

Contrôle de l'émission spontanée de rayonnement X au moyen d'un cristal photonique mono-dimensionnel

J.-M. André* et P. Jonnard

Laboratoire de Chimie Physique – Matière et Rayonnement, CNRS – UMR 7614, Université UPMC – Paris 06, 11 rue Pierre et Marie Curie, 75231 Paris Cedex 05, France

Résumé. En nous appuyant sur l'effet Purcell, nous présentons tant théoriquement qu'expérimentalement une étude montrant qu'il est possible de contrôler (inhiber ou au contraire exalter) l'émission spontanée de rayonnement X au moyen d'un cristal photonique mono-dimensionnel (1-D). Nous présentons tout d'abord un modèle de calcul du taux d'émission spontanée dans une telle structure, basé sur la règle d'or de Fermi dans le cadre de l'approche dite « Wigner-time ». Ce modèle est appliqué au cas de l'émission Si-K pour un cristal photonique 1-D formé par une structure multicouche périodique Mo/Si. Les simulations numériques sont comparées à l'expérience.

1. INTRODUCTION

Dans une communication devenue célèbre [1], E. M. Purcell a montré qu'il est possible dans le domaine des radiofréquences de modifier le taux d'Emission Spontanée (ES) lorsque les conditions d'émission deviennent non triviales. Cet effet qui porte maintenant son nom a été généralisé à d'autres domaines du spectre électromagnétique et appliqué en particulier au domaine visible et infrarouge où la possibilité de contrôler l'ES d'atomes a eu de profondes conséquences sur les composants optoélectroniques de ces domaines [2]. Le contrôle dans ces domaines spectraux se fait au moyen de cristaux photoniques [3]. Dans le domaine des rayons X, les miroirs de Bragg [4] dont le développement est actuellement bien avancé constitue des cristaux photoniques mono-dimensionnels que l'on peut mettre à profit pour contrôler l'émission caractéristique de rayonnement X comme nous le montrerons dans ce papier. L'expérience que nous avons réalisée consiste à exciter par bombardement électronique les atomes de silicium contenu dans une structure de Bragg Mo/Si et à observer les variations d'intensité de la raie Si-K α en fonction de l'angle d'observation α . Les modulations de l'intensité émise en fonction de l'angle α peuvent s'interpréter comme la conséquence d'une variation importante du taux d'ES lorsqu'on se déplace dans la région de diffraction de Bragg.

2. EXPÉRIENCE

Les détails de l'expérience ont été donnés dans la référence [5]. Une structure multicouche périodique constituée de 40 bicouches Mo/Si avec une période $d = 4,8$ nm et un rapport cyclique $\gamma = 0,33$ est bombardée par des électrons de 6 keV. L'intensité de l'émission Si-K α (de longueur d'onde 0,713 nm) résultant de l'excitation électronique des atomes de silicium est enregistrée en fonction de l'angle de rotation α formé par la surface de la multicouche et la direction de détection. La raie Si-K α est isolée à l'aide d'un spectromètre à dispersion de longueur d'onde fonctionnant en mode monochromateur. La figure 1 donne les variations d'intensité en fonction de l'angle α . L'échelle angulaire en abscisse

*e-mail : jean-michel.andre1@upmc.fr

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution-Noncommercial License 3.0, which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any noncommercial medium, provided the original work is properly cited.

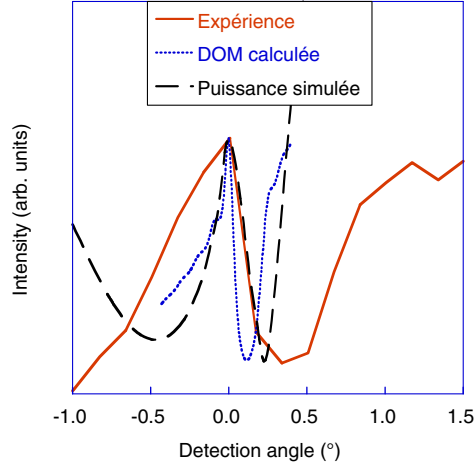


Figure 1. Intensité de la raie Si-K provenant de la structure multicouche Mo/Si bombardée par des électrons de 6 keV en fonction de l'angle de détection α comparée à la DOM calculée et à la simulation de la puissance émise en tenant compte de l'élargissement angulaire du monochromateur.

est positionnée de telle sorte que le zéro coïncide avec le maximum de la courbe. Il est important de souligner que la même expérience menée avec un échantillon massif de silicium ne montre pas l'existence des modulations observées avec la structure multicouche mais une variation monotone. On a aussi porté sur la figure 1 la densité de modes (DOM, Density Of Modes) calculée par le modèle exposé ci-dessous et une simulation de la puissance émise obtenue par ce même modèle en tenant compte de l'élargissement angulaire du monochromateur. On remarque dans les résultats expérimentaux (Fig. 1 courbe continue rouge) un pic d'intensité (à 0°) suivi d'une chute ; ces structures se retrouvent dans la simulation de la puissance émise (Fig. 1 courbe à trait interrompu noir).

