



MODELISATION DE LA CINETIQUE D'UN PLASMA POUR LASER XeCl PHOTODECLENCE

Z. Harrache, D. Amir Aid, et A. Belasri

Laboratoire de Physique des Plasmas, Matériaux Conducteurs et leurs Applications (LPPMCA)
Département de Physique, EL M'NAOUR B.P. 1505, U.S.T.O, Oran (ALGERIE)

Résumé

Le présent travail est une modélisation zéro-dimensionnel d'une décharge électrique haute pression, pour laser à excimère, couplée au circuit extérieur. Dans ce modèle, le plasma généré par décharge impulsivonnelle est représenté par une résistance de conductivité proportionnelle à la densité électronique. Les variations temporelles de cette densité électronique sont décrites à l'aide d'un ensemble d'équations traduisant la cinétique du milieu. Les taux de réaction impliquant les électrons ont été tabulés, pour un mélange donné par résolution de l'équation de Boltzmann, en fonction du champ électrique réduit E/N (N densité du gaz). La cinétique des espèces lourdes a été représentée à l'aide d'un jeu de réactions simplifié, suffisant pour rendre compte des propriétés électriques de la décharge.

Abstract

The present work is a zero-dimensional modeling of an electric discharge at high pressure, for excimer laser, coupled with the external circuit. In this model, the plasma generated by impulsional discharge is represented by a resistance whose conductivity is proportional to the electron density. The temporal variations of this electronic density are described using a whole of differential equations translating the kinetics of the medium. The electronic rate coefficients are tabulated, for a given Ne-Xe-HCl mixture by resolution of the Boltzmann equation, as function of the reduced electric field E/N (N is the gas density). The kinetics of the heavy species was represented using a simplified and sufficient play of reactions, to take into account the electric properties of the discharge.

Mots clés

Plasmas basse température, Lasers à excimère, XeCl, Modélisation numérique, Cinétique laser.

1. Introduction

Depuis la première mise en évidence expérimentale d'émission laser d'un système excimère par Basov et al [1] en 1970, l'une des préoccupations majeures de la physique des lasers à gaz a été d'accroître la puissance moyenne et la puissance pulsée de ces lasers. Cet accroissement passe nécessairement par un accroissement de la pression de gaz[2,3]. Or, il est bien connu que les décharges luminescentes, utilisées dans les lasers pompés par décharges, peuvent être aisément stables et stationnaires à faible pression (typiquement inférieure à quelques dizaines de torr) mais devient instables et dégénèrent en arc à plus haute pression[4,5]. Les causes de transition à l'arc peuvent être multiples[6-8], et l'idée de base pour éviter la formation de plasmas localisés et disjoints a été de créer dans le volume gazeux, immédiatement avant l'impulsion de décharge,

une densité d'électrons libres suffisamment élevée pour que les avalanches initiées par chacun de ces électrons libres se recouvrent avant la transition au régime d'arc[9]. Les premières applications du concept de préionisation sont relatives aux lasers CO_2 [10] et dans les premières références à des expériences utilisant une préionisation du milieu [2,3], la source de préionisation était constituée par illumination UV provenant d'une décharge auxiliaire. De nombreuses et diverses techniques de préionisation ont ensuite été développées : décharge couronne [11,12,13], cathode plasma [14,15] et préionisation par rayons X [16,17,18]. Commercialement, les systèmes lasers XeCl sont déjà disponibles et peuvent libérer des centaines de Watt de la puissance moyenne avec un taux de répétition

Modélisation de la cinétique d'un plasma pour laser XeCl Photodéclanché.

de cent de Hz. Néanmoins, des nouvelles applications dans la photochimie et le traitement des matériaux, qui nécessitent des lasers de haute puissance, sont confrontées avec les limites technologiques. Pour ces raisons et pour améliorer la performance du laser XeCl, de nombreuses expériences et travaux de modélisation sont déjà effectués.

Nous présentons dans ce travail, le modèle numérique que nous avons développé dans le cadre de l'étude d'un laser typique Ne-Xe-HCl, et les résultats associés. En outre, pour vérifier la validité des résultats du présent modèle, des comparaisons sont effectuées avec des résultats expérimentaux et théoriques que nous avons trouvés dans la littérature.

