

Diffusion du rayonnement X monochromatique par une structure multicouche périodique La/B₄C au voisinage du seuil La 4d

J.-M. André¹, P. Jonnard¹, C. Bonnelle¹ et E.O. Filatova²

¹ *Laboratoire de Chimie Physique – Matière et Rayonnement, Université Pierre et Marie Curie, CNRS UMR 7614, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France*

² *Institut de Physique, Université de St. Pétersbourg, Ulianovskaya 1, 198904 St. Pétersbourg, Russie*

Résumé. Nous présentons une étude qui s'inscrit dans le cadre du développement des sources X cohérentes basées sur le principe de la « rétrodistribution » par une structure multicouche. L'intensité du rayonnement diffusé par une structure multicouche La/B₄C irradiée par un rayonnement monochromatique a été enregistrée en fonction de l'énergie du rayonnement incident dans le domaine 90 et 180 eV recouvrant la région 4d du lanthane, pour différents angles d'incidence et de diffusion. De forts maximums d'intensité diffusée sont observés pour des énergies incidentes qui varient fortement avec l'angle de diffusion. Un des 2 principaux pics a été interprété comme dû à une diffusion Raman associée à la configuration finale 5p⁵ du lanthane, combinée à la diffraction de Bragg du rayonnement diffusé par la structure multicouche. Un modèle cinématique basé sur la conservation de l'énergie et des impulsions a permis de modéliser ce phénomène que nous avons appelé diffusion Raman-Bragg. L'origine des autres structures observées est discutée.

1. INTRODUCTION

Nous présentons les résultats expérimentaux obtenus en observant l'interaction d'un faisceau de rayonnement X monochromatique avec une structure multicouche périodique La/B₄C, utilisée dans les conditions de Bragg pour le rayonnement diffusé. Cette étude s'inscrit dans le cadre d'études fondamentales visant à développer des sources de rayonnement X mou cohérentes, basées sur le principe de la « rétrodistribution » telle qu'elle a été appliquée dans les lasers du domaine optique [1]. L'idée d'utiliser des structures périodiques constituées, soit par des structures cristallines, soit par des structures artificielles, dans le but de réaliser la rétrodistribution pour des sources X cohérentes, a été avancée et développée essentiellement par Yariv et Yeh [2]. Les miroirs multicouches développés actuellement pour l'optique et la spectroscopie du rayonnement X [3, 4] donnent la possibilité de réaliser le « résonateur » permettant la rétrodistribution de l'onde générée au sein de la multicouche.

Il est bien connu que la principale difficulté pour obtenir un laser dans le domaine du rayonnement X mou est la très grande prépondérance de l'émission spontanée vis à vis de l'émission stimulée [1]. Parallèlement à cet obstacle fondamental, il y a la difficulté de trouver un système quantique qui puisse se prêter au développement d'un laser X. Actuellement, les lasers X en opération utilisent comme milieu émetteur les ions multiples chargés d'un plasma [5]. Or la réalisation d'un milieu plasma qui reste périodiquement stratifié pendant une durée suffisante pour permettre des mesures dans le domaine X nécessiterait de gros investissements technologiques.

Nous avons donc orienté notre étude vers un système solide qui donne lieu dans le domaine X à des émissions résonnantes de type atomique. Nous avons choisi une terre rare, le lanthane, pour lequel les émissions résonnantes dans le domaine 3d et 4d ont déjà été très étudiées à la fois expérimentalement et théoriquement [6, 7, 8] et dont l'usage pour la fabrication de miroirs multicouches est maintenant bien maîtrisé [9]. Nous avons enregistré des spectres d'excitation (cf définition ci-dessous) au voisinage du seuil La 4d d'une structure multicouche La/B₄C déposée sur du silicium. Les spectres obtenus sont complexes et nous tenterons leur interprétation qui s'avère délicate.

2. EXPÉRIENCE

Un miroir multicouche interférentiel La/B₄C comprenant 20 bicouches a été fabriqué par la société Incoatec, en utilisant un procédé de pulvérisation diode [10]. Les épaisseurs des couches de lanthane et de carbure de bore, mesurées par réflectométrie X rasante, sont estimées respectivement à 4,69 nm et 4,87 nm, ce qui donne pour le miroir, une période égale à 9,56 nm.

La structure multicouche a été irradiée par un rayonnement monochromatique provenant de la ligne de lumière UE56/1-PGM du synchrotron BESSY 2. L'expérience a été réalisée à l'aide du goniomètre développé par Schäffers et coll. [11] et sa géométrie est représentée figure 1.

