

UNIVERSITE DE BOURGOGNE

Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne
(Interface et réactivités dans les matériaux)

THÈSE

Pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Bourgogne

Discipline : Physique

par

Mihaela CIRISAN

le 27 septembre 2010

**Dynamique d'expansion de la plume du plasma formée lors
d'un impact laser Nd :YAG nanoseconde sur une surface
métallique en milieu atmosphérique : caractérisation
expérimentale et simulation numérique**

Directeur de thèse : Jean-Marie JOUVARD

Co-directeur de thèse : Luc LAVISSE

JURY

Corinne CHAMPEAUX	Maître de Conférences (HDR)	Univ. de Limoges	Rapporteur
Michel AUTRIC	Professeur d'Université	Univ. de la Méditerranée	Rapporteur
Roland OLTRA	Directeur de Recherche CNRS	Univ. de Bourgogne	Président de jury
Ludovic HALLO	Ingénieur - Chercheur (HDR)	Univ. de Bordeaux1	Examineur
Marie-Pierre PLANCHE	Maître de Conférences (HDR)	UTBM	Examineur
Simone MATTEÏ	Professeur d'Université	Univ. de Bourgogne	Examineur
Jean-Marie JOUVARD	Professeur d'Université	Univ. de Bourgogne	Directeur de thèse
Luc LAVISSE	Maître de Conférences	Univ. de Bourgogne	Co-directeur de thèse

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein de l'équipe Laser et Traitements des matériaux (LTm) du Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne (LICB) située à l'Institut Universitaire de Technologie (IUT) du Creusot, France.

Je tiens à remercier M. Jean-Marie JOUVARD, directeur de thèse, et M. Luc LAVISSE, co-directeur de thèse, pour m'avoir encadré et accordé une énorme confiance tout au long de cette thèse. Je suis reconnaissante de l'aide, des conseils et du soutien qu'ils m'ont apportés.

Je remercie Mme Corinne CHAMPEAUX et M. Michel AUTRIC pour avoir accepté de rapporter ma thèse.

Je remercie M. Roland OLTRA pour nous avoir prêté sa camera ICCD, sa ligne à retard et son système d'acquisition, sans lesquelles il n'aurait pas été possible de réaliser les expériences présentées dans ce travail.

Je remercie M. Henri ANDRZEJEWSKI, ingénieur de recherche, pour son aide au niveau du montage expérimental.

Je tiens à remercier Mme Simone MATTEÏ, responsable de l'équipe LTm, pour m'avoir accueilli au sein de son équipe, ainsi que tout le personnel de l'équipe LTm, UB filiale et Mesures Physiques pour m'avoir permis d'effectuer ces trois années dans une ambiance sympathique et amicale.

Sommaire

Introduction.....	1
--------------------------	----------

Chapitre 1 :

Bases de la physique des plasmas et phénoménologie d'ablation laser

1. Définition du plasma	8
1.1. Interaction collective.....	8
1.2. Effets collectifs.....	8
1.3. Critères de l'état du plasma.....	10
2. Equilibre thermodynamique	11
2.1. Types d'équilibre thermodynamique	11
2.2. Distribution de Boltzmann.....	12
2.3. Equation de Saha.....	13
2.4. Types de plasma.....	14
3. Rayonnement du plasma.....	15
3.1. Rayonnement bremsstrahlung (rayonnement de freinage).....	16
3.2. Rayonnement de recombinaison	17
3.3. Rayonnement discret.....	18
4. Phénoménologie de l'ablation laser	19
4.1. Interaction laser - cible.....	21
4.2. Interaction laser - plasma	22
4.3. Expansion de la plume - plasma.....	23

Partie I :

Caractérisation de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser nanoseconde

Chapitre 2 :

Etude bibliographique : caractérisation de la plume d'ablation laser

1. Spectroscopie de la plume d'ablation laser	30
1.1. Principes généraux de la spectroscopie.....	31
1.2. Spectroscopie à basse pression.....	36
1.3. Spectroscopie à pression atmosphérique.....	38
1.4. Complémentarité des autres méthodes	40
2. Ombroscopie et interférométrie de la plume d'ablation laser.....	41
2.1. Principes généraux de l'ombroscopie et de l'interférométrie	41
2.2. Ombroscopie et interférométrie à la pression atmosphérique	43
3. Imagerie rapide de la plume d'ablation laser	45
3.1. Principes généraux de l'imagerie rapide	46
3.2. Imagerie rapide à basse pression.....	47
3.3. Imagerie rapide à la pression atmosphérique	48
4. Conclusion.....	49

Chapitre 3 :

Imagerie rapide du plasma : système expérimental et manipulation

1. Equipements et matériaux utilisés	58
1.1. Laser	58
1.2. Camera ICCD	63
1.3. Système optique de collecte de l'information	66
1.4. Ligne à retard	67
1.5. Echantillons	68
1.5.1. Propriétés atomiques	70
1.5.2. Propriétés thermodynamiques	71
1.5.3. Propriétés des matériaux soumis à l'irradiation laser Nd:YAG	72
2. Configuration du système expérimental	74
3. Descriptif de la manipulation	75
3.1. Caractérisation du laser Brilliant b	76
3.2. Détermination de l'irradiance du faisceau laser	77
3.3. Détermination du grandissement de l'objectif	80
3.4. Enregistrement des séries d'images de la plume	81

Chapitre 4 :

Imagerie rapide du plasma : résultats et analyse

1. Evolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser	84
2. Structure de la plume d'ablation laser	85
2.1. Observation de la structure de la plume	85
2.2. Analyse	90
3. Dynamique de la plume d'ablation laser	92
3.1. Evolutions temporelles des dimensions de la plume	92
3.2. Vitesses d'expansion de la plume	95
3.3. Analyse	98
4. Influence d'irradiance laser sur l'expansion de la plume	101
4.1. Evolutions temporelles des dimensions et vitesses d'expansion de la plume	103
4.2. Analyse	109
5. Influence de la composition de cible sur l'expansion de la plume	110
5.1. Evolutions temporelles des dimensions et vitesses d'expansion de la plume	110
5.2. Analyse	116

Partie II :

Modélisation d'ablation laser: simulation numérique en COMSOL Multiphysics

Chapitre 5 :

Etude bibliographique : modélisation d'ablation laser

1. Modélisation d'interaction laser - cible	123
1.1. Modèles simulant l'interaction laser - cible	124
1.2. Synthèse de la modélisation d'interaction laser – cible	128
1.2.1. Modélisation du transfert de chaleur dans la cible et de la fusion du matériau	128

1.2.2. Modélisation de la vaporisation du matériau et de la couche de Knudsen	131
1.2.3. Modélisation de l'effet d'écrantage (« plasma shielding »)	132
2. Modélisation d'expansion de la plume du plasma	133
2.1. Modèles analytiques	134
2.2. Modèles hydrodynamiques	135
2.3. Modèles Monte Carlo	148
3. Conclusion	150

Chapitre 6 :

Modélisation d'ablation laser en COMSOL : bases théoriques et description du modèle

1. Modèle thermique	152
1.1. Transfert de chaleur dans la cible et fusion du matériau	153
1.1.1. Faisceau laser comme la source de chaleur	153
1.1.2. L'équation de conduction thermique	156
1.1.3. Conditions initiales et aux limites	160
1.2. Vaporisation du matériau et couche de Knudsen	163
1.2.1. Vaporisation rapide du matériau	163
1.2.2. Couche de Knudsen	165
1.3. Ecrantage (« plasma shielding »)	167
2. Modèle hydrodynamique: approche microscopique	173
2.1. Processus élémentaires dans le plasma	174
2.2. Bilan de masse	176
2.3. Bilan de quantité de mouvement	179
2.4. Bilan d'énergie	180
2.4.1. Approximation à une température (1T)	181
2.4.2. Approximation aux deux températures (2T)	182
2.5. Conditions initiales et aux limites	185
3. Modèle hydrodynamique: approche macroscopique	187
3.1. Ondes d'absorption du rayonnement laser	188
3.1.1. Laser-supported combustion wave (LSCW)	190
3.1.2. Laser-supported detonation wave (LSDW)	191
3.1.3. Laser-supported radiation wave (LSRW)	193
3.2. Hydrodynamique	194
3.2.1. Bilan de masse	195
3.2.2. Bilan de quantité de mouvement	195
3.2.3. Bilan d'énergie	196
3.2.4. Conditions initiales et aux limites	198
4. Développement du modèle macroscopique sous COMSOL	202
4.1. Utilisation de paramètres adimensionnels	203
4.2. Modélisation des ondes de choc en COMSOL	205

Chapitre 7 :

Modélisation d'ablation laser en COMSOL : résultats et analyse

1. Résultats du modèle thermique	210
1.1. Température de la cible	211
1.1.1. Distribution de la température dans la cible	211
1.1.2. Température à la surface de la cible	215
1.2. Paramètres de vaporisation du matériau à la surface de la cible	216
1.2.1. Pression de la vapeur métallique	217
1.2.2. Taux de vaporisation du matériau	218

1.2.3. Vitesse de recul et la profondeur d'ablation	219
1.3. Paramètres à la limite externe de la couche de Knudsen	220
1.3.1. Température de la vapeur	220
1.3.2. Pression de la vapeur	221
1.3.3. Masse volumique de la vapeur	221
1.3.4. Vitesse de la vapeur	222
2. Résultats du modèle hydrodynamique (approche macroscopique)	223
2.1. Distributions des paramètres dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns	223
2.2. Résultats du modèle hydrodynamique	227
2.2.1. Masse volumique du plasma.....	227
2.2.2. Masse volumique de l'air	231
2.2.3. Vitesse du fluide « plasma + air »	234
2.2.4. Pression du fluide « plasma + air ».....	236
3. Comparaison avec des résultats expérimentaux.....	238
4. Modèle hydrodynamique microscopique	241
5. Conclusion.....	242

Conclusion et perspectives.....	243
--	------------

Bibliographie.....	247
---------------------------	------------

Annexe I.....	263
----------------------	------------

Annexe II.....	267
-----------------------	------------

Introduction

L'ablation laser est une technique d'enlèvement de matière de la surface d'un solide ou d'un liquide par l'irradiation laser, largement utilisée aujourd'hui. Elle s'est développée depuis l'époque de l'invention des lasers (1960). Très rapidement, le processus d'ablation laser est devenu le sujet d'intérêt de beaucoup de scientifiques. Même si la réalisation d'ablation laser est assez simple, ce phénomène est très complexe ce qui confirme le fait que 50 ans après sa découverte il n'est pas encore tout à fait compris. Néanmoins, la technologie laser a beaucoup avancé entre temps et l'ablation laser a trouvé beaucoup d'applications dans l'industrie, l'analyse chimique, mais aussi dans la médecine et l'exploration de l'univers. Pour une meilleure maîtrise et un développement plus approfondi des technologies laser basées sur l'effet d'ablation, il est nécessaire de mieux comprendre les phénomènes à l'origine de l'interaction laser-matière.

Lors d'un impact du faisceau laser sur la surface d'un matériau, une plume du plasma se forme au dessus du matériau traité. Ce plasma contient des électrons, des atomes et des ions du matériau évaporé interagissant avec le gaz ambiant, si il est présent. Les dimensions, ainsi que les paramètres de cette plume du plasma, évoluent très rapidement avec le temps. L'étude de la dynamique et des paramètres de cette plume est très importante, parce que ils influent sur tous les processus physiques ayant lieu à la surface du matériau traité.

La formation, l'expansion et les paramètres du plasma induit par faisceau laser (LIP – « laser induced plasma ») étaient examinés expérimentalement ainsi que théoriquement depuis l'invention de l'ablation laser. L'amélioration des systèmes de détection pendant les deux dernières décades a beaucoup fait avancer les expériences de caractérisation de la plume. Même si beaucoup de recherche et d'efforts ont été faits pour analyser et expliquer l'interaction laser-matière, elle n'est pas encore complètement comprise. L'ablation laser implique des processus physiques complexes et simultanés, comme le transfert de chaleur dans la cible, la fusion et la vaporisation du matériau, l'excitation et l'ionisation des atomes de la vapeur, l'expansion du plasma, l'interaction du plasma avec le faisceau laser, le rayonnement du plasma, ... Les caractéristiques du plasma induit par faisceau laser dépendent de beaucoup de paramètres : les propriétés physiques du matériau (la masse volumique, la capacité thermique, la conductivité thermique, le facteur d'absorption du rayonnement, la

température et la chaleur latente de fusion et de vaporisation), les paramètres du faisceau laser (la longueur d'onde, la durée d'impulsion, l'énergie, la densité de puissance) et les caractéristiques du milieu ambiant (la composition chimique de l'atmosphère réactive et sa pression).

Applications de l'ablation laser

L'étude d'ablation laser est importante à cause du grand nombre de ses applications dans la recherche ainsi que dans l'industrie, surtout dans les domaines de production et traitement des matériaux, techniques diagnostiques, chirurgie et l'exploration de l'univers.

L'ablation laser est largement utilisée pour le traitement des matériaux, comme l'usinage (marquage, texturation...) [Dumitru'05, Dubey'08, Etsion'05], le micro-usinage [Dubey'08, Jandeleit'98, Molpeceres'05, Bordatchev'07], la micro-structuration [Zorba'04], ... Les avantages d'utilisation de lasers sont :

- la précision - un faisceau laser peut être concentré sur une tache de diamètre égale à quelques centaines de micromètres ;
- la faible durée d'impulsion laser et la possibilité de la contrôler, qui conduisent à la réduction des effets thermiques au niveau du matériau ;
- la propreté des procédés laser - ils ne génèrent pas ou très peu de produits polluant l'environnement ;
- la souplesse de l'outil laser, qui lui permet d'être appliqué sur une large gamme des matériaux : métaux, semi-conducteurs, céramiques, plastiques, polymères, ...

L'ablation laser s'utilise aussi pour la fabrication des fullerènes [Ying'96] et des nanoparticules [Becker'98, Ou'08a, Ou'08b].

La technique de « pulsed laser deposition (PLD) » est une technique de croissance des couches minces, qui est basée sur l'effet d'ablation laser. Dans un milieu ambiant de faible pression, voire dans le vide, l'impulsion laser d'irradiance élevée engendre une plume de matière ablatée. Cette matière pulvérulente se dépose alors sur un substrat, positionné en face de la cible en cours d'ablation. Il forme alors une couche mince [Willmott'00]. Cette technique est appliquée avec succès à la production des couches minces des matériaux classiques [Cibert'08, Buzas'08, Liu'08] et nouveaux [Yamamoto'07, Eason'09], ainsi que à la production des couches minces des nanoparticules [Vijayalakshmi'98, Donnelly'07, Cappelli'07].

L'observation de la plume d'ablation laser a conduit à développer différentes méthodes d'analyse de surface. On peut citer notamment dans le domaine d'analyse chimique, deux techniques permettant un diagnostic basé sur l'ablation laser :

- « Laser induced breakdown spectroscopy (LIBS) » ou « laser induced plasma spectroscopy (LIPS) » est une technique d'analyse quantitative des éléments chimiques dans les matériaux solides, liquides ou gazeux [Radziemski'02, Fantoni'08]. Elle est basée sur l'analyse du rayonnement de la matière ablatée par spectroscopie. En utilisant cette technique, il est possible de déterminer, par exemple, la teneur des métaux lourds dans le sol [Capitelli'02], la quantité des éléments en trace dans les liquides [Fichet'01], la composition des aérosols complexes [Mukherjee'06], des alliages et des verres [Burakov'07]. De plus, depuis quelques années la technique LIBS est considérée comme une nouvelle méthode pour l'analyse des échantillons géologiques sur les surfaces planétaires [Knight'00, Salle'05].
- Une autre technique de diagnostic « laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry (LA-ICP-MS)» utilise le faisceau laser pour ablater de la matière en surface. La matière ablatée est ensuite introduite dans une torche à plasma et analysée par la spectrométrie de masse [Becker'02, Varga'08].

Concernant l'exploration spatiale, à part utilisation du LIBS pour l'analyse chimique des surfaces planétaires, l'ablation laser est aussi utilisée dans les micro-propulseurs qui servent au positionnement exact des petits satellites [Luke'03].

Il y a plus de trente ans que les lasers sont utilisés dans le domaine médical, notamment en stomatologie. Plus récemment, le développement des sources lasers d'irradiance élevée avec des durées d'impulsion très courtes (entre la femtoseconde et nanoseconde) a apporté beaucoup de nouvelles applications. Avec des telles caractéristiques du faisceau laser, le procédé d'ablation laser est de plus en plus employé particulièrement dans la chirurgie [Vogel'03, Colombelli'05, Nwaejike'09, Serbin'02].

Activités de l'équipe

L'équipe Laser et Traitements des matériaux (LTm) du laboratoire ICB travaille principalement sur des opérations utilisant des sources lasers de forte puissance pour le traitement de surfaces ou l'assemblage. Les activités de fonctionnalisation des surfaces,

localisées sur le site de l'IUT de Chalon-sur-Saône, ont pour but de créer des surfaces qui répondent à des caractéristiques technologiques précises. Cette fonctionnalisation s'effectue par l'enlèvement ou le déplacement de matière suite à une succession d'impacts laser ou par l'insertion d'éléments légers se trouvant dans l'atmosphère environnant lors de l'interaction. Les études des traitements de surface par laser ont pour objectifs d'améliorer les caractéristiques mécaniques (notamment la dureté) et chimiques (notamment la résistance à la corrosion) des pièces. La caractérisation des surfaces fonctionnalisées in situ dès les premiers instants de l'interaction est très importante. La maîtrise de ces procédés nécessite de comprendre les différents phénomènes physiques générés par l'interaction laser-matière.

Les sources lasers utilisées dans ces traitements possèdent des caractéristiques spécifiques, comme une durée d'irradiation courte (de la nanoseconde à quelques centaines de nanosecondes). L'interaction sur des matériaux tels que l'aluminium, le fer ou le titane ou leurs alliages est caractérisée par la présence d'une plume-plasma très énergétiques (vapeur, plasma, micro et nanoparticules). Cette plume exerce une surpression sur la couche de métal fondu. L'étude de l'influence de la durée d'impulsion (entre 5 et 750 ns) montre que pour une durée d'impulsion de 5 ns, la texturation de la surface est pilotée par un régime d'ablation. Au delà de la centaine de nanosecondes, les effets hydrodynamiques tendent à devenir prépondérants. Dans ce cas, nous avons pu observer qu'à partir d'un certain seuil de puissance, le déplacement du liquide peut induire une éjection latérale de matière sous forme de microgouttelettes. Dans le cas des processus de coloration de surface, le traitement se fait en milieu atmosphérique. La surpression due à l'éjection de la vapeur a comme effet d'induire une insertion renforcée à la fois en quantité d'atomes et en profondeur des constituants de l'air (azote, oxygène). Ce processus est à l'origine de la coloration de surface et d'une modification des propriétés structurales de la proche surface. Dans le cas de forte densité de puissance, on observe aussi la formation des particules nanométriques semblant résulter de processus internes à la plume. En conséquence, la compréhension des processus générés à l'intérieur de la plume est importante pour une meilleure compréhension du processus global généré lors du traitement superficiel de surface par impacts laser en milieu atmosphérique.

Objet de l'étude

Dans ce travail, nous avons étudié la plume du plasma formée lors de l'ablation de métal (Al, Ti et Fe) par faisceau laser Nd:YAG de courte durée d'impulsion (quelques

nanosecondes) et d'irradiance élevée (de l'ordre de GW/cm^2) dans l'air à la pression atmosphérique.

Cette étude contient deux parties. *La première partie* concerne la caractérisation de la plume par le biais de l'imagerie (photographie rapide), où la structure et la dynamique de la plume ont été étudiées. Dans *la deuxième partie*, la modélisation du processus d'ablation laser a été réalisée en utilisant COMSOL Multiphysics (logiciel basé sur la Méthode des Eléments Finis).

Plan de l'étude

Le Chapitre 1 donne une présentation générale du plasma comme un état de la matière. Il contient la définition et les critères de l'état du plasma, les lois de l'équilibre thermodynamique établi dans le plasma, ainsi que la description des mécanismes du rayonnement du plasma. À la fin de ce chapitre, je présente la phénoménologie de l'ablation laser afin de donner au lecteur une image complète de ce processus assez complexe. C'est une description des processus physiques ayant lieu lors de l'ablation laser sans introduire des expressions mathématiques.

Le Chapitre 2 représente le résumé d'une étude bibliographique sur la caractérisation des plumes d'ablation laser sous différentes conditions expérimentales. Les techniques les plus souvent employées pour cela sont la spectroscopie, l'ombroscopie, l'interferométrie et l'imagerie (photographie rapide). Le résumé a été organisé par rapport à la technique utilisée pour la caractérisation et par rapport à la pression du gaz ambiant. Ce dernier a été fait parce que le comportement de la plume dans le vide et à la pression basse est très différent par rapport à son comportement à la pression atmosphérique.

Dans *le Chapitre 3*, je donne la description du matériel utilisé dans la partie expérimentale de cette étude, ainsi que la description détaillée de l'expérience. Le système expérimental pour l'imagerie de la plume d'ablation laser est assez simple. Notre équipement comprend : le laser nanoseconde pour produire l'ablation sur des échantillons métalliques (Al, Ti, Fe) ; la camera ICCD équipée d'un objectif macro pour enregistrer des images de la plume et la ligne à retard pour réaliser la synchronisation entre le laser et la camera ICCD.

Dans *le Chapitre 4*, les résultats de la caractérisation de la plume formée lors de l'ablation laser dans l'air à la pression atmosphérique sont présentés. En utilisant la technique d'imagerie, nous avons enregistré des séries d'images montrant l'évolution spatio-temporelle

de la plume au début de son expansion. Nous avons observé la structure de la plume : deux régions appelées *le cœur* et *la périphérie de la plume* ont été distinguées. Ensuite, nous avons étudié la dynamique de ces deux régions de la plume et déterminé leurs vitesses d'expansion. En plus, nous avons étudié l'influence de l'irradiation laser, ainsi que du matériau de la cible, sur l'expansion de la plume.

Le Chapitre 5 représente le résumé d'une étude bibliographique sur la modélisation de la plume du plasma induit par faisceau laser. Les modèles ont été divisés en trois groupes par rapport à l'approche théorique employée : modèles analytiques, modèles basés sur la dynamique des fluides et modèles Monte Carlo. Nous nous sommes particulièrement concentrées sur le deuxième groupe, car la dynamique des fluides est l'approche la plus appropriée pour la modélisation de la plume d'ablation laser formée dans l'air à la pression atmosphérique.

Dans *le Chapitre 6*, nous essayons de décrire mathématiquement tous les processus physiques impliqués dans l'ablation laser : le transfert de chaleur dans la cible, la fusion et la vaporisation du matériau, la contribution de la couche de Knudsen, la formation et l'expansion du plasma, la cinétique du plasma, l'interaction du plasma avec le faisceau laser, le rayonnement du plasma... Cela représente la base théorique pour les modèles numériques développés en COMSOL Multiphysics. Dans cette étude, un modèle thermique a été utilisé pour simuler l'interaction laser – cible. Pour la modélisation de l'expansion de la plume du plasma, un modèle hydrodynamique a été développé. Deux approches ont été analysées : l'approche microscopique et l'approche macroscopique.

Dans *le Chapitre 7*, les résultats de la modélisation en COMSOL Multiphysics sont présentés. Le modèle thermique donne la distribution de la température dans la cible et, à partir de la température de surface, les paramètres de vaporisation du matériau. Les résultats du modèle thermique ont été utilisés comme les conditions aux limites du modèle hydrodynamique. Seul le modèle hydrodynamique basé sur l'approche macroscopique a permis que le calcul puisse être terminé. Les résultats, représentant l'évolution temporelle des distributions spatiales des paramètres de la plume, sont analysés et comparés aux résultats expérimentaux.

Chapitre 1

Bases de la physique des plasmas et phénoménologie d'ablation laser

1. Définition du plasma	8
1.1. Interaction collective	8
1.2. Effets collectifs.....	8
1.3. Critères de l'état du plasma	10
2. Equilibre thermodynamique	11
2.1. Types d'équilibre thermodynamique	11
2.2. Distribution de Boltzmann	12
2.3. Equation de Saha	13
2.4. Types des plasmas	14
3. Rayonnement du plasma	15
3.1. Rayonnement bremsstrahlung (rayonnement de freinage).....	16
3.2. Rayonnement de recombinaison	17
3.3. Rayonnement discret	18
4. Phénoménologie de l'ablation laser	19
4.1. Interaction laser – cible	21
4.2. Interaction laser - plasma	22
4.3. Expansion de la plume - plasma.....	24

1. Définition du plasma

Un *Plasma* est un ensemble gazeux contenant des électrons, des atomes et des ions, dont le comportement est déterminé par *l'interaction collective*. Cette interaction est provoquée par le micro-champ électromagnétique généré par les particules chargées présentes dans ce système.

Grâce à la mobilité des électrons très élevée, le plasma est caractérisé par une conductivité électrique et thermique très importante. Suite au nombre important de collisions entre les particules du plasma, le comportement de ce système peut être décrit par des concepts déduits de la théorie cinétique des gaz et de la physique statistique.

1.1. Interaction collective

Le micro-champ électromagnétique provient des particules chargées présentes dans le plasma et il est déterminé par leurs positions et vitesses. Ce micro-champ présente des fluctuations importantes dans le temps et dans l'espace. À travers ce micro-champ électromagnétique, chaque particule interagit avec toutes les autres particules présentes dans le plasma. Cette interaction s'appelle *l'interaction collective* [Milic'77, Bittencourt'04].

L'interaction collective dans le plasma est surtout provoquée par les forces de Coulomb. Comme cette force a une portée importante, l'interaction collective dans le plasma commence à se manifester déjà lors d'un faible pourcentage d'ionisation du gaz. En plus, l'interaction collective conduit à l'apparition *des effets collectifs*.

1.2. Effets collectifs

Il existe trois types d'effets collectifs qui caractérisent les plasmas [Milic'77, Bittencourt'04]:

1. *la quasi-neutralité macroscopique*
2. *la pulsation plasma*
3. *l'écrantage du champ électrique*

La *quasi-neutralité macroscopique* représente la tendance du plasma vers une neutralité électrique, c'est-à-dire que dans un volume du plasma la quantité de charge électrique positive est égale à la quantité de charge électrique négative (la densité de charge électrique est égale à zéro) :

$$\sum_{\alpha} q_{\alpha} N_{\alpha} = 0 \quad (1.1)$$

où q_{α} est la charge électrique et N_{α} la densité des différentes espèces chargées présentes dans le plasma. Cet effet collectif est observé dans le cas des plasmas d'un volume assez grand ($V \gg \lambda_D^3$, λ_D - la longueur de Debye) et dans les intervalles temporels assez longs ($t \gg 1/\omega_{pe}$, ω_{pe} - la fréquence plasma). En dehors de ces domaines (pour les volumes et intervalles temporels plus petits), les fluctuations de la densité de charge électrique dues à l'agitation thermique des particules chargées sont très accentuées, donc la quasi-neutralité macroscopique n'est plus applicable.

La *longueur de Debye* est l'échelle de longueur sur laquelle les charges électriques écrantent le champ électrostatique dans un plasma. Autrement dit, la longueur de Debye est la distance au delà de laquelle une séparation significative des charges peut avoir lieu. La longueur de Debye est définie comme :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{e^2 N_e}} \quad (1.2)$$

où T_e est la température des électrons et N_e la densité des électrons.

La *pulsation plasma* représente les oscillations des électrons présents dans le plasma. Si les électrons d'une zone du plasma sont déplacés suite à l'agitation thermique, alors que les ions de cette zone ont peu bougé à cause de leur masse importante, ces ions vont exercer sur les électrons une force de Coulomb attractive. Ceux-ci vont donc revenir vers leur position initiale. Ce processus est répétitif ce qui conduit à une oscillation des électrons présents dans le plasma. La fréquence de cette oscillation (*la fréquence plasma*) est égale à :

$$\omega_{pe} = \sqrt{\frac{e^2 N_e}{m_e \epsilon_0}} \quad (1.3)$$

où N_e représente la densité des électrons. Dans les plasmas produits en laboratoire la fréquence de plasma est de l'ordre de grandeur de 1 GHz. La séparation des charges positives

et négatives dans le plasma n'est pas absolument impossible, mais elle dure un temps très court (de l'ordre de grandeur de la période des pulsations plasma : $T_{pe} = 1/\omega_{pe}$).

L'écrantage du champ électrique consiste en l'atténuation du champ électrique en raison de la présence de porteurs de charges électriques mobiles au sein du plasma. Par exemple, chaque ion positif dans le plasma crée un champ électrique qui repousse les autres ions positifs et attire les électrons et les ions négatifs. En conséquence, l'espace environnant possède une densité de charge positive plus faible et une densité de charge négative plus importante. Cette région autour de l'ion positif peut être traitée comme un « nuage » chargé négativement. A grande distance, ce « nuage » est équivalent à une charge électrique négative supplémentaire qui annule partiellement le champ produit par l'ion positif. Le potentiel du champ électrique de l'ion positif entouré par ce « nuage » de charge négatif est défini par le potentiel de Debye-Hückel :

$$\phi_{\alpha}^{DH}(r) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q_{\alpha}}{r} \exp\left(-\frac{r}{\lambda_D}\right) \quad (1.4)$$

où q_{α} représente la charge électrique de l'ion positif, λ_D - la longueur de Debye et r - la distance de l'ion positif.

C'est seulement à courte distance que le champ de l'ion positif produit un effet sensible. Même si la force de Coulomb a une portée importante, chaque particule chargée du plasma n'interagit qu'avec les particules chargées qui se trouvent dans la sphère de Debye (de rayon λ_D) autour d'elle. C'est-à-dire, chaque particule chargée n'interagit qu'avec les particules chargées faisant partie de son « nuage ».

1.3. Critères de l'état du plasma

Un gaz ionisé, représentant un ensemble de particules chargées positives et négatives et macroscopiquement neutre, peut être appelé *plasma* si les critères suivants sont satisfaits [Milic'77]:

1. les dimensions du plasma doivent être très supérieures à la sphère de Debye :

$$l_{pl} \gg \lambda_D \quad \text{ou} \quad V_{pl} \gg \lambda_D^3 \quad (1.5)$$

où l_{pl} représente la longueur et V_{pl} le volume du plasma. Ce critère assure le quasi neutralité macroscopique du plasma.

2. la fréquence plasma ω_{pe} (fréquence des oscillations des électrons) doit être très supérieure à la fréquence de collision des électrons avec les autres espèces dans le plasma ν_e :

$$\omega_{pe} \gg \nu_e \quad \text{où} \quad \nu_e = \sum_{\alpha} \nu_{e\alpha} \quad (1.6)$$

$\nu_{e\alpha}$ représente la fréquence de collisions des électrons avec une autre espèce du plasma (par exemple atomes, ions...). Si ce critère est satisfait, les interactions électrostatiques dominent les processus de la cinétique du gaz ordinaire.

2. Equilibre thermodynamique

L'équilibre thermodynamique peut être défini comme l'état que tout système isolé atteint après un temps suffisamment long, et qui est caractérisé par un certain nombre de paramètres macroscopiques qui ne varient que très lentement par rapport à l'échelle de temps de l'expérience. C'est, en fait, l'existence et la stabilité de ces paramètres qui définissent un état d'équilibre. Le processus conduisant à l'équilibre thermodynamique est appelé *thermalisation*.

2.1. Types d'équilibre thermodynamique

Les particules des espèces du plasma se déplacent avec des vitesses différentes. Si l'équilibre thermodynamique est établi, la distribution des vitesses des espèces du plasma sont décrites par la fonction Maxwellienne [Milic'77]:

$$f_{\alpha}(v) = 4\pi N_{\alpha}(\vec{r}, t) \left(\frac{m_{\alpha}}{2\pi k_B T_{\alpha}(\vec{r}, t)} \right)^{\frac{3}{2}} v^2 \exp\left(-\frac{m_{\alpha} v^2}{2k_B T_{\alpha}(\vec{r}, t)} \right) \quad (1.7)$$

où m_{α} représente la masse d'une particule de l'espèce α , $N_{\alpha}(\vec{r}, t)$ la densité et $T_{\alpha}(\vec{r}, t)$ la température des particules de l'espèce α . Les deux paramètres, N_{α} et T_{α} , sont les paramètres principaux qui déterminent l'état du plasma.

L'*équilibre thermodynamique global* (ETG) signifie que les paramètres du plasma sont homogènes dans tout le système, c'est-à-dire les densités et les températures des espèces du plasma sont constantes (ne varient pas avec $\vec{r}$ et t). En plus, les températures de toutes les espèces du plasma sont égales [Milic'77]. Dans ce cas, l'intensité du rayonnement du plasma correspond à l'intensité du rayonnement du corps noir à la température du plasma [Hutchinson'02]. Cet état n'est pratiquement jamais atteint dans les plasmas de laboratoire.

L'*équilibre thermodynamique local* (ETL) signifie que les paramètres du plasma, N_α et T_α , peuvent varier dans l'espace ($\vec{r}$) et le temps (t), mais que cette variation est tellement lente que pour tout point, on suppose qu'il existe un voisinage en équilibre autour de ce point [Milic'77, Griem'97]. En chaque point du plasma, il y a une seule valeur de température qui caractérise toutes les espèces du plasma et détermine toutes les fonctions des distributions microscopiques. Dans ce cas, l'intensité du rayonnement du plasma est très inférieure à l'intensité du rayonnement du corps noir à la température du plasma. La condition pour l'établissement de l'ETL est que les taux des collisions d'électrons pour une transition donnée soient d'un ordre de grandeur supérieur au taux radiatif correspondant [Griem'97].

En raison d'une différence importante de leurs masses, le transfert d'énergie lors des collisions entre les électrons et les particules lourdes (atomes, ions) est très faible. En conséquence, l'état d'équilibre thermodynamique qui s'établit assez rapidement dans les plasmas est l'*équilibre thermodynamique local partiel* (ETLP) [Milic'77, Griem'97]. Dans ce cas, les différentes espèces du plasma sont caractérisées par des valeurs de température différentes. La température des électrons est significativement supérieure à celle des particules lourdes.

2.2. Distribution de Boltzmann

Dans un plasma en équilibre thermodynamique, la population des niveaux (des états) d'énergie des atomes (ou des ions) est donnée par la *distribution de Boltzmann* [Milic'77, Griem'97]:

$$\frac{N_n}{N_m} = \frac{g_n}{g_m} \exp\left(-\frac{E_n - E_m}{k_B T}\right) \quad (1.8)$$

où N_n et N_m représentent les densités des atomes (ou des ions) correspondant respectivement aux niveaux d'énergie n et m , g_n et g_m sont les dégénérescences et E_n et E_m les énergies des

niveaux n et m . T est la température du système. Cette température s'appelle aussi la *température d'excitation* [Thorne'99] et si l'excitation des atomes (ou des ions) dans ce système est principalement réalisée par l'impact d'électrons, elle est égale à la température des électrons T_e .

On peut aussi déterminer la population d'un niveau d'énergie n des atomes (ou des ions) N_n par rapport à la densité totale des atomes (ou des ions) N dans le plasma [Milic'77, Griem'97]:

$$\frac{N_n}{N} = \frac{g_n}{Z(T)} \exp\left(-\frac{E_n}{k_B T}\right) \quad (1.9)$$

$Z(T)$ représente la *fonction de partition*:

$$Z(T) = \sum_k g_k \exp\left(-\frac{E_k}{k_B T}\right) \quad (1.10)$$

où la sommation se réalise sur tous les niveaux d'énergie d'atome (ou d'ion).

2.3. Equation de Saha

Dans un plasma en équilibre thermodynamique, la relation entre les densités des électrons, des atomes et des ions (une fois ionisés) peut être décrite par la *équation de Saha* [Milic'77, Griem'97]:

$$\frac{N_e N_i}{N_a} = 2 \frac{Z_i}{Z_a} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{E_{ion}}{k_B T}\right) \quad (1.11)$$

où N_e , N_a et N_i représentent respectivement la densité des électrons, des atomes et des ions, Z_a et Z_i - respectivement la fonction de partition des atomes et des ions, E_{ion} - l'énergie d'ionisation d'atome depuis le niveau de base, T - la température du système. Cette température s'appelle aussi la *température d'ionisation* [Thorne'99]. Si l'ionisation des atomes dans ce système se réalise principalement par l'impact d'électron, la température d'ionisation est égale à la température des électrons T_e .

L'équation de Saha peut être aussi utilisée pour les ions plusieurs fois ionisés. Dans ce cas, elle donne la relation entre la densité des électrons et la densité des espèces lourdes du plasma ayant des niveaux d'ionisation successives [Milic'77, Griem'97]:

$$\frac{N_e N_{(r+1)}}{N_{(r)}} = 2 \frac{Z_{(r+1)}}{Z_{(r)}} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{E_{ion}^{(r)}}{k_B T}\right) \quad (1.12)$$

où r indique le niveau d'ionisation d'une espèce (par exemple : $r = 0$ - atome (non-ionisé), $r = 1$ - ion une fois ionisé, $r = 2$ - ion deux fois ionisé,...).

2.4. Types des plasmas

Les plasmas sont extrêmement répandus dans l'univers puisqu'ils représentent plus de 99% de la matière connue. On peut distinguer les plasmas naturels (les étoiles, nébuleuses gazeuses, quasar, pulsar, les aurores boréales, les éclairs, l'ionosphère, le vent solaire) et les plasmas industriels (arcs, torches, lampes, tubes à décharge, réacteurs hélicons et capacitifs RF, propulseurs à plasma, plasmas induits par faisceau laser, tokamaks, stellarators et pinchs).

Les plasmas sont principalement caractérisés par leurs paramètres, surtout par la densité d'électrons N_e et la température d'électrons T_e . Un diagramme montrant différents types des plasmas en fonction de ces deux paramètres est présenté sur la figure 1.1. Alors, on peut parler de plasmas chauds ou froids, ou bien de plasmas denses ou moins denses.

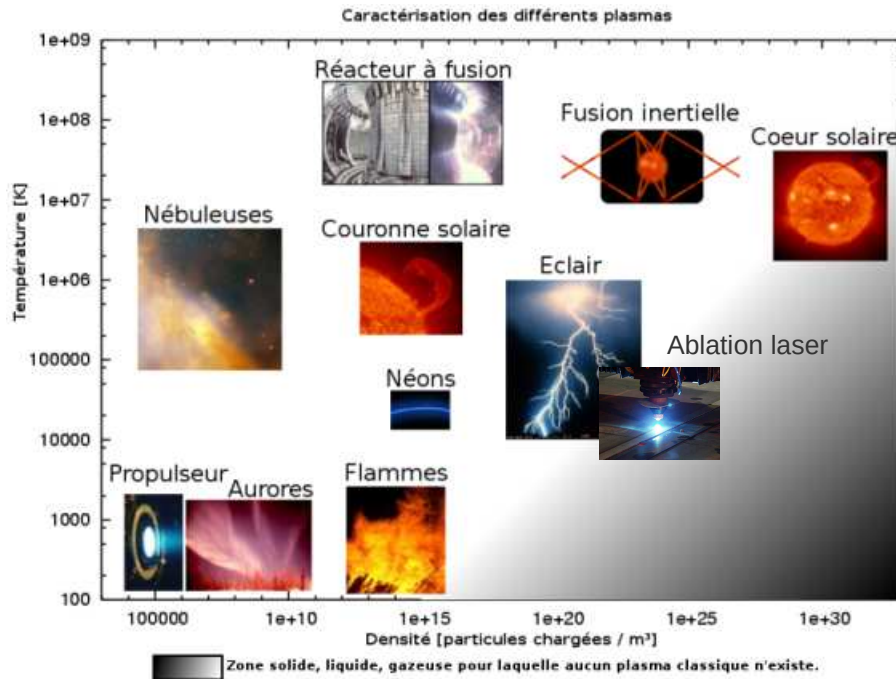


Fig. 1.1. Différents types des plasmas en fonction des paramètres N_e et T_e [Wikipédia].

En général, les plasmas sont classifiés en trois catégories :

- ◆ plasmas en *équilibre thermodynamique globale* : plasmas des étoiles
- ◆ plasmas en *équilibre thermodynamique locale* ($T_e = T_i$):
 - *plasmas chauds*: plasmas de fusion (tokamaks, stellarators, fusion inertielle)
 - *plasmas thermiques* : arcs, torches, jets ... à la pression atmosphérique
- ◆ plasmas *hors équilibre thermodynamique locale*, aussi appelés *plasmas froids* ($T_e \gg T_i$): décharges à la basse pression, réacteurs capacitifs RF ou micro-onde...

Les plasmas formés lors de l'ablation laser sont caractérisés par une densité électronique dans un intervalle de 10^{22} - 10^{25} m⁻³ et par une température dans un intervalle de 10^4 - 10^5 K (Fig. 1.1).

3. Rayonnement du plasma

Le plasma représente une source du rayonnement électromagnétique très important. Le spectre du rayonnement du plasma est très large, comprenant les régions X, UV, visible, IR, micro-ondes... Les plasmas de laboratoire possèdent des caractéristiques spectrales différentes de celles du corps noir à la même température. Le rayonnement émis par le plasma représente la perte d'énergie pour ce système.

L'émission du rayonnement apparaît suite aux transitions électroniques d'un état quantique à l'autre. Le rayonnement du plasma correspond à la somme des rayonnements individuels des électrons. Il existe trois types des transitions des électrons [Milic'77]:

- ◆ *transitions libre-libre*

L'électron est libre au début et à la fin de la transition. Il émet du rayonnement due à son accélération (ou décélération) lors d'un impact avec une particule lourde (rayonnement bremsstrahlung) ou lors de la présence d'un champ magnétique externe (rayonnement cyclotron).

- ◆ *transitions libre-lié*

L'électron est libre au début de la transition, mais à la fin il est lié à un atome (ou à un ion). Ce type de transition est caractéristique du processus de recombinaison.

♦ *transitions lié-lié*

L'électron est lié à un atome (ou un ion) au début et à la fin de la transition. Lors de cette transition, l'électron se déplace d'un niveau d'énergie à l'autre. Ces transitions sont responsables des raies spectrales présentes dans le spectre du plasma.

Il ne faut pas oublier que ces électrons qui émettent du rayonnement se trouvent dans un micro-champ électromagnétique. Ainsi leur rayonnement est nettement modifié suite à la présence des effets collectifs. Les conséquences de ces modifications sont par exemple l'élargissement Stark des raies spectrales, le facteur de Gaunt du rayonnement bremsstrahlung...