2. Modèle physique

2.1. Principes du modèle zéro-dimensionnel

Dans la plupart des modèles cinétiques de laser, le plasma est représenté par une résistance dont la conductivité est liée à la densité du plasma. Les variations temporelles de la densité de plasma sont obtenues par intégration des équations de transport électronique couplées à la cinétique des espèces lourdes et au circuit extérieur[19]. Les phénomènes de transport électronique peuvent être décrits de façon détaillée par résolution de l'équation de Boltzmann ou de façon simplifiée par une équation de continuité dans laquelle les taux de réaction électronique sont supposés ne dépendre que du champ électrique réduit local E/N (N densité de gaz).

Le modèle est donc constitué du circuit extérieur, chargé par une résistance variable R_g représentant la décharge. Cette résistance peut s'écrire :

$$R_g(t) = \frac{d}{A e n_e \mu_e}$$

où n_e est la densité électronique dans le plasma, μ_e la mobilité électronique, e la charge de l'électron, A la surface des électrodes et d la distance interélectrode. La densité électronique est obtenue par la résolution d'une équation de continuité de type :

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = S_e^+ - S_e^-$$

avec S_e^+ et S_e^- sont respectivement les taux de production et de disparition électronique, par unité de volume et par unité de temps, sous l'effet des collisions avec les différentes espèces, et du champ électrique réduit E/N . Il faut donc adjoindre à l'équation de continuité électronique

précédente l'ensemble des équations décrivant l'évolution des populations des espèces lourdes et qui traduisent les réactions cinétiques. Ces équations s'écrivent d'une manière générale sous la forme :

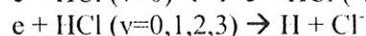
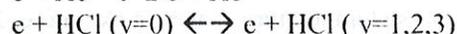
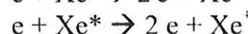
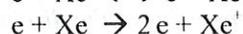
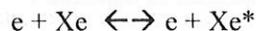
$$\frac{d[X_i]}{dt} = S_i^+ - S_i^-$$

avec $[X_i]$ est la concentration de l'espèce i à l'instant t , S_i^+ et S_i^- sont respectivement les taux de production et de disparition de cette espèce, par unité de volume et par unité de temps, sous l'effet des collisions avec les électrons et les autres espèces lourdes $[X_k]$. La résolution de ce système d'équations différentielles couplées décrivant le circuit extérieur et la cinétique du milieu, permet d'obtenir à chaque instant la tension aux bornes du plasma et donc le champ électrique dans le plasma.

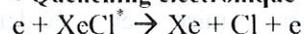
2.2. Modèle de la cinétique complète

En se basant sur plusieurs travaux de recherches[20-25], nous avons établi un ensemble de réactions cinétiques pouvant rendre compte de façon satisfaisante, du comportement électrique et cinétique de la décharge et inclus la formation de la molécule $XeCl^*$ et l'émission de photons. Ce jeu de réactions, selon les processus mis en jeu, est indiqué ci-dessous :

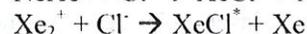
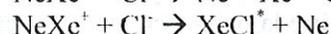
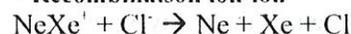
- **Processus de collision électron-atome**



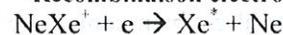
- **Quenching électronique**



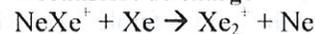
- **Recombinaison ion-ion**



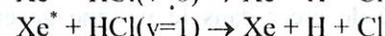
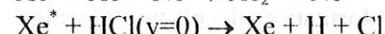
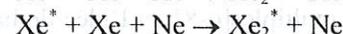
- **Recombinaison électron-ion**



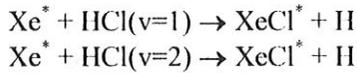
- **Transfert de charge**



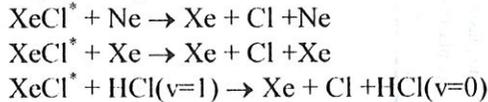
- **Quenching de Xe^***



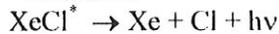
Modélisation de la cinétique d'un plasma pour laser XeCl Photodéclenché.