L'angle de diffusion θ_{out} est défini comme l'angle entre la direction du rayonnement incident et la direction d'observation. Nous avons enregistré dans la région 4d du lanthane (90-180 eV), pour trois valeurs de l'angle d'attaque θ_{in} (31°, 41,5° et 45°) et à différents angles θ_{out} , le « spectre d'excitation » de la structure multicouche, c'est-à-dire les variations de l'intensité totale du rayonnement diffusé en fonction de l'énergie du rayonnement incident.

La largeur spectrale délivrée par le monochromateur à réseau est voisine de 100 meV dans le domaine spectral exploré et le rayonnement incident est polarisé circulairement. La détection est assurée par une diode GaAs connectée à un picoampèremètre et placée à 100 mm de la structure multicouche. La fente de 100 μ m située devant la diode donne une divergence angulaire de 6 10^{-5} degré. Il est important de souligner que le rayonnement diffusé détecté n'est pas préalablement dispersé spectralement. Les spectres d'excitation de couches minces de LaF₃ et de La₂O₃ préparées par évaporation thermique ont été enregistrés dans les mêmes conditions pour comparaison avec ceux de la structure multicouche.

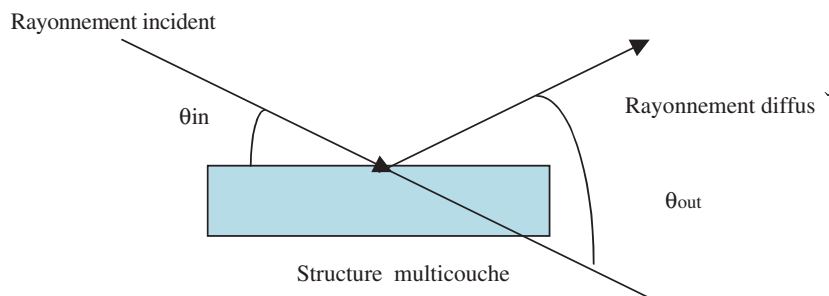


Figure 1. Schéma de l'expérience.

3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

La figure 2 présente les spectres d'excitation de la structure multicouche enregistrés à différents angles de diffusion pour les trois angles d'attaque. De forts maximums d'intensité diffusée sont observés pour des énergies incidentes qui varient fortement avec l'angle de diffusion. La figure 3 présente les spectres d'excitation du sesquioxyde observés pour différents angles d'incidence et de diffusion. Par contraste avec le cas de la multicouche, les maximums d'intensité diffusée apparaissent à des énergies incidentes fixes.

3.1 Les émissions 4d du lanthane

Afin d'interpréter les résultats, nous rappellerons les caractéristiques des spectres 4d du lanthane. Les configurations ionisée 4d⁹ et excitée 4d⁹4f¹ sont situées dans le domaine d'énergie des photons incidents. Le seuil d'ionisation est situé vers 103-105 eV. La décroissance de la configuration ionisée