3. INTERPRÉTATION ET THÉORIE

Les structures observées dans la figure 1 ont été interprétées comme la conséquence des variations du taux d'émission de la raie Si-K avec la composante normale du vecteur d'onde du rayonnement émis laquelle dépend de l'angle de détection α . Ces variations sont en fait dues à l'effet Purcell car les ondes émises doivent satisfaire aux conditions aux limites imposées par la géométrie de la structure multicouche. Nous allons présenter ci-dessous un modèle qui permet de rendre compte au moins sur le plan qualitatif des observations expérimentales.

Le taux d'ES τ d'un atome situé en \mathbf{R} est donné par la règle d'or de Fermi

$$\tau(R) = \frac{2\pi}{\hbar^2} |\langle f | H | i \rangle|^2 \delta(\omega_i - \omega_f) \quad (1)$$

où $|i\rangle$ et $|f\rangle$ désignent les états initial et final d'énergies $\hbar\omega_{i/f}$; H est l'hamiltonien du système global comprenant atome, rayonnement et "boîte optique". Dans le régime d'émission Wigner-Weisskopf, le taux d'émission peut être calculé par le modèle classique d'un dipôle oscillant harmoniquement à la fréquence ω_0 avec le moment dipolaire $\vec{\mu}(\mathbf{R})$. La puissance instantanée émise en régime stationnaire est alors donnée par :

$$P(t) = \frac{\pi^2}{2} \omega_0^2 \mu^2 \int |\mathbf{a}_{\mathbf{k}}(\mathbf{R}) \cdot \vec{\mu}|^2 \delta(\omega_0 - \omega_{\mathbf{k}}) d^3k \quad (2)$$

où $\mathbf{a}_{\mathbf{k}}(\mathbf{R})$ désignent les modes propres du champ que nous expliciterons ci-dessous et $\omega_{\mathbf{k}}$ sont les fréquences propres de ces modes. En introduisant le concept de DOM, $\bar{\rho}(\omega) = \frac{dk}{d\omega}$ que l'on obtient à

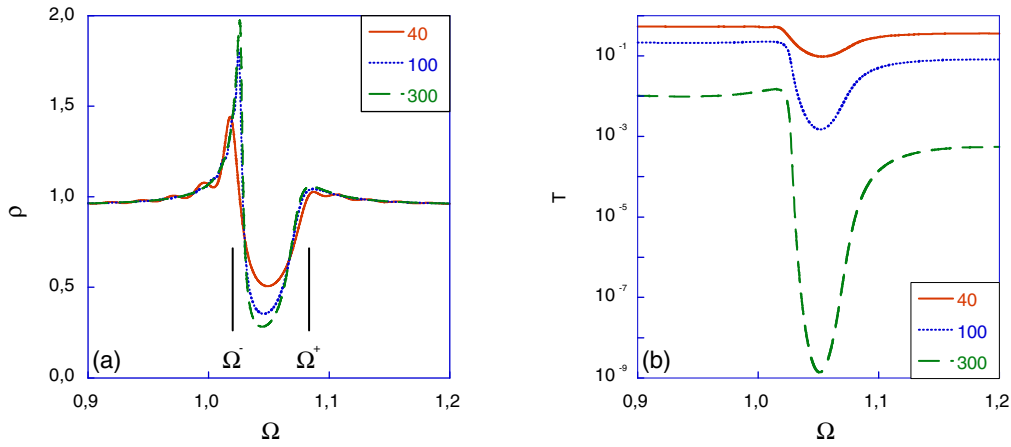


Figure 2. Calcul de la DOM (a) et de la transmittance globale (b) de la structure Mo/Si en fonction de l'énergie pour différents nombres de bicouches: 40, 100 et 300.

partir de l'équation de dispersion qui lie ω et \mathbf{k} , la puissance spectrale émise s'écrit finalement:

$$P_\omega = C \bar{\rho}(\omega) |\mathbf{a}_{\mathbf{k}(\omega)}|^2 \quad (3)$$

où C est une constante qui n'est pas pertinente dans le cadre d'une description qualitative.