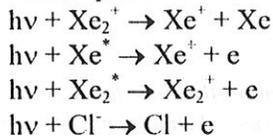
• Quenching de XeCl^*



• Radiation



• Absorption



A chaque élément de plasma est donc associé un ensemble d'équations cinétiques décrivant l'évolution en son sein des densités électroniques, de xénon métastable Xe^* , d'ions positifs NeXe^+ (Xe^+ est supposé se transformer instantanément en NeXe^+) et Xe_2^+ , d'ions négatifs Cl^- , et de HCl sur les niveaux de vibration $v=0,1,2,3$. La tabulation des coefficients de transport et des fréquences de collisions électroniques en fonction de champ électrique réduit E/N , a été obtenue par le programme numérique BOLSIG développée par W.L. Morgan, J.P. Boeuf et L.C. Pitchford [26,27]. La résolution de ce programme donne la fonction de distribution électronique et les taux de toutes les réactions considérées. Il permet de prendre en compte les processus suivants: collisions superélastiques, collisions électron-électron, collisions électron-ion, et les processus libre-libre.

3. Conditions de calcul

Les calculs présentés dans cet article ont été faits dans les conditions suivantes :

- un mélange gazeux de Ne-Xe-HCl, avec une concentration de 0.5% de Xe et pour concentration de donneur d'halogène HCl de 0.13%
- distance interélectrode: $d = 3$ cm.
- surface des électrodes: $A = 100$ cm²
- pression totale: $P = 2.5$ bar
- température de gaz: $T_g = 300$ K
- tension appliquée: $V_0 = 20$ kV
- circuit extérieur (voir Figure 1)
- laser photodéclenché: la préionisation est supposée être créée de façon instantanée, à $t=0$
- densité initiale de préionisation: 10^9 cm⁻³

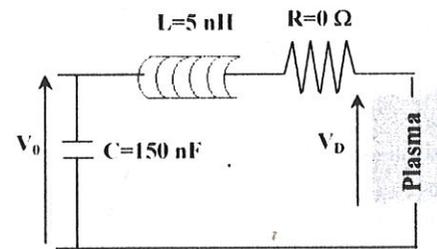


Figure.1. Schéma du modèle de la décharge et du circuit extérieur. La distance interélectrode est $d=3$ cm, la surface des électrodes est $A=100$ cm². La pression totale est $P=2.5$ bar à une température de gaz $T_g=300$ K et la composition du gaz est Ne-Xe-HCl (99,37 % - 0,5 % - 0,13%).

4. Résultats et discussion

Cette partie est consacrée au comportement électrique et l'évolution des grandeurs caractérisant la décharge, dans le cas d'un plasma homogène.

Les résultats obtenus à l'aide du modèle zéro-dimensionnel sont en accord avec les résultats de la littérature [8,20,21,24,25,28] et décrivent l'évolution temporelle des caractéristiques du plasma.

4.1. Grandeurs électriques

Afin de montrer le profil des caractéristiques électriques de la décharge durant l'impulsion, nous avons tracé sur la figure 2, pour un mélange gazeux $\text{Ne}_{99,37\%}-\text{Xe}_{0,5\%}-\text{HCl}_{0,13\%}$, une densité de préionisation de 10^9 cm⁻³ et une tension appliquée V_0 de 20 kV, les variations temporelles de la tension de la capacité, la tension de la décharge et du courant électrique. Le courant crête atteint une valeur typique de 0.69 kA/cm². La tension de la décharge présente une zone de 7 kV s'étalant sur environ 70 ns et correspond à un champ réduit de 4 Td. (voir Figure.3.).

La dépendance inverse entre la densité électronique et la résistance du plasma pendant l'impulsion de la décharge, est montrée sur la figure 4.

Durant la première phase de l'impulsion, la chute de la résistance est accompagnée par une croissance de la densité électronique, due à la multiplication des électrons jusqu'au moment de claquage, et donc la formation du plasma caractérisé par une densité électronique de valeur maximale, et une résistance plasma de valeur très faible.

Modélisation de la cinétique d'un plasma pour laser XeCl Photodéclanché.