Par la suite, nous allons nous concentrer que sur les types du rayonnement émis par le plasma sans présence d'un champ électrique ou magnétique externe.

3.1. Rayonnement bremsstrahlung (rayonnement de freinage)

Ce type du rayonnement est émis par les particules chargées du plasma en raison de leur déplacement accéléré (ou décéléré) lors d'un impact avec une autre particule chargée. Les processus qui contribuent le plus à ce rayonnement sont les collisions électron - ion. Le rayonnement produit par les collisions électron - électron et ion - ion est assez faible.

Le spectre du rayonnement bremsstrahlung est continu. Ce rayonnement est caractérisé par un intervalle de longueur d'onde très large, des micro-onde jusqu'au rayons X. Le maximum du rayonnement dépend de l'énergie thermique des électrons ($k_B T_e$) et d'habitude il se trouve dans la région UV de vide (α) ou des rayons X mous.

L'émissivité intégrale c'est-à-dire la densité de puissance du rayonnement bremsstrahlung (intégré sur la fréquence et l'angle du rayonnement) donnée par la mécanique quantique est [Griem'97]:

$$\xi_{br} \approx \frac{64}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} (\alpha a_0)^3 \sqrt{\frac{k_B T_e}{E_H} \frac{E_H^2}{\hbar}} \bar{g} z_i^2 N_e N_i \quad (1.13)$$

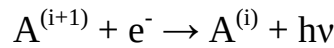
où N_e et N_i représentent respectivement la densité des électrons et des ions, T_e - la température des électrons et z_i indique le charge d'ion ($q_i = z_i e$). E_H est l'énergie d'ionisation de hydrogène, a_0 - le rayon de Bohr et α - la constante de structure fine. $\bar{g}$ est le facteur de Gaunt. Il dépend faiblement de la température et dans un intervalle assez large de températures est à peu près constant ($\bar{g} \approx 1.05$).

3.2. Rayonnement de recombinaison

Ce type du rayonnement est émis lors des processus de recombinaison. Les schémas de ces processus sont donnés dessous :

- recombinaison radiative : $A^+ + e^- \rightarrow A + h\nu$
- recombinaison radiative électron - ion : $A^{++} + e^- \rightarrow A^+ + h\nu$
- recombinaison radiative électron - atome : $A + e^- \rightarrow A^- + h\nu$

On peut généraliser ces schémas par :



où i indique le niveau d'ionisation d'une espèce (par exemple : $i = 0$ - atome (non-ionisé), $i = 1$ - ion une fois ionisé, $i = 2$ - ion deux fois ionisé,...). Si n représente le niveau d'énergie d'atome (ou d'ion) où l'électron attrapé a été attaché, l'énergie du photon émis dans ce processus est égale à:

$$h\nu = E_{ion,n}^{(i)} + \frac{m_e v^2}{2} \quad (1.14)$$

où $E_{ion,n}^{(i)}$ représente l'énergie d'ionisation d'atome (ou d'ion) $A^{(i)}$ depuis le niveau d'énergie n . Le deuxième terme correspond à l'énergie cinétique de l'électron avant d'être attrapé par l'atome (ou l'ion).

Le spectre du rayonnement de recombinaison est continu, ayant une limite supérieure de longueur d'onde défini comme :

$$\lambda_{\max} = \frac{hc}{E_{ion,n}^{(i)}} \quad (1.15)$$

Une estimation de l'émissivité intégrale, c'est-à-dire la densité de puissance du rayonnement de recombinaison (intégrée sur la fréquence et l'angle du rayonnement), est donnée par [Griem'97]:

$$\xi_{rr} \approx \frac{64}{3} \sqrt{\frac{\pi}{3}} (\alpha a_0)^3 \sqrt{\frac{E_H}{k_B T_e}} \frac{E_{ion,n}^{(i)} E_H}{\hbar} \bar{g} z_i^2 N_e N_i \quad (1.16)$$

où N_e et N_i représentent respectivement la densité des électrons et des ions, T_e - la température des électrons z_i indique le charge d'ion ($q_i = z_i e$). E_H est l'énergie d'ionisation de hydrogène et $E_{ion,n}^{(i)}$ - l'énergie d'ionisation d'atome (ou d'ion) $A^{(i)}$ depuis le niveau d'énergie n . $\bar{g}$ est le facteur de Gaunt, a_0 - le rayon de Bohr et α - la constante de structure fine.

3.3. Rayonnement discret

Dans le spectre du plasma, en plus du continuum correspondant au rayonnement bremsstrahlung et rayonnement de recombinaison, il existe aussi des raies spectrales superposées à ce continuum. Ces raies spectrales proviennent du rayonnement discret émis lors des transitions électroniques de l'atome (ou ion). Alors, l'énergie d'un photon émis lors d'une telle transition entre deux niveaux est égale à :

$$h\nu = E_{nm} = |E_n - E_m| \quad (1.17)$$

où E_n et E_m sont respectivement les énergies des niveaux n et m entre lesquels la transition se produit. Les raies spectrales représentent une caractéristique d'atome (ou d'ion) qui émet ce rayonnement discret.

L'émissivité spectrale du rayonnement discret à la fréquence ν_{nm} est [Milic'77] :

$$J_{\nu_{nm}} = h\nu_{nm}^{(\alpha)} N_n^{(\alpha)} A_{nm}^{(\alpha)} \quad (1.18)$$

où $\nu_{nm}^{(\alpha)}$ représente la fréquence du rayonnement discret de l'espèce α , $N_n^{(\alpha)}$ - la population (densité) des particules d'espèce α au niveau d'énergie n et $A_{nm}^{(\alpha)}$ - la probabilité de transition spontanée d'espèce α du niveau n au niveau m .

Une estimation de l'émissivité intégrale c'est-à-dire la densité de puissance du rayonnement discret est donnée par [Griem'97]:

$$\xi_{dis} \approx 32\pi \sqrt{\frac{\pi}{3}} a_0^3 \sqrt{\frac{E_H}{k_B T_e}} \frac{E_H^2}{\hbar} \left[\sum_m \bar{g} f_{mn} \exp\left(-\frac{E_{mn}}{k_B T_e}\right) \right] N_e N_i \quad (1.19)$$

où N_e et N_i représentent respectivement la densité des électrons et des ions et T_e - la température des électrons. E_H est l'énergie d'ionisation de hydrogène et f_{nm} - force d'oscillateur. $\bar{g}$ est le facteur de Gaunt et a_0 - le rayon de Bohr.

4. Phénoménologie de l'ablation laser

Les mécanismes d'interaction entre le faisceau laser et le matériau traité dépendent des paramètres du rayonnement laser (durée d'impulsion, longueur d'onde, irradiances) et des propriétés physiques et chimiques du matériau (composition, microstructure, état de surface).

La plupart des procédés lasers conventionnels sont réalisés en utilisant du rayonnement laser infrarouge (IR). Mais il existe des procédés lasers chimiques, où la modification des surfaces des matériaux traités est réalisée par l'activation des réactions chimiques par un faisceau UV [Bäuerle'00].

La Fig. 1.2 représente un sommaire des applications des différents types de lasers, caractérisés par différentes irradiances et durées d'impulsion, dans le traitement des matériaux. Les applications les plus classiques sont le marquage, la gravure, le perçage, la découpe... De plus, il y a des procédés qui réalisent des transformations morphologiques et structurales de la surface des matériaux, comme par exemple le durcissement, la recristallisation, le glaçage, la coloration de surface, l'insertion d'éléments chimiques ... Les procédés d'ablation laser et de PLD sont réalisés en utilisant des impulsions lasers de durée de $10^{-9} - 10^{-7}$ s et d'irradiances de $10^6 - 10^{10}$ W/cm². Pour ces paramètres d'impulsion laser, la formation d'une plume-plasma au dessus du matériau traité est inévitable.

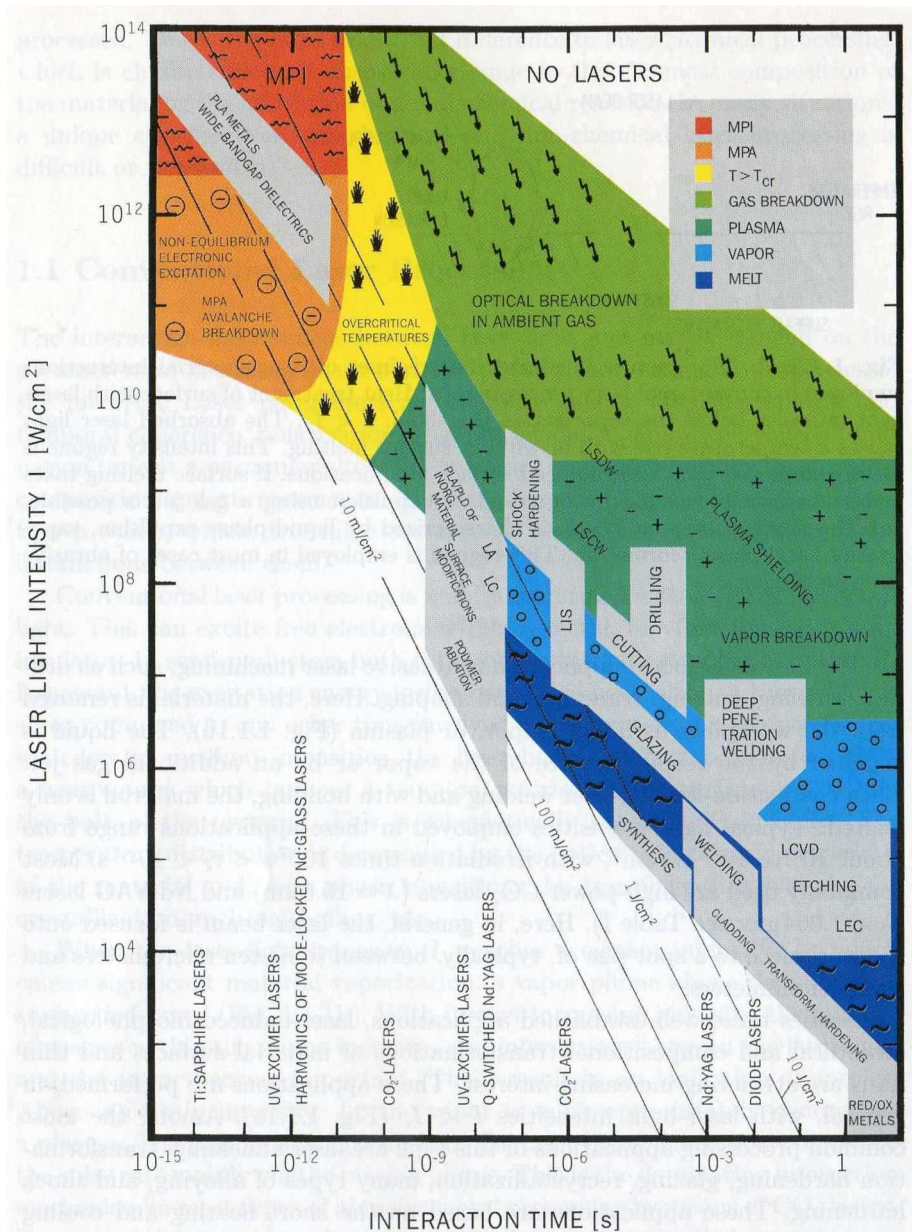


Fig. 1.2. Applications des lasers dans le traitement des matériaux et apparition des différents processus physiques en fonction de la durée d'impulsion et de l'irradiance du faisceau laser [Bäuerle'00] :

MPI/MPA – multiphoton ionization/absorption,

LSDW/LSCW – laser-supported detonation/combustion wave,

PLA/PLD – pulsed laser ablation/deposition,

LA – laser annealing,

LC – laser cleaning,

LIS – laser-induced isotope separation,

LCVD – laser-induced CVD,

LEC – laser-induced electrochemical plating/etching.

L'ablation laser est un phénomène complexe, qui implique plusieurs processus physiques à la fois simultanés et couplés. Une description des processus physiques ayant lieu lors de l'ablation laser est nécessaire afin d'avoir une image complète de ce phénomène avant de commencer l'étude. Nous nous concentrons sur la phénoménologie d'ablation laser des cibles métalliques. Une description mathématique et détaillée de ces processus physiques est présentée dans le Chapitre 6.

4.1. Interaction laser – cible

Les processus physiques induits lors de l'interaction laser - cible sont principalement influencés par les paramètres du faisceau laser (durée d'impulsion, longueur d'onde, irradiance) et les propriétés physiques des matériaux traités, comme la diffusivité thermique, la chaleur latente de fusion et de vaporisation, le facteur d'absorption d'irradiation laser,...

Lors de l'irradiation de la cible métallique par le faisceau laser, une partie du faisceau laser est réfléchi par la surface du matériau, tandis que l'autre partie est absorbée dans le métal (sur une petite profondeur de pénétration). L'énergie absorbée est ensuite convertie en énergie thermique qui va diffuser à l'intérieur de la cible selon le processus de transfert de chaleur. Très rapidement, si l'énergie du faisceau laser est suffisante, la fusion puis la vaporisation de la surface du matériau apparaît. La vapeur formée au-dessus de la cible contient des atomes et des électrons libres, issus du métal irradié par la source laser.

D'après le comportement de la vapeur métallique face au rayonnement laser, il existe deux régimes d'ablation laser. On peut alors définir un seuil d'irradiance laser I_p séparant ces deux régimes. Par exemple, dans le cas d'ablation du laiton $I_p = 3 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$ [Mao'97]:

- Dans le cas d'irradiance plus faible ($I < I_p$), la vapeur formée au-dessus de la cible est transparente au rayonnement laser et le faisceau laser arrive à la surface de la cible peu atténué.
- Dans le cas d'irradiance plus forte ($I > I_p$), une partie de l'énergie du faisceau laser est absorbée par la vapeur métallique, provoquant l'ionisation de la vapeur et la formation d'un plasma. Ce plasma est opaque au rayonnement laser (« shielding effect ») [Mao'97, Aguilera'98] et le faisceau laser arrivant à la surface de la cible est largement atténué, ce qui réduit l'intensité des processus physiques ayant lieu à la surface du matériau traité (transfert de chaleur dans la cible, fusion et vaporisation

du matériau). Alors, on peut dire que les processus physiques impliqués dans l'ablation laser sont fortement couplés [Bogaerts'03].

Comme dans cette étude nous travaillons sur l'ablation des cibles métalliques réalisée par le faisceau laser d'irradiance de l'ordre de GW/cm^2 , c'est le deuxième régime qui nous intéresse. Dans ce cas, outre l'interaction laser - cible, il existe aussi l'interaction laser - plasma.

4.2. Interaction laser - plasma

On a déjà vu que l'irradiation laser doit être suffisamment élevée pour que le plasma se forme au-dessus de la cible. Les processus physiques qui conduisent au claquage initial et à la transformation de la vapeur métallique en plasma dépendent des paramètres laser, surtout de la longueur d'onde. Dans le cas de longueurs d'onde IR, l'absorption du rayonnement laser par la vapeur métallique est plutôt réalisée par le processus de bremsstrahlung inverse, alors que dans le cas de longueur d'onde UV, c'est le processus de photoionisation qui domine [Amoruso'99a, Mao'07]. Dans cette étude, nous avons utilisé le faisceau laser Nd :YAG de longueur d'onde de 1064 nm, nous allons donc nous concentrer sur le processus de bremsstrahlung inverse. Un grand nombre d'électrons libres issus de la surface du métal (électrons primaires) absorbent une partie de l'énergie du faisceau laser et sont accélérés. Une fois qu'ils ont acquis assez d'énergie, ces électrons sont capables d'ioniser les atomes de la vapeur lors de collisions. En conséquence, un processus d'avalanche apparaît, ce qui entraîne une augmentation très rapide du nombre des électrons et de celui des ions. Ceci représente le claquage initial. Un plasma se forme alors au-dessus de la cible qui est caractérisé par une grande densité d'électrons. Il devient très opaque au rayonnement laser, parce que les électrons continuent à absorber l'énergie du faisceau laser par le processus de bremsstrahlung inverse jusqu'à la fin d'impulsion laser.

Le point de vue macroscopique permet de décrire les mécanismes d'absorption du rayonnement laser par le plasma conduisant à son expansion lors de l'impulsion laser. Ces mécanismes sont appelés « les ondes d'absorption ». Après le claquage initial et la création du plasma, la plume formée au-dessus de la surface de la cible est fortement chauffée par l'absorption du rayonnement laser jusqu'à la fin d'impulsion laser. L'absorption du rayonnement laser par la plume-plasma conduit à un de trois mécanismes en fonction de l'irradiance laser appliquée [Zel'dovich'02, Bâuerle'00, Root'89]:

- (i) *Laser-supported combustion wave* (LSCW), pour $I < 10^8 \text{ W/cm}^2$, où le rayonnement laser est absorbé dans un large volume de la plume-plasma. La température du plasma est de l'ordre de grandeur de 10^4 K et la plume se propage avec une vitesse subsonique.
- (ii) *Laser-supported detonation wave* (LSDW), pour $10^8 \text{ W/cm}^2 < I < 10^9 \text{ W/cm}^2$, où le rayonnement laser est absorbé dans une couche fine à l'avant de la plume-plasma. La plume se propage avec une vitesse supersonique et génère une onde de choc lors de la compression du gaz ambiant devant elle. La couche du gaz ambiant la plus proche de la plume est donc chauffée et ionisée par la propagation de l'onde de choc et elle devient capable d'absorber le rayonnement laser. La température du plasma est de l'ordre de grandeur de 10^5 K .
- (iii) *Laser-supported radiation wave* (LSRW), pour $I > 10^9 \text{ W/cm}^2$, se propage avec une vitesse encore plus élevée. Dans ce cas, le gaz ambiant froid se trouvant devant la couche chaude et absorbante du plasma est chauffé par l'absorption du rayonnement thermique émis par le plasma. Ainsi, le gaz devient ionisé et capable d'absorber le rayonnement laser par le processus de bremsstrahlung inverse. Une fois que cette région est assez chaude, elle commence à chauffer une nouvelle couche du gaz froid devant elle-même par l'émission du rayonnement thermique. La nouvelle couche du plasma chaud qui vient d'être formée fait écran au rayonnement du faisceau laser. La propagation de l'onde radiative vers la source laser continue jusqu'à la fin de l'impulsion laser, en créant une plume-plasma caractérisée par une température et une pression quasi uniforme.

L'énergie du rayonnement laser absorbée par la plume-plasma augmente son énergie interne, ce qui conduit à de nombreux processus d'excitation et d'ionisation, ainsi que à une augmentation rapide et importante des températures et des densités des espèces du plasma. Les processus de désexcitation et de recombinaison existent, mais ils sont beaucoup moins nombreux. De la même façon, la perte d'énergie par le rayonnement du plasma (§1.3) est très inférieure à l'énergie du faisceau laser absorbée par le plasma.

4.3. Expansion de la plume - plasma

À partir de la fin de l'impulsion laser, le plasma, n'ayant plus de source d'énergie extérieure, se détend et se refroidit. Alors, les réactions de désexcitation et de recombinaison deviennent dominantes. La densité des électrons et celle des ions diminuent rapidement. De plus, l'expansion hydrodynamique, ainsi que le rayonnement contribuent aussi à cette perte d'énergie.

Après la fin d'impulsion laser, la plume-plasma, caractérisée par une pression et par une température très élevée, continue son expansion dans l'atmosphère ambiante. Ce processus peut être considéré comme une expansion adiabatique rapide, qui peut être décrite par la dynamique des fluides. Lors de son expansion, la plume-plasma comprime le gaz environnant devant elle-même, générant une onde de choc, qui ensuite continue sa propagation dans l'atmosphère ambiante. D'un autre côté, l'expansion de la plume est significativement ralentie suite à la contre-réaction du gaz environnant. La génération d'une onde de choc dans le gaz environnant apparaît plutôt dans le cas de pression relativement importante du gaz ambiant. Cette onde de choc peut être observée par la technique d'ombroscopie.

Il est évident qu'en dehors des caractéristiques du faisceau laser et de celles du matériau traité, la dynamique d'expansion de la plume-plasma dépend de la pression et des caractéristiques du milieu ambiant. L'expansion du plasma dans le vide est adiabatique (l'expansion libre). La plume formée au dessus de la cible se propage avec une vitesse constante [Gurlui'08]. Lorsque la pression du milieu ambiant augmente, l'effet des collisions des espèces du plasma avec les particules du milieu ambiant devient important. La présence du milieu ambiant peut mener à la diffusion des réactifs, la thermalisation de la plume, la formation de l'onde de choc, la condensation intense avec la formation de clusters et de nanoparticules. Par contre, la durée de la vie du plasma se prolonge à cause de la formation de différentes molécules. À cause de la présence du milieu ambiant, l'expansion du plasma ralentit et la plume devient spatialement confinée. Donc, les dimensions du plasma diminuent, alors que ses paramètres augmentent. Avec l'augmentation de la pression du milieu ambiant, la zone d'interpénétration du plasma avec le milieu ambiant est contractée et le front du plasma devient comprimé [Harilal'03].

La limite d'expansion de la plume-plasma dépend de l'énergie apportée par le faisceau laser, des caractéristiques de l'atmosphère ambiante, ainsi que des propriétés physiques du

matériau traité. L'arrêt de l'expansion de la plume peut être suivi par des oscillations de la plume plus tard dans la vie du plasma [Bugakov'98, Itina'02].

Finalement, on peut dire que le plasma induit par faisceau laser sur un matériau métallique, après la fin d'impulsion laser, est inhomogène et transitoire. Même si la plume à la fin d'impulsion laser peut être caractérisée par une pression et une température quasi uniforme (cas de LSRW), due à son expansion et son refroidissement assez important dans la période qui suit, les paramètres du plasma (les densités des espèces du plasma, la température) présentent des gradients spatiaux élevés, et ils évoluent très rapidement avec le temps.

Partie I

Caractérisation de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser nanoseconde

Chapitre 2

Etude bibliographique : caractérisation de la plume d'ablation laser

1. Spectroscopie de la plume d'ablation laser	30
1.1. Principes généraux de la spectroscopie	31
1.2. Spectroscopie à basse pression.....	36
1.3. Spectroscopie à la pression atmosphérique	38
1.4. Complémentarité des autres méthodes	40
2. Ombroscopie et interférométrie de la plume d'ablation laser	41
2.1. Principes généraux de l'ombroscopie et de l'interférométrie	41
2.2. Ombroscopie et interférométrie à la pression atmosphérique	43
3. Imagerie rapide de la plume d'ablation laser	45
3.1. Principes généraux de l'imagerie rapide	46
3.2. Imagerie rapide à basse pression	47
3.3. Imagerie rapide à la pression atmosphérique	48
4. Conclusion.....	49

Cette étude bibliographique comprend des travaux expérimentaux de caractérisation de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser nanoseconde réalisés au moyen des différentes méthodes. On commence par la spectroscopie d'émission, comme la méthode expérimentale la plus employée dans ce domaine. Ensuite, on passe à l'ombroscopie et l'interférométrie, qui nous apportent des données complémentaires, comme la visualisation de la propagation de l'onde de choc. On termine avec l'imagerie rapide, qui nous permet d'étudier la dynamique de la plume. Une courte description de chacune de ces méthodes de caractérisation est donnée.

À la fin de ce chapitre, une rétrospective des études de caractérisation de la plume-plasma d'ablation laser nanoseconde est présentée. Un tableau comprenant les détails essentiels des travaux expérimentaux réalisés est accompagné d'une courte analyse.

Dans cette étude bibliographique nous nous sommes surtout concentrée sur la caractérisation de la plume induite par des faisceaux laser nanoseconde, puisqu'il correspond au type de laser utilisé dans ce travail. Par contre, ces dernières années, avec le développement de la technologie laser, il y a de plus en plus d'articles sur l'ablation laser par des faisceaux laser picoseconde et femtoseconde. Les processus physiques ayant lieu dans la plume-plasma formée lors de l'ablation laser picoseconde et femtoseconde sont relativement différents par rapport à ceux ayant lieu dans la plume d'ablation nanoseconde.

1. Spectroscopie de la plume d'ablation laser

La technique expérimentale la plus utilisée pour étudier la plume-plasma formée lors de l'ablation laser est la spectroscopie d'émission. Le spectre du rayonnement émis par la plume donne beaucoup d'informations sur les espèces et les paramètres physiques du plasma. La spectroscopie est souvent utilisée pour la détermination des paramètres comme la densité et la température d'électrons, la densité des particules lourdes (atome et ions), ainsi que pour l'analyse de la dynamique des espèces du plasma en utilisant la méthode « temps de vol ».

1.1. Principes généraux de la spectroscopie

Les plasmas induits par faisceaux laser sont transitoires et spatialement inhomogènes [Aragon'08]. La distribution spatiale des paramètres du plasma est caractérisée par des gradients importants. De plus, ces distributions évoluent très rapidement avec le temps. Les mesures spectroscopiques nécessitent donc de hautes résolutions spatiale et temporelle.

Dans la plupart des cas, la spectroscopie d'émission est réalisée en utilisant un spectromètre de type Czerny-Turner couplé avec une camera ICCD, qui a le rôle de détecteur. Une lentille ou un système de lentilles peut être utilisé pour projeter l'image du plasma sur la fente d'entrée du spectromètre (Fig. 2.1). Dans ce cas, la largeur de la fente d'entrée détermine la résolution spatiale suivant une direction (x), et la hauteur d'une ligne de la matrice de camera ICCD la résolution spatiale sur l'autre direction (y). Une bonne résolution spatiale peut être aussi réalisée en utilisant une fibre optique déplaçable en deux directions (x,y) connectée à l'entrée du spectromètre. La résolution temporelle du système est déterminée par le temps d'exposition (gate width) de la camera ICCD. Une ligne à retard est souvent utilisée pour réaliser la synchronisation entre le laser et la camera ICCD, ainsi que pour produire des décalages temporels.

Une grande partie des méthodes de spectroscopie d'émission est basée sur l'analyse du profil des raies spectrales et la mesure de leur intensité et leur largeur à mi-hauteur. Un système expérimental utilisé pour la spectroscopie du plasma induit par faisceau laser doit donc être caractérisé par une haute résolution spectrale. La résolution spectrale d'un tel système est déterminée par la distance focale du spectromètre, la densité des traits sur le réseau de diffraction et la taille du pixel de la camera ICCD. Au niveau de l'intervalle spectral, la plupart des auteurs ont étudié le rayonnement du plasma induit par faisceau laser dans la région visible, proche UV ou IR. Il y a aussi des études spectroscopiques réalisées dans la région VUV pour la caractérisation des plasmas formés dans le vide au début de leur expansion.

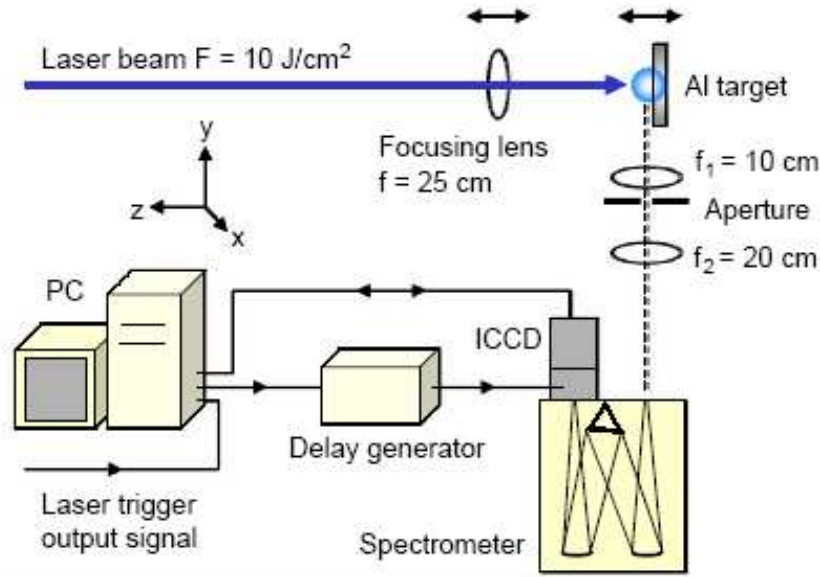


Fig. 2.1. Un exemple de montage expérimental pour la spectroscopie de la plume d'ablation laser [Barthelemy'05a].

La plupart des méthodes spectroscopiques supposent l'existence de l'équilibre thermodynamique locale (ETL) dans le plasma, ainsi que le fait que le plasma reste optiquement fin pour les raies spectrales observées [Griem'97]. Pour que le plasma soit en ETL, les collisions des particules lourdes avec des électrons doivent être dominantes par rapport aux processus radiatifs. Cette condition exige une densité des électrons assez élevée. Le critère proposé par McWhirter est basé sur l'existence d'une densité d'électrons critique où le taux des collisions est dix fois plus important que celui des processus radiatifs [McWhirter'65]. Pour une différence d'énergie entre les niveaux des transitions observés de ΔE , le critère pour l'existence de l'ETL dans le plasma est :

$$N_e \geq 1.6 \cdot 10^{12} \sqrt{T} (\Delta E)^3 \quad [\text{cm}^{-3}] \quad (2.1)$$

où T est la température du plasma. Dans la plupart des plasmas induits par faisceau laser, la densité des électrons est supérieure à la valeur critique, qui est typiquement de l'ordre de 10^{15} à 10^{16} cm^{-3} [Aragon'08]. La deuxième condition qui doit être satisfaite lors des mesures spectroscopiques est que le plasma soit optiquement fin pour les raies spectrales observées. L'auto-absorption des raies spectrales peut être évitée en réduisant la concentration des éléments étudiés dans la cible ou en choisissant des raies spectrales caractérisées par une probabilité de transition plus faible.

Une fois que le spectre du rayonnement du plasma est enregistré, il faut extraire des données. D'abord, il faut bien prendre en compte la sensibilité du système optique, faire attention que les raies spectrales utilisées pour le diagnostic ne soient pas auto-absorbées et recalculer le profil des raies en utilisant la méthode d'inversion d'Abel [Hutchinson'02].

Le diagnostic de la plume-plasma comprend surtout la détermination de la température T et de la densité des électrons N_e , mais il y a des études où les densités des particules lourdes (atomes, ions) ont aussi été déterminées. Il ne faut pas oublier que tous ces paramètres sont fonctions des dimensions spatiales ($\vec{r}$) et temporelle (t).

Dans la plupart des études réalisées, la température a été déterminée par la méthode de la droite de Boltzmann ou de Saha-Boltzmann [Aragon'08]. Ces méthodes sont basées sur la distribution de Boltzmann (1.8) et la distribution de Saha (1.11), qui caractérisent un plasma en ETL. Par exemple dans le cas de raies atomiques, l'expression de l'intensité d'une raie spectrale est exprimée à partir de la distribution de Boltzmann (1.8):

$$I_{nm} = \frac{1}{4\pi} A_{nm} N_n \frac{hc}{\lambda_{nm}} l \quad (2.2)$$

où N_n est la densité d'émetteurs (atomes ou ions) au niveau d'énergie E_n , A_{nm} - la probabilité de transition du niveau n au niveau m , λ_{nm} - la longueur d'onde de la raie spectrale émise lors de cette transition et l - la longueur du plasma, on peut obtenir la relation suivante :

$$\ln\left(\frac{I_{nm}^* \lambda_{nm}}{g_n A_{nm}}\right) = \ln\left(\frac{N}{Z(T)}\right) - \frac{E_n}{kT} \quad (2.3)$$

où I_{nm}^* est l'intensité relative de la raie spectrale, g_n - la dégénérescence du niveau n , N - la densité totale d'émetteurs (d'espèce des particules lourdes observée) et $Z(T)$ - la fonction de partition (1.10). En traçant $\ln(I_{nm}^* \lambda_{nm} / g_n A_{nm})$ en fonction de E_n , on obtient la droite de Boltzmann (Fig. 2.2a), dont la pente est égale à $(kT)^{-1}$. Alors on peut déterminer la température d'excitation T , qui est égale à la température électronique si on considère que les processus des collisions sont dominants par rapport aux processus radiatifs. De la même façon, à partir de la distribution de Saha (1.11), on peut déduire l'équation de la droite de Saha-Boltzmann. La pente de la droite de Saha-Boltzmann est une fonction de la température d'ionisation. Pour tracer la droite de Boltzmann on utilise des raies spectrales d'une seule espèce du plasma, alors que pour la droite de Saha-Boltzmann on utilise des raies spectrales

de deux différentes espèces du plasma (Fig. 2.2). En plus, à partir de la droite de Boltzmann, on peut aussi déterminer la densité relative des émetteurs (atomes ou ions) N , dont les raies spectrales ont été utilisées pour tracer la droite.

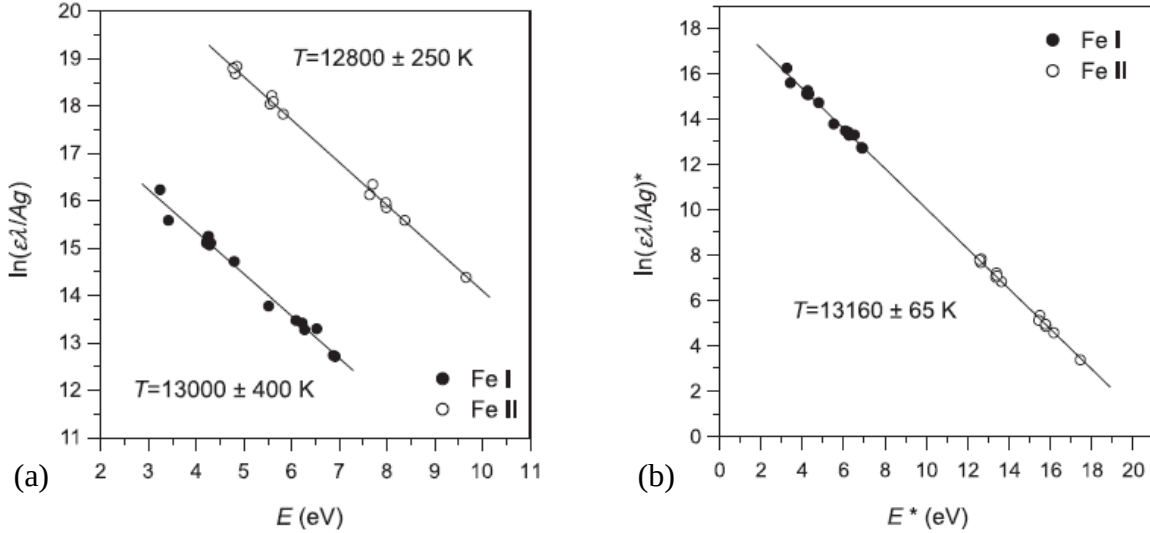


Fig. 2.2. Un exemple de (a) la droite de Boltzmann et de (b) la droite de Saha-Boltzmann réalisés avec des raies spectrales de Fe I et Fe II [Aguilera'04b].

Dans la plupart des études réalisées, la densité des électrons a été déterminée en utilisant la méthode d'élargissement Stark. Quelques auteurs ont aussi employé la méthode du déplacement Stark [Aragon'08]. L'effet Stark a lieu dans le plasma du fait des collisions entre les émetteurs (atomes, ions) et des particules chargées (électrons, ions).

Afin d'extraire la largeur à mi-hauteur Stark w_s , il faut réaliser la deconvolution du profil enregistré de la raie spectrale. Cependant, il faut prendre en compte les autres mécanismes d'élargissement des raies spectrales [Griem'97], comme l'élargissement Doppler, Van der Waals, l'élargissement de résonance, ainsi que l'élargissement instrumental introduit par le système expérimental. Dans le cas de l'effet Stark quadratique (atomes/ions ayant au moins deux électrons), la largeur à mi-hauteur Stark peut être exprimée sous la forme [Griem'74]:

$$w_s \approx [1 + 1.75A(1 - 0.75R)] w_s^{ref} \frac{N_e}{N_e^{ref}} \quad (\text{pour les atomes}) \quad (2.4)$$

$$w_s \approx [1 + 1.75A(1 - 1.2R)] w_s^{el} \frac{N_e}{N_e^{ref}} \quad (\text{pour les ions une fois ionisés}) \quad (2.5)$$

où w_s^{el} est la largeur à mi-hauteur Stark due aux impacts d'électrons, A - le paramètre d'élargissement du aux interactions avec des ions et R - le rapport entre la distance moyenne entre les ions et le rayon de Debye. Les paramètres w_s^{el} et A dépendent peu de la température. D'après (2.4) et (2.5), on voit que la largeur à mi-hauteur Stark dépend linéairement de la densité électronique N_e . N_e^{ref} représente la densité des électrons de référence pour laquelle les valeurs de w_s^{el} et de A ont été données. Dans la littérature, il existe des valeurs mesurées de la largeur à mi-hauteur Stark des raies spectrales des différents éléments. Grâce à la relation linéaire entre w_s et N_e , ces données peuvent être utilisées pour la détermination de la densité des électrons dans le plasma étudié :

$$N_e = \frac{w_s^{mes}}{w_s^{lit}} N_e^{lit} \quad (2.6)$$

w_s^{mes} représente la largeur à mi-hauteur Stark mesurée sur le profil Stark de la raie spectrale enregistrée et w_s^{lit} - la largeur à mi-hauteur Stark trouvée dans la littérature pour la densité des électrons N_e^{lit} .

Le déplacement Stark d'une raie spectrale peut être aussi utilisé pour la détermination de la densité des électrons. Ce paramètre dépend aussi linéairement de la densité des électrons [Griem'64]:

$$d_s \approx \left[\frac{d_s^{el}}{w_s^{el}} \pm 2.00A(1 - 0.75R) \right] w_s^{el} \frac{N_e}{N_e^{ref}} \quad (\text{pour les atomes}) \quad (2.7)$$

$$d_s \approx \left[\frac{d_s^{el}}{w_s^{el}} \pm 2.00A(1 - 1.2R) \right] w_s^{el} \frac{N_e}{N_e^{ref}} \quad (\text{pour les ions une fois ionisés}) \quad (2.8)$$

où d_s^{el} est le déplacement Stark due aux impacts d'électrons et les autres paramètres sont les mêmes que dans (2.4) et (2.5). Par contre, la détermination de N_e par cette méthode est moins précise que dans le cas de la mesure de largeur à mi-hauteur.

À part le diagnostic, différents auteurs ont utilisé la spectroscopie pour étudier la dynamique des particules lourdes (atomes, ions) dans le plasma induit par faisceau laser. Pour cela, ils ont utilisé la méthode du temps de vol (time of flight - TOF). Une série de spectres est enregistrée à différents instants de l'expansion de la plume et à différentes distances de la surface de la cible. Ensuite, on observe les profils de temps de vol, c'est-à-dire l'évolution temporelle de l'intensité relative d'une raie spectrale choisie, à différentes distances de la cible (Fig. 2.3). En mesurant l'intervalle temporelle Δt entre les sommets des profils successifs, on peut déterminer la vitesse moyenne de « vol » des particules lourdes entre les deux positionnements (distances de la cible) considérés :

$$v_{TOF} = \frac{\Delta d}{\Delta t} \quad (2.9)$$

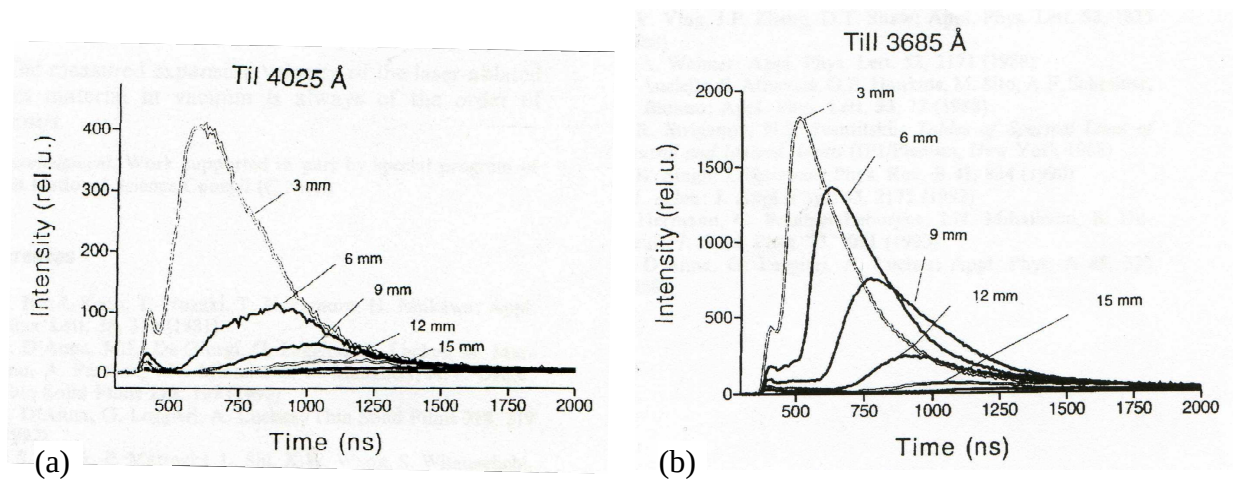


Fig. 2.3. Profils « temps de vol » (a) des atomes Ti I et (b) des ions Ti II lors de l'expansion de la plume d'ablation laser dans le vide [DeGiorgi'94].

1.2. Spectroscopie à basse pression

Plusieurs équipes scientifiques ont étudié la plume-plasma formée lors de l'ablation laser dans le vide ou à pression ambiante basse. L'intérêt de ces études est surtout son application à la technique PLD (Pulsed Laser Deposition). Il faut dire que la pression du gaz ambiant influe significativement sur l'expansion de la plume. Dans le cas de pression basse,

les dimensions de la plume sont plus importantes, les vitesses des espèces du plasma sont plus élevées et il existe des effets comme la division et le rétrécissement de la plume.