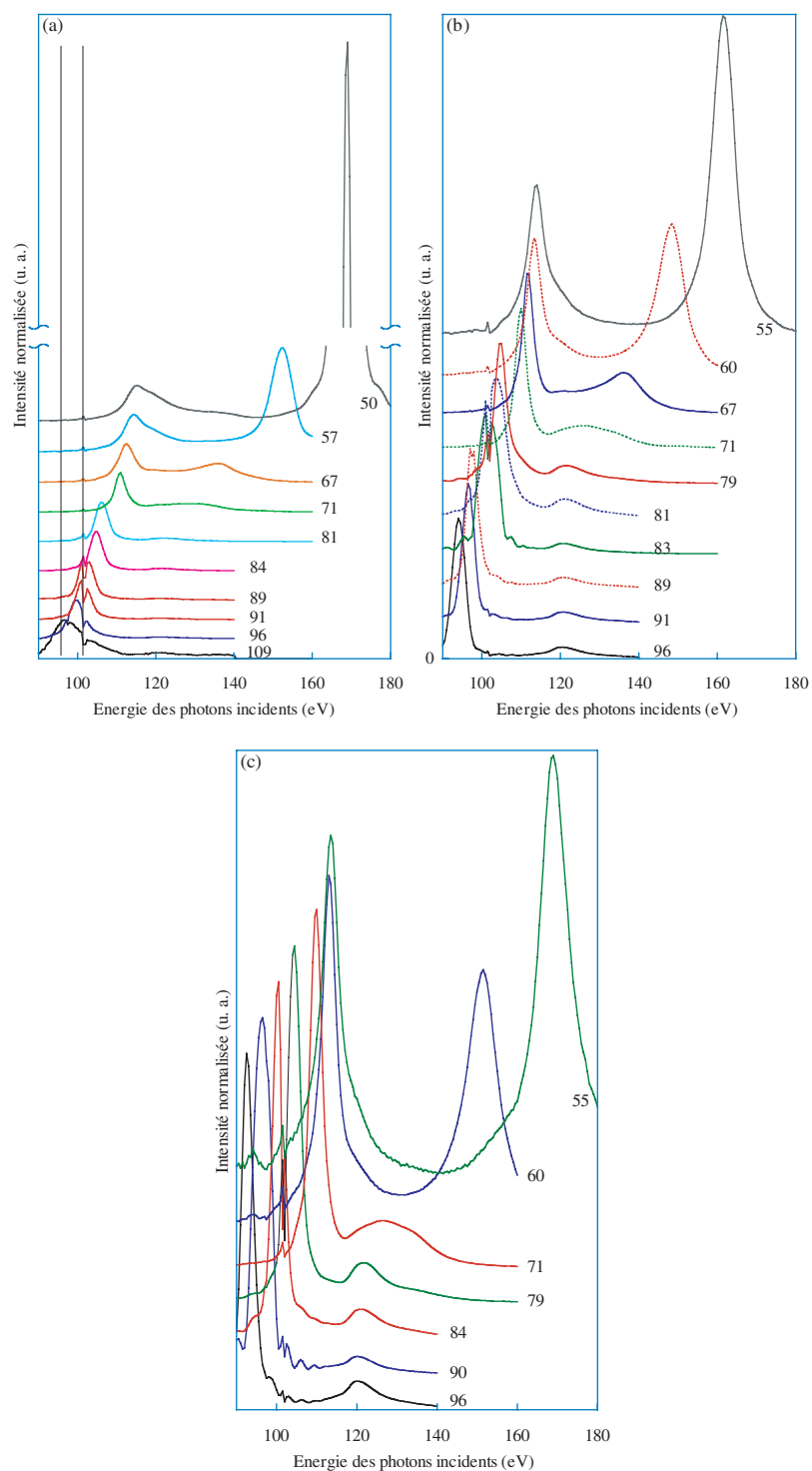


Figure 2. Spectre d'excitation de la multicouche La/B₄C pour plusieurs angles d'attaque θ_{in} et plusieurs angles de diffusion θ_{out} . (a) $\theta_{in} = 31^\circ$ et $50 \leq \theta_{out} \leq 109^\circ$; (b) $\theta_{in} = 41,5^\circ$ et $55 \leq \theta_{out} \leq 96^\circ$; (c) $\theta_{in} = 45^\circ$ et $55 \leq \theta_{out} \leq 96^\circ$. Les barres verticales indiquent la position des états $4d^9 4f^1 \ ^3P$ et 3D .

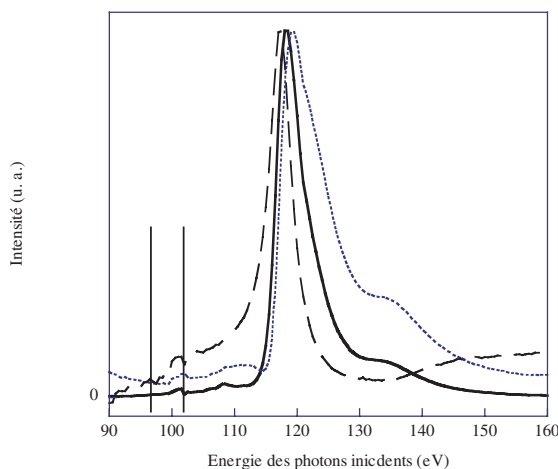


Figure 3. Spectre d'excitation d'un film mince de La_2O_3 pour un angle d'attaque de 45° et plusieurs angles de diffusion : 84° (pointillés), 90° (ligne) et 96° (tirets). Les barres verticales indiquent la position des états $4d^9 4f^1$ 3P et 3D .