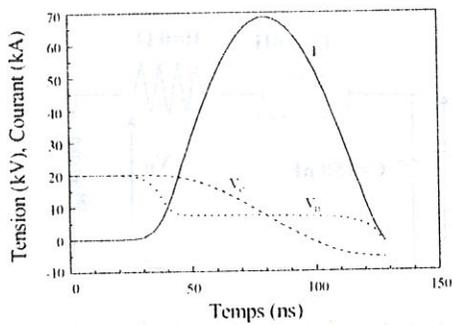


Figure.2. Variations temporelles de la tension de la capacité V_C , de la tension de la décharge V_D et du courant de la décharge I , pour une composition de gaz Ne(99,37%) - Xe(0,5%) -HCl(0,13%), une densité de préionisation de 10^9 cm^{-3} , et une tension appliquée $V_0=20 \text{ kV}$.

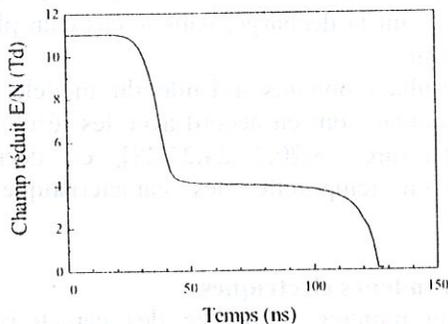


Figure.3. Evolutions temporelles du champ électrique réduit E/N pour les mêmes conditions de la figure 2.

4.2. Evolutions des concentrations d'espèces

Les variations temporelles, au cours de l'impulsion, des densités d'électrons, de HCl sur les niveaux de vibration $v=0,1,2,3$, de xénon métastable, d'ions positifs NeXe^+ et Xe_2^+ et d'ions négatifs Cl^- dans des conditions identiques à celles de la figure 2 sont représentées sur la figure 5.

On constate que dans ces conditions, qui correspondent à des conditions "usuelles" de fonctionnement du laser XeCl, une partie importante de la quantité initiale de HCl total ($\text{HCl}(v=0) + \text{HCl}(v=1) + \text{HCl}(v=2) + \text{HCl}(v=3)$) est consommée au cours de la décharge (environ 18% comme l'indique la figure 6). Les densités électronique et de xénon métastable atteignent respectivement des valeurs maximales de l'ordre de $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ et $1,2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$.

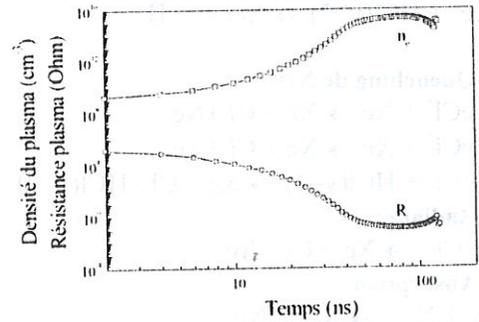


Figure.4. Variations temporelles de la densité des électrons et de la résistance plasma pour les mêmes conditions de la figure 2.

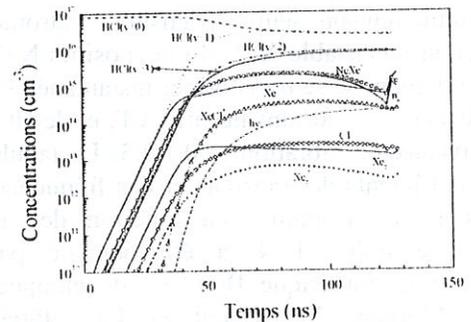


Figure.5. Evolutions temporelles de la densité électronique, des densités des ions positifs et négatifs, et des concentrations des espèces lourdes dans le mélange Ne-Xe-HCl pour les mêmes conditions de la figure 2.

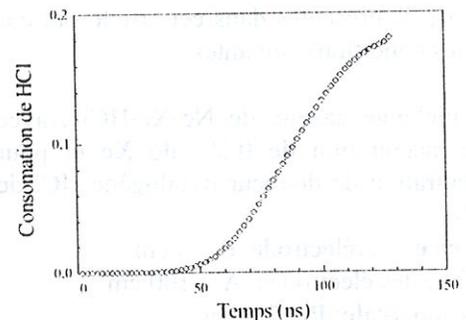


Figure.6. Consommation de chlore d'hydrogène HCl total au cours de temps pour les mêmes conditions de la figure 2.