De Giacomo et al. ont travaillé sur la caractérisation de la plume-plasma formée lors de l'ablation des cibles de Ti et d'oxydes de Ti par faisceau laser KrF de longueur d'onde de 248 nm et de durée d'impulsion de 30 ns dans le vide et dans l'oxygène à basse pression. Pour le diagnostic du plasma, l'élargissement et la droite de Boltzmann des raies spectrales du titane ont été utilisés. *De Giacomo et al.* ont mesuré la densité d'électrons, ainsi que la température d'excitation des atomes (Ti I) et des ions (Ti II) en fonction du temps et de la distance de la cible [DeGiacomo'01a]. Ensuite, ils ont caractérisé la plume formée lors des procédés PLD et « plasma assisted » PLD [DeGiacomo'01b]. Plus précisément, ils ont estimé les températures d'excitation des atomes (Ti I) et des ions (Ti II), et déterminé l'évolution temporelle de la densité d'électrons, des atomes et des ions, ainsi que les vitesses des atomes du Ti par la méthode « temps de vol ». Une étude détaillée de la plume induite lors de l'ablation laser du Ti dans le vide et à basse pression est réalisée [DeGiacomo'03]. *De Giacomo* a étudié l'influence de la pression du gaz environnant sur les vitesses des atomes (Ti I) et des ions (Ti II), sur l'évolution temporelle de la densité d'électrons et des températures des atomes et des ions, ainsi que sur le rapport des densités des ions et des atomes. Un état de l'art des expériences et des modèles du plasma induit par faisceau laser a été réalisé en collaboration avec M. Capitelli [Capitelli'04].

Amoruso et al. ont utilisé la méthode « temps de vol » pour étudier la dynamique des ions d'aluminium (Al II) dans la plume-plasma formée lors de l'ablation de cible d'aluminium par l'impulsion laser nanoseconde ($\tau = 6$ ns) de longueur d'onde de 532 nm et de 355 nm dans le vide [Amoruso'98]. Plus tard, ils ont examiné l'influence de la pression du gaz ambiant (Ar) sur la dynamique des atomes de magnésium (Mg I) dans la plume induite sur MgB_2 par l'irradiation laser XeF ($\tau = 20$ ns, $\lambda = 351$ nm) [Amoruso'04]. *Amoruso et al.* ont fait une des premières synthèses bibliographiques sur la physique et la modélisation du plasma formé lors de l'ablation laser, ainsi que sur les techniques utilisées pour sa caractérisation [Amoruso'99].

Hermann et al. ont étudié la plume-plasma formée lors du procédé de dépôt du TiN, qui est réalisé par l'ablation des cibles du Ti en utilisant l'irradiation laser excimer XeCl ($\tau = 20$ ns, $\lambda = 308$ nm) dans l'atmosphère d'azote à basse pression [Hermann'95]. Ils ont employé à la fois la fluorescence induite par laser pour étudier la dynamique des atomes (Ti I) non-émetteurs et la spectroscopie d'émission pour étudier la dynamique des atomes et des ions excités du métal (Ti I, Ti II, Ti III) et du gaz ambiant (N I, N II). La spectroscopie était, de plus, utilisée pour faire le diagnostic de la plume, c'est-à-dire pour déterminer l'évolution

temporelle de la densité et de la température d'électrons. Un diagnostic [Hermann'98a] encore plus détaillé et plus précis du plasma a été réalisé en prenant en compte l'effet d'auto-absorption. *Hermann et al.* ont employé la spectroscopie pour faire le diagnostic des plumes formées lors de l'ablation des cibles de Ti, Al et C par l'irradiation laser UV (XeCl : $\tau = 25$ ns, $\lambda = 308$ nm / KrF : $\tau = 25$ ns, $\lambda = 248$ nm / Nd:YAG : $\tau = 5$ ns, $\lambda = 266$ nm) dans l'atmosphère d'azote à basse pression, ainsi que pour étudier la dynamique des molécules formées dans la plume [Hermann'98b].

Santagata et al. ont fait des mesures spectroscopiques spatialement et temporellement résolues dans la plume-plasma induite sur la cible de $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ par l'irradiation laser Nd:YAG ($\tau = 7$ ns, $\lambda = 532$ nm) dans l'atmosphère d'oxygène à basse pression [Santagata'05]. Ils ont étudié l'influence de la fluence (J/cm^2) du faisceau laser sur l'évolution temporelle de la densité d'électrons et le degré d'ionisation, ainsi que sur la dynamique des ions Sr II.

Mathew et al. ont utilisé la méthode de temps de vol pour étudier la dynamique des atomes et des ions d'étain dans la plume induite par un laser Nd:YAG ($\tau = 10$ ns, $\lambda = 1064$ nm) dans le vide [Mathew'07]. Ils ont observé que les vitesses des atomes et des ions sont assez proches près de la cible, alors que, plus loin, les atomes sont deux fois plus lents que les ions.

1.3. Spectroscopie à la pression atmosphérique

La plume-plasma formée lors de l'ablation laser dans l'air à la pression atmosphérique a aussi été bien étudiée, surtout à cause de son application au LIPS (LIBS) et aux différents traitements des surfaces. A la pression ambiante, l'interaction entre la matière ablatée et le gaz environnant est beaucoup plus importante. Dans ce cas, la plume est extrêmement confinée, ce qui conduit à des paramètres du plasma (N_e , T_e , N_a , N_i) plus élevés et à des vitesses des espèces du plasma plus petites.

Aguilera et al. ont examiné la plume induite par un faisceau laser de longueur d'onde de 1064 nm et de durée d'impulsion de 4,5 ns sur des échantillons d'acier, de fer pur et d'alliages de fer. Dans ces expériences, le diagnostic du plasma est réalisé en utilisant les raies spectrales du fer. *Monge et al.* ont fait des mesures spatialement et temporellement résolues de la densité et de la température d'électrons dans la plume d'ablation laser formée dans l'air [Monge'99]. En plus, ils ont étudié l'influence de la composition [Aguilera'99] et de la

pression [Aguilera'02] du gaz environnant sur les paramètres principaux du plasma (N_e , T_e). Ils ont aussi examiné l'influence de la focalisation du faisceau laser sur les caractéristiques de la plume [Aguilera'98, Aguilera'04a]. Plus tard, ils ont déterminé la distribution spatiale et l'évolution temporelle de la densité et de la température d'électrons, ainsi que de la densité relative des atomes (Fe I) et des ions (Fe II) dans la plume formée dans l'air et dans l'argon en utilisant l'inversion d'Abel [Aguilera'03a, Aragon'04]. Ils ont montré l'importance de la résolution spatiale des mesures spectroscopiques pour faire un diagnostic correcte de la plume-plasma [Aguilera'04b]. En plus, ils ont fait une analyse par la méthode « curves of growth » souvent utilisée pour vérifier l'absence d'auto-absorption dans le plasma pour les raies spectrales étudiées [Aguilera'03b, Aragon'05]. *Aguilera et al.* ont aussi montré la possibilité d'application de LIPS pour l'analyse de composition des couches fines produites par PLD [Aragon'02], ainsi que pour la détermination des paramètres Stark des raies spectrales [Bengoechea'06]. Récemment, ils ont publié une revue des expériences et des méthodes de caractérisation du plasma induit par faisceau laser par le biais de la spectroscopie d'émission [Aragon'08].

De Giacomo et al. ont fait la comparaison des plumes formées sur la cible du Ti lors des impulsions laser nanoseconde ($\tau = 7$ ns, $\lambda = 532$ nm) et femtoseconde ($\tau = 250$ fs, $\lambda = 527$ nm) dans l'air à la pression atmosphérique [DeGiacomo'05]. Ils ont étudié l'évolution temporelle de la densité d'électrons, de la température d'excitation des atomes (Ti I) et des ions (Ti II, Ti III), ainsi que la dynamique des atomes et des ions dans ces deux cas. Récemment, *De Giacomo et al.* ont utilisé la spectroscopie d'émission pour étudier la distribution spatiale des espèces du plasma (Al I, Al II, H I, N I, O I) dans la plume induite par le faisceau laser ($\tau = 7$ ns, $\lambda = 1064$ nm) sur l'échantillon d'Al dans l'air [DeGiacomo'08]. Ces résultats montrent que même si il existe un certain niveau de pénétration entre les deux gaz, la plume de matière ablatée (Al I, Al II) déplace devant elle la plupart de l'air environnant (N I, O I).

Andreic et al. ont étudié la plume-plasma induite par faisceau laser N_2 ($\tau = 16$ ns, $\lambda = 337.1$ nm) sur l'aluminium dans l'air [Andreic'93]. Ils ont mesuré l'évolution temporelle de la densité et de la température d'électrons, ainsi que la vitesse des atomes (Al I) aux différentes distances de la cible. *Sabsabi et al.* ont fait le diagnostic de la plume-plasma formée lors de l'ablation d'alliage d'aluminium par faisceau laser de durée d'impulsion de 8 ns et de longueur d'onde de 1064 nm [Sabsabi'95]. L'évolution temporelle de la densité et de la température d'électrons était déterminée par des mesures spectroscopiques spatialement intégrées. *Wang et al.* ont utilisé la méthode « temps de vol » pour étudier la dynamique des espèces du plasma formé lors de l'ablation réalisée sur des cibles d'alliage Ti-Fe [Wang'96]

et d'Al [Wang'98] par faisceau laser Nd :YAG ($\tau = 10$ ns, $\lambda = 1064$ nm) dans l'air. *Corsi et al.* ont comparé la distribution spatiale de la densité et de la température d'électrons dans la plume d'ablation laser d'alliage Cu-Zn dans l'air en régime d'une seule impulsion et de deux impulsions laser ($\tau = 8$ ns, $\lambda = 1064$ nm) [Corsi'04]. *Barthélemy et al.* ont étudié l'influence de la durée d'impulsion ainsi que de la longueur d'onde du faisceau laser sur les paramètres du plasma formé lors de l'ablation d'Al dans l'air [Barthélemy'05a]. Ils ont fait une comparaison de l'évolution temporelle et la distribution spatiale (1D) de la densité et de la température d'électrons pour des plumes induites par différents faisceaux lasers Nd:YAG ($\tau = 6$ ns, $\lambda = 1064$ nm, 532 nm, 266 nm) et Ti:Sapphire ($\tau = 80$ fs, 3 ps, 270 ps, $\lambda = 800$ nm). *Cowpe et al.* ont comparé les paramètres du plasma formé lors de l'ablation laser du silicium dans l'air à la pression atmosphérique et à la pression très basse [Cowpe'08]. Pour l'ablation, ils ont utilisé le laser Nd:YAG de durée d'impulsion de 6 ns et de longueur d'onde de 532 nm. En utilisant les raies spectrales de Si I, ils ont déterminé l'évolution temporelle de la densité et de la température d'électrons dans ces deux cas. On remarque que la diminution des paramètres du plasma est beaucoup plus rapide dans le vide que dans l'air à la pression atmosphérique.

1.4. Complémentarité des autres méthodes

Les techniques spectroscopiques sont appropriées pour la caractérisation de la plume d'ablation laser pour $t > 100$ ns de la vie du plasma. Par contre, la spectroscopie d'émission ne peut pas être employée pour étudier le début de l'expansion de la plume. Au début de l'expansion de la plume, l'intensité du continuum du spectre est très élevée. Le rayonnement Bremsstrahlung et le rayonnement de recombinaison sont très importants. Donc, il est pratiquement impossible de distinguer et d'extraire les raies spectrales de ce spectre. Avec le temps, le rapport raie spectrale/continuum s'améliore.

De ce point de vue, les techniques d'imagerie, comme l'ombroscopie ou l'imagerie rapide sont beaucoup plus appropriées pour étudier la plume-plasma au début de son expansion.

2. Ombroscopie et interférométrie de la plume d'ablation laser

L'ombroscopie et l'interférométrie sont des techniques basées sur la mesure de la variation de l'indice de réfraction d'un milieu transparent. La variation de l'indice de réfraction peut être déterminée par des mesures d'angle de déflexion du faisceau laser (ombroscopie) ou par des mesures de phase (interférométrie) [Harilal'04]. Ces techniques permettent d'observer la propagation de l'onde de choc formée lors de l'expansion de la plume d'ablation laser dans le gaz environnant, ainsi que l'expansion de la matière ablatée elle-même. De plus, l'interférométrie peut être utilisée pour la détermination de la densité des électrons.

2.1. Principes généraux de l'ombroscopie et de l'interférométrie

La technique d'ombroscopie est basée sur le passage d'un faisceau de lumière à travers le milieu transparent étudié, dans notre cas - la plume-plasma. La lumière transmise par le plasma atteint, directement ou à travers une lentille de projection, le détecteur du rayonnement. Un exemple de montage expérimental pour l'ombroscopie est présenté sur la Fig. 2.4a. Comme source de lumière on peut utiliser par exemple une lampe flash, une lampe halogène ou un faisceau laser élargi (laser dye, argon, ...). Comme détecteur du rayonnement on peut utiliser une camera ICCD ou une autre camera adaptée à l'imagerie rapide. La source de lumière et la camera sont positionnées de part et d'autre de la plume. Entre la camera et la plume on peut mettre un filtre, et même un polarisateur, afin d'éliminer le rayonnement émis par la plume. De cette façon, la camera n'enregistre que la lumière de la source transmise par la plume-plasma.

Le montage d'interférométrie est basé sur le principe de l'interféromètre de Mach-Zehnder (Fig. 2.4b). Le faisceau laser est divisé en deux parties en utilisant un « beam splitter ». Le faisceau de sondage et le faisceau de référence parcourent des chemins différents, puis se recombinent à la surface d'un détecteur (photodiode rapide ou photomultiplicateur) [Harilal'04]. Les faisceaux lasers superposés forment des franges d'interférence à la surface du détecteur. Le rendement de l'interféromètre dépend de la différence des phases des faisceaux lasers superposés. Un interféromètre de type Michelson

peut aussi être utilisé. La plume est positionnée sur le chemin du faisceau de sondage, qui est dirigé parallèlement à la surface de la cible. La variation d'indice de réfraction du plasma conduit à la variation du chemin optique du faisceau de sondage, produisant un changement de phase. Cela peut être détecté au niveau des amplitudes des franges. Le changement de phase $\Delta\varphi$, détecté par l'interféromètre, est fonction de l'indice de réfraction du plasma :

$$\Delta\varphi = 2\pi \frac{l}{\lambda} (n-1) \quad (2.10)$$

où n est l'indice de réfraction du plasma, λ - la longueur d'onde du faisceau laser de sondage et l - la longueur du plasma. La résolution temporelle d'un interféromètre dépend de la durée de l'impulsion laser du faisceau utilisé pour le sondage, ainsi que du temps d'exposition de détecteur.

Afin de déterminer la distribution spatiale d'indice de réfraction du plasma n , il faut employer la technique d'inversion d'Abel. Cette technique mathématique permet, lorsque la géométrie est axisymétrique, de déterminer le profil radial de l'indice du milieu à partir de la mesure axiale de la variation de la phase.

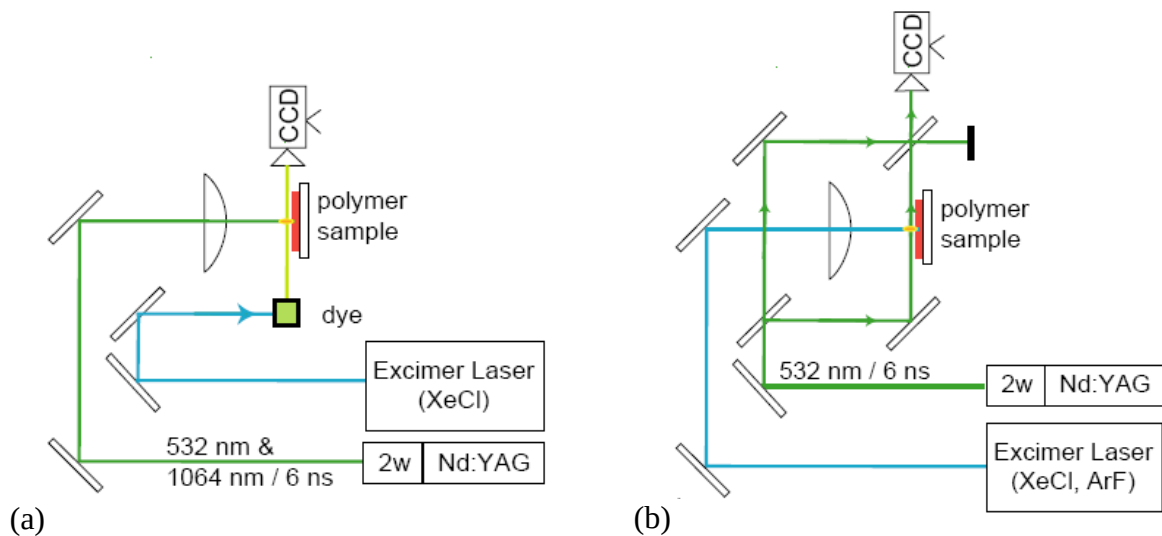


Fig. 2.4. Un exemple de montage expérimental pour (a) l'ombroscopie et (b) l'interférométrie [Hauer'05].

L'indice de réfraction du plasma est proportionnel aux densités des particules présentes dans le plasma (électrons, atomes et ions). La longueur d'onde du faisceau laser de sondage doit être choisie loin des raies spectrales d'absorption résonante du plasma. De cette façon, la contribution des électrons libres est dominante par rapport aux contributions des particules

lourdes, présentes dans le plasma. Dans ce cas, l'indice de réfraction du plasma peut être exprimé de façon suivante [Harilal'04]:

$$n = \sqrt{1 - \frac{N_e}{N_{ec}}} \quad (2.11)$$

où N_e est la densité des électrons dans le plasma et N_{ec} - la densité des électrons critique, qui est une fonction de la longueur d'onde du faisceau laser utilisée pour le sondage :

$$N_{ec} = \omega_{las}^2 \frac{m_e \epsilon_0}{e^2} = \left(2\pi \frac{c}{\lambda} \right)^2 \frac{m_e \epsilon_0}{e^2} = 10^{21} \lambda^{-2} \quad [\text{cm}^{-3}] \quad (2.12)$$

où la longueur d'onde est exprimée en micromètre. Le faisceau laser de sondage pénètre le plasma lorsque la densité des électrons dans le plasma est inférieure à la valeur critique N_{ec} (définie à partir de la condition : $\omega_{pe} = \omega_{las}$), sinon le faisceau laser est réfléchi par le plasma.

À part de l'ombroscopie, la strioscopie est aussi une méthode basée sur la visualisation des variations d'indice de réfraction d'un milieu. Cette méthode est pourtant moins souvent utilisée, parce qu'elle est plus difficile à mettre en œuvre, même si elle est beaucoup plus sensible. La strioscopie demande une source lumineuse étendue et incohérente. Dans le plan d'image on place un couteau, qui coupe une partie de la lumière. La formation de la plume-plasma, provoque la déviation des rayons lumineux au dessus et en dessous du couteau, conduisant à l'amplification ou diminution de lumière visualisant le phénomène. La visualisation est très sensible et parfaitement nette.

2.2. Ombroscopie et interférométrie à la pression atmosphérique

Corsi et al. ont utilisé la technique d'ombroscopie pour comparer l'expansion de la plume formée lors de l'ablation laser d'alliage Cu-Zn dans l'air en régime d'impulsion unique et de deux impulsions lasers ($\tau = 8 \text{ ns}$, $\lambda = 1064 \text{ nm}$) [Corsi'04]. Ils ont remarqué que l'expansion de la plume induite par la deuxième impulsion est plus rapide que celle induite par la première. De plus, la plume a tendance à remplir l'espace traversée par l'onde de choc formée lors de la première impulsion. Par contre, en régime de deux impulsions, une seule onde de choc a été observée. Cela peut être le cas, si le changement de la densité et de la pression dans la deuxième onde de choc est plus faible (à cause d'une atmosphère raréfiée) et donc pas détectable par l'ombroscopie. *Borchert et al.* ont employé l'ombroscopie pour

étudier la dynamique de la plume-plasma induite par l'impact du faisceau laser nanoseconde ($\tau = 10$ ns, $\lambda = 1064$ nm) et picoseconde ($\tau = 35$ ps, $\lambda = 1064$ nm) sur un verre BK7 dans l'air [Borchert'05]. Dans le cas d'impulsion laser picoseconde, ils ont observé la formation d'une plume assez homogène avec des jets de plasma devant elle. Par contre, dans le cas d'impulsion nanoseconde, l'expansion du plasma est largement déterminée par les processus hydrodynamiques. *Mao et al.* ont étudié l'expansion de la plume-plasma induite par un faisceau laser nanoseconde ($\tau = 4$ ns, $\lambda = 1064$ nm) sur une cible de Cuivre dans l'hélium et l'argon à la pression atmosphérique [Mao'07]. Ils ont utilisé l'ombroscopie pour mesurer la transmissivité de la plume (sa distribution le long de l'axe de la plume et son évolution temporelle). De plus, ils ont étudié l'évolution temporelle de la longueur de la plume, ainsi que de la densité des électrons et de la température du plasma. *Gravel et al.* ont réalisé des mesures en ombroscopie focalisée afin d'étudier l'influence de l'irradiance du faisceau laser ($\tau = 22$ ns, $\lambda = 1064$ nm) sur l'expansion de la plume lors de l'ablation des alliages Cu-Zn dans l'air, l'argon et l'hélium [Gravel'09]. Dans cette étude, il était observé qu'avec l'augmentation de l'irradiation laser l'expansion de la plume dans la direction longitudinale (direction du faisceau laser) est plus importante que dans la direction radiale.

Hauer et al. ont employé l'ombroscopie conventionnelle et l'ombroscopie par interférence afin d'étudier la plume d'ablation laser formée lors des impacts d'impulsions lasers nanosecondes de différentes longueurs d'onde ($\lambda = 193$ nm, 308 nm, 532 nm, 1064 nm) sur des polymères [Hauer'04, Hauer'05]. Pour l'ombroscopie par interférence ils ont utilisé la configuration Mach-Zehnder. Cette technique est encore plus sensible que l'ombroscopie conventionnelle. Suite aux paramètres plus élevés, l'indice de réfraction de l'onde de choc est différent de celui de l'air environnant non-perturbé. Cela conduit à la variation du chemin optique et produit un changement de phase (phase shift), qui est détecté par l'interféromètre. *Hauer et al.* ont étudié l'influence de la longueur d'onde du faisceau laser sur la propagation de l'onde de choc formée lors de l'expansion de la plume. Les résultats démontrent que la vitesse de l'onde de choc diminue avec l'augmentation de la longueur d'onde du faisceau laser. De plus, ils ont observé l'expansion des fragments solides. Ils ont remarqué que pour les longueurs d'onde plus courtes du faisceau laser la quantité de fragments solides diminue, alors que la quantité de produits gazeux augmente.

Dans la plupart des cas, l'ombroscopie est réalisée dans un milieu ambiant à la pression atmosphérique, simplement parce que sa sensibilité n'est pas assez élevée pour pouvoir détecter l'onde de choc à la pression basse du gaz ambiant. Par contre, *Tao et al.* ont utilisé un interféromètre optique de type Nomarski, caractérisé par une sensibilité très élevée, ce qui

leur a permis d'étudier la dynamique de la plume et la propagation de l'onde de choc lors de l'ablation laser ($\tau = 7$ ns, $\lambda = 1064$ nm) des cibles d'aluminium dans l'air à la pression très basse [Tao'06]. Ils ont observé la formation d'un canal conique du plasma dans la direction du faisceau laser. D'après eux, cela correspond au claquage de l'air environnant induit par le faisceau laser. De plus, ils ont étudié l'influence de la pression du gaz ambiant sur l'expansion de la plume.

Schittenhelm *et al.* ont employé l'interférométrie à deux longueurs d'onde, l'ombroscopie et la photographie d'absorption résonante pour étudier les discontinuités dans la plume formée lors de l'ablation d'aluminium par un faisceau laser ($\tau = 25$ ns, $\lambda = 248$ nm) dans l'air, l'hélium et l'argon à la pression atmosphérique [Schittenhelm'98]. Dans cette étude, les auteurs ont utilisé un interféromètre à deux longueurs d'onde de type Michelson pour déterminer la distribution de la densité des électrons dans la plume. Ils ont observé plusieurs régions caractérisées par la densité des électrons élevés : la région derrière l'interface plasma – l'air, le cœur du plasma proche de la surface de la cible, et encore deux régions séparées par des discontinuités. Ils ont aussi étudié l'influence du gaz ambiant sur la distribution de la densité des électrons.

3. Imagerie rapide de la plume d'ablation laser

L'imagerie rapide ou la photographie rapide est une technique souvent employée pour étudier l'expansion de la plume d'ablation laser. Cette technique est basée sur l'enregistrement d'une succession d'images de la plume avec une haute résolution spatiale, un temps de pose le plus petit possible. Lorsque le processus est très rapide (inférieur à la microseconde), le temps d'acquisition et de transfert des données ne permet pas de faire l'enregistrement d'une série d'images d'un même événement. Donc lorsque le phénomène est reproductible, on fait l'acquisition d'images sur des impacts laser différents, et décalées successivement par rapport au début de l'impact. Dans la plupart des cas, l'imagerie rapide est utilisée pour examiner la dynamique de la plume formée lors de l'ablation laser dans le vide ou à basse pression, à cause de ses dimensions plus importantes. Cependant, en utilisant un objectif macro on peut améliorer la résolution spatiale du système d'imagerie et étudier la plume fortement confinée à la pression atmosphérique.

3.1. Principes généraux de l'imagerie rapide

Le système expérimental pour l'imagerie rapide est assez simple. Un exemple de montage expérimental pour l'imagerie rapide est donné sur la Fig. 2.5. Une camera CCD intensifiée avec un temps d'exposition très court (quelques nanosecondes) et une matrice 2D contenant beaucoup de pixels sert de détecteur du rayonnement. La camera doit être équipée par un objectif (normal ou macro), qui projette l'image de la plume sur la matrice de la camera. Une ligne à retard est souvent utilisée pour réaliser la synchronisation entre le laser et la camera ICCD, ainsi que pour produire des délais temporels afin d'enregistrer l'évolution temporelle de la plume. L'imagerie de la plume d'ablation laser est d'habitude réalisée perpendiculairement à la direction du faisceau laser. De cette manière, on peut observer l'expansion de la plume dans la direction radiale et longitudinale. Un filtre à bande étroite peut être utilisé afin de sélectionner le rayonnement correspondant à une raie spectrale des atomes ou des ions étudiés.

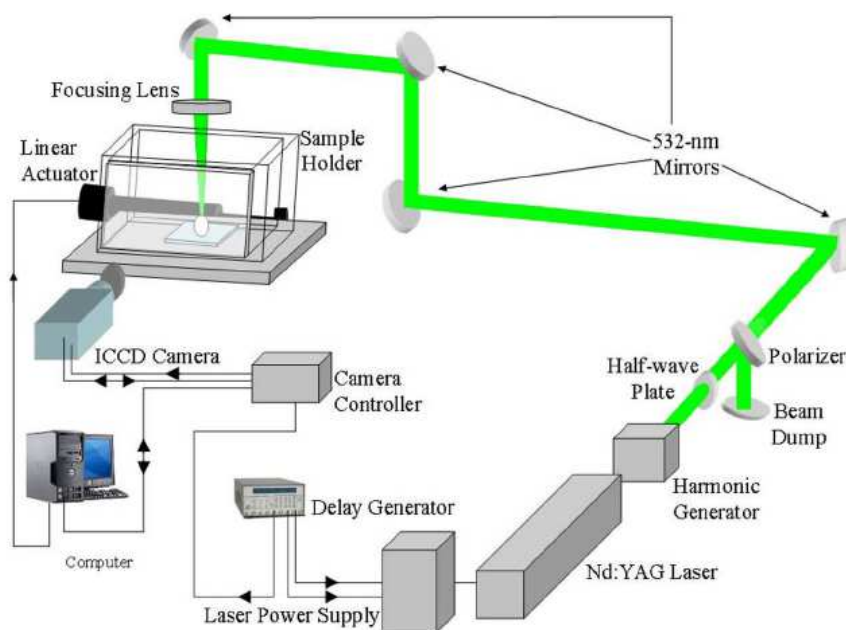


Fig. 2.5. Un exemple de montage expérimental pour l'imagerie [Wu'07].

3.2. Imagerie rapide à basse pression

Harilal et al. ont employé cette technique pour étudier la dynamique de la plume formée lors de l'ablation laser ($\tau = 8$ ns, $\lambda = 532$ nm) d'aluminium dans l'air à basse pression [Harilal'02]. Ils ont observé des effets comme le rétrécissement (sharpening) de la plume et ensuite sa division (splitting) en deux nuages, un plus rapide et l'autre plus lent. Ils ont mesuré la longueur de la plume en fonction du temps aux différentes pressions du gaz ambiant et estimé les vitesses des deux nuages observés. L'influence de la pression du gaz ambiant sur l'expansion de la plume a été examinée plus en détails dans [Harilal'03]. Les résultats démontrent que la longueur de la plume diminue avec l'augmentation de la pression du gaz ambiant. Les profils de temps de vol des atomes et des ions d'aluminium sont caractérisés par deux pics correspondant aux deux nuages observés. À partir des profils de temps de vol, les évolutions temporelles du positionnement des deux nuages (pics) ont été déterminées. Le nuage rapide se propage avec une vitesse d'expansion libre, alors que la vitesse du nuage lent est fortement influencée par la pression du gaz ambiant. *Amoruso et al.* ont utilisé l'imagerie rapide pour étudier l'expansion de la plume-plasma induite par l'impact du faisceau laser ($\tau = 20$ ns, $\lambda = 351$ nm) sur LaMnO_3 dans l'oxygène [Amoruso'07]. Ils ont étudié l'évolution temporelle du positionnement du front de la plume aux différentes pressions du gaz ambiant. *Gurlui et al.* ont présenté des résultats d'imagerie rapide montrant l'évolution spatio-temporelle détaillée de la plume formée lors de l'ablation laser ($\tau = 10$ ns, $\lambda = 532$ nm) sur la cible d'aluminium dans le vide [Gurlui'08]. Ici, encore, la division de la plume en deux structures, ayant des vitesses et des durées de vie différentes, a été observée. De plus, ils ont mesuré les courants ioniques transitoires aux différentes distances de la cible en utilisant la sonde de Langmuir. L'existence des deux structures dans la plume a été confirmée par les mesures électriques. La même équipe a examiné l'ablation laser des verres chalcogenides $\text{As}_x\text{Se}_{100-x}$ [Focsa'09] sous des conditions expérimentales similaires. Ils ont mesuré les vitesses des ions de As et de Se dans les deux structures de la plume. *Abdelli-Messaci et al.* ont étudié l'expansion de la plume induite par l'impact du faisceau laser UV (KrF, $\tau = 25$ ns, $\lambda = 248$ nm) sur la cible du ZnO dans le vide et dans l'oxygène à basse pression [Abdelli-Messaci'09]. Ils ont examiné l'influence de la pression du gaz ambiant sur l'expansion de la plume. A partir une certaine pression du gaz ambiant, ils ont observé des effets comme l'augmentation de la fluorescence des espèces du plasma, la stratification du plasma, la

formation de l'onde de choc et l'apparition des instabilités hydrodynamiques. Ils ont aussi observé et étudié la propagation des deux composants (nuages) de la plume-plasma aux différentes pressions du gaz ambiant.

3.3. Imagerie rapide à la pression atmosphérique

Barthélemy et al. ont employé l'imagerie afin d'examiner la géométrie de la plume-plasma induite par l'impulsion laser UV (XeCl, $\tau = 10$ ns, $\lambda = 308$ nm) sur la cible d'aluminium dans l'air à la pression atmosphérique [Barthélemy'05b]. Ils ont de plus utilisé des filtres à bande étroite pour enregistrer le rayonnement correspondant aux raies spectrales de Al I et Al II afin d'observer la distribution des atomes et des ions de la matière ablatée. Ils ont observé que la géométrie de la plume est nettement hémisphérique et qu'au début de la vie du plasma ($t = 30$ ns) les dimensions de la matière ablatée sont beaucoup plus petites que celles de la plume entière. *Wu et al.* ont étudié le début d'expansion de la plume d'aluminium formée par l'impact du faisceau laser ns (Nd:YAG, $\tau = 6$ ns, $\lambda = 532$ nm) dans l'air [Wu'07]. Ils ont utilisé l'imagerie rapide et la spectroscopie pour caractériser la plume, c'est-à-dire déterminer l'évolution temporelle de sa longueur, la densité des électrons et la température, afin de réaliser une comparaison avec les résultats du modèle hydrodynamique, qu'ils ont développé. La propagation du front de la plume a été mesurée que pour $t < 15$ ns, et N_e et T_e pour 30 ns $< t < 50$ ns. *Viskup et al.* ont utilisé l'imagerie rapide pour étudier l'influence de la morphologie de l'échantillon sur la dynamique de la plume formée lors de l'ablation laser. L'ablation a été réalisé sur des oxydes de Fe en forme de poudre, pastille et céramique par faisceau laser Nd:YAG ($\tau = 6$ ns, $\lambda = 1064$ nm) et KrF ($\tau = 20$ ns, $\lambda = 248$ nm) dans l'air à la pression atmosphérique [Viskup'09]. Ils ont observé l'évolution temporelle de la distribution d'intensité du rayonnement le long de l'axe de la plume afin de déterminer l'évolution de la longueur de la plume. *Cowpe et al.* ont utilisé l'imagerie rapide afin de comparer l'expansion de la plume induite sur Si par faisceau laser ns ($\tau = 6$ ns, $\lambda = 532$ nm) dans l'air à la pression atmosphérique et à la pression très basse [Cowpe'08].

Conesa et al. ont réalisé des mesures acoustiques afin d'étudier des phénomènes physiques ayant lieu lors de l'expansion de la plume-plasma formée par l'impact du faisceau laser Nd :YAG ($\tau = 5$ ns, $\lambda = 1064$ nm, $I = 1 - 12$ GW/cm²) sur l'aluminium dans l'air à la pression atmosphérique [Conesa'04]. Le son caractéristique, qui apparaît lors de l'ablation laser, provient de la propagation supersonique des ondes de choc formées lors de l'expansion

de la plume dans le gaz ambiant. Les auteurs ont examiné l'évolution d'énergie acoustique en fonction de l'irradiance laser. Les résultats des mesures acoustiques indiquent un changement de régime vers 4.7 GW/cm^2 , qui peut correspondre à la transition de LSDW à LSRW. Les auteurs ont employé l'imagerie rapide afin d'obtenir des informations complémentaires. Ils ont observé que l'augmentation d'irradiance laser modifie significativement la forme de la plume.

Sanginés et al. ont utilisé la photographie d'absorption résonante pour étudier la dynamique des atomes et des ions de Fe dans la plume-plasma formée lors de l'impact du faisceau laser KrF ($\tau = 30 \text{ ns}$, $\lambda = 248 \text{ nm}$) sur la cible de Fe dans l'air à la pression atmosphérique [Sanginés'08]. Cette technique leur a permis d'observer la propagation de l'onde de choc, ainsi que la distribution spatiale des différentes espèces du plasma dans la plume. Les avantages de cette technique sont une haute sensibilité et la détection des espèces rayonnantes et non-rayonnantes. Les auteurs ont observé des dynamiques différentes des espèces Fe I et Fe II. Les ions sont plutôt concentrés au centre de la plume où les températures sont plus élevées.

4. Conclusion

En conclusion, on peut dire que l'expansion et les caractéristiques de la plume-plasma induite par faisceau laser dépendent de beaucoup des paramètres comme les paramètres laser (durée d'impulsion, longueur d'onde, irradiance), les propriétés du matériau traité (diffusivité thermique, paramètres de fusion et d'évaporation) et les propriétés du gaz ambiant (composition, pression).

La forme et l'expansion de la plume sont particulièrement influencées par la pression du gaz environnant. Dans le vide et à très basse pression les dimensions de la plume sont assez importantes et la vitesse d'expansion est assez élevée, parce que la matière ablatée se propage librement dans l'atmosphère raréfiée. Des effets comme le ralentissement, la division et l'aiguisage de la plume peuvent apparaître à partir d'une certaine pression du gaz ambiant. Avec l'augmentation encore plus importante de la pression du gaz ambiant le comportement de la plume change significativement. L'interaction entre la plume de matière ablatée et le gaz environnant est un processus physique très complexe, qui implique des effets comme la décélération de la plume, la formation d'ondes de choc, l'atténuation, la diffusion des particules et du rayonnement, la thermalisation de la plume... En conséquence, la plume

devient spatialement confinée, ce qui conduit à l'augmentation des paramètres du plasma. Ainsi, à la pression atmosphérique la plume d'ablation laser est plus petite, caractérisée par une densité et une température électronique plus élevée, ainsi que par une vitesse d'expansion réduite.

Une rétrospective des études expérimentales de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser nanoseconde est donnée dans le Tableau 2.1. Pour chaque étude nous avons indiqué le nombre des dimensions spatiales (D), les paramètres du faisceau laser (τ – durée d'impulsion, λ – longueur d'onde, I – irradianse, F – fluence ou E_{imp} – énergie d'impulsion laser), le matériau et les caractéristiques du milieu ambiant (composition, p - pression) pour lesquelles les mesures ont été réalisés. Ensuite, nous avons indiqué les paramètres mesurés (N – densité des particules, T – température, v – vitesse des particules, l_{pl} – longueur de la plume, d_{pl} – diamètre de la plume, l_{ch} – positionnement de l'onde de choc, l_{pic1} – positionnement du nuage des particules (pic) rapide, l_{pic2} – positionnement du nuage des particules (pic) lent, I_{ion} – courant ionique, E_{ac} – énergie acoustique) et les méthodes utilisées pour leur détermination. À la fin, on indique les formes des distributions sous lesquelles les paramètres mesurés ont été présentés (en fonction de : t – temps, z – distance de la cible le long de l'axe de symétrie de la plume, r – distance radiale de l'axe de symétrie de la plume) et leurs dépendances par rapport aux paramètres du faisceau laser ou au milieu ambiant. De plus, nous indiquons l'intervalle des valeurs ou l'ordre de grandeur des paramètres mesurés, ainsi que les observations des auteurs.

En analysant le Tableau 2.1. on peut bien remarquer que la spectroscopie d'émission est la méthode la plus souvent utilisée pour la caractérisation de la plume d'ablation laser. Elle est aussi bien employée pour l'étude des plumes formées dans le vide ou à basse pression, ainsi que pour l'étude des plumes formées à la pression atmosphérique. Cette méthode est surtout utilisée pour le diagnostic de la plume-plasma, c'est-à-dire la détermination de la densité et de la température des espèces du plasma. De plus, les vitesses des différentes espèces du plasma ont été déterminées en utilisant la méthode de « temps de vol ». Différents auteurs ont étudié l'influence des paramètres du faisceau laser (durée d'impulsion, longueur d'onde, fluence), ainsi que la pression du gaz ambiant sur les paramètres du plasma.

L'ombroscopie a été plutôt utilisée pour étudier la dynamique de la plume et de la matière ablatée, ainsi que la propagation de l'onde de choc dans un gaz ambiant à la pression atmosphérique. Différents auteurs ont étudié l'influence des paramètres du faisceau laser et de la composition du gaz ambiant sur la dynamique de la plume d'ablation laser. Les mesures d'ombroscopie ont été réalisées que à la pression atmosphérique, suite au fait que la

sensibilité de l'ombroscopie n'est pas assez élevée pour pouvoir détecter l'onde de choc à la pression basse du gaz ambiant. Seuls *Tao et al.*, qui ont employé un interféromètre optique de type Normanski, ont réalisé des mesures à basse pression. *Schittenhelm et al.* ont fait des mesures interférométriques pour étudier les discontinuités dans la distribution de la densité d'électrons dans la plume.

L'imagerie rapide est une méthode qui nous permet d'étudier la dynamique de la matière rayonnante de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser. Cette méthode a été principalement utilisée pour étudier l'expansion de la plume dans le vide ou à basse pression, où la taille de la plume est assez importante. Sous ces conditions, des effets comme le rétrécissement et la division de la plume ont été observés. Par contre, dans le cas de la pression atmosphérique, la plume est confinée et son expansion est très ralentie, donc il est nécessaire d'utiliser un objectif macro pour la visualiser. Parmi les études de caractérisation de la plume d'ablation laser formée à la pression atmosphérique, il manque une étude détaillée de la dynamique de cette plume réalisée en utilisant l'imagerie rapide, surtout au début de son expansion.