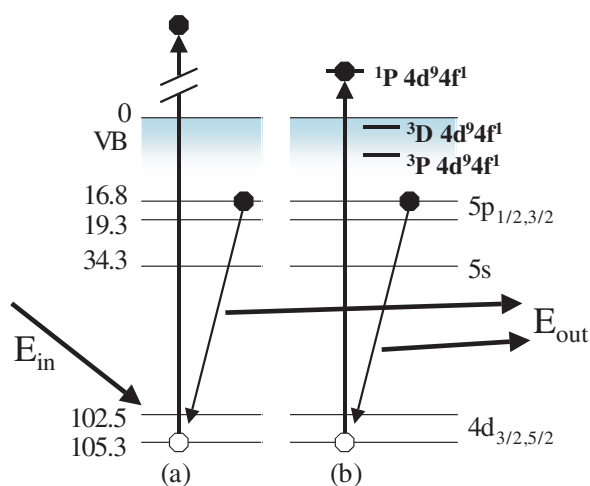


Figure 4. Niveaux d'énergie du lanthane et décroissance des lacunes 4d : (a) ionisation $4d^9$; (b) excitation $4d^9 4f^1$. VB désigne la bande de valence.

$4d^9$ prend place vers $5p^5$. La transition d'un électron de valence de symétrie p vers le niveau 4d est aussi possible mais avec une probabilité nettement plus faible. La configuration $4d^9 4f^1$ comporte 20 niveaux : 19 niveaux sont situés entre 96-101 eV, c'est-à-dire sous le seuil d'ionisation $4d^9$ et leurs largeurs sont de l'ordre de 0,1 eV. Un niveau, $4d^9 4f^1$ 1P , est situé à environ 10 eV au dessus du seuil d'ionisation et sa largeur est de l'ordre de 3 eV [8]. La décroissance radiative de la configuration $4d^9 4f^1$ prend place vers $5p^5 4f^1$ et vers le fondamental $4d^{10}$. La décroissance radiative vers $4d^{10}$ est possible seulement à partir des niveaux $4d^9 4f^1$ 3P , 3D et 1P . On attend donc trois raies. La probabilité d'émission à partir de 3P est très faible. Celle à partir de 3D est théoriquement 7 fois plus élevée. La raie à partir de 1P est située au dessus du seuil d'ionisation et sa probabilité est beaucoup plus grande que les précédentes. La figure 4 donne un schéma des différents niveaux électroniques mis en jeu.

Lorsque l'énergie incidente est supérieure au seuil $4d^9$, l'ionisation est le processus dominant et s'étend largement vers les grandes énergies. Cependant, dans la région où l'excitation vers le niveau 1P de la configuration $4d^9 4f^1$ est présent, ce processus domine l'ionisation directe. La décroissante de $4d^9 4f^1 \ ^1P$ peut se faire vers la configuration fondamentale $4d^{10}$ avec émission de la raie mentionnée ci-dessus et vers $5p^5 4f^1$ par l'intermédiaire de l'ensemble des niveaux $4d^9 4f^1$. Elle a une forte probabilité de se faire aussi par autoionisation vers la configuration ionisée $4d^9$, puis $5p^5$. Dans le cas de l'ionisation, l'électron $4d$ est éjecté dans le continuum et peut être caractérisé par son énergie et son impulsion. Dans le cas de l'excitation, l'électron $4d$ est localisé en $4f$ et reste lié à l'atome.

Nous avons observé pour les composés de lanthane des émissions aux énergies incidentes correspondant à l'excitation vers 3P (95 eV), 3D (101 eV) et 1P (118 eV), quelque soit l'angle de diffusion. Leurs intensités relatives sont dans le rapport prévu théoriquement. Les spectres d'excitation de la structure multicouche présentent des maximums de relativement faible intensité, aux mêmes énergies incidentes que les composés, quelque soit l'angle de diffusion. Ces trois maximums correspondent aux émissions résonantes dues à la recombinaison radiative des états excités $4d^9 4f^1 \ ^3P$, $4d^9 4f^1 \ ^3D$ et $4d^9 4f^1 \ ^1P$ vers le fondamental. Elles sont isotropes et ne subissent pas de diffusion élastique dans la multicouche.

3.2 Les pics de diffusion dans les spectres d'excitation de la structure multicouche

L'énergie incidente associée aux pics les plus intenses varie avec l'angle de diffusion (figure 5). Nous attribuons ces pics à un processus de diffusion Raman associé à une diffusion élastique de Bragg dans la multicouche. Du fait des largeurs des transitions d'excitation et d'ionisation, la diffusion Raman s'étend de part et d'autre des seuils d'excitation et d'ionisation ce qui rend difficile l'interprétation des différents pics.