Modélisation de la cinétique d'un plasma pour laser XeCl Photodéclanché.

4.3. Vérification de la validité du modèle développé

Pour vérifier la validité du présent modèle, nous présentons des comparaisons avec les résultats expérimentaux de Riva et al. [28]. Riva et al.[28] présentent une étude expérimentale et modélisation zéro-dimensionnel des lasers à excimère XeCl photo-déclenchés pour une composition de mélange Ne-Xe-HCl (99,33%-0,5%-0,17%), une surface des électrodes $A=50\text{ cm}^2$ et une distance interélectrode $d=1\text{ cm}$. Donc, c'est le même type des lasers que nous avons étudié.

La figure 7, ci-dessous, indique une comparaison de courant et tension de décharge calculés par notre modèle avec le courant et la tension de décharge de Riva et al.[28] mesurés expérimentalement.

Les formes et les ordres de grandeur de courant et tension de décharge sont en accord avec les mesures de Riva et al.[28] et qui sont évidemment en accord avec leurs calculs. On voit que le courant de décharge obtenu par notre modèle est légèrement inférieur de celui de Riva et al.[28] et aussi la tension de décharge obtenue par notre modèle est légèrement supérieure à celle de leur expérience. Cette faible différence est principalement due sans doute à la cinétique. Bien sur, il est difficile de réaliser un modèle cinétique complet qui tient compte de toutes les réactions qui peuvent exister dans un mélange Ne-Xe-HCl pour laser.

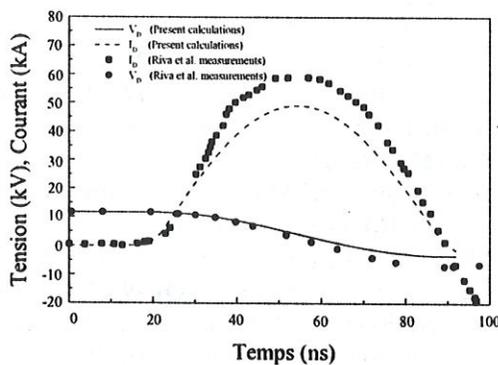


Figure.7. Comparaison de courant et tension de décharge entre les mesures de Riva et al. [28] et les présents calculs pour les conditions suivantes : mélange gazeux $Ne_{99,33\%}-Xe_{0,5\%}-HCl_{0,17\%}$, $C=144\text{ nF}$, $L=3,3\text{ nH}$, $V_0=9,7\text{ kV}$ et $P=4\text{ bar}$.

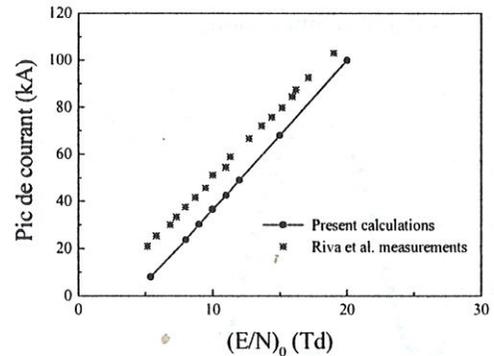


Figure.8. Comparaison de pic de courant de décharge entre les mesures de Riva et al. [28] et les présents calculs pour les conditions suivantes: mélange gazeux $Ne_{99,33\%}-Xe_{0,5\%}-HCl_{0,17\%}$, $C=144\text{ nF}$, $L=3,3\text{ nH}$ et $P=4\text{ bar}$.

La figure 8, représente une comparaison de pic de courant de décharge en fonction de champ réduit initial $(E/N)_0$ entre les mesures de Riva et al.[28] et nos calculs. On voit que le pic de courant obtenu de nos calculs est légèrement inférieur de celui de Riva et al.[28]. Ces résultats sont très importants pour notre modèle, du fait que les valeurs de courant calculé restent toujours inférieures à celles de l'expérience.