Tableau 2.1. Rétrospective des études expérimentaux de la plume d'ablation laser nanoseconde.

auteurs, référence	D	impulsion laser	matériau	milieu ambiant	paramètres mesurés	méthodes utilisées	distributions et dépendances des paramètres mesurés, observations
Spectroscopie							
<i>De Giacomo et al.</i> [DeGiacomo'01a, '01b, '03, '05, '08, Capitelli'04]	1	l_1 : $\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns, $I = 0,8 - 6$ J/cm ² (1-3, 6); l_2 : $\lambda = 532$ nm, $\tau = 7$ ns, $E_{imp} = 90$ mJ (4); l_3 : $\lambda = 1064$ nm, $\tau = 7$ ns, $E_{imp} = 70$ mJ (5);	TiO, TiO ₂ (1,2); Ti, (3,4,6); Al (5)	vide (1-3, 6), O ₂ , $p = 10^{-6} - 10^{-1}$ Torr (1-3, 6), air, $p = 1$ atm (4, 5)	N_e , N_{TiI} , N_{TiII} , T_{TiI} , T_{TiII} , v_{TiII}	élargissement Stark et Boltzmann-plot des raies de Ti ; TOF (1-4, 6); élargissement Stark de H ₀ et Saha-Boltzmann-plot des raies de Mg (5)	$N_e(z,t)$: $10^{17} - 3 \cdot 10^{18}$ cm ⁻³ (pour $t = 50 - 300$ ns) $T_{TiI}(z,t)$: 9000 – 13000 K $T_{TiII}(z,t)$: 13000 – 30000 K $N_{TiI}(t)$, $N_{TiII}(t)$ $v_{Ti}(z,p)$: $\sim 10^4$ m/s, $N_e(t,p)$, $T_{TiI}(t,p)$, $T_{TiII}(t,p)$, $N_{TiII}/N_{TiI}(t,p)$
<i>Amoruso et al.</i> [Amoruso'98, '04]	1	l_1 : $\lambda = 355$ nm, 532 nm, $\tau = 6$ ns, $F \sim 60$ J/cm ² ; l_2 : $\lambda = 351$ nm, $\tau = 20$ ns, $F = 3$ J/cm ²	Al (1), MgB ₂ (2)	vide (1), Ar, $p = 10^{-2} - 50$ Pa (2)	v_{AlII} (1), v_{MgI} (2)	TOF	v_{AlII} , $v_{MgI} \sim 10^4$ m/s, $v_{MgI}(p)$
<i>Hermann et al.</i> [Hermann'95, '98a, '98b]	1	l_1 : $\lambda = 308$ nm, $\tau = 20$ ns (1), 28 ns (2), $F = 0,5 - 10$ J/cm ² ; l_2 : $\lambda = 308$ nm, $\tau = 25$ ns, $I < 400$ MW/cm ² (3) l_3 : $\lambda = 248$ nm, $\tau = 25$ ns, $I < 400$ MW/cm ² (3) l_4 : $\lambda = 266$ nm, $\tau = 5$ ns, $I < 5$ GW/cm ² (3)	Ti (1-3), Al, C (3)	N ₂ , $p = 10^{-3} - 1$ mbar	N_e , T_e	LIF, TOF, élargissement Stark et Boltzmann-plot des raies de Ti (1-3), de Al (3), de C (3)	$N_e(t,z)$: $10^{16} - 2 \cdot 10^{18}$ cm ⁻³ (pour $t = 80 - 650$ ns) $T_e(t,z)$: 0,7 - 2 eV, $v_{Ti} : \sim 10^4$ m/s
<i>Santagata et al.</i> [Santagata'05]	1	$\lambda = 532$ nm, $\tau = 7$ ns, $F = 0,9 - 2,4$ J/cm ²	Sr ₂ FeMoO ₆	O ₂ , $p = 5 \cdot 10^{-5}$ mbar	N_e	élargissement Stark des raies de SrI	$N_e(t, F)$: $0,4 - 1,6 \cdot 10^{16}$ cm ⁻³ (pour $t = 100 - 2000$ ns)
<i>Mathew et al.</i> [Mathew'07]	1	$\lambda = 1064$ nm, $\tau = 10$ ns, $I = 0,5 - 5$ GW/cm ²	Sn	Vide	v_{SnI} , v_{SnII}	TOF	v_{SnI} , $v_{SnII} \sim 10^4$ m/s
<i>Aguilera et al.</i> [Monge'99, Aguilera'99, '02, '98, '04a, '03a, '04b, '03b, Aragon'04, '05, '02, '08, Bengoechea'06]	2	$\lambda = 1064$ nm, $\tau = 4,5$ ns, $I = 15 - 45$ GW/cm ²	Fe, acier, alliage Fe-Ni	air, $p = 1$ atm (1, 4-13) Ar, He, $p = 1$ atm (2, 6) air, $p = 10 - 10^3$ mbar (3)	N_e , T_e , N_{FeI} , N_{FeII}	élargissement Stark, Boltzmann-plot et Saha-Boltzmann-plot des raies de Fe	$N_e(r,z,t)$: $10^{16} - 2,5 \cdot 10^{17}$ cm ⁻³ et $T_e(r,z,t)$: 6000 – 13000 K (pour $t = 1 - 30$ μ s), relative $N_{FeI}(r,z,t)$, $N_{FeII}(r,z,t)$, $N_e(r,z,t,p)$, $T_e(r,z,t,p)$ (3)
<i>Andreic et al.</i> [Andreic'93]	1	$\lambda = 337$ nm, $\tau = 16$ ns, $I = 80$ MW/cm ²	Al	air, $p = 1$ atm	N_e , T_e , v_{AlI}	élargissement Stark et Boltzmann-plot des raies de Al, TOF	$N_e(z,t)$: $10^{18} - 10^{19}$ cm ⁻³ (pour $t = 100 - 500$ ns) $T_e(z,t)$: 1 – 2 eV $v_{AlI}(z)$: 200 – 2000 m/s

<i>Sabsabi et al.</i> [Sabsabi'95]		$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 8 \text{ ns}$, $F = 21 \text{ J/cm}^2$	alliage d'Al	air, $p = 1 \text{ atm}$	N_e , T_e	élargissement Stark des raies de Al, Boltzmann-plot des raies de Fe	$N_e(t) : 10^{16} - 2,5 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ et $T_e(t) : 5000 - 11000 \text{ K}$ (pour $t = 0,1 - 60 \mu\text{s}$)
<i>Wang et al.</i> [Wang'96, '98]		$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 9,3 \text{ GW/cm}^2$ (1), $1 - 14 \text{ GW/cm}^2$ (2)	Ti-Fe (1), Al (2)	air, $p = 1 \text{ atm}$	v_{TiI} , v_{FeI} , v_{NiI} , N_e , T_e (1) v_{AlI} , (2)	TOF, élargissement Stark de raie de NiI, rapport des intensités des deux raies de FeI	v_{TiI} , v_{FeI} : $\sim 10^3 \text{ m/s}$, v_{NiI} : $\sim 10^4 \text{ m/s}$ $N_e : \sim 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, $T_e(t) : 0,7 - 2 \text{ eV}$ $v_{\text{AlI}}(z)$: $500 - 2500 \text{ m/s}$
<i>Barthélemy et al.</i> [Barthélemy'05a]	1	$l_1 : \lambda = 1064 \text{ nm}$, 532 nm , 266 nm , $\tau = 6 \text{ ns}$, $F = 10 \text{ J/cm}^2$; $l_2 : \lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau = 80 \text{ fs}$, 3 ps , 270 ps $F = 10 \text{ J/cm}^2$	Al	air, $p = 1 \text{ atm}$	N_e , T_e , l_{pl}	élargissement Stark de raie de AlII, Boltzmann-plot des raies de FeI	$N_e(z, t, \tau, \lambda) : 10^{16} - 5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, $T_e(z, t, \tau, \lambda) : 4000 - 10000 \text{ K}$, $l_{\text{pl}}(t, \lambda)$, $v_{\text{pl}}(t, \lambda)$
<i>Cowpe et al.</i> [Cowpe'08]		$\lambda = 532 \text{ nm}$, $\tau = 6 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 200 \text{ mJ}$	Si	air, $p = 1 \text{ atm}$, 10^{-5} mbar	N_e , T_e	élargissement Stark de raie de SiI, rapport des intensités d'une raie de SiI et de continuum, imagerie rapide	$N_e(t) : 6,9 \cdot 10^{17} - 1,3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (1 atm) $N_e(t) : 1,7 \cdot 10^{17} - 3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ (vide) $T_e(t) : 7600 - 18200 \text{ K}$ (1 atm) $T_e(t) : 8020 - 18200 \text{ K}$ (vide)
Ombroscopie et interférométrie							
<i>Corsi et al.</i> [Corsi'04]	2	$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 8 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 200 \text{ mJ}$	Cu-Zn	air, $p = 1 \text{ atm}$	N_e , T_e	élargissement Stark, rapport des intensités des deux raies spectrales (OI et NI), ombroscopie	dynamique d'expansion de la plume-plasma pour un et deux impulsions lasers
<i>Borchert et al.</i> [Borchert'05]	2	$l_1 : \lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 22,5 \text{ GW/cm}^2$, $45,5 \text{ GW/cm}^2$; $l_2 : \lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 35 \text{ ps}$, $I = 6,4 \text{ TW/cm}^2$, 13 TW/cm^2	BK7	air, $p = 1 \text{ atm}$	l_{pl}	ombroscopie	comparaison de la dynamique de plume pour les impulsions lasers ns et ps : $l_{\text{pl}}(t)$
<i>Mao et al.</i> [Mao'07]	2	$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 4 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 30 \text{ mJ}$	Cu	He, Ar, $p = 1 \text{ atm}$	transmissivité N_e , T_e , l_{pl}	ombroscopie	transmissivité (z, t), $N_e(t)$, $T_e(t)$, $l_{\text{pl}}(t)$
<i>Gravel et al.</i> [Gravel'09]	2	$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 22 \text{ ns}$, $I = 0,1 - 16 \text{ GW/cm}^2$	Cu-Zn	air, He, Ar, $p = 1 \text{ atm}$	rapport : $l_{\text{pl}}/d_{\text{pl}}$	ombroscopie focalisé	influence d'irradiance laser sur la dynamique de la plume, rapport : $l_{\text{pl}}/d_{\text{pl}}(t)$
<i>Hauer et al.</i> [Hauer'04, '05]	2	$l_1 : \lambda = 193 \text{ nm}$, $\tau = 25 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 1,6 \text{ mJ}$; $l_2 : \lambda = 308 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 2,6 \text{ mJ}$; $l_3 : \lambda = 532 \text{ nm}$, 1064 nm ,	polymère (GAP)	air, $p = 1 \text{ atm}$	l_{ch}	ombroscopie conventionnelle, ombroscopie d'interférence	propagation de l'onde de choc en fonction de λ du faisceau laser : $l_{\text{ch}}(t, \lambda)$

		$\tau = 6 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 2 - 11 \text{ mJ}$					
Tao et al. [Tao'06]	2	$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 7 \text{ ns}$, $I = 0,2 \text{ TW/cm}^2$	Al	air, $p = 7 - 100 \text{ Torr}$		interférométrie	dynamique de la plume-plasma et propagation de l'onde de choc à la basse pression
Schittenhelm et al. [Schittenhelm'98]	2	$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 7 \text{ ns}$, $F = 37 \text{ J/cm}^2$	Al	air, He, Ar, $p = 1 \text{ atm}$	N_e	interférométrie à 2 λ , ombroscopie, photographie d'absorption résonante	discontinuités dans la $N_e(r, z)$, influence du gaz ambiant sur $N_e(r, z)$
Imagerie rapide (photographie rapide)							
Harilal et al. [Harilal'02, '03]	2	$\lambda = 532 \text{ nm}$, $\tau = 8 \text{ ns}$, $I = 3 \text{ GW/cm}^2$	Al	air, $p = 10^{-6} - 100 \text{ Torr}$	I_{pl} , I_{pic1} , I_{pic2}	imagerie rapide, TOF	rétrécissement et division de la plume $p > 150 \text{ mTorr}$, $v_{\text{pic lent}} = 2,5 \cdot 10^4 \text{ m/s}$, $v_{\text{pic rapide}} = 7,6 \cdot 10^4 \text{ m/s}$, $I_{\text{pl}}(t, p)$, $I_{\text{pic1}}(t)$, $I_{\text{pic2}}(t)$
Amoruso et al. [Amoruso'07]	2	$\lambda = 351 \text{ nm}$, $\tau = 20 \text{ ns}$, $F = 1,5 \text{ J/cm}^2$	LaMnO ₃	O ₂ , $p = 10^{-5} - 3 \cdot 10^3 \text{ Pa}$	I_{pl}	imagerie rapide	$I_{\text{pl}}(t, p)$
Gurlui et al. [Gurlui'08, Focsa'09]	2	$\lambda = 532 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 5,7 \text{ GW/cm}^2$ (1), 7 GW/cm^2 (2)	Al (1), As _x Se _{100-x} (2)	vide	I_{pic1} , I_{pic2} , I_{ion}	imagerie rapide, sonde de Langmuir, TOF (2)	$I_{\text{pic1}}(t)$, $v_{\text{pic rapide}} = 4,66 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ $I_{\text{pic2}}(t)$, $v_{\text{pic lent}} = 6,9 \cdot 10^3 \text{ m/s}$ (1) $I_{\text{ion}}(t, z)$, $v_{\text{AsII rapide}} = 1,47 \cdot 10^5 \text{ m/s}$, $v_{\text{AsII lent}} = 1,57 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ $v_{\text{SeII rapide}} = 5,32 \cdot 10^5 \text{ m/s}$, $v_{\text{SeII lent}} = 1,8 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ (2)
Abdelli-Messaci et al. [Abdelli-Messaci'09]	2	$\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 25 \text{ ns}$, $F = 2 \text{ J/cm}^2$	ZnO	vide, O ₂ , $p = 10^{-6} - 10 \text{ mbar}$	I_{pic1} , I_{pic2} , I_{pl}	imagerie rapide	$I_{\text{pl}}(t, p)$, $I_{\text{pic1}}(t, p)$, $I_{\text{pic2}}(t, p)$, ralentissement de la plume pour $t > 1 \mu\text{s}$, arrêt d'expansion de la plume pour $p = 10 \text{ mbar}$, $t > 2 \mu\text{s}$
Barthélemy et al. [Barthélemy'05b]	2	$\lambda = 308 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $F = 10 \text{ J/cm}^2$	Al	air, $p = 1 \text{ atm}$		imagerie rapide	géométrie de la plume: hémisphérique, dimensions de la matière ablatée << dimensions de la plume entière
Wu et al. [Wu'07]	2	$\lambda = 532 \text{ nm}$, $\tau = 6 \text{ ns}$, $I = 3,8 - 8,1 \text{ GW/cm}^2$	Al	air, $p = 1 \text{ atm}$	I_{pl} , N_e , T	imagerie rapide, spectroscopie	comparaison avec modèle hydrodynamique
Viskup et al. [Viskup'09]	2	I_1 : $\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 6 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 100 \text{ mJ}$, I_2 : $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 20 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 50 \text{ mJ}$	oxides de Fe	air, $p = 1 \text{ atm}$	I_{pl}	imagerie rapide	influence de la morphologie d'échantillon sur la dynamique de la plume
Conesa et al. [Conesa'04]	2	$\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 5 \text{ ns}$, $I = 1 - 12 \text{ GW/cm}^2$	Al	air, $p = 1 \text{ atm}$	E_{ac}	mesures acoustiques, imagerie rapide	changement de régime LSDW à LSRW à 4.7 GW/cm^2
Sanginés et al. [Sanginés'08]	2	$\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$, $F = 15 \text{ J/cm}^2$	Fe	air, $p = 1 \text{ atm}$		photographie d'absorption résonante	différentes dynamiques des espèces FeI et FeII

Basé sur l'étude bibliographique réalisée, on peut donner les ordres de grandeur des paramètres qui caractérisent la plume-plasma, formée lors de l'ablation de cibles solides (voire métalliques) par un faisceau laser nanoseconde d'irradiation de quelques GW/cm^2 , au début de son expansion ($t < 1 \mu\text{s}$) :

- la densité des électrons est de l'ordre de grandeur de 10^{17} cm^{-3} (dans le vide) jusqu'à 10^{18} cm^{-3} ou même 10^{19} cm^{-3} (à la pression atmosphérique)
- la température électronique est de l'ordre de grandeur de 10^4 K
- la densité et la température électronique diminuent exponentiellement avec le temps (Fig. 2.6) (plus rapidement dans le cas d'une pression ambiante plus basse)
- les vitesses des espèces du plasma sont de l'ordre de grandeur de 10^4 m/s (à basse pression) et de 10^3 m/s (à la pression atmosphérique)
- les ions sont plus rapides que les atomes (espèces plus ionisés $\rightarrow$ plus rapides : $v_{III} > v_{II} > v_I$)
- la vitesse d'expansion de la plume diminue avec le temps (Fig. 2.7). Le ralentissement de la plume est plus important pour des pressions ambiantes plus élevées

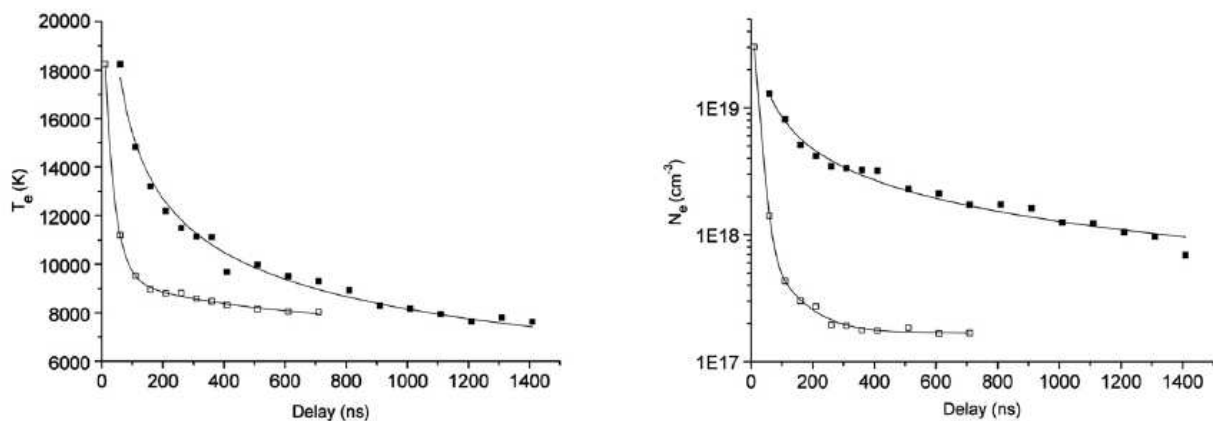


Fig. 2.6. Un exemple d'évolution temporelle de T_e et N_e dans la plume de Si formée lors de l'ablation laser dans l'air à $p = 1 \text{ atm}$ (carrés noirs) et $p = 10^{-5} \text{ mbar}$ (carrés blancs) [Cowpe'08] .

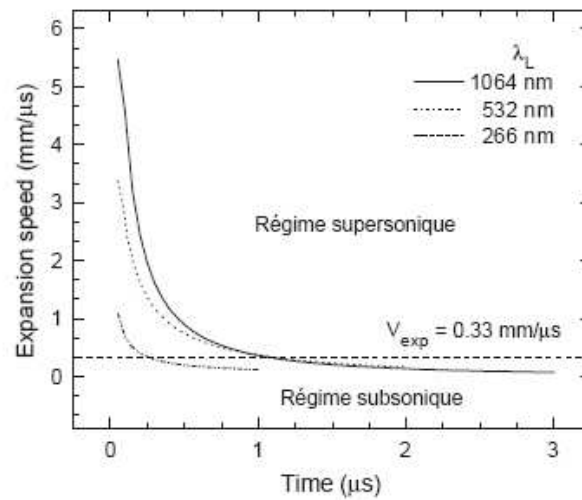


Fig. 2.7. Un exemple d'évolution temporelle de la vitesse (longitudinale) d'expansion de la plume d'Al formée par l'impact des faisceaux laser des différentes longueurs d'onde dans l'air à $p = 1 \text{ atm}$ [Barthelemy'05a].

Ce travail représente le début d'étude de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser dans notre laboratoire (équipe LTm). Nous avons choisi d'utiliser l'imagerie rapide parce que c'est une méthode facile à mettre en œuvre et pourtant elle nous apporte des données significatives. Cette méthode nous permet d'étudier la structure et la dynamique de la matière rayonnante de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser. De plus, nous nous intéressons au début d'expansion de la plume. Pour cette étude, la spectroscopie n'est pas adaptée à cause du fait qu'au début d'expansion de la plume le continuum du spectre est très élevée, donc il est impossible de distinguer les raies spectrales.

Chapitre 3

Imagerie rapide du plasma : système expérimental et manipulation

1. Equipements et matériaux utilisés	58
1.1. Laser	58
1.2. Camera ICCD	63
1.3. Système optique de collecte de l'information.....	66
1.4. Ligne à retard	67
1.5. Échantillons	68
1.5.1. Propriétés atomiques.....	70
1.5.2. Propriétés thermodynamiques.....	71
1.5.3. Propriétés des matériaux soumis à l'irradiation laser Nd:YAG.....	72
2. Configuration du système expérimental	74
3. Descriptif de la manipulation	75
3.1. Caractérisation du laser <i>Brilliant b</i>	76
3.2. Détermination d'irradiance du faisceau laser	77
3.3. Détermination du grandissement de l'objectif	80
3.4. Enregistrement des séries d'images de la plume.....	81

Le but de cette expérience d'imagerie est d'observer le développement du plasma induit par faisceau laser dans le temps et dans l'espace. Le système expérimental est composé de différents éléments: le laser de durée d'impulsion nanoseconde pour effectuer l'ablation sur des échantillons métalliques; la camera ICCD équipé par un objectif macro pour enregistrer des images de la plume et la ligne à retard pour réaliser la synchronisation entre le laser et la camera ICCD. Ce chapitre est donc consacré à la présentation du matériel utilisé, la description de la configuration expérimentale et de la manipulation.

1. Equipements et matériaux utilisés

1.1. Laser

Pour réaliser l'ablation des cibles métalliques dans cette étude nous avons utilisé un laser pulsé de type Q-switched Nd :YAG *Quantel Brilliant b*. Ce laser a été choisi à cause de sa durée d'impulsion très courte (de l'ordre de nanoseconde) et sa puissance crête élevée.

Laser Q-switched Nd :YAG

Le laser Nd :YAG a comme milieu actif un cristal $\text{Nd}^{3+}:\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$. Le néodyme triplement ionisé remplace de manière typique l'yttrium dans la matrice cristalline (environ 1 % en masse).

Ce laser est pompé optiquement par lampes flash. Le Nd :YAG absorbe principalement dans les bandes situées vers 800 nm (Fig. 3.1). Des lampes flash au krypton, avec un fort rendement dans ces bandes, sont ainsi plus efficaces pour le pompage des lasers Nd :YAG que les lampes au xénon, qui produisent plus de lumière blanche et donc qui gaspillent plus d'énergie.

Le laser Nd :YAG émet de la lumière avec une longueur d'onde typique de 1064 nm, dans l'infrarouge. Cependant, il existe des transitions à 946 nm, 1123 nm, 1319 nm, 1338 nm et 1444 nm (Fig. 3.1). En plus, à partir de la longueur d'onde de 1064 nm, le laser Nd :YAG peut générer le rayonnement de longueur d'onde de 532 nm, 355 nm, 266 nm et 213 nm en doublant, triplant et quadruplant la fréquence.

Les lasers Nd :YAG pulsés fonctionnent typiquement dans le mode appelé *Q-switching* : un permuteur optique est placé dans la cavité laser, attendant une inversion de population maximale chez les ions néodyme avant d'ouvrir. Cette condition remplie, l'onde lumineuse traverse la cavité, dépeuplant le milieu laser excité à l'inversion de population maximale. Dans le mode Q-switch, l'impulsion laser peut atteindre la puissance crête de 20 MW et la durée d'impulsion de quelques nanosecondes.

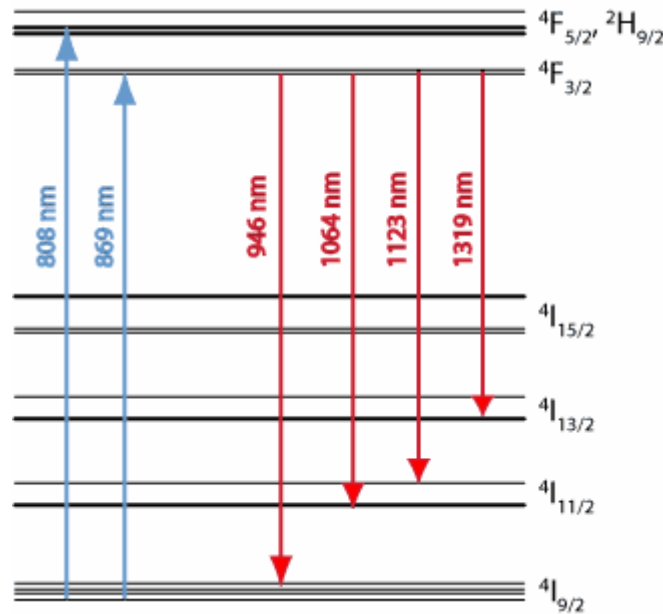


Fig. 3.1. Les transitions de pompage (bleu) et d'émission du rayonnement (rouge) du ion de néodyme dans Nd^{3+} :YAG.

Laser Quantel Brilliant b

Le laser *Quantel Brilliant b*, utilisé dans cette étude, émet des impulsions de durée de 5,1 ns avec une fréquence de 10 Hz, mais peut aussi être utilisé en tir unique.

Dans cette étude nous avons utilisé ce laser en mode fondamental, correspondant à la longueur d'onde de 1064 nm.

Les caractéristiques principales du laser *Brilliant b* sont présentées dans le Tableau 3.1 [Quantel].

Tableau 3.1. Caractéristiques du laser Quantel Brilliant b.

paramètres	symbole	valeur
longueur d'onde	λ	1064 nm
durée d'impulsion	τ	5,1 ns
fréquence (cadence) d'impulsions	f	10 Hz
énergie maximale par impulsion	E_{im}	0,975 J
puissance crête* maximale	P_{cm}	$1,91 \cdot 10^8$ W
puissance moyenne** maximale	P_{mm}	9,75 W
diamètre du faisceau laser nonfocalisé	d	9 mm
divergence du faisceau laser	φ	0,5 mrad

* Puissance crête représente l'énergie délivrée par le faisceau laser lors d'une impulsion: $P_c = E_i / \tau$

** Puissance moyenne représente l'énergie délivrée par le faisceau laser lors d'une période d'impulsions: $P_m = E_i / T = E_i \cdot f$

Le profil temporel de l'impulsion laser est donné sur la figure 3.2 [Quantel]. La durée d'impulsion de 5,1 ns correspond à la largeur à mi-hauteur du signal.

Le profil spatial du faisceau laser au champ lointain est gaussien (Fig. 3.3 [Quantel]).

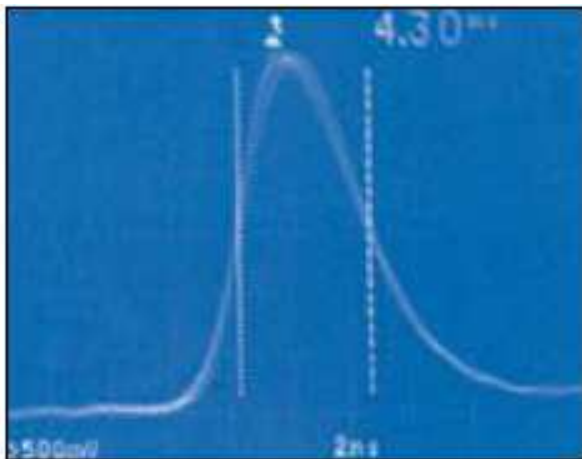


Fig. 3.2. Profil temporel de l'impulsion laser [Quantel].

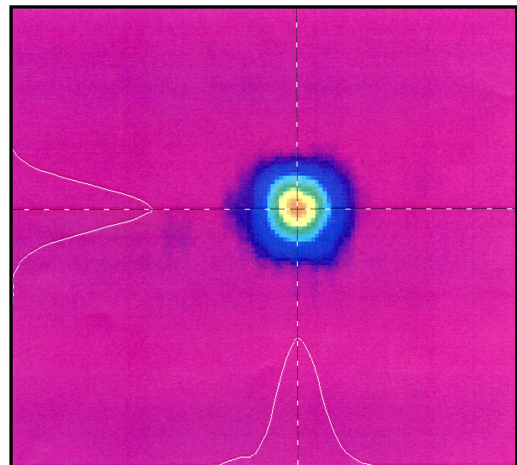


Fig. 3.3. Profil spatial du faisceau laser [Quantel].

Le profil spatio-temporel sera utilisé dans le Chapitre 6 lors de la modélisation numérique de l'interaction laser – cible (figure 6.1).

Dans cette étude, le faisceau laser est focalisé à la surface de la cible au moyen d'une lentille plan-convexe en verre BK7 (visible-IR) de distance focale de $f = 1$ m.

La distribution spatiale d'irradiance (ou densité surfacique de flux reçu) du faisceau laser peut être décrite par une fonction gaussienne :

$$I = \frac{2P_c}{R_{las}^2 \pi} \exp\left(-\frac{2r^2}{R_{las}^2}\right) \quad (3.1)$$

où P_c représente la puissance crête d'impulsion laser, R_{las} le rayon du faisceau laser au point de focalisation et r la distance par rapport au centre du faisceau laser.

Le diamètre du faisceau laser (D_{las}), défini comme le diamètre de la zone contenant 86% de la puissance crête (Fig. 3.4), varie de 1,7 à 2,2 mm (Tableau 3.4).

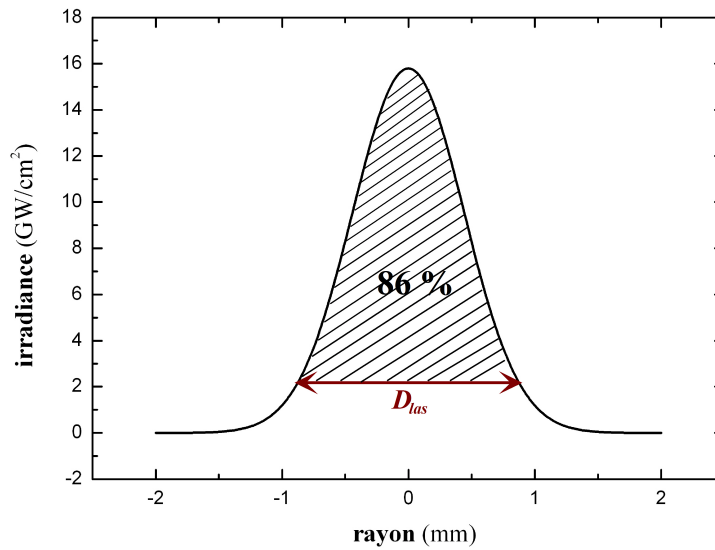


Fig. 3.4. La distribution gaussienne d'irradiance du faisceau laser.

Le barreau Nd:YAG est pompé par des lampes flash à la base du xénon. Sur la figure 3.5, fournie par le fabricant [Quantel], on peut voir le décalage temporel entre le signal de déclenchement de la lampe flash, le maximum de son impulsion électrique et le maximum de la fluorescence du néodyme.

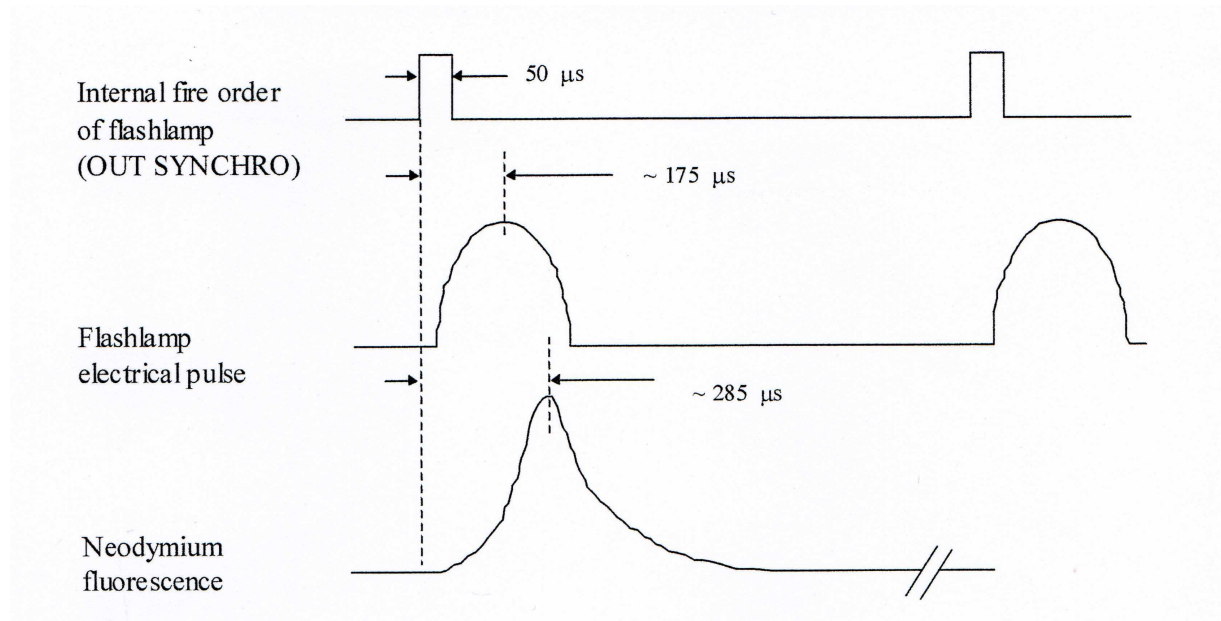


Fig. 3.5. Décalage temporel entre le signal de déclenchement, l'impulsion électrique et la fluorescence du Nd de la lampe flash [Quantel].

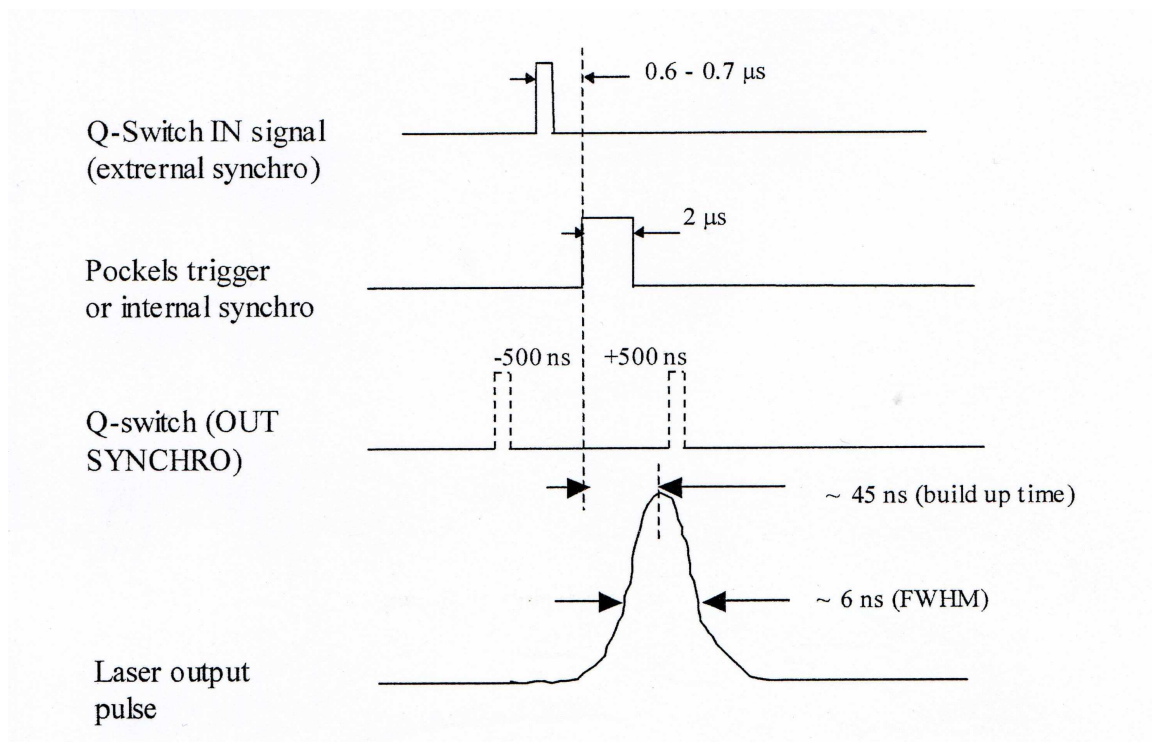


Fig. 3.6. Décalage temporel entre le signal interne de déclenchement du Q-switch et le maximum d'irradiance d'impulsion laser [Quantel].

De la même façon, sur la figure 3.6 on peut observer le décalage entre le signal interne de déclenchement du Q-switch, l'activation de la cellule pockels permettant le déclenchement de l'impulsion laser et le maximum d'émission de l'impulsion laser.

Cependant lors de notre expérience, nous souhaitons synchroniser la prise de vue avec le tir laser. C'est pourquoi, nous avons utilisé le signal de sortie Q-switch OUT SYNCHRO. Ce signal peut être généré avec un décalage réglable par rapport au déclenchement du Q-switch (activation de la cellule pockels).

1.2. Camera ICCD

Une camera ICCD (Intensified Charge Coupled Device) de *Andor Technology* a été utilisée dans cette étude pour réaliser l'imagerie de la plume d'ablation laser. Elle est constituée d'un capteur CCD associé à un intensificateur d'image

Le capteur CCD (Charge Coupled Device) est une puce semi-conductrice à base de Si portant une matrice 2D de photo-senseurs (pixels). La taille d'un pixel est $26\ \mu\text{m} \times 26\ \mu\text{m}$. Les pixels sont ordonnés en 256 lignes et 1024 colonnes (Fig. 3.7), ce qui donne une surface de détection de $177\ \text{mm}^2$. La lumière qui arrive à la surface de la matrice de CCD induit l'émission des photoélectrons et la génération de charge électrique dans les pixels. Ensuite, la charge électrique est transférée, ligne par ligne, verticalement jusqu'au « shift register », et de là horizontalement jusqu'à la sortie (« output node ») de l'amplificateur.

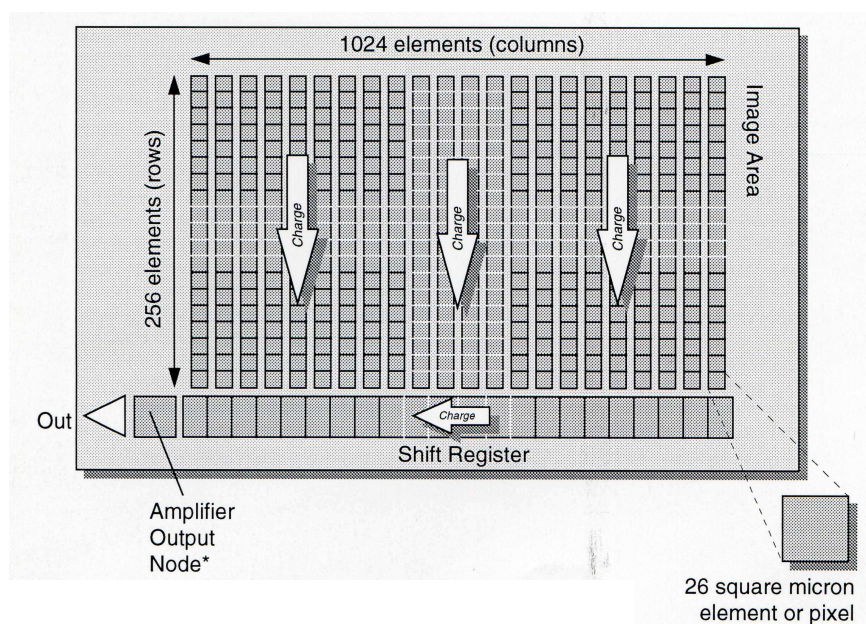


Fig. 3.7. Le schéma de la matrice de CCD [Andor].

L'intensificateur d'image est un dispositif qui est positionné devant la matrice de CCD et sert à l'intensification du flux de photons. Un intensificateur d'image contient trois éléments principaux : une photocathode, un amplificateur de photoélectrons (microchannel plate) et un écran de phosphore. Le schéma de l'intensificateur est présenté sur la figure 3.8. Lors de l'arrivée d'un photon, la photocathode émet un électron. Le « microchannel plate » (MCP) est un disque étroit qui contient beaucoup des petits canaux où les photoélectrons sont fortement accélérés (par une tension de 500 à 1000 V), provoquant l'émission secondaire des électrons dans les canaux, ce qui conduit à une avalanche. Ainsi, une amplification de 10^4 est atteinte. Ce flux d'électrons est encore accéléré par une tension de quelques milliers de volts et dirigé vers l'écran de phosphore, générant des photons guidés par un réseau de fibres optiques vers le détecteur CCD. La fenêtre d'entrée et la photocathode déterminent la sensibilité spectrale de l'intensificateur, c'est-à-dire l'intervalle des longueurs d'ondes où l'intensificateur sera sensible. En conséquence l'amplification d'image nous permet d'utiliser un temps d'exposition très court – de l'ordre de grandeur de nanoseconde.

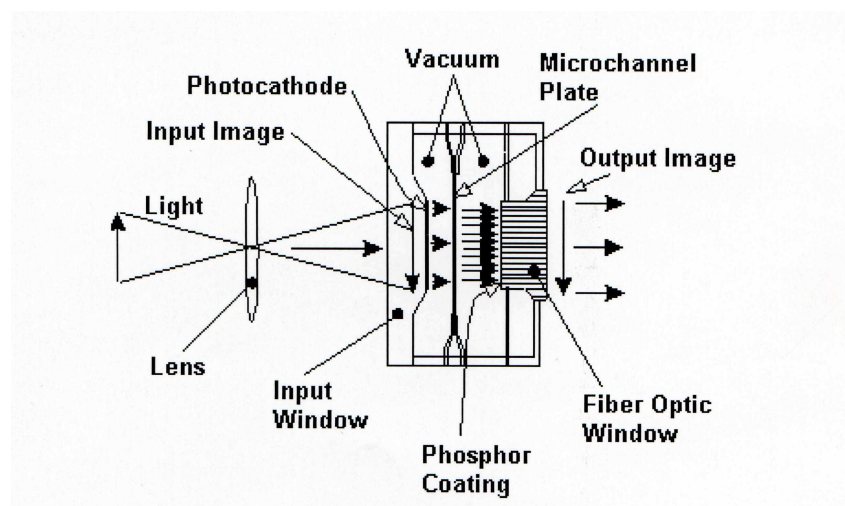


Fig. 3.8. Le schéma de l'intensificateur d'image [Andor].

En conclusion, l'intensificateur d'image apporte à la camera CCD deux grands avantages :

- ♦ une sensibilité beaucoup plus élevée
- ♦ la possibilité d'employer un temps d'exposition beaucoup plus court (de l'ordre de nanoseconde)

L'intensificateur d'image et le CCD sont couplés par des fibres optiques, ce qu'on peut voir sur le schéma de la camera ICCD présenté sur la figure 3.9.

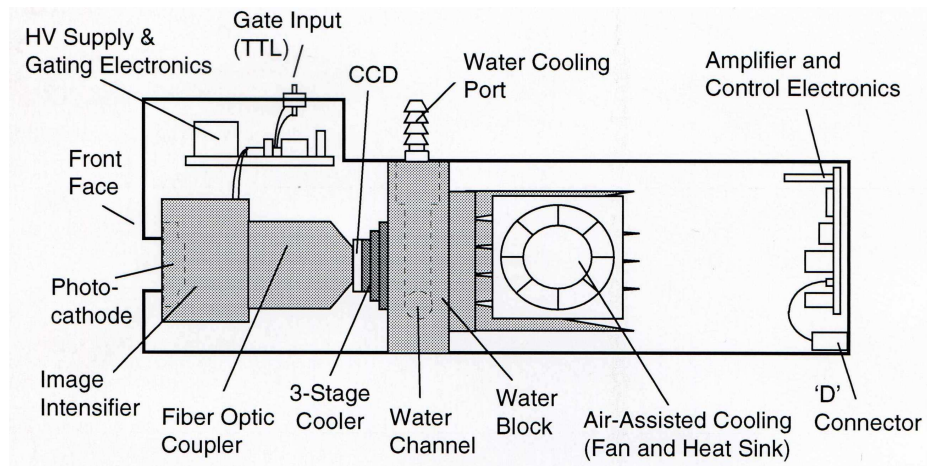


Fig. 3.9. Le schéma de la camera ICCD [Andor].