Pour décrire d'un point de vue cinématique, un processus de diffusion Raman dans lequel la radiation diffusée subit une diffraction de Bragg dans la structure multicouche (ce processus sera appelé diffusion Raman-Bragg), considérons les lois de conservation des énergies et des impulsions entre l'état initial

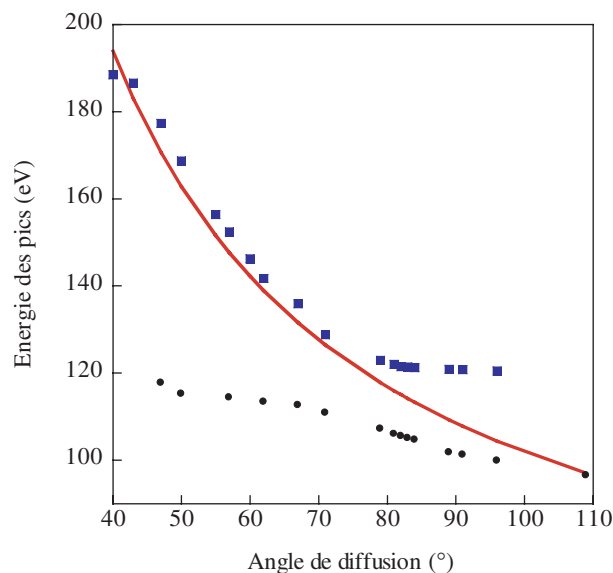


Figure 5. Energie des pics dans le spectre d'excitation de la structure multicouche La/B₄C : carrés : pic P1 ; ronds : pic P2 ; ligne continue : modèle cinématique.

et l'état final. Elles prennent en compte les photons incident et diffusé, l'atome dans son état final et le réseau multicouche.

$$E_{in} = E_{out} + E_x \quad (1)$$

et

$$\hbar \mathbf{k}_{in} = \hbar \mathbf{k}_{out} + \mathbf{q}_x + \hbar \mathbf{G}, \quad (2)$$

où E_{in} et E_{out} sont les énergies des photons incidents et diffusés, $\hbar \mathbf{k}_{in}$ et $\hbar \mathbf{k}_{out}$ les impulsions associées aux photons incidents et diffusés, \mathbf{q}_x l'impulsion associée à l'état final d'énergie E_x et \mathbf{G} est un vecteur du réseau réciproque. En combinant les relations (1) et (2) et en considérant les relations de dispersion reliant les énergies aux impulsions, on trouve que l'énergie incidente $E_{in,max}$ donnant lieu à un pic de diffusion Raman-Bragg dans le spectre d'excitation est donnée par :

$$E_{in,max} = \frac{E_x}{2} + \frac{\sqrt{2c^2q^2(1 - \cos \theta_{out}) - E_x^2 \sin^2 \theta_{out}}}{2(1 - \cos \theta_{out})} \quad (3)$$

avec

$$\mathbf{q}^2 = (\mathbf{q}_x + \hbar \mathbf{G})^2 = q_x^2 + (\hbar \mathbf{G})^2 + 2\mathbf{q}_x \hbar \mathbf{G} \cos(\theta_x), \quad (4)$$

où θ_x est l'angle entre la direction de \mathbf{G} et \mathbf{q}_x .

Ce modèle prévoit qu'un pic de rayonnement diffusé sera observé pour des énergies incidentes d'autant plus grandes que l'angle de diffusion diminue. Notons que pour établir les relations (3) et (4) nous avons admis que les relations de dispersion reliant l'énergie E de l'état final au module p de son impulsion était de type « photonique » (c'est-à-dire $E/c = p$). Cette hypothèse n'est pas justifiée et constitue une première approximation. Par ailleurs nous avons utilisé pour θ_x l'expression $\pi/2 - (\theta_{out} - \theta_{in})$ ce qui implique que l'impulsion \mathbf{q}_x soit colinéaire à l'impulsion du photon diffusé.