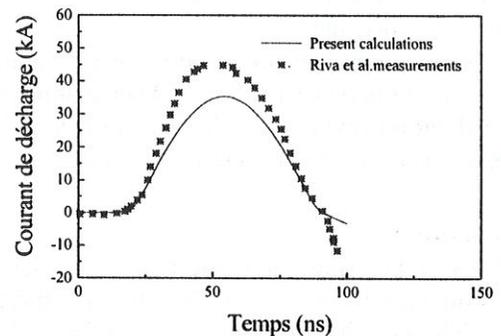


Figure.9. Comparaison de courant de décharge entre les mesures de Riva et al. [28] et les présents calculs pour les conditions suivantes: composition du mélange gazeux $Ne_{99,33\%}-Xe_{0,5\%}-HCl_{0,17\%}$, $C=144\text{ nF}$, $L=3,3\text{ nH}$, $(E/N)_0=9,8\text{ Td}$ et $P=4\text{ bar}$.

Nous présentons sur les figures 9, 10 respectivement le courant de la décharge obtenu par notre modèle et les mesures de Riva et al.[28] pour les mêmes conditions de la figure 7 et pour les champs réduits initiaux $(E/N)_0=9,8\text{ Td}$ et $14,1\text{ Td}$. Les impulsions de courant ont la même forme et les courants calculés par notre modèle sont

Modélisation de la cinétique d'un plasma pour laser XeCl Photodéclanché.

toujours légèrement inférieurs à ceux de l'expérience avec les mêmes temps de montée et les mêmes durées d'impulsion.

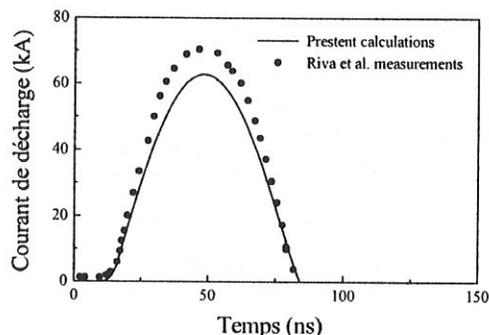


Figure.10. Comparaison de courant de décharge entre les mesures de Riva et al. [28] et les présents calculs pour les conditions suivantes : composition du mélange $Ne_{99,33\%}-Xe_{0,5\%}-HCl_{0,17\%}$, $C=144$ nF, $L=3,3$ nH, $(E/N)_0=14,1$ Td et $P=4$ bar.

Les résultats de comparaison ne peuvent être interprétés que de point de vue qualitatif. En réalité, il n'est pas possible de trouver actuellement dans la littérature les différentes données nécessaires pour une interprétation quantitative.

Pour des comparaisons quantitatives, les taux de réaction et les sections efficaces de collision doivent être définis correctement en fonction des conditions expérimentales.

Une bonne compréhension des processus chimiques dans la décharge laser peut contribuer à améliorer la vérification expérimentale du modèle zéro-dimensionnel pour les décharges des lasers XeCl.

5. Conclusion

Ce travail représente une étude macroscopique de la cinétique pour un laser Ne-Xe-HCl, pompé par une décharge électrique haute pression. Cette étude a été effectuée par un modèle zéro-dimensionnel dans lequel on a un couplage entre le plasma, la cinétique des espèces lourdes et le circuit extérieur. Le plasma généré par décharge impulsionnelle a été représenté par une résistance. La cinétique des espèces lourdes a été représentée à l'aide d'un jeu de réactions qui tient compte des espèces: e , Xe^+ , $NeXe^+$, HCl ($v=0,1,2,3$), Cl^- , $XeCl^+$, Xe_2^+ , Xe_2^+ , $h\nu$ (laser). Les phénomènes de transport dans un plasma haute pression peuvent être décrits de façon détaillée par la résolution de l'équation de Boltzmann ou de façon simplifiée

par une équation de continuité, dans laquelle les taux de réactions électroniques sont supposés ne dépendre que de champ électrique local. Le modèle zéro-dimensionnel peut être considéré comme un outil efficace pour l'investigation de l'homogénéité des décharges des lasers à excimère car il peut être adapté à toute configuration de système. En plus, à cause de la spécificité des méthodes numériques utilisées pour la résolution de l'équation de Boltzmann d'une part, et d'autres part pour les équations de la cinétique chimique, les calculs de présent modèle sont en accord avec les résultats expérimentaux et théoriques disponibles dans la littérature.