La camera ICCD contient plusieurs systèmes de refroidissement. Le refroidissement thermoélectrique à trois étapes est suffisant pour réduire la température du système jusqu'à -15°C, afin de réaliser des enregistrements avec un temps d'exposition de quelques nanosecondes.

Les caractéristiques principales de la camera ICCD (*Andor Technology*) utilisée dans cette étude sont donnés dans le Tableau 3.2.

Cette camera ICCD offre quatre modes d'acquisition :

- Single Scan (un seul enregistrement)
- Real Time (enregistrement en temps réel)
- Accumulate (enregistrement accumulatif – pour améliorer le rapport signal/bruit)
- Kinetic Series (une séquence d'enregistrements – pour suivre l'évolution temporelle d'un processus)

Elle peut être déclenchée de façon interne ou externe (par un signal TTL).

Elle a aussi quatre modes de lecture :

- Full Vertical Binning
- Single-Track
- Multi-Track
- Full Resolution Image

Tableau 3.2. Propriétés de la camera ICCD (*Andor Technology*).

Intensificateur d'image	
diamètre	25 mm
intervalle spectral	180 nm – 850 nm
temps d'exposition minimal	2,65 ns
efficacité quantique maximale	14 %
type de phosphore	P43
grandissement de taper	1 :1
CCD	
taille de pixel	26 μm $\times$ 26 μm
matrice (colonnes $\times$ lignes)	1024 $\times$ 256
vitesse de lecture	1, 2, 16, 32 μs / pixel

1.3. Système optique de collecte de l'information

La plume a des dimensions de quelques millimètres. Le capteur CCD est constitué de 1024 $\times$ 256 pixels de 26 μm , ce qui représente une surface rectangulaire de 26,6 mm $\times$ 6,6 mm. Il est donc nécessaire d'utiliser un objectif permettant de viser à une distance de 20 cm (pour collecter le maximum de lumière, mais ne pas être trop proche de la source), mais avec un grandissement de l'ordre de 1. Afin de visualiser la plume nous avons utilisé un Camera ICCD est équipée par un objectif (*Computar*, Manual Zoom) avec une distance focale réglable. Cependant pour satisfaire au critère, nous avons placé un tube d'extension (5 cm) entre l'objectif et le détecteur. Les lentilles faisant partie de l'objectif sont en verre (BK7). La courbe de transmission de BK7 en fonction de la longueur d'onde du rayonnement est donnée sur la figure 3.10. On voit que pour les longueurs d'onde inférieures à 350 nm, la transmission de BK7 diminue significativement, en atteignant 20% à 300 nm. Alors, on peut dire que l'objectif ne transmet pas du rayonnement UV.

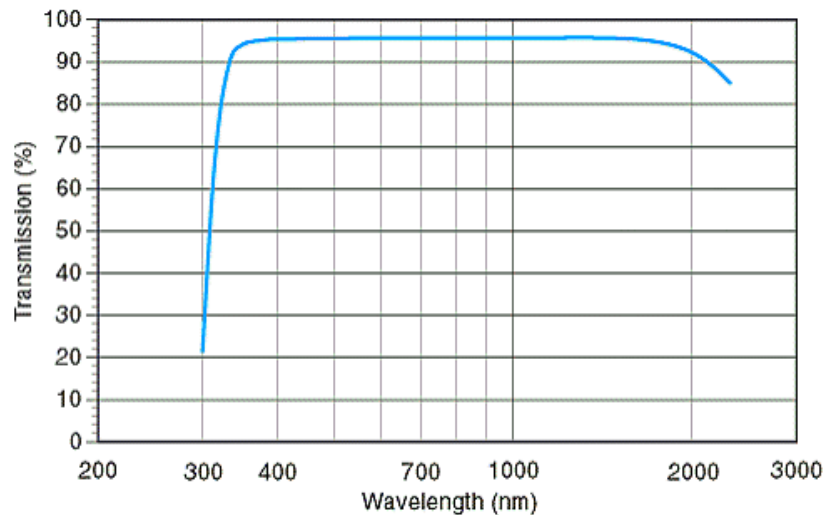


Fig. 3.10. La courbe de transmission de BK7.

1.4. Ligne à retard

L'objectif de cette étude est de faire l'acquisition de l'image de la plume, avec un temps d'exposition le plus petit possible (5,4 ns) et de faire une série d'images décalées dans le temps afin d'étudier son évolution temporelle. Il est donc nécessaire de synchroniser la prise de vue avec le tir laser. Cela nécessite une reproductivité des processus, qu'il a été important de vérifier. La solution adoptée est d'utiliser le signal Q-Switch out synchronisé avec le déclenchement du laser, afin de déclencher avec un retard variable la camera ICCD.

Une ligne à retard (*Stanford Research Systems DG535*) a été utilisée dans cette étude pour réaliser la synchronisation entre le laser *Brilliant b* et la camera ICCD, ainsi que pour générer le décalage temporel lors de l'enregistrement de série d'images montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser.

La ligne à retard était contrôlée par l'ordinateur via une interface GPIB. La synchronisation entre le laser et la camera ICCD était réalisée en utilisant un signal TTL envoyé par le laser *Brilliant b* 150 ns avant l'émission du faisceau laser « prepulse » (sortie Q-switch OUT SYNCHRO du laser). Plus des détails sur la connexion entre la ligne à retard et d'autres éléments du système seront donnés dans la partie « configuration du système expérimental ».

1.5. Échantillons

Dans cette étude, nous avons utilisé des échantillons d'aluminium (Al), du titane (Ti) et du fer (Fe) commercialement purs. Ces matériaux ont été choisis pour deux raisons :

1. Alliages de ces trois éléments sont très utilisées au sein de l'équipe LTm, que ce soit pour l'assemblage ou les traitements de surface.
2. Par ailleurs, ces trois métaux possèdent des propriétés atomiques et thermodynamiques différentes qui rendent leur étude complémentaire. Leurs caractéristiques différentes peuvent influencer la dynamique de la plume.

Les échantillons proviennent des métaux commercialement purs, de la série 1 pour l'aluminium, du fer ARMCO pour le fer, et du titane commercialement pur grade dit Ti CP4. Ces trois matériaux présentent tous une pureté supérieure à 99 %, voire supérieure à 99,5 % dans le cas du titane CP 4 et du fer ARMCO.

Les propriétés physiques des cibles d'aluminium, de titane et de fer utilisées dans notre étude sont donnés dans le Tableau 3.3 [ASM'93a, ASM'93b, CRC'89, Iida'88, Akashev'01]. La composition des échantillons de l'aluminium, du titane et du fer utilisés dans cette étude, était vérifiée par la MEB (microscopie électronique à balayage). Les résultats de MEB sont présentés en Annexe I.

Ces matériaux ont été préparés afin d'être sous la forme de parallélépipèdes plats de 1 à 3 mm d'épaisseur et de quelques centimètres de longueur et de largeur. Les surfaces des échantillons ont été dégraissées.

De plus, les enregistrements n'ont pas été faits sur les premiers impacts mais à la suite de quelques impacts afin de travailler sur une surface d'échantillons homogène. En effet, ces trois métaux sont particulièrement réactifs au contact de l'air. Dans le cas de l'aluminium et du titane, il se couvre même spontanément d'une couche de passivation très mince, d'environ une dizaine de nanomètres. Le fer assez pur a plutôt la tendance à s'oxyder sans pouvoir se passiver.

Tableau 3.3. Propriétés physiques des métaux étudiés.

propriété physique	symbole	unité	Al	Ti	Fe
masse volumique à l'état solide	ρ_s	kg.m ⁻³	2699	4506	7874
masse volumique à l'état liquide	ρ_l	kg.m ⁻³	2368	4130	7030
chaleur spécifique à l'état solide	c_{ps}	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹	900	528	452
chaleur spécifique à l'état liquide	c_{pl}	J.kg ⁻¹ .K ⁻¹	1180	787	749
conductivité thermique à l'état solide	k_s	W.m ⁻¹ .K ⁻¹	228	17	80,4
conductivité thermique à l'état liquide	k_l	W.m ⁻¹ .K ⁻¹	94	35	32
température de fusion	T_f	K	933	1941	1811
température de vaporisation	T_v	K	2767	3560	3134
chaleur latente de fusion	L_f	J.kg ⁻¹	3,97·10 ⁵	3,05·10 ⁵	2,47·10 ⁵
chaleur latente de vaporisation	L_v	J.kg ⁻¹	1,078·10 ⁷	8,89·10 ⁶	6,088·10 ⁶
enthalpie de vaporisation	H_v	J.mol ⁻¹	2,909·10 ⁵	4,255·10 ⁵	3,4·10 ⁵
masse molaire	M	g.mol ⁻¹	26,982	47,867	55,845
absorptivité du rayonnement laser (1064 nm) à l'état solide	α_s	-	0,2	0,45	0,36
absorptivité du rayonnement laser (1064 nm) à l'état liquide	α_l	-	0,128		
émissivité du matériau	ε	-	0,25	0,63	0,35
travail de sortie d'électrons	ϕ	eV	4,16	4,33	4,74
énergie d'ionisation	E_i	eV	5,98	6,82	7,9

1.5.1. Propriétés atomiques

Ces trois éléments, l'aluminium, le titane et le fer bien que métallique présentent tout de même des propriétés atomiques assez différentes (Tableau 3.4).

Tableau 3.4. Propriétés atomiques d'après CASALOT. Z - le numéro atomique, M - la masse molaire, χ_p - l'électronégativité selon Pauling, r_{at} - le rayon atomique. Les énergies de 1^{ère}, E_{1i} , et 2^{ème} ionisation, E_{2i} , ont été calculées en utilisant les valeurs indiquées dans le tableau « les propriétés atomiques » [CASALOT].

Métal	Z	M (g/mol)	χ_p	r_{at} (pm)	structure électronique	E_{1i} (eV)	E_{2i} (eV)	état d'oxydation
Al	13	26,982	1,61	143	[Ne]3s ² 3p ¹	6,0	18,8	1- 3
Ti	22	47,87	1,54	146	[Ar]4s ² 3d ²	6,8	13,6	2-3-4
Fe	26	55,845	1,83	125	[Ar]4s ² 3d ⁶	7,9	16,2	2-3-4-6

Parmi ces trois métaux, l'aluminium se distingue du titane et du fer, en premier au niveau de ses propriétés atomiques qu'on pourrait qualifier de physiques comme son numéro atomique, Z , et donc sa masse molaire, M . Ainsi, on note que cet élément possède le numéro atomique le plus faible, 13, et donc une masse atomique égale environ à la moitié de celle du titane ou du fer. Ainsi pour une même énergie cinétique, les atomes d'aluminium posséderont une vitesse moyenne plus élevée que celles des atomes de titane ou de fer.

Ensuite il est différent au niveau de ses propriétés atomiques plus chimiques, donc liées à la structure de sa couche électronique externe. Ainsi, l'atome d'aluminium possède une configuration électronique qui n'est pas celle d'un métal de transition, contrairement aux atomes de titane et de fer. En effet sa structure électronique externe ne met pas en jeu une couche « d » comme c'est le cas pour le titane et le fer. Ceci a des conséquences tout d'abord sur une valeur de première énergie d'ionisation plus petite (6 eV) que celle du titane et du fer. Cela entraîne une chimie pour cet élément beaucoup plus pauvre car on le trouve essentiellement sous la forme d'un cation métallique + III (Al³⁺) alors que celle des deux éléments de transition, le fer et le titane, est beaucoup plus complexe comme l'indique le nombre assez élevé de leurs états d'oxydations. En somme du point de vue atomique, l'aluminium est un métal léger qui réagit de façon marquée en s'ionisant assez facilement,

alors que le titane et le fer sont des éléments de la première série de transition, soient des atomes de masse moyenne, dont la réactivité est beaucoup plus douce et complexe.

1.5.2. Propriétés thermodynamiques

Les grandeurs thermiques de ces trois métaux ont été données dans le Tableau 3.3. On note une évolution assez importante de ces grandeurs avec l'état physique. Les valeurs de ces grandeurs proviennent à la fois des propriétés physiques de l'atome comme son numéro atomique, mais aussi des propriétés chimiques qui proviennent de sa structure électronique.

On retrouve l'effet de la masse molaire sur la densité puisque la masse volumique de l'aluminium est bien plus faible que celles du titane et du fer (environ la moitié). On retrouve également l'effet de son caractère métallique sur sa conductivité thermique k , qui est bien plus élevée que celle du fer et du titane. On peut remarquer pourtant qu'entre ces deux éléments de transition le titane possède une conductivité très faible, $17 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. On peut interpréter cela en faisant appel à la structure du titane à l'état solide. On sait qu'en phase solide, sous sa forme hexagonale compacte, les atomes de titane sont aplatis au pôle comme l'indique un facteur c/a anormalement faible [Mac Quillan]. Il existe en fait un certain recouvrement des orbitales atomique $3d_z^2$ entre elles. On peut donc estimer que le titane à l'état solide possède un caractère covalent partiel en plus de son caractère métallique, d'où une valeur plus faible de sa conductivité. On notera qu'il possède une structure électronique analogue à celle du carbone (C : $[\text{He}]2s^2 2p^2$). On peut donc mieux comprendre son caractère réfractaire qui se traduit par des températures de fusion, T_f , et de vaporisation, T_v , anormalement élevées. Le carbone est aussi un élément qui présente une température de vaporisation très élevée, 3925 K du fait des liaisons covalente qu'il établit en phase solide.

Cela se répercute aussi en partie sur les chaleurs latentes de changement d'état. En effet, on sait que les températures de changement d'état augmentent avec la masse molaire du composé, tout comme les chaleurs latentes de changement d'état si les liaisons de cohésion des édifices sont de même nature. Dans le cas du titane, en plus de l'effet d'accroissement de la masse par rapport à l'aluminium, il apparaît une liaison à caractère covalent, ce qui renforce la cohésion du réseau du titane pour le rendre anormalement réfractaire.

Pour la capacité calorifique spécifique c_p , qui représente l'énergie emmagasinée par le matériau, son évolution est à la fois liée à la compacité du réseau du métal et à la densité de son réseau ρ . En effet, cette énergie emmagasinée ne peut l'être que sous la forme de

vibration des atomes. Donc, il faut de la place. Un réseau de fer, même si il n'est pas compact, est dense du fait de la grande masse des atomes de fer et il ne pourra pas permettre ces mouvements. Ainsi le fer même avec une compacité plus faible (0,68 car son réseau n'est pas compact, car il est cubique centré) que l'aluminium et le titane (0,74 car il cristallise dans un réseau compact, respectivement cubiques à faces centrées et hexagonale) possède une capacité calorifique plus petite du fait d'une densité bien plus élevée que ces deux métaux.

Ces évolutions des grandeurs thermodynamiques doivent être comparées pour ces trois métaux lorsqu'ils sont irradiés par une source laser. En effet les phénomènes de couplage entre la source d'énergie et le matériau diffèrent des moyens plus classiques d'échauffement du fait de la rapidité d'apport de l'énergie (quelques nanosecondes) et de l'amplitude des températures.

1.5.3. Propriétés des matériaux soumis à l'irradiation laser Nd:YAG

La source laser utilisé dans cette étude est un laser Nd :YAG déclenché, qui émet dans le proche infra rouge à 1,064 nm avec une durée d'impulsion de 5,1 ns. Le comportement des trois métaux, notamment l'amplitude de leur échauffement, est directement liée aux grandeurs thermodynamiques qu'on a commentées au paragraphe précédent, mais également à la longueur d'onde et à la durée d'impulsion du faisceau laser.

Une partie d'énergie du faisceau laser arrivant à la surface de l'échantillon n'est pas absorbée par le matériau du fait de la réflectivité du métal vis-à-vis du faisceau laser. On introduit alors un facteur d'absorption, α , pour traduire la fraction d'énergie absorbée par le matériau. De plus, si on suppose que l'atténuation du faisceau dans le matériau s'effectue en suivant une loi de type Beer-Lambert, cette énergie ne va pénétrer dans le métal que sur une petite profondeur qu'on appelle la longueur d'absorption, δ_a :

$$\delta_a = \frac{\lambda}{4\pi n_2} \quad (3.2)$$

où n_2 est la partie imaginaire de l'indice de réfraction ($n = n_1 + in_2$) et λ - la longueur d'onde du rayonnement laser.

L'énergie du faisceau laser absorbée par un métal est instantanément convertie en énergie thermique. On sait que la diffusivité thermique d'un matériau D_{th} est à la fois liée à la

conductivité thermique du matériau k , à sa capacité calorifique spécifique c_p et à la masse volumique ρ du matériau :

$$D_{th} = \frac{k}{\rho c_p} \quad (3.3)$$

D'ici, on peut alors en déduire la longueur de diffusion de la chaleur δ_{th} dans le matériau:

$$\delta_{th} = \sqrt{D_{th} \tau} \quad (3.4)$$

où τ est la durée d'impulsion laser.

Ces différentes grandeurs sont regroupées dans le Tableau 3.5.

Tableau 3.5. Paramètres de couplage entre les métaux (Al, Ti et Fe) et la source laser.

Métal	α		n_2	δ_a (nm)	D_{th} (m ² /s)	δ_{th} (nm)
Al	0,2 (s)	0,128 (l)	11,62	7	$9,4 \cdot 10^{-5}$	978
Ti	0,45		3,45	25	$7,1 \cdot 10^{-5}$	270
Fe	0,36		4,63	18	$22,4 \cdot 10^{-5}$	478

Tout d'abord, l'aluminium est beaucoup plus réfléchissant que le titane et le fer car son coefficient d'absorption α est beaucoup plus petit, 0,2, que ceux du titane 0,45 et du fer, 0,36. Cet effet est primordial car il signifie que pour une même énergie déposée par le faisceau laser, l'aluminium en absorbe à peu près deux fois moins que le titane et le fer.

De plus, pour un faisceau laser dont la longueur d'onde appartient au domaine de l'infrarouge, comme c'est le cas pour un laser Nd:YAG ($\lambda = 1064$ nm), la longueur de diffusion thermique, δ_{th} , est bien plus élevée que celle de absorption, δ_a (Tableau 3.5). Cela signifie que les effets thermiques sont prédominants dans le cas des sources laser infrarouge.

Par ailleurs, c'est encore l'aluminium qui possède la longueur de diffusion thermique la plus élevée. Ainsi, ce matériau permet un meilleur transport de l'énergie du faisceau laser vers l'intérieur de la cible.

En somme, l'aluminium est beaucoup plus difficile à chauffer, donc à ablater à l'aide d'un faisceau laser que le titane ou le fer. Ce comportement a été bien observé lorsqu'on a comparé l'ablation de ces trois matériaux. Avec une irradiance de $8,16$ GW/cm², nous avons observé des instabilités des plumes formées au dessus des cibles de titane ou de fer.

2. Configuration du système expérimental

Le principe d'imagerie est d'observer le développement du plasma dans le temps et dans l'espace. Un schéma montrant la configuration du système expérimental utilisé dans cette étude est présenté sur la figure 3.11.

L'ablation laser sur des cibles métalliques (Al, Ti, Fe) a été réalisé par le laser *Quantel Brilliant b* de longueur d'onde de 1064 nm et de durée d'impulsion de 5,1 ns. Pour le plupart des essais, le laser a fonctionné avec une fréquence (cadence) de 10 Hz. Le faisceau laser a été dirigé perpendiculairement à la surface de la cible traitée. La focalisation du faisceau laser sur la surface de la cible a été réalisée en utilisant une lentille (spéciale IR) de distance focale de 1 m. Tous les essais ont été réalisés dans l'air à la pression atmosphérique.

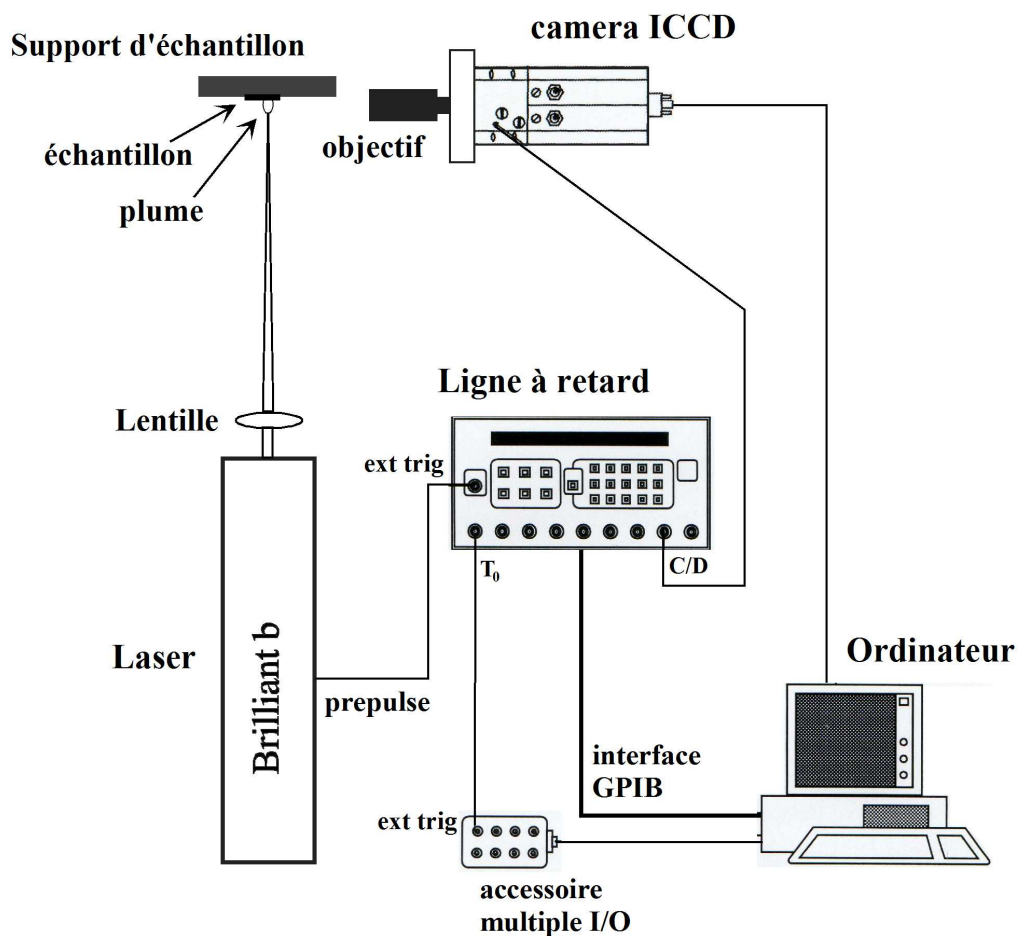


Fig. 3.11. Configuration du système expérimental

La caméra ICCD (*Andor Technology*) est placée dans le plan perpendiculaire à la surface irradiée de l'échantillon, là où se forme le plasma. Cette camera est équipée d'un objectif (*Computar*, Manual Zoom). Cet objectif est adapté pour une prise de vue « macro ». En réglant sa distance focale et en ajoutant des bagues-allonges (5 cm), le grandissement de $M = 1 : 1,066$ était atteint. Ça veut dire que la taille de l'image de la plume sur la matrice de la camera ICCD était légèrement plus grande que sa taille réelle. Comme les lentilles faisant partie de l'objectif étaient en verre, la camera ICCD enregistrait que le rayonnement visible et IR émis par la plume (350 nm – 2000 nm). La camera ICCD était contrôlée par l'ordinateur. Le positionnement de la camera, perpendiculaire par rapport à la direction du faisceau laser, nous avait permis d'observer l'expansion de la plume de côté (voir le schéma – Fig. 3.11). La distance entre l'objectif et la plume était de 7 cm.

Une ligne à retard (*Stanford Research Systems*) a été utilisée pour réaliser la synchronisation entre le laser et la camera ICCD, ainsi que pour générer le décalage temporel lors de l'enregistrement de série d'images montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser. La ligne à retard était aussi contrôlée par l'ordinateur. 150 ns avant l'émission du faisceau laser, le laser envoyait un signal TTL à la ligne à retard (« prepulse »). Ce décalage temporel était nécessaire à cause des délais produits par des fils et des composants électriques dans les appareils. Le signal TTL arrivait à l'entrée de déclenchement externe de la ligne à retard et dans moins de 100 ns elle donnait des signaux aux sorties T_0 et C/D. La sortie T_0 était à travers l'accessoire multiple I/O connectée à l'ordinateur. De l'autre côté, la sortie C/D était directement connectée à « Gate Input » de la camera ICCD. Ainsi, dans moins de 150 ns la camera ICCD était déclenchée et prête pour l'enregistrement.

3. Descriptif de la manipulation

Avant de débiter les essais, il était nécessaire de déterminer le grandissement de l'objectif monté sur la camera ICCD, ainsi que les puissances du faisceau laser utilisées dans cette étude. Ensuite, la description d'enregistrement des séries d'images montrant d'évolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser sous différentes conditions expérimentales est donnée.

3.1. Caractérisation du laser *Brilliant b*

Avant de débiter les expériences, nous avons réalisé la caractérisation énergétique du laser *Brilliant b*. Pour cela, nous avons mesuré la puissance moyenne du faisceau laser en fonction du paramètre opératoire nommé FI-QS délai (ce paramètre correspond à l'intervalle de temps séparant le déclenchement de la lampe flash et le déclenchement du Q-switch) pour différentes valeurs de tension de la lampe flash. FI-QS délai et la tension de la lampe flash sont des paramètres du laser réglables, qui déterminent la valeur d'énergie d'impulsion laser. Pour mesurer la puissance moyenne du faisceau laser nous avons utilisé un wattmètre. Les résultats de caractérisation du laser *Brilliant b* sont présentés sur la figure 3.12. On peut remarquer que la puissance moyenne est la plus élevée pour le délai FI-QS de 220 μs pour n'importe quelle valeur de la tension de la lampe flash, ce qui représente l'optimum de fonctionnement du laser. Comme nous nous intéressons aux irradiances élevées, ce paramètre est fixé à 220 μs tout au long des études ultérieures. La figure 3.13 présente l'évolution de la puissance moyenne en fonction de la tension de la lampe flash pour un délai FI-QS de 220 μs .

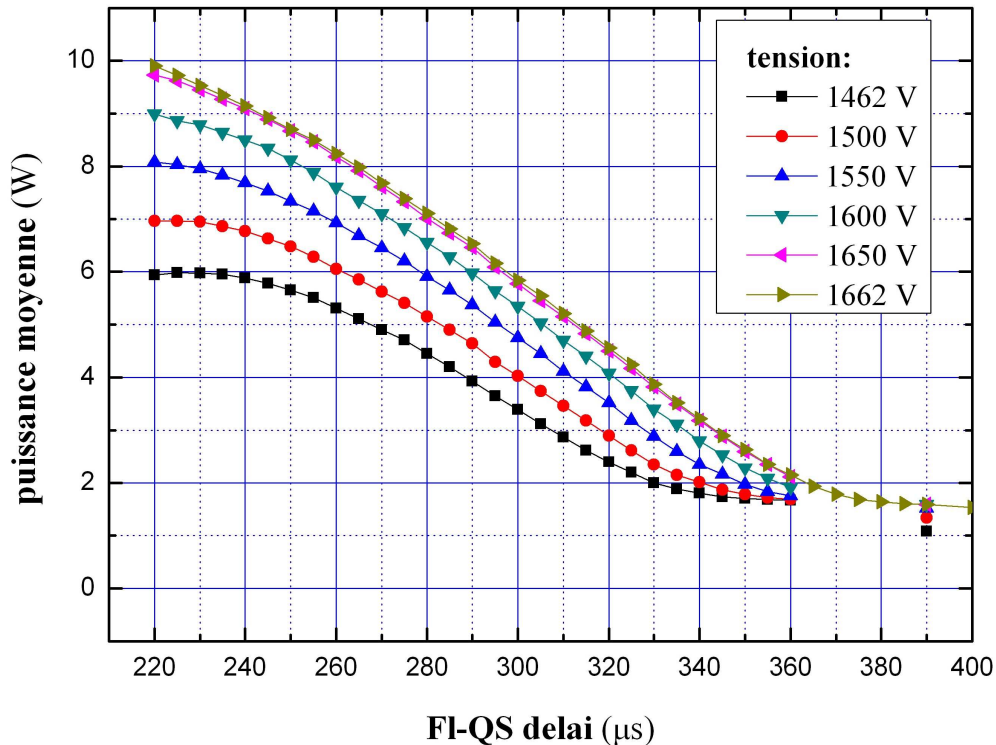


Fig. 3.12. Puissance moyenne du faisceau laser en fonction du délai entre la lampe flash et le Q-switch pour différentes valeurs de tension de la lampe flash.

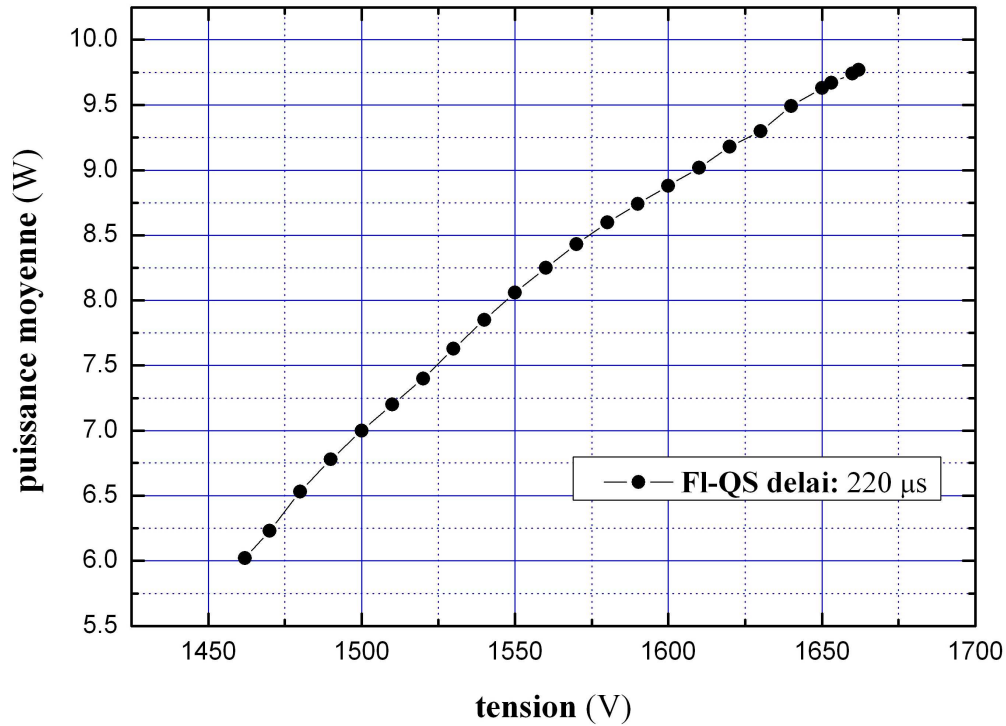


Fig. 3.13. Puissance moyenne du faisceau laser en fonction de la tension de la lampe flash pour le délai de 220 µs entre la lampe flash et le Q-switch.

La puissance moyenne du faisceau laser augmente avec la tension de la lampe flash (Fig. 3.13). L'augmentation de la tension de la lampe flash conduit à l'intensification du rayonnement du xénon, ce qui augmente la quantité de population inverse dans le milieu amplificateur et produit l'impulsion laser d'une énergie plus élevée.

3.2. Détermination d'irradiance du faisceau laser

A partir des graphes de caractérisation du laser *Brilliant b* (Fig. 3.12 et Fig. 3.13), on peut facilement déterminer la puissance crête (P_c) d'impulsion laser en utilisant la relation :

$$P_c = \frac{P_m}{f \tau} \quad (3.5)$$

où P_m représente la puissance moyenne du faisceau laser pour la valeur de la tension de la lampe flash et le délai FI-QS choisi, f la fréquence (cadence) d'impulsions laser et τ la durée d'impulsion laser (f et τ donnés dans le Tableau 3.1).

Dans cette étude, le délai Fl-QS est fixé à 220 μ s. L'énergie du faisceau laser varie avec la tension d'alimentation des lampes flash. Nous avons choisi trois valeurs de tension d'alimentation correspondant à trois valeurs de la puissance crête de l'impulsion laser, à utiliser dans cette étude :

- la valeur minimale de 1462 V
- la valeur maximale de 1660 V
- une valeur moyenne de 1550 V

L'irradiance moyenne est définie comme :

$$I = \frac{P_c}{S_{las}} = \frac{P_c}{R_{las}^2 \pi} \quad (3.6)$$

où P_c représente la puissance crête d'impulsion laser, S_{las} l'aire de la tache focale du faisceau laser et R_{las} le rayon du faisceau laser dans le plan de focalisation.

Dans cette étude, nous avons considéré que l'aire de la tache focale du faisceau laser est approximativement égale à l'aire de la tache formée sur le papier thermique lors d'un seul impact du faisceau laser. Des exemples de taches obtenues sur le papier thermique lors des impulsions laser correspondant aux tensions 1462 V, 1550 V et 1660 V de la lampe flash sont donnés sur la figure 3.14. Les taches réalisées sur l'aluminium sous les mêmes conditions expérimentales sont données à côté, pour la comparaison. On voit que l'aire de la tache formée sur l'aluminium correspond à peu près à la partie claire de la tache obtenue sur le papier thermique (l'échelle dans le cas d'Al est un peu plus grande). L'aire de cette partie claire de la tache formée sur le papier thermique a été mesurée en utilisant le microscope. Pour chaque valeur de la tension de la lampe flash, l'aire de la tache focale a été déterminée comme la valeur moyenne de 10 mesures (aires de 10 taches). Si on compare des taches correspondant aux différentes valeurs de la tension de la lampe flash, on peut remarquer que l'aire de la tache augmente lorsque la puissance crête d'impulsion laser diminue. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que le laser est optimisé pour être gaussien à la puissance optimale (en tenant compte de l'effet de lentille thermique), induisant donc une taille minimale de la tache focale.

Les paramètres du faisceau laser correspondant aux différentes valeurs de la tension des lampes flash, utilisées dans cette étude, sont donnés dans le Tableau 3.6. Mais dans la suite, nous utiliserons uniquement la notion d'irradiance du faisceau laser pour indiquer les conditions expérimentales apportées par le faisceau laser.

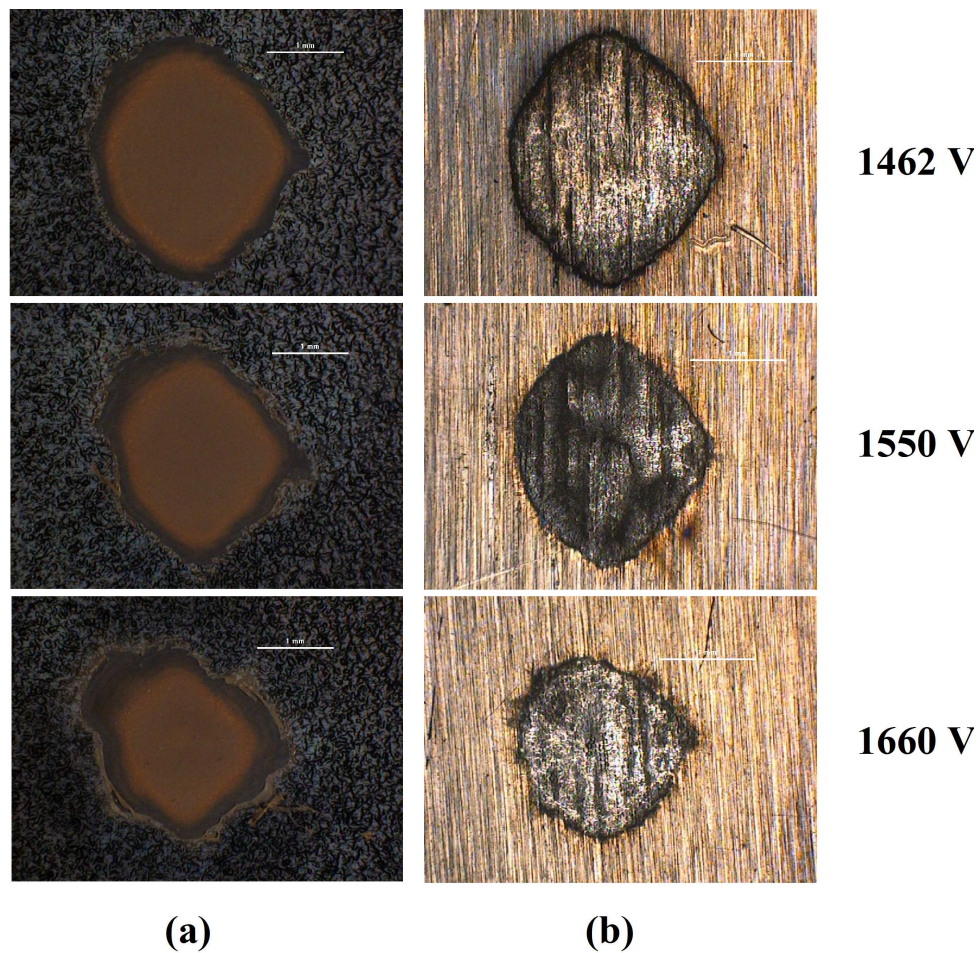


Fig. 3.14. Les taches formées sur le papier thermique (a) et l'aluminium (b) lors d'un seul impact du faisceau laser correspondant aux différentes tensions de la lampe flash.

Tableau 3.6. Paramètres du faisceau laser en fonction de la tension de la lampe flash.

tension de la lampe flash (V)	1462	1550	1660
énergie par impulsion laser (J)	0,602	0,808	0,974
puissance crête d'impulsion laser (GW)	0,118	0,158	0,191
aire de la tache focale (mm ²)	4,31	3,34	2,34
rayon moyen de la tache focale (mm)	1,17	1,03	0,86
irradiance du faisceau laser (GW/cm ²)	2,74	4,73	8,16

durée d'impulsion laser : $\tau = 5,1$ ns

3.3. Détermination du grandissement de l'objectif

La détermination du grandissement de l'objectif monté sur la camera ICCD était nécessaire afin de pouvoir ensuite mesurer les dimensions de la plume. La taille d'un pixel de la camera ICCD est de $26\ \mu\text{m} \times 26\ \mu\text{m}$.

Nous avons utilisé le système « objectif - camera ICCD » pour enregistrer un papier millimétrique, avec des lignes bien définies. Le papier millimétrique a été illuminé avec une lampe halogène (*Schott KL 1500LCD*). L'image obtenue est présentée sur la figure 3.15.

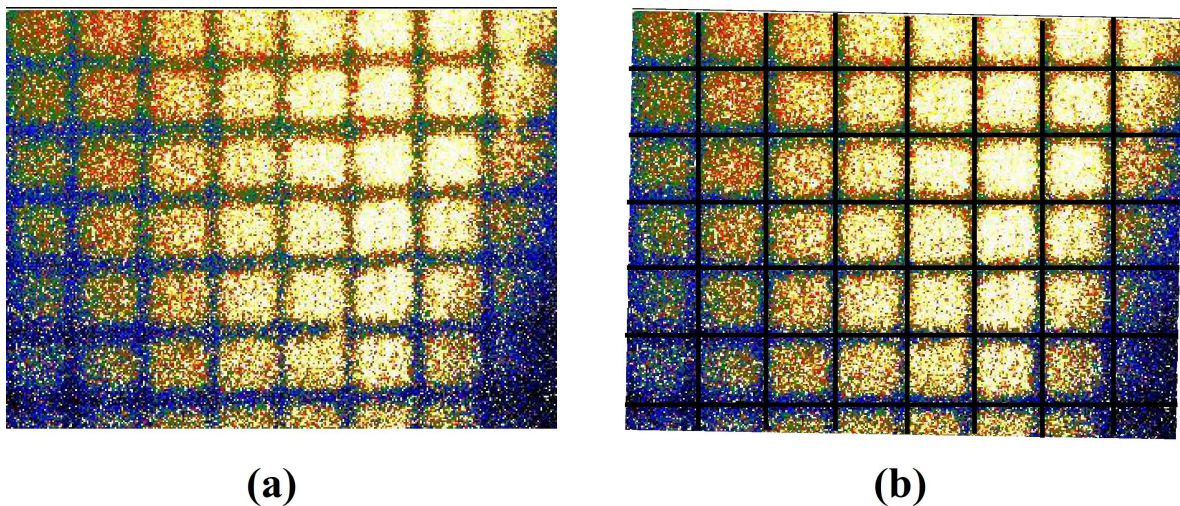


Fig. 3.15. Papier millimétrique enregistré par la camera ICCD (a) et illustration d'ajustement du filet généré par le logiciel *ImageJ* (b).

En utilisant un logiciel de traitement d'image (*ImageJ*), nous avons pu ajuster un quadrillage à cette image, et en déduire les dimensions :

$$1\ \text{mm (réel)} \quad \text{correspond à} \quad 41\ \text{pixels (sur l'image)}$$

Comme la dimension d'un pixel est $26\ \mu\text{m}$, la dimension d'un carré du papier millimétrique sur l'image est égale à :

$$41\ \text{pixels} \cdot 26\ \mu\text{m} = 1,066\ \text{mm} \quad (3.7)$$

ce qui conduit à un grandissement de :

$$M = \frac{1,066 \text{ mm}}{1 \text{ mm}} = 1,066 \quad (3.8)$$

On voit que le grandissement de l'objectif est légèrement supérieur à 1 (mode « macro »), ce qui veut dire que la taille de l'image sur la matrice de la camera ICCD est légèrement plus grande (1,066 fois) que la taille réelle du sujet. On peut aussi dire que l'échelle de nos images est de 24,4 μm /pixel.

3.4. Enregistrement des séries d'images de la plume

L'imagerie de la plume du plasma a été réalisée perpendiculairement par rapport à la direction du faisceau laser (Fig. 3.11). Donc, les images enregistrées représentent une vue transverse de la plume. Ainsi, nous pouvons observer l'expansion de la plume dans la direction radiale et longitudinale (la direction du faisceau laser).

La cible, qu'on ne voit pas dans les images mais on peut quand même déterminer sa position (ce sera discuté plus tard), était positionnée verticalement de coté droite de l'image. Afin de réduire la lumière réfléchie de la surface de l'échantillon et captée par la camera ICCD, les impacts du faisceau laser ont été réalisés proche du bord de l'échantillon.