La DOM est indépendante de la position dans la structure et la puissance totale émise s'obtient en remplaçant $|\mathbf{a}_{\mathbf{k}(\omega)}|^2$ par la valeur moyenne suivante:

$$\langle |\mathbf{a}_{\mathbf{k}(\omega)}(z)|^2 \rangle = \frac{1}{Z_{\max} - Z_{\min}} \int_{Z_{\min}}^{Z_{\max}} |\mathbf{a}_{\mathbf{k}(\omega)}(z)|^2 dz \quad (4)$$

l'intégration étant réalisée le long de l'axe z perpendiculaire aux strates de la structure et dans la région occupée par le milieu émetteur compris entre $z = Z_{\min}$ et $z = Z_{\max}$.

Le calcul de la DOM peut se faire à partir de la méthode de type « Wigner-time » introduite par Bendickson *et al.* [6] à condition de généraliser celle-ci au cas des matériaux absorbants [7]. Rappelons brièvement la démarche; la DOM peut être calculée à partir du coefficient de transmission T de la structure grâce de la relation suivante:

$$\bar{\rho}(\omega) = \frac{1}{D} \frac{y'x - x'y}{x^2 + y^2} \quad (5)$$

où x et y sont respectivement la partie réelle et imaginaire de T , le signe « prime » désigne la dérivation par rapport à ω et D est l'épaisseur de la structure. Le calcul du coefficient t pour le cas présent d'une structure stratifiée peut être menée grâce à la méthode des matrices de transfert [8,9]. La figure 2 présente les variations de DOM et de coefficient de transmission globale T de la multicouche pour une structure Mo/Si semblable à la nôtre (même composition et épaisseurs de couche) pour plusieurs valeurs du nombre de bicouches N (40, 100 et 300) en fonction de l'énergie réduite $\Omega = E/E_0$, E étant l'énergie du rayonnement et E_0 l'énergie de l'émission Si-K α , soit 1740 eV. La période d vaut 4,8 nm et l'angle de Bragg θ_r est égal à $4,26^\circ$ pour E_0 . Le calcul est fait pour la polarisation s avec les constantes optiques suivantes: $n_{\text{Mo}} = 1 - 0,01316 - i 0,00289$ et $n_{\text{Si}} = 1 - 0,00252 - i 0,00055$, les milieux étant considérés comme non dispersifs.

La région de Bragg est comprise entre les énergies réduites Ω^- et Ω^+ qui indiquent les bords de la zone interdite. Du point de vue de la physique des cristaux photoniques, cette zone correspond au domaine où la propagation des ondes d'énergie réduite Ω n'est pas possible ; dans cette région comprise entre Ω^- et Ω^+ la transmission T chute d'autant plus que le nombre de bicouches N augmente. Il est important

de noter qu'aux limites de bande, la DOM présente des pics; celui à l'énergie Ω^- étant plus intense que l'autre à l'énergie Ω en liaison avec l'asymétrie de la transmittance, celle-ci étant plus élevée du côté des basses énergies que des grandes énergies de la zone de Bragg car les milieux sont dissipatifs. L'augmentation de la DOM aux bords de bande conduit à une exaltation de l'émission spontanée que nous avons observée dans notre expérience (pic d'intensité à 0°). A l'inverse, à l'intérieur de la zone de Bragg, la DOM passe en dessous de l'unité ce qui conduit à un affaiblissement du taux d'ES par rapport à la structure massive (Si massif en l'occurrence) que l'on retrouve dans la chute d'intensité observée (voir Fig. 1).

Afin de comparer qualitativement notre modèle avec notre expérience, nous utilisons la relation (3). Nous avons expliqué ci-dessus comment calculer la DOM ; il reste à déterminer l'amplitude des modes normaux (MN) pour calculer la puissance spectrale émise au moyen de (3). Rappelons que les MN sont les solutions harmoniques de la forme homogène de l'équation d'onde en jauge transverse, soit:

$$a_{\mathbf{k}}''(z) + \frac{\omega_{\mathbf{k}}^2}{c^2} \varepsilon(z) a_{\mathbf{k}}(z) = 0 \quad (6)$$

assortie d'une relation de complétude. Dans notre cas (structure multicouche périodique), les MN $a_j(z)$ à la position z dans la $p^{\text{ième}}$ couche de type j (n° du matériau, soit 1 ou 2 pour une bicouche) s'écrivent:

$$a_j^{(n=p)}(z) = \exp(ipKd) [A_j \exp(ik_{\perp j}(z - pd)) + B_j \exp(-ik_{\perp j}(z - pd))], \quad (7)$$

$$pd < z < (p+1)d$$

où K est le nombre d'onde de Bloch et k_j la composante normale du vecteur d'onde dans le milieu j . Le vecteur d'onde K satisfait l'équation (transcendante) de dispersion:

$$\cos(Kd) = -\frac{(k_1 - k_2)^2}{4k_1k_2} \cos[d(k_1(\gamma - 1) + k_2\gamma)] + \frac{(k_1 + k_2)^2}{4k_1k_2} \cos[d(k_1(1 - \gamma) + k_2\gamma)] \quad (8)$$

qui est résolue numériquement pour déterminer K . Nous avons déterminé [10] les coefficients A_j et B_j :

$$A_1 = 2k_2 - \exp(id\Gamma_1^-) [k_- \exp(id\gamma k_+) + k_+ \exp(id\gamma k_-)] \quad (9)$$

$$A_2 = \exp(-id\gamma k_-) [k_- \exp(id\Gamma_1^+) + k_+ \exp[id(\Gamma_1^+ + 2\gamma k_2)] - 2k_2 \exp(id\gamma k_+)] \quad (10)$$

$$B_1 = \exp(-id\gamma k_2) \{k_+ \exp[id(\Gamma_1^+ + 2\gamma k_2)] - 2k_1 \exp[id(2K + \gamma k_1)] - k_- \exp[id(\Gamma_1^- + \gamma(2k_1 + k_2))]\} \quad (11)$$

$$B_2 = 2k_1 \exp[id(2K + \gamma k_+)] + k_- \exp(id\Gamma_1^+) - k_+ \exp[id(\Gamma_1^- + 2\gamma k_1)] \quad (12)$$

$$\text{avec } k_- = k_2 - k_1, \quad k_+ = k_2 + k_1 \quad \text{et} \quad \Gamma_j^{+/-} = K \pm k_j \quad (13)$$

A l'aide des relations précédentes, nous pouvons obtenir les MN après intégration de la relation (4) le long de l'axe des z . Cette approche théorique nous a permis d'obtenir la simulation présentée figure 1.

4. CONCLUSION

Nous avons mis en évidence l'effet Purcell dans le domaine du rayonnement X mou. Il apparaît qu'il est possible de contrôler l'émission X spontanée au moyen d'un cristal photonique mono-dimensionnel, en l'occurrence une structure de Bragg. Ce contrôle consiste en une exaltation notable de l'ES lorsque l'on se situe sur le bord inférieur de la zone de Bragg (correspondant aux faibles énergies) ou à une extinction lorsque l'on se trouve à l'intérieur de cette zone. Il est important de noter que le cristal photonique n'agit pas comme un simple filtre qui ne donnerait lieu qu'à une coupure de l'émission mais qu'il agit comme un "amplificateur" absolu de l'ES aux bords de la zone de Bragg. Cet effet pourrait être exploité pour

abaisser le seuil de "lasage" pour un laser X. Par ailleurs l'inhibition de l'ES pourrait être aussi mis à profit pour favoriser l'émission stimulée.

Références

- [1] E. M. Purcell, Phys. Rev. **69**, 681 (1946).
- [2] H. Yokoyama, Science **256**, 66 (1992).
- [3] J. D. Joannopoulos, S. G. Johnson, J. N. Winn, R. D. Meade, *Photonic Crystals Molding the Flow of Light* (2nd Edition, Princeton University Press, Princeton, 2008).
- [4] J.-M. André, R. Barchewitz, Recent. Res. Devel. Optics **2**, 645 (2002).
- [5] P. Jonnard, J.-M. André, C. Bonnelle, F. Bridou, B. Pardo, Appl. Phys. Lett. **81**, 1524 (2002).
- [6] J. M. Bendickson, J. P. Dowling, M. Scalora, Phys. Rev. E **53**, 4107 (1996).
- [7] J.-M. André and P. Jonnard, J. Mod. Opt. **56**, 1562 (2009).
- [8] J.-M. André, B. Pardo, Optics Comm. **66**, 249 (1988).
- [9] P. Yeh, *Optical Waves in Layered Media* (Wiley, New York, 1988), Chap. 3.
- [10] J.-M. André, P. Jonnard, AIP Conf. Proc. **1221**, 51 (2010).