Cependant, des améliorations supplémentaires sont nécessaires concernant le schéma de la cinétique réactionnelle pour mieux comprendre les réactions les plus réalistes gouvernant la décharge de plasma sous les conditions expérimentales typiques.

Références bibliographiques

- [1] N. G. Basov, *Sov. J. Quantum Electron.* **1**, (1971) 18.
- [2] R. Dumanchin et J. S. Rocca, *C. R. Acad. Sci.* **263**, (1969) 916.
- [3] O. R. Wood, *Proc. IEEE.* **62**, (1974) 355.
- [4] R. S. Taylor, *Appl. Phys.* **B41**, (1986) 1.
- [5] A. D. Angelis, P. Di Lazzaro, F. Garosi, G. Giordano et T. Letardi, *Appl. Phys.* **B47**, (1988) 1.
- [6] R. Turner, *J. Appl. Phys.* **52**, (1981) 681
- [7] R. R. Mitchell, L. J. Denes et L. E. Kline, *J. Appl. Phys.* **49**, (1978) 2376.
- [8] A. Belasri, J. P. Bœuf et L. C. Pitchford, *J. Appl. Phys.* **74**, (1993) 1553.
- [9] A.J. Palmer, *Appl. Phys. Lett.* **25**, (1974) 138
- [10] C.K.N. Patel, *Phys. Rev. Lett.* **12**, (1964) 588
- [11] H. M. Lambertson et P. R. Pearson, *Electron Lett.* **41**, (1971) 141.
- [12] H. J. Seguin, K. Manes et J. Tulip, *Rev. Sci. Instrum.* **43**, (1972) 1134.
- [13] M. C. Richardson, K. Leopold et J. Alcock, *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-9**, (1973) 934.
- [14] C. I. Andreev, I. M. belousova, P. N. Dashuk, D. Zarolsov et E. Zobov, *JETP Lett.* **21**, (1975) 194
- [15] D. Y. Zaroslov, N. V. Karolv, G. P. Kuz'min et C. M. Nikivorof, *Sov. J. Quantum Electron.* **QE-8**, (1972) 827.
- [16] J. I. levatter, K. L. Robertson et S. C. Lin, *Appl. Phys. Lett.* **39**, (1981) 297.

Modélisation de la cinétique d'un plasma pour laser XeCl Photodéclanché.

- [17] H. Shieds et A. J. Alcock, *Opt. Commun.* **42**, (1982)128.
- [18] K. Midorikawa, M. Obara et T. Fujioka, *IEEE J. Quantum El.* **QE 20**, (1984) 198.
- [19] S. Longo, C. Gorse et M. Capitelli, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **PS19**, (1991)379.
- [20] A. Belasri, Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse, France (1993).
- [21] C. Gorse, in *Non Equilibrium Processes in partially Ionized Gases*, NATO ASI series, Vol. **220 b**, eds., M. Capitelli and J. N. Bardsley, (Plenum Press, New York) 1990.
- [22] C. Gorse, M. Capitelli, S. Longo, E. Estocq et J. Bretagne, *J. Phys. D. : Appl. Phys.* **24**, (1991) 1947.
- [23] A. Belasri, S. Longo, C. Gorse, M. Capitelli, J.P. Bœuf et L.C. Pitchford, *Proc. XXth ICPiG*, Palleschi V. et Vasselli M. Eds., Vol. **6**, p.1170 (Istituto di Fisica Atomica e Molecolare, Pisa, Italy) 1990.
- [24] O. lamrous, A. Gaour et M. Yousfi, *J. Appl. Phys.* Vol. **79**, No. 9, (1996) 6775.
- [25] H. Luck, D. Loffhagen, and W. Botticher, *Appl. Phys.* **B. 58**, (1994) 123.
- [26] *Code Bolsig, the siglo series of user friendly discharge modeling software*, 1996 by Kinema Software.
- [27] W. L. Morgan et B. Penetrante, *Computer Phys. Communications* **58**, (1990)127.
- [28] R. Riva, M. Legentil, S. Pasquiers et V. Puech, "Experimental and theoretical investigations of a XeCl phototriggered laser", *J. Phys. D: Appl. Phys.* **28**, (1995) 856.