En utilisant le laser *Brilliant b* en mode répétitif (fréquence : 10 Hz), des séries d'images montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser ont été enregistrées. L'expansion de la plume était étudiée pendant les premières 330 ns de sa vie. Les séries d'images de la plume ont été enregistrées en utilisant un mode d'acquisition de la camera ICCD appelé « kinetic series ». Le temps d'exposition était de 5,4 ns et le décalage temporel entre les images successives, appelé « le pas d'acquisition », de 10 ns. Les modes et les paramètres d'acquisition de la camera ICCD utilisés pour l'enregistrement des séries d'images montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume sont donnés dans le Tableau 3.7.

En utilisant le refroidissement thermoélectrique à trois étapes la température du système était réduite jusqu'à -15°C. Dans le cas de temps d'exposition de l'ordre de nanoseconde, c'est « gater » qui gère la durée d'exposition, alors que « shutter » est gardé ouvert tout au long de l'enregistrement.

Tableau 3.7. Modes et paramètres d'acquisition de la camera ICCD utilisés pour l'enregistrement des séries d'images de la plume.

mode d'acquisition	kinetic series
mode de déclenchement	externe
mode de lecture	full resolution image
vitesse de lecture	2 μ s / pixel
temps d'exposition (« gate width »)	5,4 ns *
pas d'acquisition (« gate step »)	10 ns
température de refroidissement	- 15°C

* la valeur réelle du temps d'exposition déterminée d'après le tableau de « gating characteristics » fourni par le fabricant (Annexe 2)

Chaque image dans la série correspond à une impulsion laser différente. Il était observé que après les premières 10 - 15 impulsions, la plume devient assez stable et reproductible, et alors l'enregistrement était toujours réalisé après cette période initiale.

Les échantillons métalliques ont été nettoyés et une surface fraîche d'échantillon a été utilisée pour l'enregistrement de chaque nouvelle série d'images.

Chapitre 4

Imagerie rapide du plasma : résultats et analyse

1. Evolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser	84
2. Structure de la plume d'ablation laser	85
2.1. Observation de la structure de la plume	85
2.2. Analyse	90
3. Dynamique de la plume d'ablation laser	92
3.1. Evolutions temporelles des dimensions de la plume	92
3.2. Vitesses d'expansion de la plume	95
3.3. Analyse	98
4. Influence de l'irradiance laser sur l'expansion de la plume	101
4.1. Evolutions temporelles des dimensions et vitesses d'expansion de la plume	103
4.2. Analyse	109
5. Influence de la composition de cible sur l'expansion de la plume	110
5.1. Evolutions temporelles des dimensions et vitesses d'expansion de la plume	110
5.2. Analyse	116

1. Evolution spatio-temporelle de la plume d'ablation laser

Une série d'images montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume-plasma induite par le faisceau laser au début de son expansion est présentée sur la figure 4.1. Les images représentent une vue transverse de la plume en expansion. L'ablation laser a été réalisée sur l'échantillon d'aluminium en utilisant un faisceau laser d'irradiance de $8,16 \text{ GW/cm}^2$. L'aluminium a été choisi pour ces mesures, parce que la plume-plasma formée au-dessus de l'échantillon était stable et reproductible même quand on a utilisé l'irradiance laser la plus élevée. Pour ces conditions expérimentales, la durée de vie du plasma est de l'ordre d'une vingtaine de microsecondes [Barthélemy'05a, Sabsabi'95], mais l'évolution de la plume a été

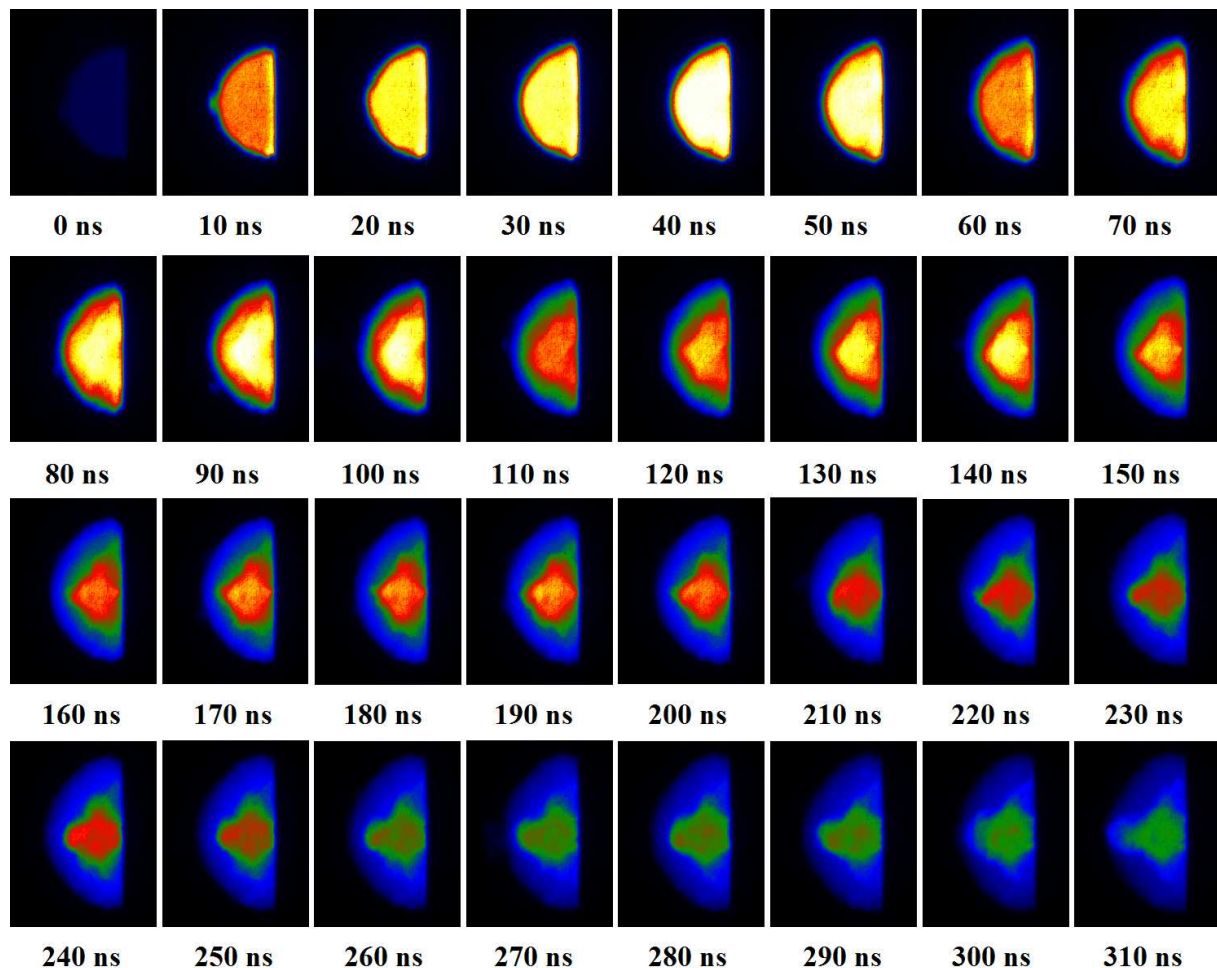


Fig. 4.1. Une série d'image montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume-plasma.

enregistrée uniquement pendant les premières 330 ns. L'instant de la vie du plasma correspondant au moment où la photographie a été prise est indiqué au-dessous de chaque image. Les dimensions réelles de chaque image dans la série sont 4,34 mm × 5,51 mm.

Les couleurs dans l'image sont associées à différents niveaux de gris. Elles indiquent des différentes gammes d'intensité du rayonnement. L'image est représentée avec 8 niveaux de couleur, mais en réalité le signal est codé sur 16 bits, c'est-à-dire 65 536 niveaux. La couleur blanche correspond à l'intensité maximale et la couleur noire à l'intensité minimale du rayonnement. L'échelle des couleurs était fixe lors de l'enregistrement d'une série d'images. Nous avons réglé le gain de façon à éviter la saturation des pixels.

La première image dans la série (Fig. 4.1 – l'instant 0 ns) peut être considérée comme le moment de la formation du plasma. Il faut quand même tenir compte que le temps d'exposition était 5,4 ns, ce qui représente l'incertitude de l'instant indiqué sous l'image. La faible intensité du rayonnement peut signifier que la plume-plasma s'est en fait formée entre 0 ns et 5,4 ns.

On peut voir sur la figure 4.1 que la forme de la plume-plasma est clairement hémisphérique, ce qui était déjà observé en [Barthélemy'05b], et que la plume se propage dans le même temps dans la direction radiale et longitudinale.

2. Structure de la plume d'ablation laser

2.1. Observation de la structure de la plume

Si on analyse la structure de la plume, dans le premier temps on peut observer deux régions : la partie centrale de la plume, la plus lumineuse, et la partie environnante, moins rayonnante. À ce stade, on ne peut pas dire avec certitude s'il existe deux régions de la plume ou bien simplement un gradient d'intensité du rayonnement du centre vers la périphérie de la plume. Pour étudier précisément la distribution d'intensité du rayonnement de la plume, il est nécessaire d'analyser directement les signaux obtenus par la camera ICCD (niveau de gris codé sur 16 bits).

La plume induite par faisceau laser a une symétrie axiale (Fig. 4.2). L'axe de symétrie de la plume correspond à la direction du faisceau laser. Nous avons étudié la distribution du rayonnement du plasma le long du diamètre et de l'axe de symétrie de la plume. Les figures 4.3 et 4.4 présentent respectivement un exemple de distribution d'intensité du rayonnement le

long du diamètre et de l'axe de symétrie de la plume. En ordonnée figure non pas l'échelle de niveau de gris (codé sur 16 bits), mais le logarithme décimal de ce signal, ce qui a comme effet de mettre en évidence la structure (avant de faire cette opération, nous avons soustrait le niveau de bruit de fond minimum). On peut alors nettement distinguer la structure de la plume composée de deux régions. Nous allons les dénommer *le cœur de la plume* et *la périphérie de la plume*. Le cœur est la partie centrale, la plus rayonnante, alors que la périphérie est la partie environnante, moins rayonnante. Dans la suite de ce travail, nous avons caractérisé les dimensions de ces deux zones par un changement de pente de la courbe d'intensité, comme nous pouvons l'observer sur les figures 4.3 et 4.4.

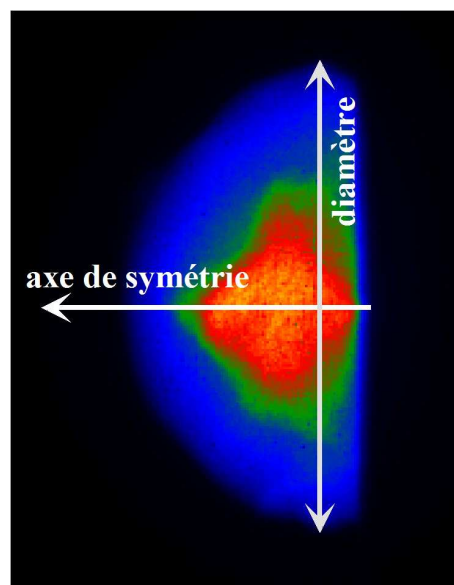


Fig. 4.2. Illustration : le diamètre et l'axe de symétrie de la plume.

Dimensions d'image : 4,34 mm $\times$ 5,51 mm

Deux régions concentriques et hémisphériques de la plume, ayant l'indice de réfraction différente, ont été aussi observées dans [Hauer'05] en utilisant l'ombroscopie par interférence. Même si les conditions expérimentales (longueur d'onde, énergie par impulsion, matériau) dans ce travail sont différentes des nôtres et même si les images ombroscopiques ont été enregistrées plus tard dans la vie du plasma, les structures des plumes du plasma en expansion sont très similaires. Ensuite, deux régions hémisphériques de la plume, correspondant aux densités d'électrons plus élevées, ont été observées en utilisant l'interférométrie à deux longueurs d'onde [Schittenhelm'98]. De plus, les photographies montrant l'expansion de la

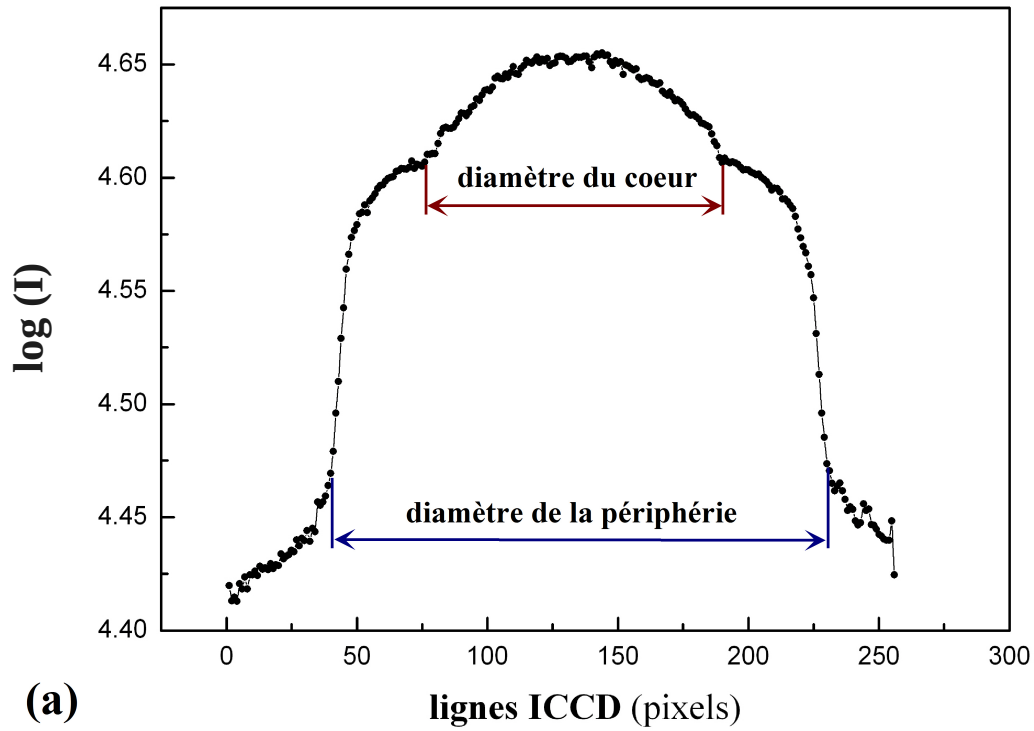


Fig. 4.3. Distribution d'intensité du rayonnement de la plume le long du diamètre.

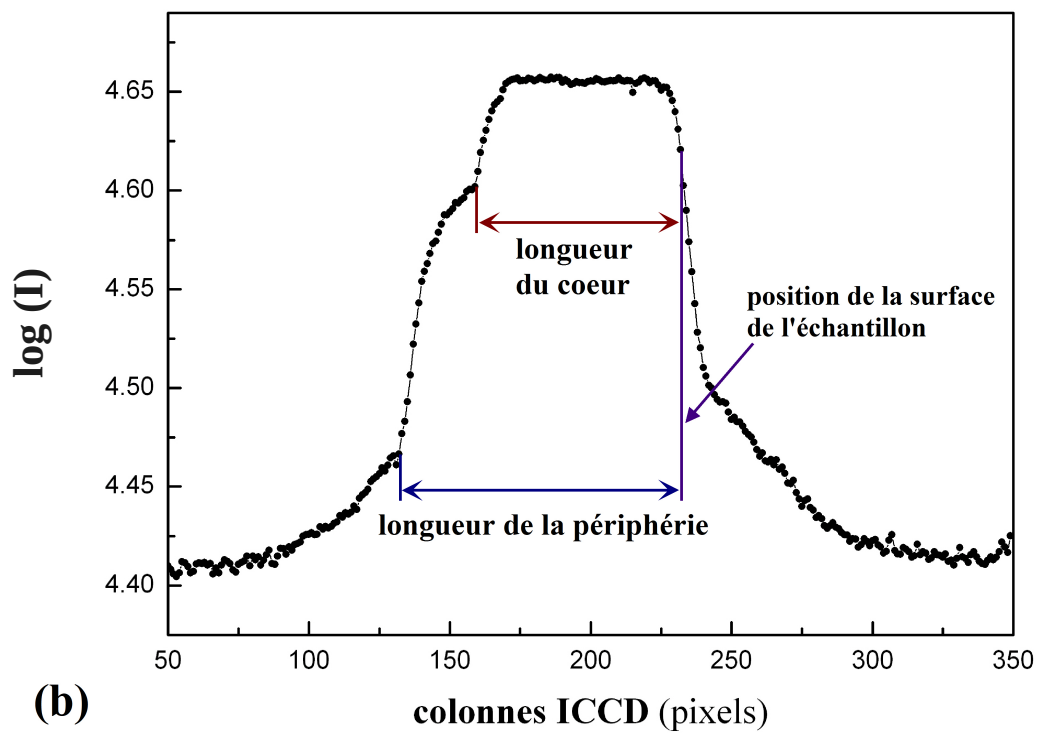


Fig. 4.4. Distribution d'intensité du rayonnement de la plume le long de l'axe de symétrie.

plume d'Al en [Barthélemy'05b], enregistrées sans et avec des filtres passe-bande (correspondant aux raies spectrales les plus intenses d'Al I et d'Al II), indiquent que les dimensions de la plume de matière ablatée sont plus petites que celles de la plume intégrale. Ces expériences confirment l'existence de la structure de la plume composée de différentes sous-structures.

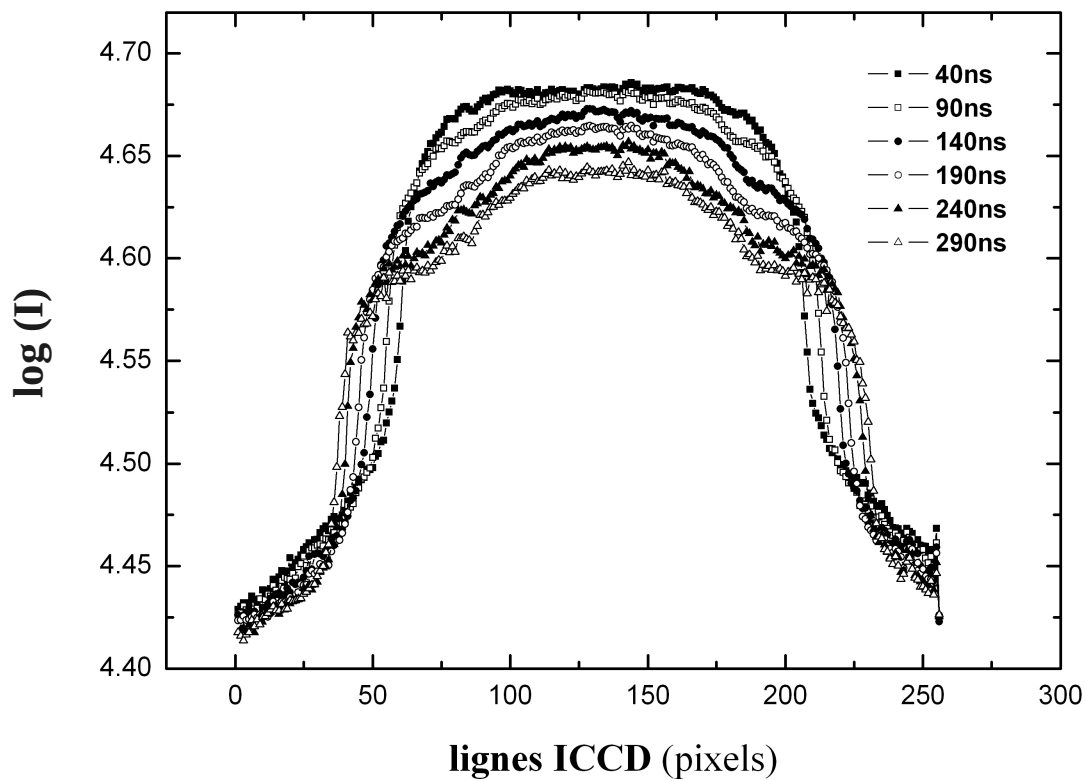


Fig. 4.5. Distribution d'intensité du rayonnement de la plume le long du diamètre de la plume aux différents instants de la vie du plasma.

La réduction apparente de la partie centrale de la plume avec le temps, qui peut être observée sur la figure 4.1, est due à la baisse d'intensité du rayonnement de la plume. On peut voir ceci sur la figure 4.5, montrant la distribution d'intensité du rayonnement de la plume le long du diamètre aux différents instants de la vie du plasma. Ici, on peut remarquer que la distinction entre le cœur et la périphérie de la plume devient plus prononcée avec le temps. De plus, on peut observer que les deux diamètres du cœur et de la périphérie augmentent avec le temps, même si l'augmentation du diamètre du cœur est moins remarquable que celle de la périphérie. D'un autre côté, suite à la diminution d'intensité du rayonnement de la plume, on constate une diminution de la partie de la plume caractérisée par une intensité du rayonnement supérieure à une certaine valeur, correspondant à une certaine couleur dans l'image. C'est la

cause de la réduction apparente de la partie centrale de la plume avec le temps, observée dans les images (Fig. 4.1). En réalité, le diamètre du cœur de la plume augmente avec le temps, ce qu'on peut observer sur les signaux obtenus directement de la camera ICCD correspondant aux différents instants de la vie du plasma (Fig. 4.5).

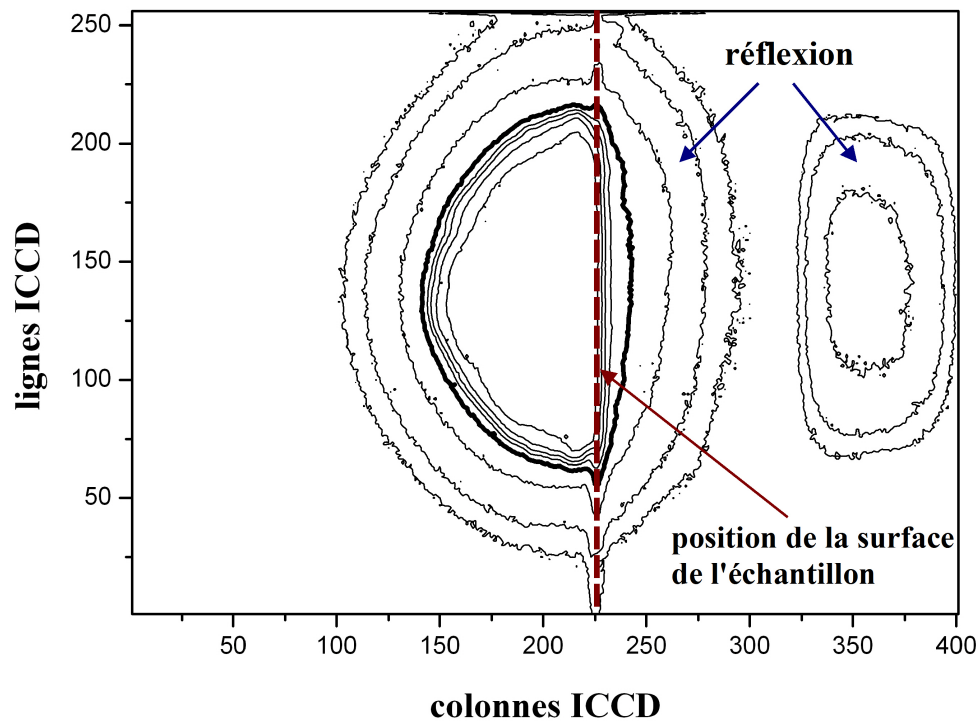


Fig. 4.6. Détermination de la surface de l'échantillon.

Les dimensions du cœur et de la périphérie de la plume, c'est-à-dire le diamètre et la longueur, peuvent être mesurées à partir du changement de pente dans la courbe. Les mesures du diamètre de la plume ont été réalisées à une distance de la surface de l'échantillon telle que ce diamètre est maximum. Comme on peut le voir sur les figures 4.2 et 4.6, le diamètre de la plume n'est pas maximum à la surface de l'échantillon, mais à une certaine hauteur.

Sur l'image enregistrée par la caméra, on observe la plume et son image réfléchi sur la surface de la cible. La position de la surface de l'échantillon a été déterminée à partir de l'image brute donnée par le logiciel de la caméra (Fig. 4.6). Chaque contour sur la figure 4.6 correspond à une différente valeur d'intensité du rayonnement. Les valeurs d'intensité les plus élevées, correspondant à la partie centrale de la plume, ont été exclues de l'image afin de avoir un meilleur aperçu de la distribution du rayonnement aux bords de la plume. Le contour épais représente le bord de la périphérie de la plume. Les contours extérieurs à la zone de la

périphérie de la plume correspondent aux intensités du rayonnement très faibles. Les distorsions des contours de faible intensité des deux cotes de la plume indiquent la position de la surface de l'échantillon. La droite pointillée représente la position de la surface de l'échantillon. Le rayonnement de faible intensité du côté droit de la droite pointillée correspond à la lumière réfléchie de la surface de l'échantillon d'aluminium et capturée par l'objectif.

2.2. Analyse

Barthélemy et al. [Barthélemy'05b] et *Sanginés et al.* [Sanginés'08] ont employé différentes techniques photographiques (Tableau 2.1) pour observer la distribution de la matière ablatée dans la plume-plasma. Les images enregistrées par *Barthélemy et al.* sont présentées sur la figure 4.7. La figure 4.7a correspond à l'émission intégrale de la plume-plasma (enregistrement sans filtre). La figure 4.7b représente l'émission des ions Al II : l'enregistrement a été réalisé en utilisant un filtre spectral (« bandpass »), qui ne transmet du rayonnement qu'autour de $\lambda = 280 \pm 5$ nm correspondant à une des plus intenses raies spectrales de Al II ($\lambda = 281,62$ nm). De la même façon, la figure 4.7c a été enregistrée en utilisant le filtre qui transmet à $\lambda = 396,1 \pm 1,5$ nm correspondant à une intense raie spectrale de Al I ($\lambda = 396,15$ nm), l'image représente donc l'émission des atomes Al I.

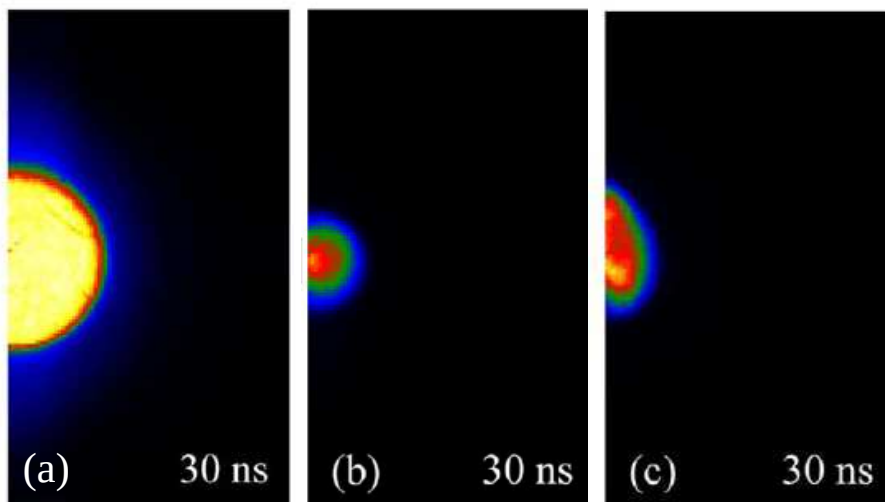


Fig. 4.7. Imagerie de la plume d'ablation laser à $t = 30$ ns: (a) émission intégrale de la plume, (b) émission des ions d'Al, (c) émission des atomes d'Al [Barthélemy'05b].

D'après les résultats de *Barthélemy et al.* [Barthélemy'05b] (Fig. 4.7) et *Sanginés et al.* [Sanginés'08], on peut nettement voir qu'au début de l'expansion de la plume, la matière ablatée est concentrée au centre de la plume et ses dimensions sont beaucoup plus petites que celle de la plume entière. Cela conduit à une explication possible de la structure de la plume observée aussi dans ce travail:

- ◆ *Le cœur de la plume* est la partie centrale de la plume contenant principalement de la matière ablatée chauffée et ionisée. Donc, les bords du cœur de la plume devraient correspondre à l'interface entre la matière ablatée et l'air.
- ◆ *La périphérie de la plume* correspond principalement à l'air environnant chauffé et ionisé d'abord par l'absorption du rayonnement laser et ensuite par la compression hydrodynamique.

Lors de l'impulsion laser, le gaz ambiant (l'air, dans notre cas), qui se trouve devant la plume-plasma, est chauffé et ionisé par les ondes de choc dans le cas de LSDW ou par le rayonnement thermique dans le cas de LSRW (Chapitre 1, section 4.2). Ainsi, le gaz ambiant est transformé en plasma lui-même, devenant capable d'absorber le rayonnement laser, ce qui augmente encore plus sa température et son degré d'ionisation. LSDW et LSRW sont des couches fines au front de la plume-plasma, qui absorbent une grande partie de l'énergie du faisceau laser, donc on peut considérer que les vitesses de leur propagation sont beaucoup plus élevées que celle de l'expansion de la matière ablatée. Ainsi, on peut supposer que déjà à la fin d'impulsion laser, il existe une structure dans la plume-plasma : la partie centrale (le cœur), qui contient principalement de la matière ablatée, et la partie environnante (la périphérie), qui correspond à l'air ambiant transformé en plasma et encore plus chauffé et ionisé par l'absorption du rayonnement laser. Après la fin d'impulsion laser, la plume-plasma exécute une expansion hydrodynamique dans l'atmosphère ambiante en comprimant l'air environnant devant elle. Cela peut conduire à l'échauffement et à l'ionisation de cet air environnant, en plus de l'air qui a été déjà transformé en plasma lors de l'impulsion laser.

Ce raisonnement est en accord avec des observations spectroscopiques de la plume induite sous des conditions expérimentales similaires [DeGiacomo'08], montrant que les atomes d'azote et d'oxygène provenant de l'air sont poussés devant la plume de matière ablatée en expansion, qui contient surtout des atomes et des ions du matériau de cible. Néanmoins, il faut tenir compte que l'interface entre la matière ablatée et l'air n'est pas si strictement définie, en raison de l'interpénétration intense entre la matière ablatée et l'air environnant lors de l'expansion de la plume, ce qui devient encore plus prononcé plus tard.

De plus, la distribution de la densité d'électrons dans la plume-plasma (Fig. 4.8) mesurée par *Schittenhelm et al.* [Schittenhelm'98] démontre qu'il existe deux régions caractérisées par des densités d'électrons élevées : le cœur et le front de la plume. On pourrait dire que cela correspond bien à la structure de la plume observée dans cette étude.

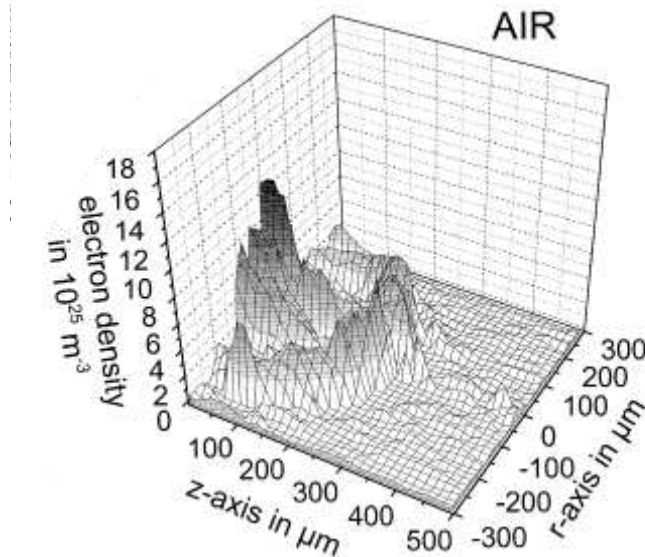


Fig. 4.8. Distribution de la densité d'électrons dans la plume-plasma formée lors de l'ablation laser [Schittenhelm'98].

3. Dynamique de la plume d'ablation laser

3.1. Evolutions temporelles des dimensions de la plume

Afin d'étudier la dynamique des deux régions de la plume, les évolutions temporelles du diamètre et de la longueur du cœur et de la périphérie de la plume ont été examinées. Des mesures des dimensions du cœur et de la périphérie de la plume ont été réalisées, comme montré sur les figures 4.3 et 4.4, à chaque instant enregistré de la vie du plasma. Les résultats sont présentés sur les figures 4.9 - 4.12. Chaque point expérimental sur le graphe a été déterminé comme la valeur moyenne de 10 mesures, et son incertitude correspond à l'écart type. Les fonctions exponentielles, données sur les graphes, sont les fonctions d'ajustement aux données expérimentales.

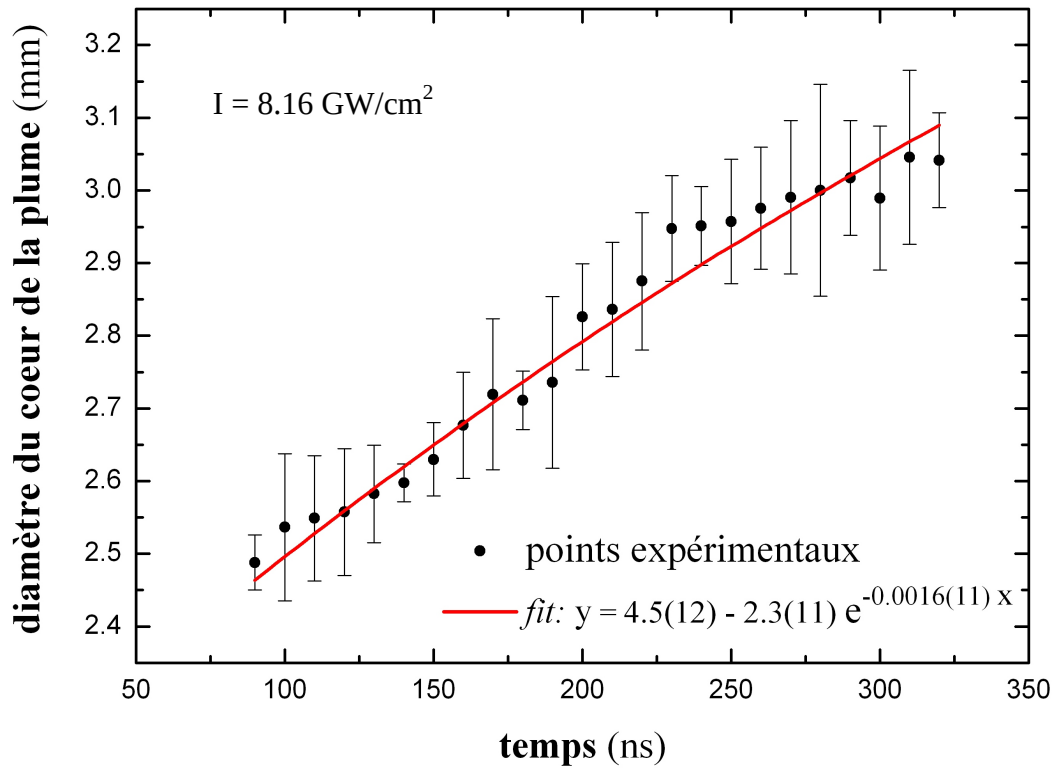


Fig. 4.9. Evolution temporelle du diamètre du cœur de la plume.

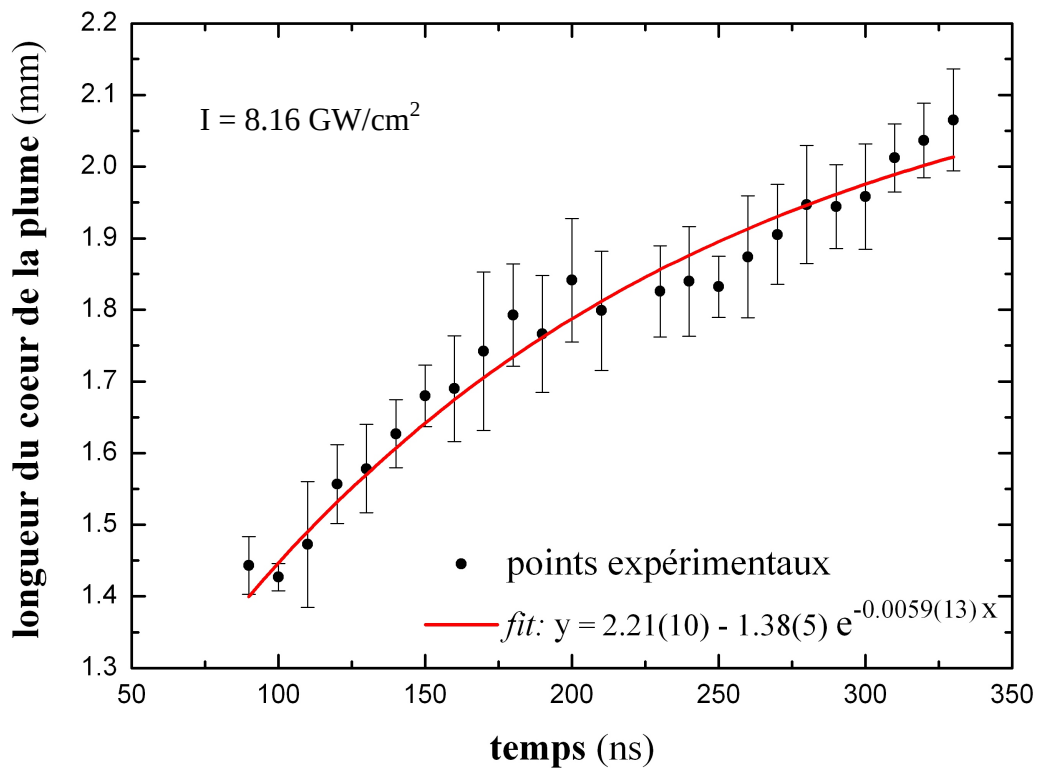


Fig. 4.10. Evolution temporelle de la longueur du cœur de la plume.

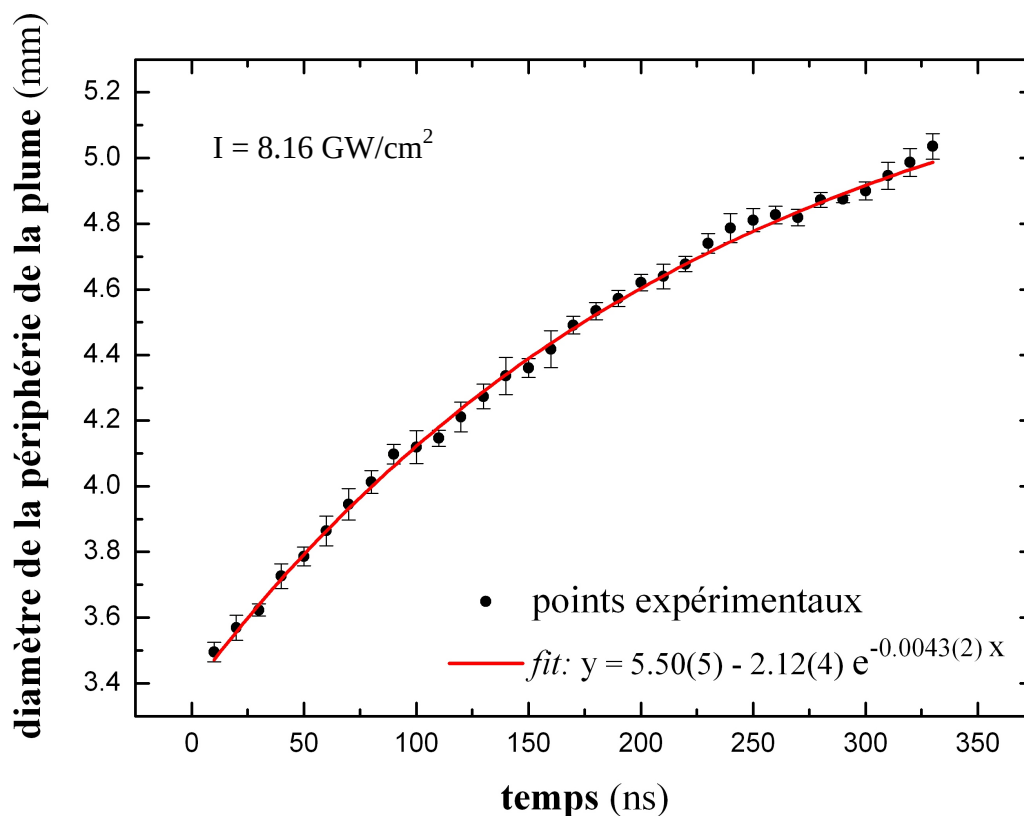


Fig. 4.11. Evolution temporelle du diamètre de la périphérie de la plume.

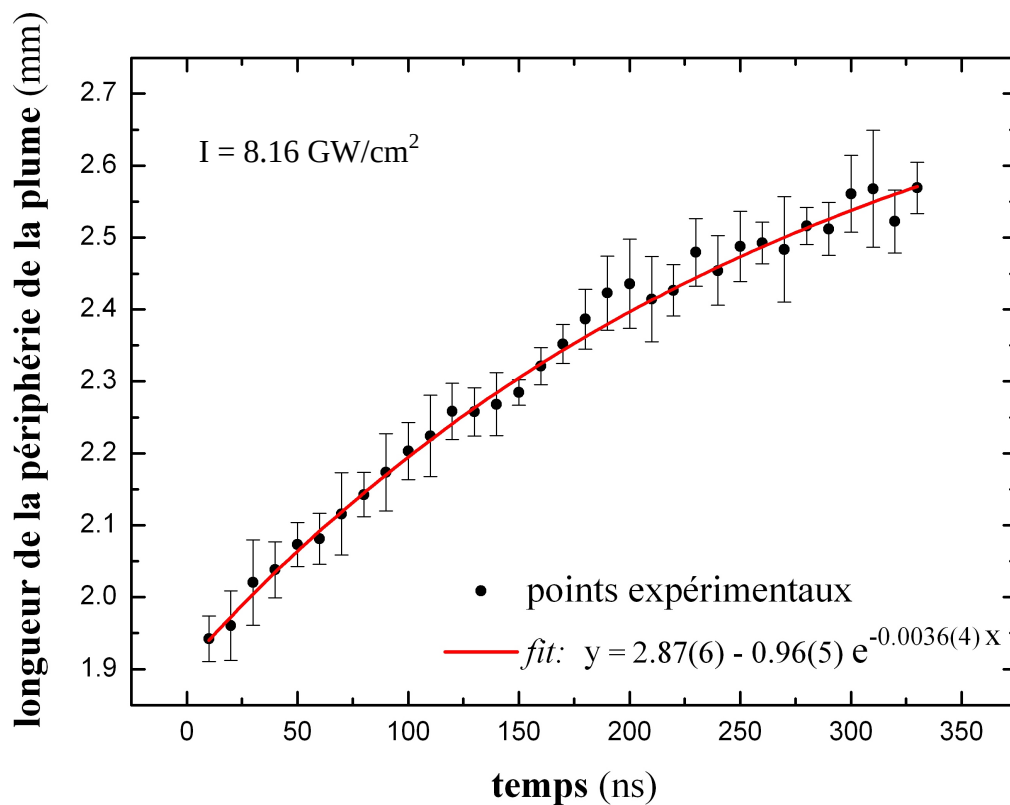


Fig. 4.12. Evolution temporelle de la longueur de la périphérie de la plume.