Utilisant ce modèle, nous interprétons le pic P1 observé pour les grandes énergies incidentes (cf. figure 2) comme dû à un effet Raman-Bragg dans lequel le lanthane a la configuration finale $5p^5$ (environ 20 eV). C'est la configuration finale la plus probable obtenue par recombinaison radiative à partir de $4d^9$. Comme décrit ci-dessus, la configuration ionisée $4d^9$ peut être obtenue, soit par ionisation directe du fondamental, soit par autoionisation à partir du niveau excité $4d^9 4f^1 \ ^1P$. Etant donné la très grande section efficace d'excitation vers ce niveau et sa forte probabilité de décroissance vers l'état ionisé, nous suggérons que l'effet Raman-Bragg ainsi mis en évidence est lié à la présence du niveau 1P dans le spectre 4d du lanthane. La figure 5 donne l'énergie incidente $E_{in,max}$ correspondant au pic Bragg-Raman en fonction de l'angle de diffusion. Cette énergie est calculée au moyen des relations (3) et (4) en prenant pour E_x la valeur de 20 eV correspondant à la configuration $5p^5$ du lanthane et pour l'angle θ_{in} une valeur de 31° . Les énergies calculées sont comparées aux positions expérimentales des pics P1 et P2. La courbe expérimentale du pic P1 est bien reproduite par notre modèle pour des angles de diffusion inférieurs à environ 80° . Au delà, l'énergie du pic P1 reste constante et correspond à l'énergie de l'émission résonante à partir de l'état 1P .

Considérons maintenant le pic observé pour les faibles énergies incidentes, noté P2. La variation de ce pic avec l'angle de diffusion est nettement plus faible que celle observée pour P1 ce qui est compatible avec les conditions imposées par le fait que le module de $\cos \theta_x$ doit être inférieur ou égal à 1. Il est possible que le pic P2 corresponde à la superposition de plusieurs processus, un effet Raman ne s'accompagnant pas d'une diffusion élastique dans la multicouche et un effet Bragg-Raman, ce qui expliquerait les difficultés d'interprétation. Plusieurs transitions différentes sont en effet attendues dans ce domaine d'énergie, la décroissance à partir de La $4d^9 4f^{13}D$ vers $5p^5 4f^1$, au delà de 103 eV la décroissance à partir de La $4d^9$ vers $5p^5$ ainsi que l'émission $L_{2,3}$ émise par le support de silicium ayant traversé la multicouche dans les conditions de Bragg, ce qui expliquerait qu'elle soit peu réabsorbée.

Afin de pouvoir compléter nos interprétations, il serait nécessaire de disperser le rayonnement diffusé. Nos expériences doivent se poursuivre dans ce but. Elles permettront de confirmer l'interprétation du pic P1 et d'identifier les processus responsables du pic P2. En parallèle, il est nécessaire de généraliser notre modèle afin qu'il soit valable dans un très large domaine de conditions expérimentales. Enfin il serait intéressant de rechercher les conditions générales d'observation de l'effet Raman-Bragg qui est vu ici pour la première fois.

Remerciements

Ce travail a été supporté par la Commission Européenne dans le cadre du projet n° B13A-212/300804. Les auteurs remercient Jörg Wiesmann et Carsten Michaelsen de la société Incoatec à Geestacht en Allemagne pour la fourniture de la structure multicouche.

Références

- [1] Toffano Z., *Optoélectronique* (Technosup, Edition Ellipses, Paris, 2001).
- [2] Yariv A., Yeh P., *JOSA* **6** (1977) 438-448.
- [3] Spiller E., *Soft X-Ray Optics* (SPIE Optical Engineering Press, Bellingham, 1994).
- [4] André J.-M., Barchewitz R. (*Recent Res. Devel. Optics*, Research Signpost Editor, Kerala, India, 2002) pp. 645-663.
- [5] Elton R. C., *X-ray lasers* (Academic Press Inc., San Diego, Californie, 1990).
- [6] Fomichev V. A., Shulakov A. S., *Phys. Scr.* **41** (1990) 99-104.
- [7] Motais P., Belin E., Bonnelle C., *Phys. Rev. B* **30** (1984) 4399-4410.
- [8] Zimkina T. M., Fomichev V. A., Gribovskii S. A., Zhukova I. I., *Sov. Phys. Solid. State* **9** (1967) 1128-1163.
- [9] Bonnelle C., Giorgi G., Bruneau J., *Phys. Rev. B* **50** (1994) 16255-16263.
- [10] Michaelsen C., Wiesmann J., Bormann R., Nowak C., Dieker C., Hollensteiner S., Jäger W., *Optics Lett.* **26** (2001) 792-794.
- [11] Schäfers F., Mertins H.-C., Gaupp A., Gudat W., Mertin M., Packe I., Schmolla F., Di Fonzo S., Soullié G., Jark W., Walker R., Le Cann X., Nyholm R., Eriksson M., *Appl. Opt.* **38** (1999) 4074-4088.