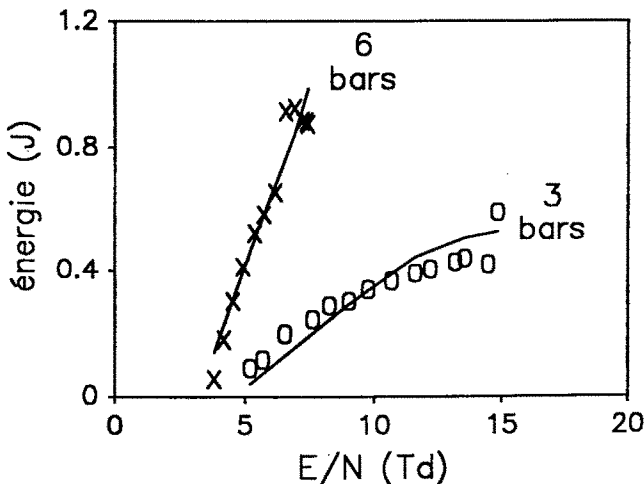


Figure 6. Energie prédite (—) et mesurée (x,o). $C=136$ nF. Mélange: $\text{Ne}/\text{Xe}/\text{HCl}=0.9943/0.005/0.0007$.

constater un bon accord entre prédictions et mesures.

Par ailleurs, pour le laser de 50 cm³ de volume actif, l'étude paramétrique de l'émission laser a montré [8] que la plus forte énergie laser ou le meilleur rendement sont obtenus respectivement pour un champ E/N initial égal à 6.5 et 4 fois le champ d'auto-entretien. Or la valeur de ce champ peut être estimée rapidement par résolution de l'équation de Boltzmann sous sa forme stationnaire (voir 2.3). Ainsi, pour une structure laser donnée, la tension de charge V₀ permettant d'obtenir les meilleures performances laser peut être estimée *a priori* avec pour seule condition la connaissance des proportions du mélange laser.

REFERENCES

- [1] de Witte O., Lacour B., et Vannier C., présenté à CLEO 82, Phoenix USA 1982 (non publié).
- [2] Lacour B. et Vannier C., *J. Appl. Phys.*, **62** (1987) 754.
- [3] Beaupere D., Lacour B., Gagnol C. et Pinson P., présenté à CLEO 88, Anaheim USA 1988 (non publié).
- [4] Lacour B., Legentil M., Mizzi S., Pasquiers S. et Puech P., « Experimental study of a photoswitched discharge for excimer laser », *Experimental Lasers and Applications II*, La Haie 15 Mars 1990 (Proc.SPIE 1278, 1990) pp.2-9.
- [5] Brunet H., Lacour B., Besauce H. et Mabru M., « High average power XeCl and pulsed HF chemical lasers », 24th Plasmadynamics and Lasers Conference, Orlando USA 6-9 Juillet 1993 (Proc.AIAA 93-3165) pp.1-6.
- [5] Bollanti S., di Lazzaro P., Flora F., Giordano G., Giordano A., Hermsen T., Letardi T. et Zheng C.E., *Appl. Phys.B* **50** (1990) 415-423.
- [7] Bychkov Y., Vinnik M. et Makarov M., *Sov.J.Quantum Electron.* **22** (1992) 498-499.
- [8] Riva R., « Etude du laser XeCl photo-déclenché par rayons X », thèse de l'Université Paris-Sud, Orsay Novembre 1993.
- [9] Ségur P. et Bordage M-C., « Recent advances in the solution of the Boltzmann equation for the motion of electrons in a weakly ionized gases », XIX ICPIG, Belgrade 10-14 juillet 1989 (J.M.Labat, Univ.Belgrade), pp.86-107.
- [10] Bordage M-C., Chouki A. et Ségur P., « Electron swarm parameter calculations in HCl and typical Ne-Xe-HCl laser excimer mixture », XX ICPIG, Pise 8-12 juillet 1991 (V.Palleschi, M.Vaselli, IFAM Pise), pp.369-370.
- [11] Frost L.S. et Phelps A.V., *Phys.Rev.* **127** (1962) 1621-1633.
- [12] Legentil M., Pasquiers S., Puech V. et Riva R., *Appl. Phys.B* **58** (1994) 515-517.
- [13] Bötticher W., « Filamentation of high pressure glow discharges », XXI. ICPIG, Bochum 19-24 septembre 1993 (G.Ecker, Universität Bochum) tome III, pp.128-131.