Comme on peut voir sur les figures 4.9 - 4.12, les dimensions du cœur et de la périphérie de la plume sont de l'ordre de grandeur de quelques millimètres. Ensuite, il est évident que l'expansion des deux régions de la plume est ralentie dans les deux directions : radiale et longitudinale. Ces expansions ralenties sont décrites par des fonctions d'ajustement exponentielles. On peut voir que les incertitudes des points expérimentaux sont plus élevées dans le cas du cœur (Figs. 4.9 et 4.10), ce qui est due aux fluctuations plus importantes aux bords du cœur de la plume. Dans le cas du cœur, il y a aussi des points expérimentaux qui manquent pour les premières 80 ns de la vie du plasma, car il n'était pas possible de distinguer le cœur de la périphérie de la plume à ces instants.

3.2. Vitesses d'expansion de la plume

Les vitesses d'expansion des deux régions de la plume dans la direction radiale et longitudinale ont été obtenues en différenciant les fonctions exponentielles ajustées aux points expérimentaux montrant l'évolution temporelle du rayon et de la longueur du cœur et de la périphérie de la plume. La figure 4.13 montre l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion radiale et longitudinale du cœur de la plume. La figure 4.14 montre l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion radiale et longitudinale de la périphérie de la plume.

Sur les figures 4.13 et 4.14, on peut voir que les vitesses d'expansion des deux régions de la plume, au début de son expansion mais après la fin d'impulsion laser, sont de l'ordre de grandeur de quelques milliers mètres par seconde. L'expansion de la plume sous ces conditions expérimentales se réalise donc avec des vitesses supersoniques. Les vitesses d'expansion de la plume (Fig. 4.13 et 4.14) démontrent une dépendance temporelle ayant la forme d'une décroissance exponentielle. Ce ralentissement important d'expansion de la plume apparaît du au fait que le plasma perd son énergie lors de l'expansion hydrodynamique et par rayonnement (Chapitre 1, section 4.3).

L'expansion du cœur de la plume est plus rapide dans la direction longitudinale que dans la direction radiale (Fig. 4.13). Une différence importante entre la vitesse d'expansion radiale et longitudinale du cœur existe au début de la vie du plasma, qui ensuite diminue avec le temps. Finalement, on peut dire que, sous ces conditions expérimentales, l'expansion de la matière ablatée est plus prononcée dans la direction longitudinale que dans la direction radiale. D'un autre côté, les vitesses d'expansion radiale et longitudinale de la périphérie de la plume ne diffèrent pas beaucoup (Fig. 4.14). Cependant, on peut remarquer que l'expansion

de la périphérie est légèrement plus rapide dans la direction radiale.

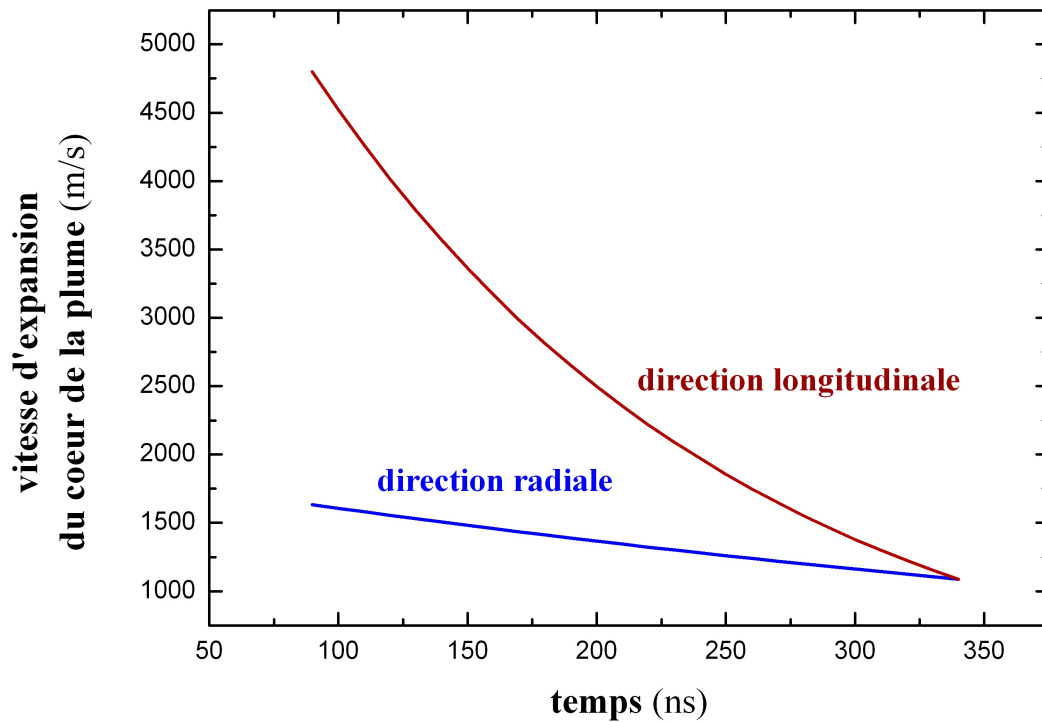


Fig. 4.13. Evolutions temporelles des vitesses d'expansion du cœur de la plume.

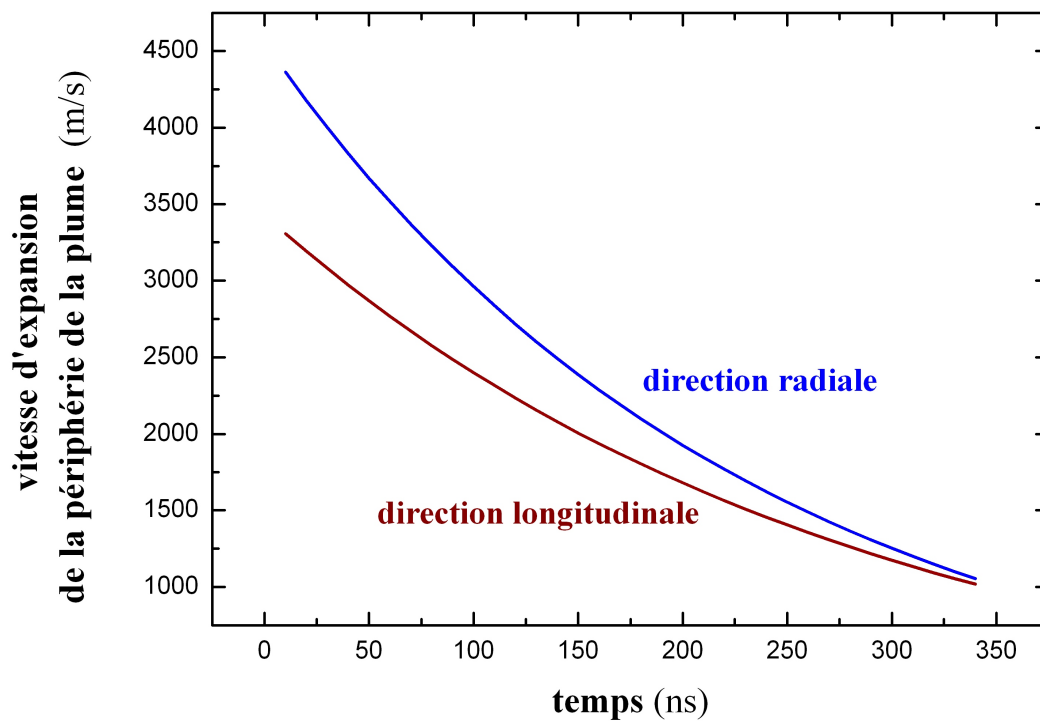


Fig. 4.14. Evolutions temporelles des vitesses d'expansion de la périphérie de la plume.

Les vitesses d'expansion de la plume, mesurées dans cette étude, sont du même ordre de grandeur que les valeurs obtenues par des mesures spectroscopiques réalisées dans [Barthélemy'05a, Wang'98]. *Barthélemy et al.* ont déterminé l'évolution temporelle de la longueur de la plume à partir des distributions de la densité d'électrons, qu'ils ont mesurées. En différentiant cette évolution temporelle, ils ont obtenu l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion de la plume (Fig. 4.15). *Wang et al.* ont utilisé la méthode de temps de vol (TOF) pour mesurer les vitesses moyennes des atomes d'Al le long de l'axe de symétrie de la plume. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 4.16.

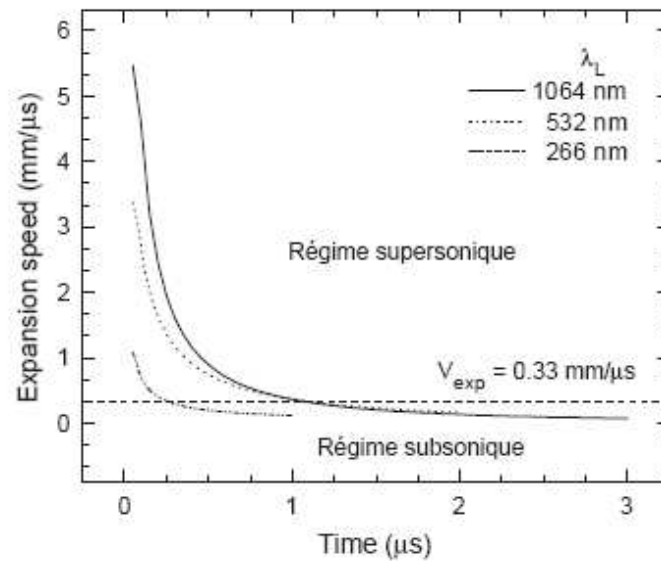


Fig. 4.15. Evolution temporelle de la vitesse d'expansion de la plume dans la direction longitudinale pour différentes longueurs d'onde du faisceau laser [Barthélemy'05a].

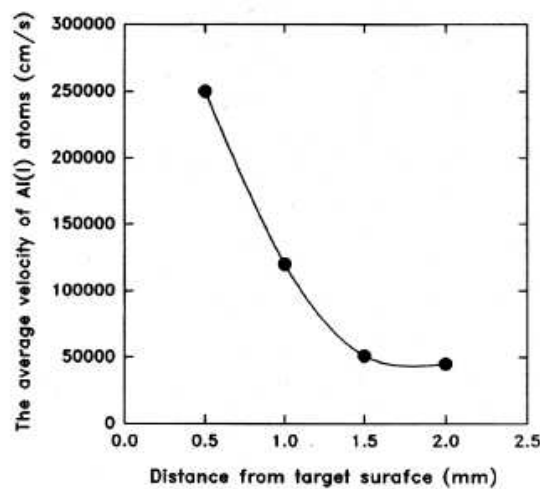


Fig. 4.16. Vitesse moyenne des atomes d'Al en fonction de la distance de la cible [Wang'98].

3.3. Analyse

L'expansion de la plume peut être décrite comme une expansion adiabatique ralentie à cause de la présence de l'air comprimé devant la plume.

Très souvent, le début d'expansion de la plume dans un gaz ambiant est décrit par le modèle d'onde de souffle (« blast wave model »), donné par Sedov [Zel'dovich'02]. D'après ce modèle, si une grande quantité d'énergie E est libérée dans un petit volume d'un gaz parfait de masse volumique ρ_0 dans un intervalle temporel très court, une onde de choc se forme à l'endroit où l'énergie a été libérée et se propage dans le gaz ambiant. On va considérer que le dépôt d'énergie s'est effectué en un point, donnant naissance à une onde de choc sphérique. Au début d'expansion de la plume, la pression derrière l'onde de choc est très importante, donc on peut négliger la pression du gaz ambiant. Sedov a proposé une relation liant le rayon de l'onde de choc sphérique R avec l'énergie déposée E , la masse volumique du gaz ambiant ρ_0 et le temps t :

$$R = \xi_0 \left(\frac{E}{\rho_0} \right)^{1/5} t^{2/5} \quad (4.1)$$

où ξ_0 est un coefficient qui est une fonction de l'indice adiabatique du gaz ambiant ($\xi_0 = 1.014$ pour $\gamma = 1.4$; $\xi_0 = 0.89$ pour $\gamma = 1.2$). La vitesse d'une telle onde de choc sphérique est :

$$v = \frac{dR}{dt} = \frac{2}{5} \xi_0 \left(\frac{E}{\rho_0} \right)^{1/5} t^{-3/5} \quad (4.2)$$

et la pression induite par la plume-plasma à la surface de la cible est :

$$p_c \approx \left(\frac{1}{\gamma + 1} \right) \rho v^2 \quad (4.3)$$

D'un autre côté, la suite d'expansion de la plume dans un gaz ambiant (surtout à une pression élevée) est plutôt décrite par le modèle de viscosité (« drag model ») [Harilal'03]. D'après ce modèle, l'expansion de la plume va s'arrêter après un certain temps suite aux

collisions entre les particules de la plume et celles du gaz ambiant. La longueur de la plume est donnée comme une fonction exponentielle du temps :

$$l = l_0 [1 - \exp(-\beta t)] \quad (4.4)$$

où l_0 est la distance d'arrêt d'expansion de la plume et β - le coefficient de ralentissement.

Dans notre cas, où la pression du gaz ambiant est très élevée (pression atmosphérique), on peut remarquer que l'évolution temporelle de la longueur de la plume (Fig. 4.12) suit une fonction exponentielle correspondant à celle du modèle de viscosité (eq. 4.4). Donc, on constate que le régime de modèle de viscosité s'établit très rapidement après la fin d'impulsion laser.

La longueur de la plume de l'ordre de grandeur du millimètre à 10 ns (Fig. 4.12) indique l'existence d'un régime d'expansion de la plume très violent lors de l'impulsion laser ($\tau = 5,1$ ns).

L'impact du faisceau laser sur la surface de la cible induit la fusion et l'évaporation rapide du matériau de la cible. Une fois la valeur critique de l'irradiance laser atteinte, un claquage apparaît dans le gaz au-dessus de la surface de la cible, conduisant à la formation d'un plasma. Ce plasma absorbe une grande quantité du rayonnement laser, étant encore plus chauffé et ionisé, et se propage dans la direction du faisceau laser avec une vitesse très élevée. L'absorption du rayonnement laser est réalisée par un de trois mécanismes d'onde d'absorption, précédemment décrits dans le Chapitre 1. Pour la valeur d'irradiance laser de $8,16 \text{ GW/cm}^2$, c'est le « laser-supported radiation wave (LSRW) » qui apparaît et qui est responsable de l'expansion de la plume lors de l'impulsion laser. La plume-plasma chauffée par ce mécanisme d'absorption du rayonnement laser est caractérisée par une température et une pression presque uniformes [Root'89]. La température est de l'ordre de grandeur de 10^5 K et dépend faiblement de l'irradiance laser $T_p \propto I^{0.18}$ [Root'89]. Ilyin *et al.* ont calculé les vitesses de propagation des différentes ondes d'absorption, LSRW et « fast ionization wave (FIW) », en fonction de l'irradiance laser employée [Ilyin'08]. Les résultats de ce calcul sont présentés sur la figure 4.17. On peut observer que les valeurs des vitesses calculées pour LSRW et FIW (equilibrium flux) sont de l'ordre de grandeur de 10^5 m/s pour les irradiances laser au-dessus de 5 GW/cm^2 .

D'après les mesures acoustiques réalisées en [Conesa'04], Conesa *et al.* suggèrent que la transition du régime LSDW au régime LSRW se produit vers $4,8 \text{ GW/cm}^2$. Ils ont observé un changement important dans la dépendance d'énergie acoustique de la plume d'irradiance

laser à partir de $4,8 \text{ GW/cm}^2$. Dans le même temps, cette hypothèse est en accord avec le changement du taux d'ablation de matière.

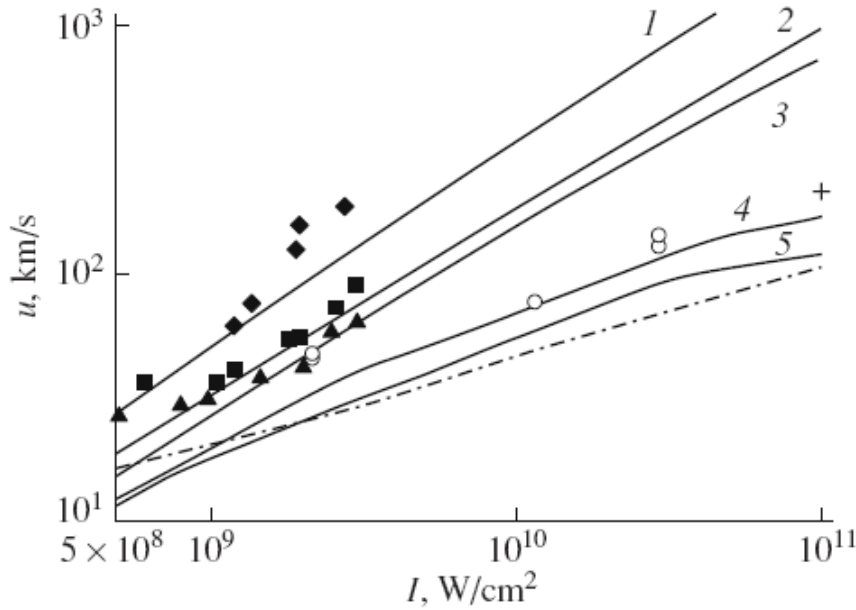


Fig. 4.17. Vitesses de propagation des ondes d'absorption en fonction de l'irradiance laser : courbes - calculs : (1) FIW (equilibrium flux), (2) LSRW (equilibrium flux), (3) FIW ($R_{las} = 0,15 \text{ cm}$), (4) FIW ($R_{las} = 0,01 \text{ cm}$), (5) LSRW ($R_{las} = 0,01 \text{ cm}$); points – données expérimentales [Ilyin'08].

En utilisant les résultats obtenus par imagerie, on peut estimer la vitesse moyenne d'expansion de la plume lors de l'impulsion laser, c'est-à-dire la vitesse moyenne de la propagation de l'onde d'absorption. En extrapolant la fonction d'ajustement sur la figure 4.12 jusqu'à $5,1 \text{ ns}$, on obtient la longueur de la plume à la fin de l'impulsion laser :

$$l_{pp} = 2,87 - 0,96 \exp(-0,0036 \cdot 5,1) = 1,927 \text{ mm} \quad (4.5)$$

L'extrapolation est justifiée dans ce cas, parce que les conditions ne changent pas à partir de $5,1 \text{ ns}$. Ensuite, en divisant cette valeur par la durée d'impulsion laser on obtient la vitesse moyenne d'expansion de la plume lors de l'impulsion laser :

$$v_{pp} = \frac{l_{pp}}{\tau} = \frac{1,927 \text{ mm}}{5,1 \text{ ns}} = 3,78 \cdot 10^5 \text{ m/s} \quad (4.6)$$

La valeur obtenue est de même ordre de grandeur que les vitesses de LSRW et FIW (equilibrium flux) calculées par Ilyin *et al.* (Fig. 4.17, courbes (1) et (2)). On peut dire qu'elle

est plus proche de la valeur de FIW. Par contre, il faut prendre en compte que cette valeur peut être légèrement surestimée, parce que dans le cas d'irradiance laser élevée, le claquage peut aussi bien se produire à une certaine distance au-dessus de la cible et pas forcément à la surface de la cible. Alors, dans ce cas, la plume, lors de l'impulsion laser, parcourt une distance plus petite que celle calculée par (4.5).

Par ailleurs, on peut calculer la distance que la matière ablatée parcourt lors de l'impulsion laser en extrapolant la fonction d'ajustement sur la figure 4.10 jusqu'à 5,1 ns :

$$l_{cp} = 2,21 - 1,38 \exp(-0,0059 \cdot 5,1) = 0,871 \text{ mm} \quad (4.7)$$

Alors, la vitesse moyenne d'expansion de la matière ablatée lors de l'impulsion laser est :

$$v_{cp} = \frac{l_{cp}}{\tau} = \frac{0,871 \text{ mm}}{5,1 \text{ ns}} = 1,71 \cdot 10^5 \text{ m/s} \quad (4.8)$$

Cette valeur est inférieure à celle obtenue par l'équation (4.6), mais toujours de même ordre de grandeur que les vitesses de LSRW et FIW calculées par *Ilyin et al.* (Fig. 4.17, courbes 1 et 2).

Finalement, à partir de nos résultats nous obtenons des estimations des vitesses d'expansion de la plume lors de l'impulsion laser qui sont en accord avec la théorie de LSRW ou FIW.

De plus, le fait que la plume-plasma à la fin de l'impulsion laser soit caractérisée par une température et une pression presque uniformes peut être la raison pour laquelle il n'était pas possible de distinguer le cœur de la périphérie de la plume pendant les premières 80 ns de la vie du plasma. On suppose que la distinction du cœur et de la périphérie de la plume après 80 ns peut être due aux différentes densités, propriétés atomiques et/ou différentes vitesses de refroidissement de la matière ablatée et de l'air.

4. Influence de l'irradiance laser sur l'expansion de la plume

Afin d'étudier l'influence de l'irradiance du faisceau laser sur l'expansion de la plume, des séries d'images supplémentaires ont été enregistrées. L'ablation laser a toujours été réalisée sur des échantillons d'aluminium, mais avec une valeur d'irradiance laser variable. Trois valeurs d'irradiance laser ont été utilisées : 8,16 GW/cm², 4,73 GW/cm² et 2,74 GW/cm². L'irradiance du faisceau laser a été changée modifiant la quantité d'énergie par

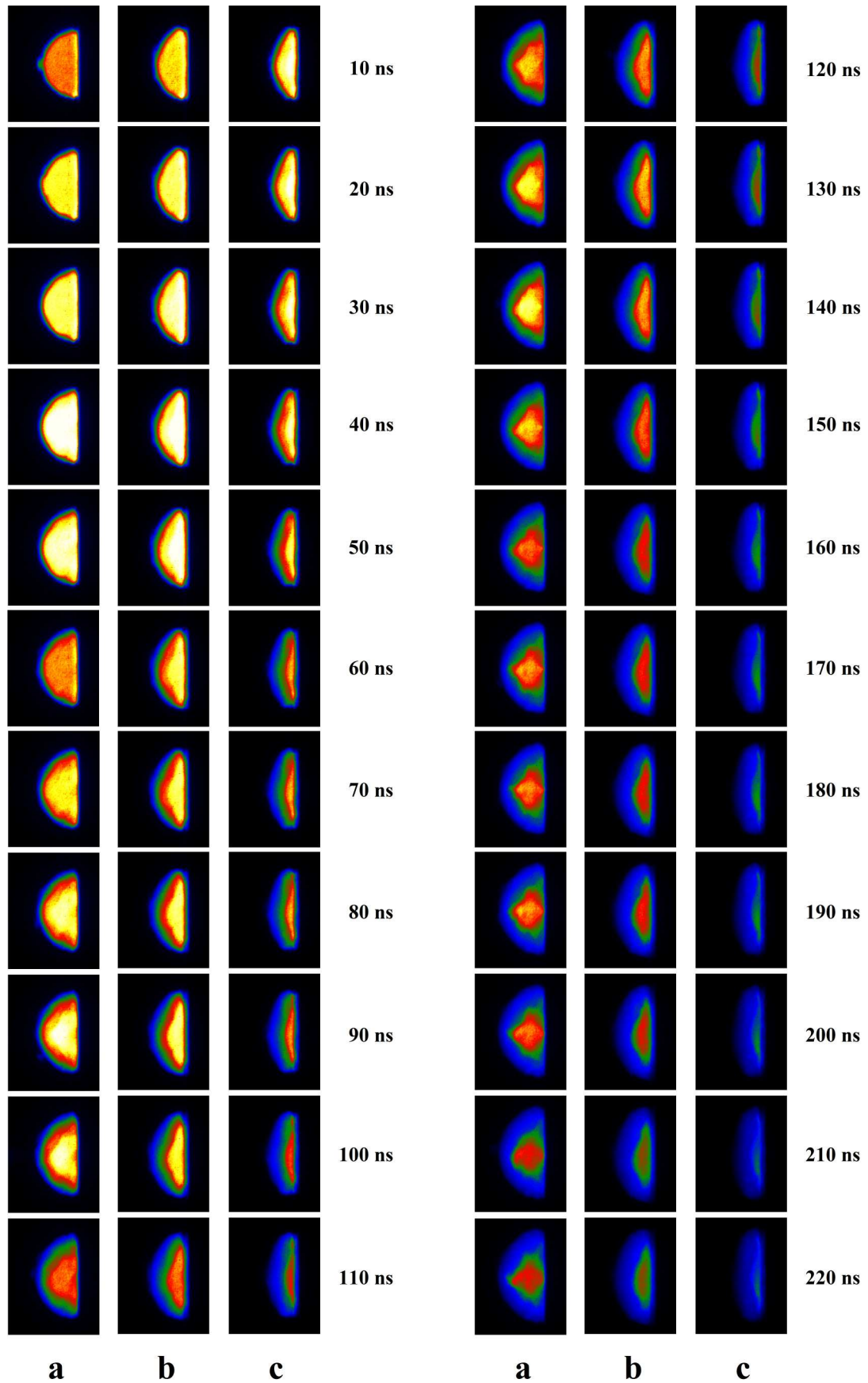


Fig. 4.18. Evolution spatio-temporelle de la plume-plasma induite par le faisceau laser d'irradiance (a) 8,16 GW/cm², (b) 4,73 GW/cm² et (c) 2,74 GW/cm².

impulsion. Sur la figure 4.18, trois séries montrant l'évolution spatio-temporelle de la plume-plasma correspondant aux irradiances laser de $8,16 \text{ GW/cm}^2$, $4,73 \text{ GW/cm}^2$ et $2,74 \text{ GW/cm}^2$ sont présentées. Sur cette figure, l'évolution spatio-temporelle de la plume est présentée avec un pas de 20 ns, mais les mesures ont été faites avec un pas de 10 ns.

Sur la figure 4.18, on peut nettement voir que la vie du plasma dure plus longtemps dans le cas d'irradiance laser plus élevée, ceci est dû à une énergie plus importante délivrée par l'impulsion laser. Dans le même temps, on peut remarquer une différence significative de la forme des plumes induites par des faisceaux laser d'irradiance différentes. Dans le cas de l'irradiance la plus élevée ($8,16 \text{ GW/cm}^2$), la plume-plasma a une forme hémisphérique. En revanche, dans le cas d'irradiances plus faibles ($4,73 \text{ GW/cm}^2$ et $2,74 \text{ GW/cm}^2$), les plumes sont beaucoup plus aplaties.

4.1. Evolutions temporelles des dimensions et vitesses d'expansion de la plume

Les évolutions temporelles des dimensions des plumes induites par des faisceaux laser d'irradiances différentes ont été comparées afin d'étudier l'influence de l'irradiance laser sur l'expansion de la plume plus profondément. Chaque graphe montrant l'évolution temporelle d'une dimension de la plume est suivi par un graphe montrant l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion de la plume correspondante.

Sur la figure 4.19, les évolutions temporelles du diamètre du cœur de la plume pour des irradiances laser de $8,16 \text{ GW/cm}^2$, $4,73 \text{ GW/cm}^2$ et $2,74 \text{ GW/cm}^2$ sont présentées. On peut nettement voir que le diamètre du cœur de la plume est plus important dans le cas d'irradiance laser plus faible. Cela peut être dû au fait que l'aire de la tache focale du faisceau laser a été plus importante dans le cas d'irradiance laser plus faible (Tableau 3.6). Sur ce graphe, des données expérimentales pour l'irradiance $2,74 \text{ GW/cm}^2$ manquent, parce que dans ce cas il n'était pas possible de distinguer le cœur de la périphérie de la plume le long de diamètre. Sur la figure 4.20, on peut voir que la vitesse d'expansion radiale du cœur est plus importante dans le cas d'irradiance laser plus faible, mais dans le même temps elle diminue plus rapidement et après 300 ns devient très proche de la vitesse correspondante à l'irradiance laser la plus élevée.

Les figures 4.21 et 4.22 présentent respectivement les évolutions temporelles de la longueur et de la vitesse d'expansion longitudinale du cœur de la plume pour les différentes valeurs d'irradiance laser. On voit que la longueur du cœur augmente avec l'irradiance laser

(Fig. 4.21), mais on peut aussi remarquer que les évolutions temporelles sont très différentes. Dans le cas d'irradiance laser de $8,16 \text{ GW/cm}^2$, la longueur du cœur suit une fonction exponentielle due le temps. Par contre, pour les deux irradiances plus faibles, la longueur du cœur est presque constante, ce qui signifie que le cœur a atteint sa limite d'expansion. L'arrêt d'expansion de la plume a été déjà observé par *Aguilera et al.* [Aguilera'02]. Au niveau des vitesses, celle correspondant à l'irradiance la plus élevée ($8,16 \text{ GW/cm}^2$), étant très importante au début ($\approx 6000 \text{ m/s}$), démontre une décroissance exponentielle, alors que les deux autres sont très faibles ($\approx 200 \text{ m/s}$) et constantes. On peut même remarquer que dans le cas d'irradiance de $2,74 \text{ GW/cm}^2$, la vitesse est négative, ce qui signifie que le cœur se réduit légèrement.

Les figures 4.23 et 4.24 présentent respectivement les évolutions temporelles du diamètre et de la vitesse d'expansion radiale de la périphérie de la plume pour les différentes valeurs d'irradiance laser. Les diamètres de la périphérie de la plume sont très proches pour toutes les valeurs d'irradiance laser utilisées, ce qui conduit à une situation similaire au niveau des vitesses d'expansion radiale.

Sur les Figures 4.25 et 4.26, on peut voir les évolutions temporelles de la longueur et de la vitesse d'expansion longitudinale de la périphérie de la plume pour les différentes valeurs d'irradiance laser. La longueur de la périphérie augmente avec l'augmentation d'irradiance laser et son évolution temporelle suit une fonction exponentielle pour toutes les valeurs d'irradiance laser utilisées. Ici, on peut remarquer que dans les cas des irradiances laser de $4,73 \text{ GW/cm}^2$ et $2,74 \text{ GW/cm}^2$, même si le cœur de la plume a atteint sa limite d'expansion, la périphérie continue son expansion dans la direction longitudinale.

Au niveau des vitesses, on peut remarquer que les vitesses d'expansion de la périphérie sont un peu plus élevées dans la direction radiale que dans la direction longitudinale (Figs. 4.24 et 4.26) et que dans les deux cas la vitesse augmente légèrement avec l'augmentation de l'irradiance laser.

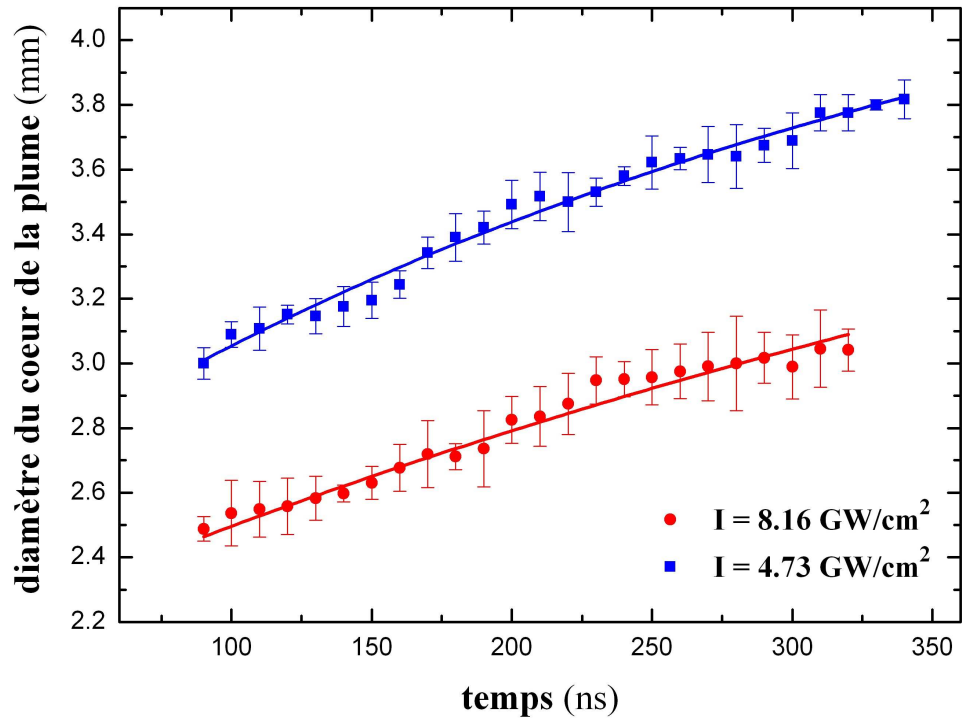


Fig. 4.19. Evolution temporelle du diamètre du cœur de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

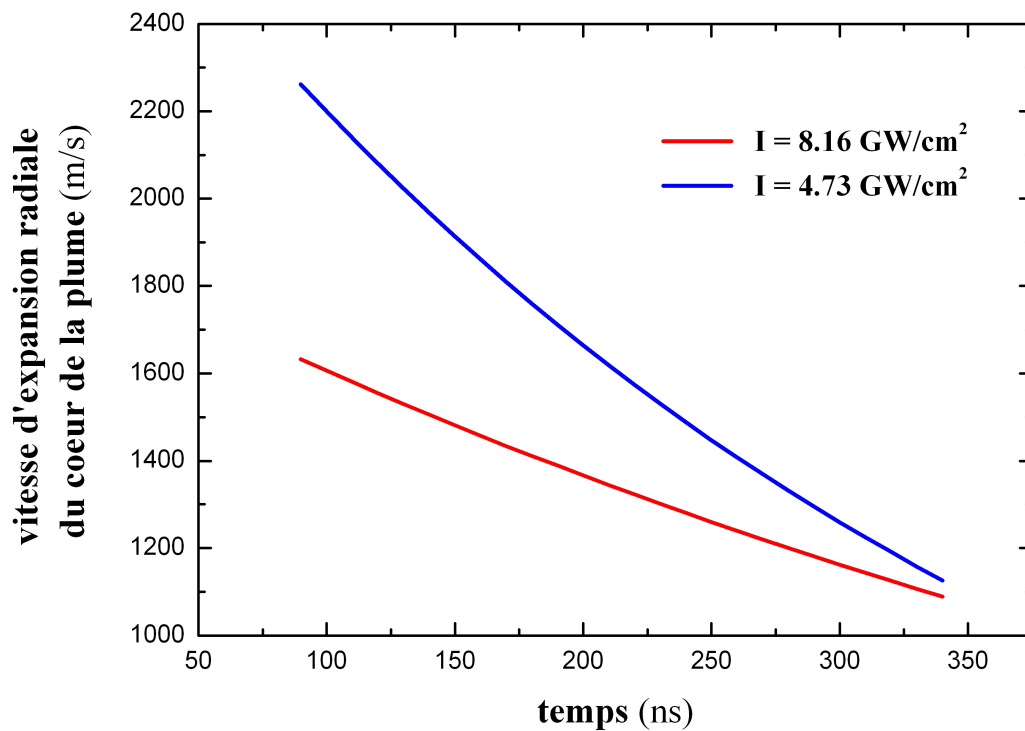


Fig. 4.20. Vitesse d'expansion radiale du cœur de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

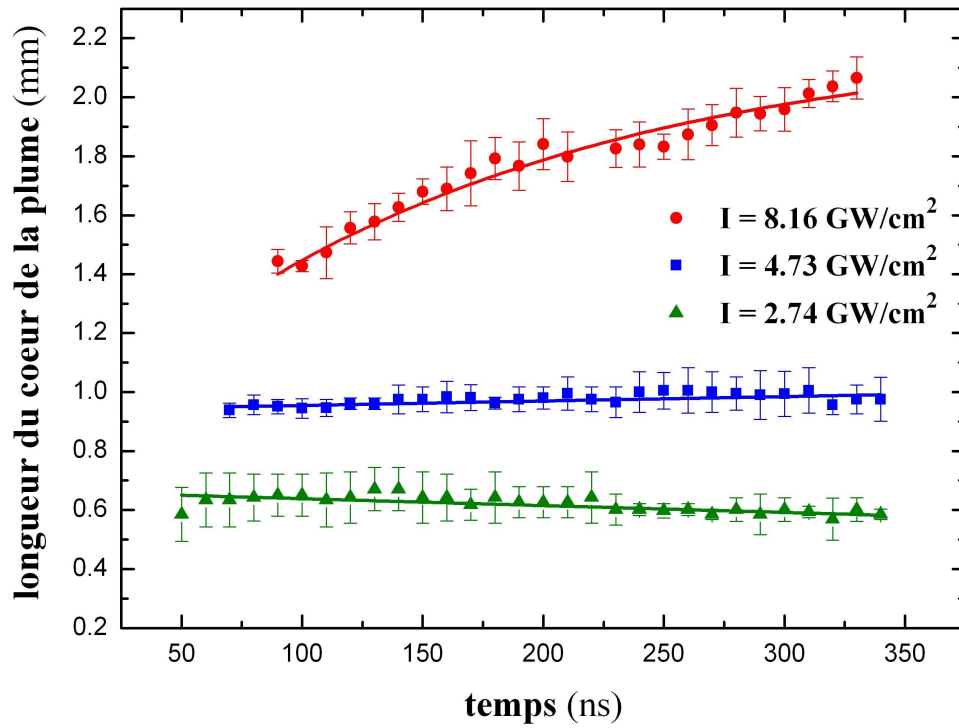


Fig. 4.21. Evolution temporelle de la longueur du cœur de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

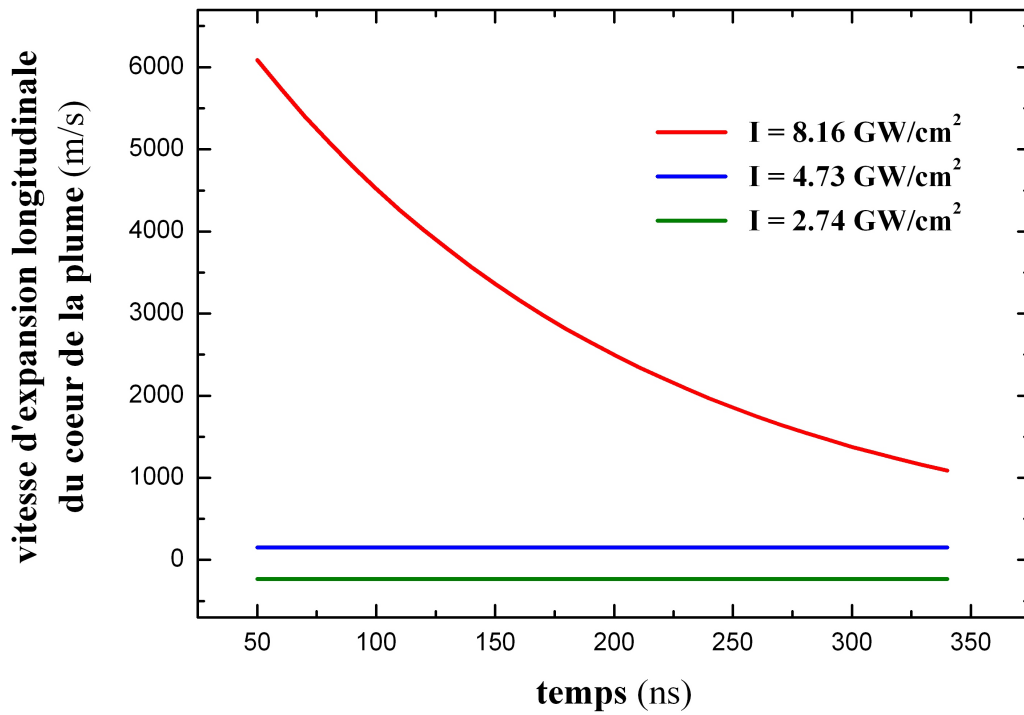


Fig. 4.22. Vitesse d'expansion longitudinale du cœur de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

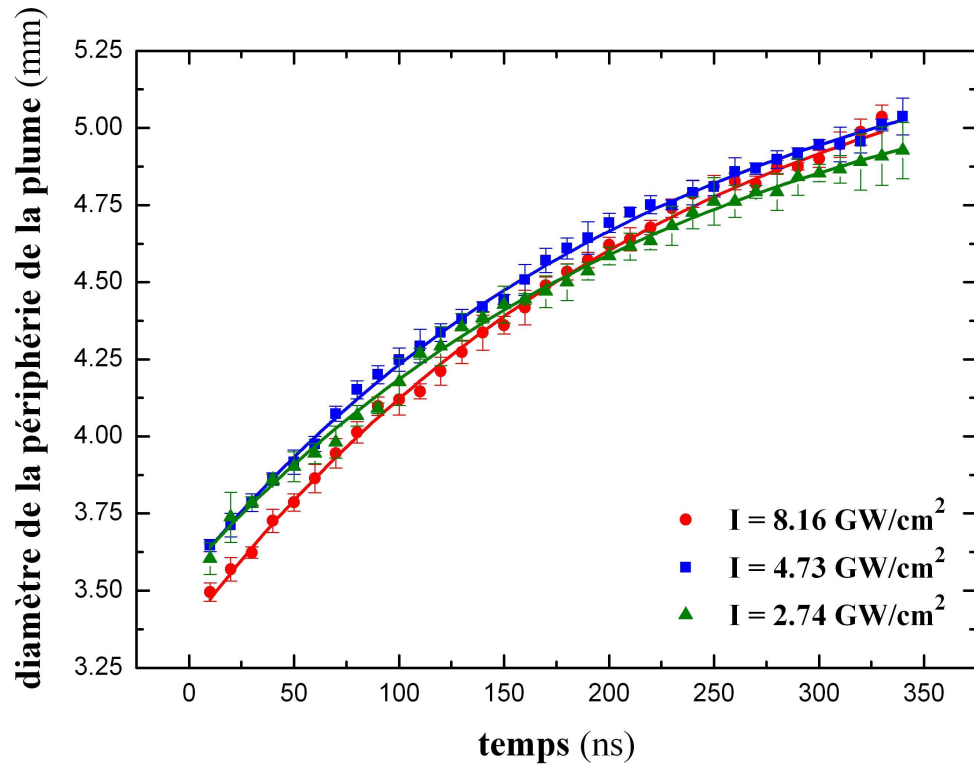


Fig. 4.23. Evolution temporelle du diamètre de la périphérie de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

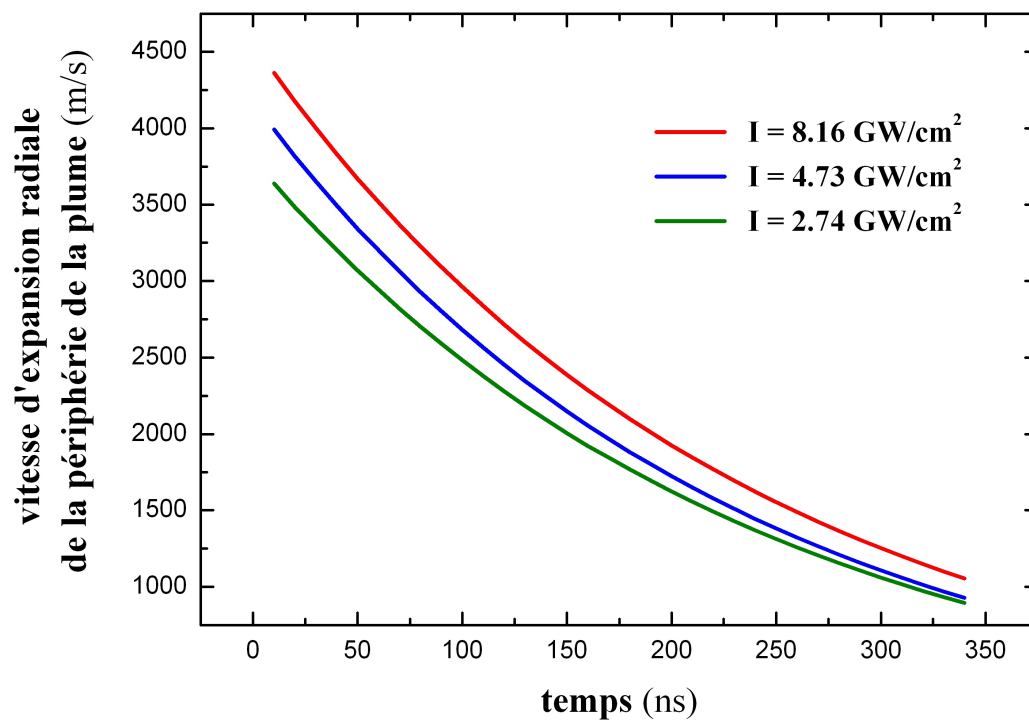


Fig. 4.24. Vitesse d'expansion radiale de la périphérie de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

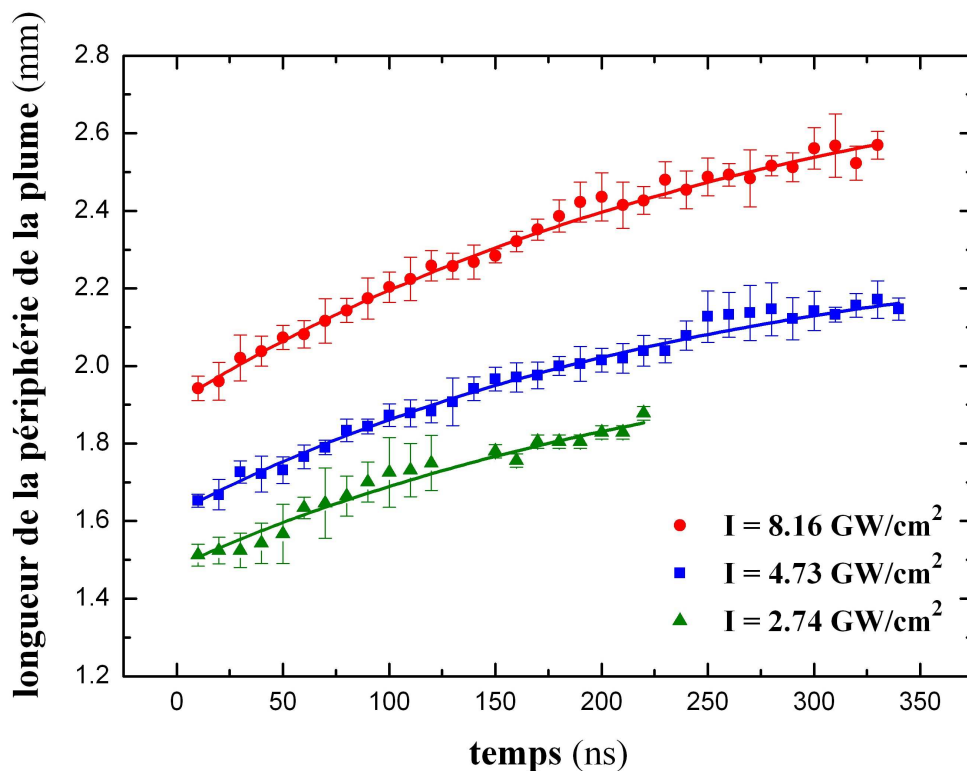


Fig. 4.25. Evolution temporelle de la longueur de la périphérie de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

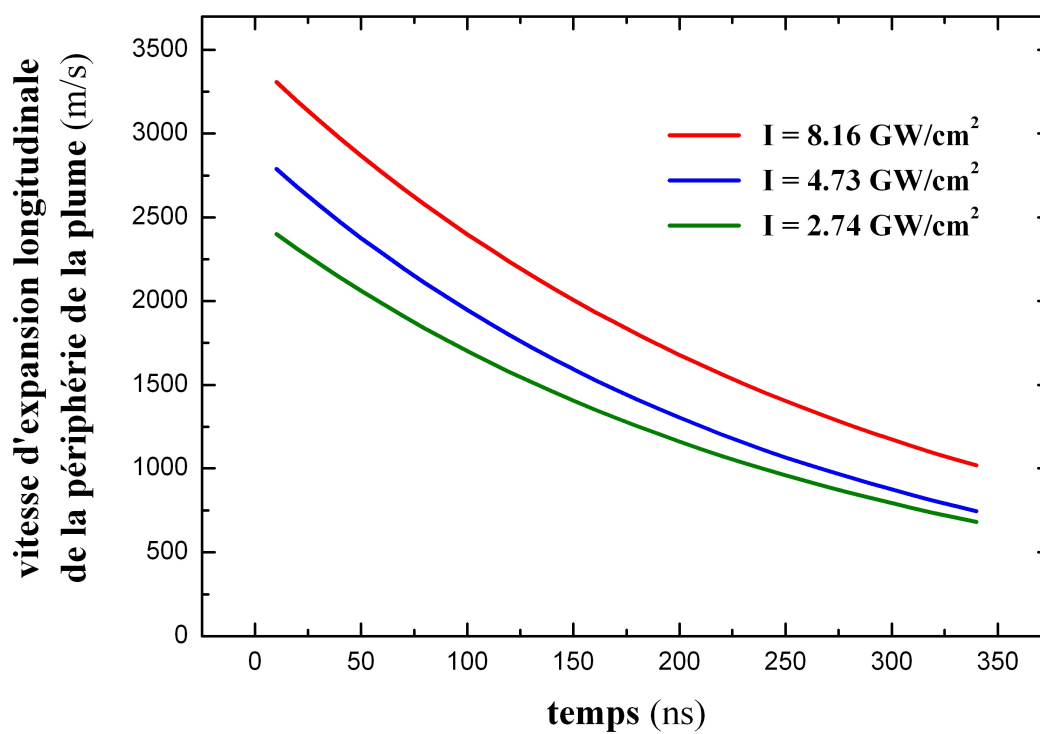


Fig. 4.26. Vitesse d'expansion longitudinale de la périphérie de la plume pour différentes valeurs d'irradiance laser.

4.2. Analyse

Un faisceau laser ayant une irradiance plus élevée délivre plus d'énergie à la surface de la cible, ainsi qu'à la plume-plasma formée au-dessus d'elle. Une température de la surface de la cible plus élevée conduit à un taux d'évaporation du matériau plus important [Jeong'98]. Dans le même temps, la plume-plasma absorbe une quantité du rayonnement laser plus importante, augmentant ainsi son énergie interne. Après la fin d'impulsion laser, la plume contenant la matière ablatée et ayant une énergie interne plus importante est capable de pousser l'air environnant assez loin devant elle-même afin de parvenir à une forme hémisphérique. Dans le cas d'irradiations laser plus faibles, la plume de la matière ablatée a moins d'énergie, donc sa limite d'expansion est atteinte plus près de la surface de la cible. Dans ce cas, l'expansion dans la direction radiale prévaut sur l'expansion longitudinale, et donc le cœur de la plume reste « attaché » à la surface de la cible, ayant plutôt une forme de disque (Fig. 4.18).

Ce changement significatif du comportement du cœur de la plume en fonction de l'irradiance du faisceau laser pourrait aussi provenir des différents mécanismes de l'onde d'absorption du rayonnement laser, décrits dans le Chapitre 1. Comme déjà mentionné, *Conesa et al.* ont suggéré que la transition du régime LSDW au régime LSRW se produit à l'irradiance laser de $4,8 \text{ GW/cm}^2$ [Conesa'04]. Ça peut être aussi une explication de nos résultats (Fig. 4.21 et 4.22). LSRW est plus « violent » et elle se propage avec une vitesse d'un ordre de grandeur plus élevée que celle de LSDW [Ilyin'08], ce qui peut conduire à des expansions de la plume aussi différentes après la fin d'impulsion laser.

Nous avons observé que la longueur de la périphérie de la plume est significativement influencée par l'irradiance laser (Fig. 4.25). Cela est dû au fait que l'expansion de la plume dans la direction longitudinale est entretenue par le faisceau laser jusqu'à la fin d'impulsion laser. Par contre, on peut remarquer que le coefficient exponentiel ne varie pas beaucoup avec l'irradiance laser. Ce coefficient dépend surtout de la pression du gaz ambiant [Harilal'03].

D'un autre côté, le diamètre de la périphérie de la plume n'est pas influencé par l'irradiance laser (Fig. 4.23), dû au fait que l'expansion de la plume dans la direction radiale n'est pas entretenue par le faisceau laser. Alors, l'expansion de la plume dans la direction radiale ralentie à cause de la présence du gaz ambiant.

5. Influence de la composition de cible sur l'expansion de la plume

Afin d'étudier l'influence de la composition de la cible sur l'expansion de la plume, des essais supplémentaires ont été réalisés en utilisant différents échantillons métalliques. Dans cette expérience, les échantillons d'aluminium, titane et fer commercialement purs ont été utilisés. Ces matériaux ont été choisis pour cette étude en raison de leur application fréquente dans l'industrie, ainsi que pour leurs propriétés physiques différentes. Les propriétés physiques pertinentes de ces matériaux sont données dans le Chapitre 3 (Tableau 3.3).

5.1. Evolutions temporelles des dimensions et vitesses d'expansion de la plume

L'ablation laser des échantillons d'Al, Ti et Fe a été réalisée en utilisant le faisceau laser d'irradiance de $I = 4,73 \text{ GW/cm}^2$. Les graphes montrant la comparaison des évolutions temporelles des dimensions du cœur et de la périphérie de la plume formée lors de l'ablation de cibles d'Al, Ti et Fe sont présentés sur les figures 4.27, 4.29, 4.31 et 4.33. Chaque point expérimental est la valeur moyenne de 10 mesures, et son incertitude correspond à l'écart type. Des fonctions exponentielles ont été ajustées aux données expérimentales. Chaque graphe est suivi d'un graphe montrant l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion correspondante de la plume.

Si on compare les résultats obtenus, on peut remarquer que les valeurs du diamètre du cœur de la plume d'Al, Ti et Fe sont assez différentes (Fig. 4.27), alors que les valeurs du diamètre de la périphérie sont très similaires pour tous les trois matériaux utilisés (Fig. 4.31). Le cœur de la plume de Ti a le diamètre le plus important, alors que le cœur de la plume de Fe a le diamètre le plus petit. D'un autre côté, si on observe la longueur du cœur et de la périphérie de la plume (Figs. 4.29 et 4.33), on peut voir que la plume de Fe atteint la longueur la plus importante, alors que la plume de Ti est la plus courte. Pour résumer, le cœur de la plume de Fe est caractérisé par un diamètre plus petit et une longueur plus importante, alors que dans le cas de Ti c'est l'inverse. On pourrait dire que la plume de Fe est plutôt « détachée » de la surface de la cible, alors que la plume de Ti est plutôt « attachée ».

Les évolutions temporelles de la vitesse d'expansion radiale du cœur de la plume de Ti et de Fe sont relativement similaires, si ce n'est que la vitesse d'expansion est légèrement plus

élevée dans le cas de Ti (Fig. 4.28), d'où une divergence entre leurs valeurs de diamètre (Fig. 4.27). Dans la direction longitudinale, la plume de Ti manifeste un changement de vitesse plus accentué que la plume de Fe (Fig. 4.30).

Concernant la plume d'Al, ses dimensions ne diffèrent pas beaucoup de celles de la plume de Fe ou de Ti. Néanmoins, il existe une différence au niveau des fonctions d'évolution temporelle, particulièrement pour la longueur du cœur de la plume (Fig. 4.29). Le cœur de la plume semble d'avoir plus ou moins atteint sa limite d'expansion dans la direction longitudinale, c'est-à-dire son expansion a extrêmement ralenti, d'où une vitesse d'expansion très faible (Fig. 4.30). Par ailleurs, la plume de Fe et celle de Ti, même si elles manifestent une expansion ralentie, elles sont toujours loin de ses limites d'expansion.

La périphérie de la plume a, à peu près, le même diamètre pour les trois métaux utilisés (Fig. 4.31) et les vitesses d'expansion radiale sont très proches (Fig. 4.32). Dans la direction longitudinale, Ti et Fe manifestent encore une similarité au niveau des évolutions temporelles de la dimension et de la vitesse d'expansion (Figs. 4.33 et 4.34).

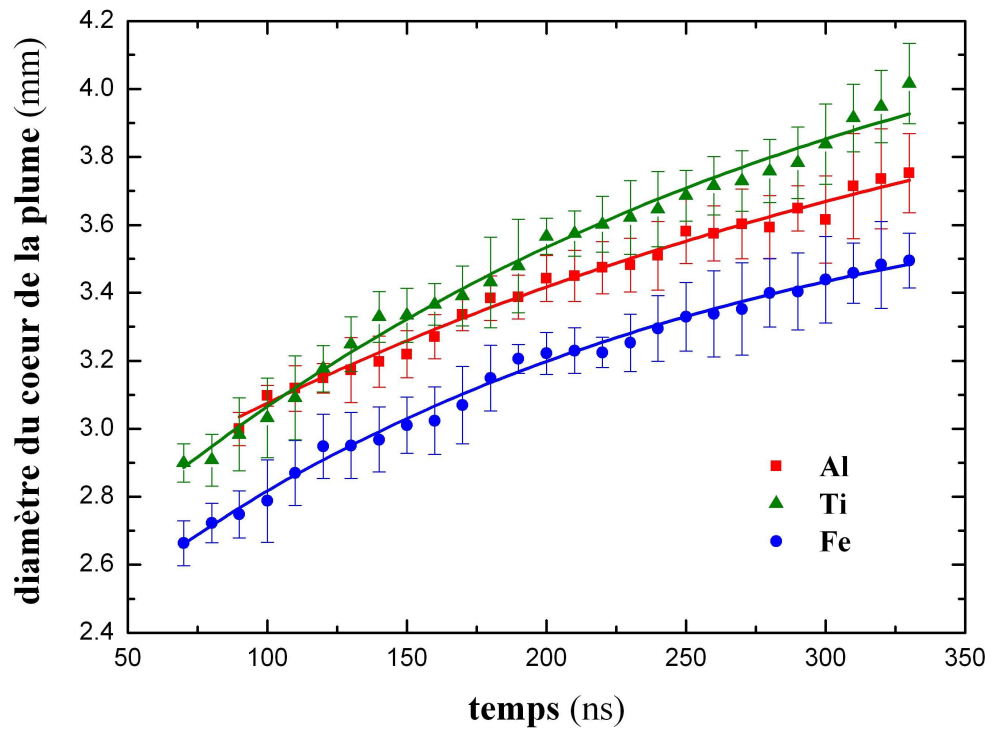


Fig. 4.27. Evolution temporelle du diamètre du cœur de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

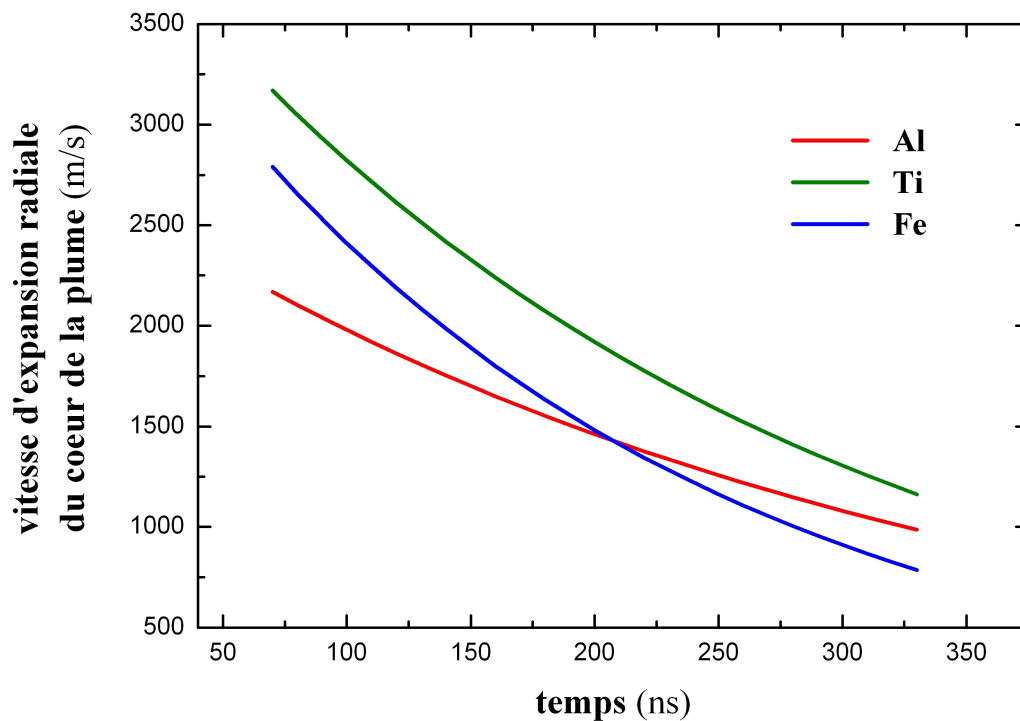


Fig. 4.28. Vitesse d'expansion radiale du cœur de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

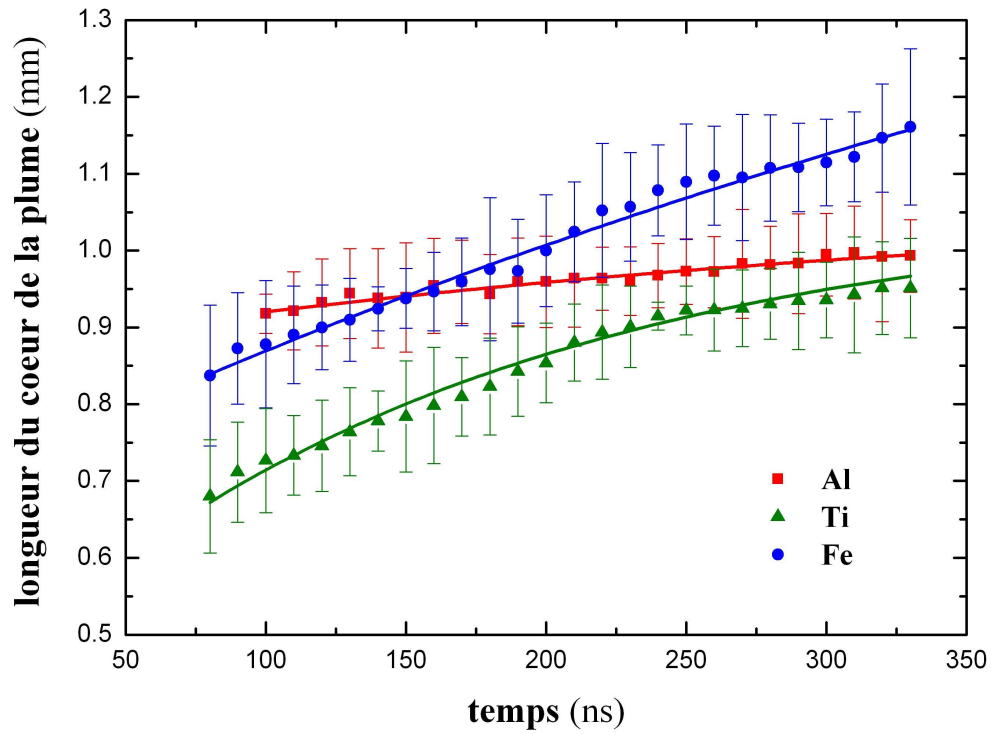


Fig. 4.29. Evolution temporelle de la longueur du cœur de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

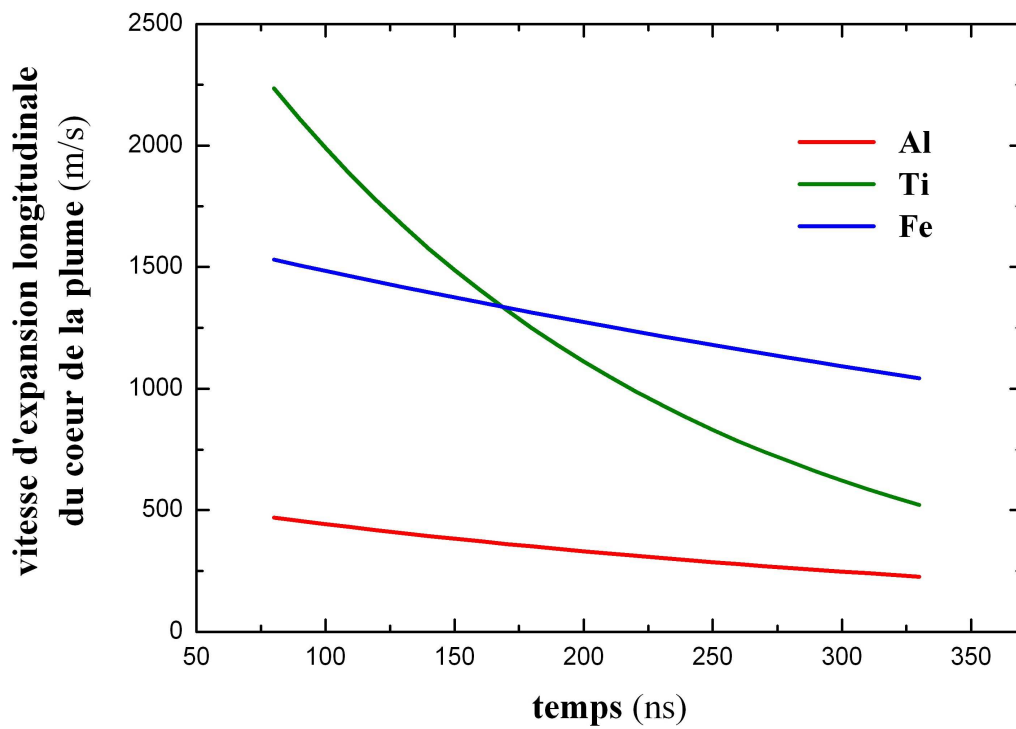


Fig. 4.30. Vitesse d'expansion longitudinale du cœur de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

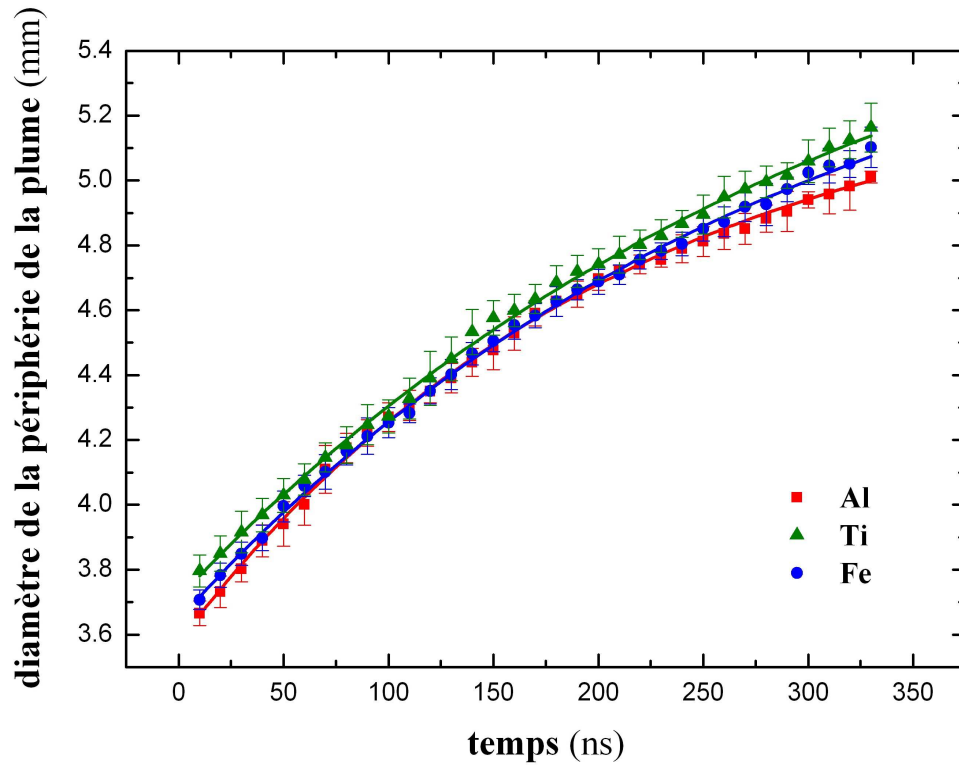


Fig. 4.31. Evolution temporelle du diamètre de la périphérie de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

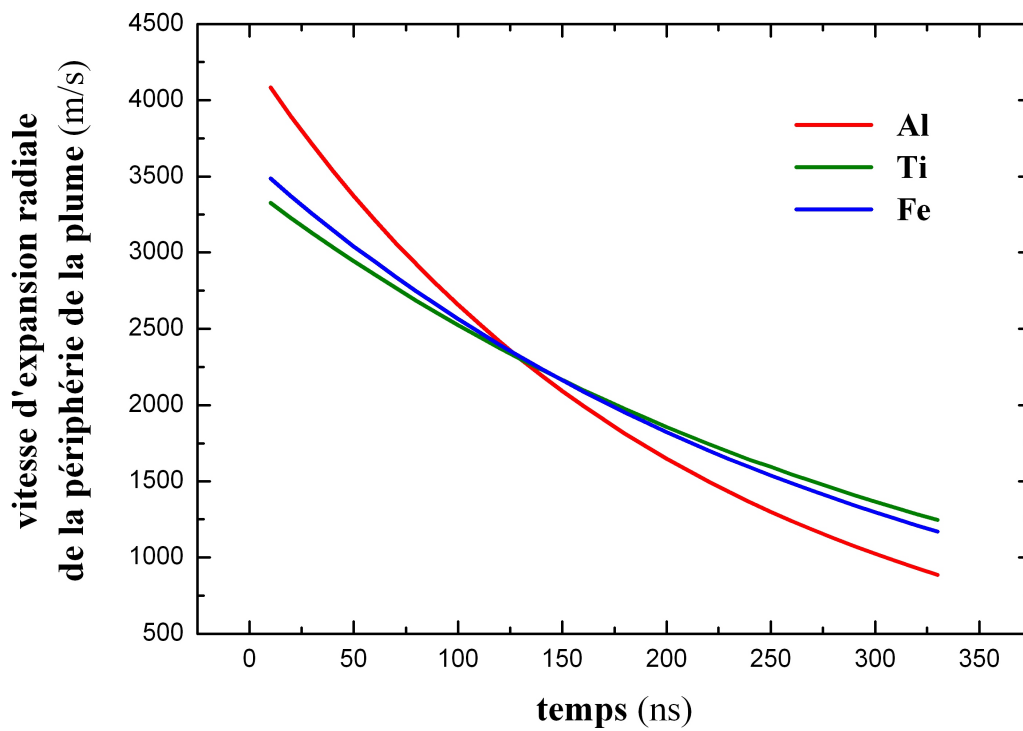


Fig. 4.32. Vitesse d'expansion radiale de la périphérie de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

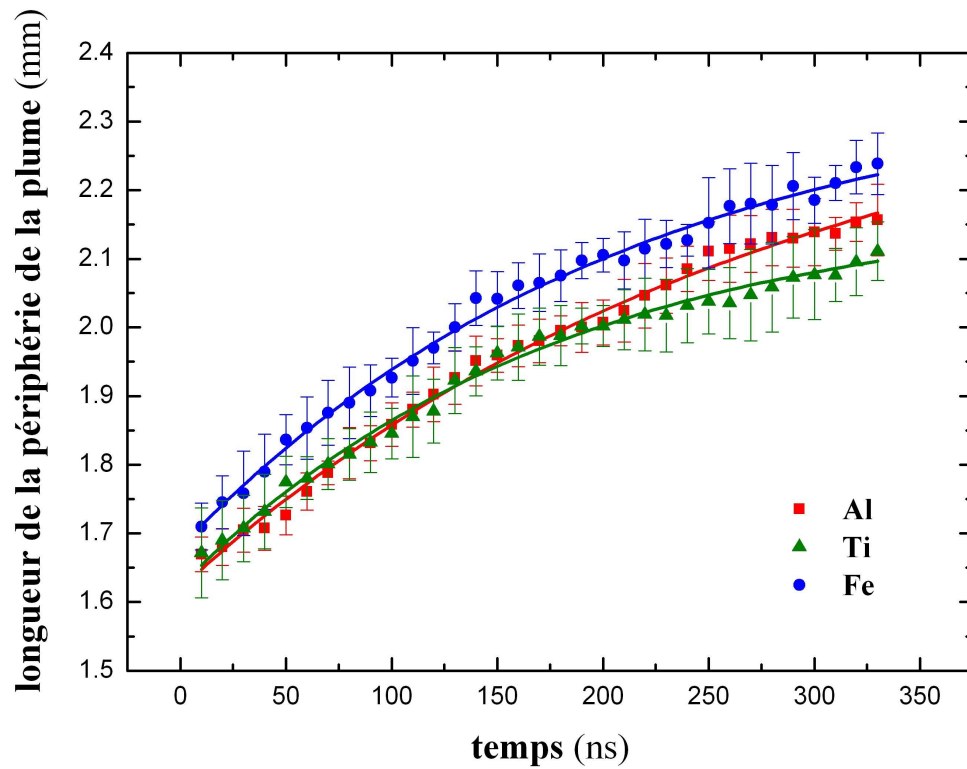


Fig. 4.33. Evolution temporelle de la longueur de la périphérie de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

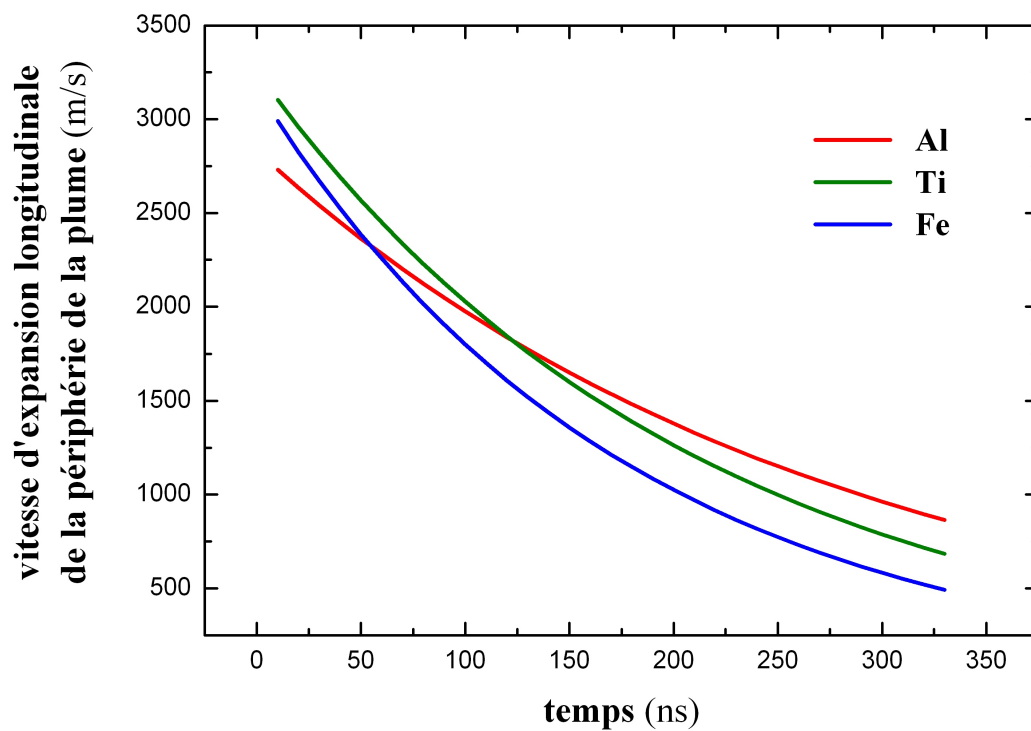


Fig. 4.34. Vitesse d'expansion longitudinale de la périphérie de la plume formée lors de l'ablation laser d'Al, Ti et Fe.

5.2. Analyse

D'après les Figures 4.27, 4.29, 4.31 et 4.33, on peut nettement voir que la composition de la cible influe sur le comportement de la plume. En premier lieu, on peut remarquer que les différences des dimensions de la plume sont plus accentuées dans le cas du cœur de la plume. Par exemple, les différences entre les valeurs du diamètre ou de la longueur de la périphérie obtenues pour les trois matériaux utilisés sont inférieures à 6% (Figs. 4.31 et 4.33). Par ailleurs, les valeurs du diamètre ou de la longueur du cœur de la plume d'Al, Ti et Fe diffèrent jusqu'à 20% (Figs. 4.27 et 4.29). Cela peut être expliqué par l'hypothèse faite précédemment dans la Section 2.2 de ce Chapitre. Le comportement du cœur de la plume, qui contient principalement de la matière ablatée, est beaucoup plus influencé par la composition de la cible par rapport à la périphérie de la plume, qui correspond plutôt à l'air environnant chauffé et possiblement ionisé.

Pour mieux comprendre les différences de forme, des dimensions et des vitesses d'expansion du cœur de la plume de Ti et de Fe, décrites dans la Section 5.1, il faut comparer les propriétés physiques de ces deux matériaux (Tableau 3.3). La diffusivité thermique de Fe est supérieure à celle de Ti, signifiant que la chaleur apportée par le faisceau laser est plus rapidement transférée dans la cible de Fe. Par contre, la température ainsi que la chaleur latente de fusion et de vaporisation sont inférieures dans le cas de Fe. De plus, la masse atomique, qui est légèrement différente dans le cas de Fe et de Ti, a un rôle significatif dans l'expansion de la plume basée sur la dynamique des fluides, précédemment décrite dans la Section 4.3 de Chapitre 1.

Afin d'expliquer le comportement de la plume d'Al, surtout de son cœur, il faut prendre en compte le fait que les propriétés physiques d'Al sont très différentes de celles de Ti ou de Fe (Tableau 3.3). L'échantillon d'Al absorbe moins d'énergie du faisceau laser que Ti ou Fe et la diffusivité thermique d'Al est significativement plus élevée que celle de Ti ou de Fe, ce qui conduit à un transfert de chaleur dans l'échantillon beaucoup plus rapide et une augmentation de la température à la surface plus lente. Puis, même si les températures de fusion et de vaporisation d'Al sont inférieures à celles de Ti et de Fe, l'énergie nécessaire pour la réalisation de ces deux processus (la chaleur latente) est plus importante. Enfin, il existe une grande différence entre les valeurs de la masse atomique. Les atomes d'Al sont à peu près deux fois plus légers que ceux de Ti et de Fe. En conséquence, la masse volumique

de la plume d'Al est plus faible, donc l'expansion de la matière ablatée est arrêtée par l'air environnant comprimé à une distance plus proche de la surface de l'échantillon que dans le cas de Ti ou de Fe.

Pour résumer, il y a beaucoup de paramètres, y compris les propriétés physiques du matériau de la cible, qui influent le processus d'ablation laser et l'expansion de la plume-plasma. Finalement, une solution appropriée pour étudier l'influence de la composition de la cible sur l'expansion de la plume serait de comparer les résultats obtenus expérimentalement avec un modèle d'ablation laser, qui doit prendre en compte toutes les propriétés physiques pertinentes du matériau, ainsi que les conditions expérimentales.

Partie II

Modélisation d'ablation laser: simulation numérique en COMSOL Multiphysics

Chapitre 5

Etude bibliographique : modélisation de l'ablation laser

1. Modélisation d'interaction laser - cible	123
1.1. Modèles simulant l'interaction laser - cible	124
1.2. Synthèse de la modélisation de l'interaction laser – cible	128
1.2.1. <i>Modélisation du transfert de chaleur dans la cible et de la fusion du matériau.</i>	128
1.2.2. <i>Modélisation de la vaporisation du matériau et de la couche de Knudsen</i>	131
1.2.3. <i>Modélisation de l'effet d'écrantage (« plasma shielding »)</i>	132
2. Modélisation d'expansion de la plume du plasma.....	133
2.1. Modèles analytiques	134
2.2. Modèles hydrodynamiques	135
2.3. Modèles Monte Carlo.....	148
3. Conclusion.....	150

Depuis plus de deux décades, des chercheurs font beaucoup d'efforts pour modéliser le processus d'ablation laser. Des nombreux auteurs ont travaillé sur la modélisation de l'interaction laser-cible, ainsi que sur l'expansion de la plume-plasma formée lors de l'ablation. Dans la littérature, il existe une grande variété des modèles d'ablation laser consacrés aux différents régimes en fonction de la durée d'impulsion laser (ns, ps, fs), de la longueur d'onde (UV, visible, IR) et de l'irradiance du faisceau laser ($10^4 - 10^{10} \text{ W/cm}^2$), du matériau utilisé pour la cible (métaux, verres, plastiques, matériaux organiques...) et de l'atmosphère ambiante (vide, gaz ambiant à la pression basse ou atmosphérique).

Une des premières synthèses bibliographiques sur la modélisation d'ablation laser a été faite par *Amoruso et al.* [Amoruso'99a]. Ils donnent une rétrospective des modèles développés jusqu'à la fin des années 90 pour décrire le processus d'ablation laser, ainsi qu'un résumé des techniques expérimentales utilisés pour la caractérisation des plasmas induits par faisceau laser. Quelques années plus tard, *Capitelli et al.* [Capitelli'04] donnent aussi un résumé des approches théoriques et numériques employées pour la modélisation des différentes étapes du processus d'ablation laser. Dans ces modèles, l'approche thermique a été souvent utilisée pour simuler le transfert de chaleur dans la cible, la fusion et la vaporisation du matériau. Ceci a permis aux auteurs d'estimer la distribution de la température dans la cible, la profondeur d'ablation, le taux de vaporisation du matériau... Pour décrire l'expansion de la plume-plasma dans un milieu ambiant, différents modèles basés sur les approches analytique, hydrodynamique ou Monte Carlo ont été développés. Ces modèles prennent en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma, la cinétique du plasma (excitation et ionisation des atomes/ions par l'impact d'électron, les processus de recombinaison), ainsi que la diffusion et l'interaction entre les particules de la matière ablatée et du gaz ambiant. Les résultats de ces modèles, comme par exemple l'évolution temporelle et la distribution spatiale de la masse volumique, de la vitesse et de la pression de la plume d'ablation laser, ainsi que les distributions des paramètres du plasma (la température et la densité des différentes espèces du plasma) sont ensuite comparés aux résultats expérimentaux.

1. Modélisation d'interaction laser - cible

Au niveau de l'interaction laser – cible, ce sont surtout les propriétés physiques du matériau (masse volumique, capacité et conductivité thermique, températures et chaleurs latentes de fusion et vaporisation) et les paramètres laser (durée d'impulsion, longueur d'onde, irradiance) qui interviennent.

Même si aujourd'hui l'ablation laser est réalisée sur tous types de matériaux (conducteurs, isolants, multi-composants), les études fondamentales du processus d'ablation laser sont plutôt conduites sur des matériaux simples (à un composant), comme les métaux. Du fait que les propriétés thermo-physiques des métaux sont bien connues, cela permet de mieux comprendre les mécanismes à la base de l'interaction laser-cible et laser-plasma.

Dans la plupart des modèles d'ablation laser, l'interaction laser – cible est décrite en utilisant l'approche macroscopique (voire thermique), comprenant l'absorption du rayonnement laser à la surface de la cible, la conduction thermique vers l'intérieur de la cible, la fusion et la vaporisation du matériau... Cette approche est justifiée dans le cas des impulsions laser nanoseconde, surtout si l'ablation se réalise sur des métaux. Dans ce cas, le rayonnement laser est absorbé par des électrons libres présents dans le métal. Ensuite, ces électrons excités entrent en collisions avec des phonons de la structure cristalline du métal en leur transférant une partie de l'énergie absorbée. Comme le temps de relaxation de l'énergie dans les métaux est de l'ordre de 10^{-13} s [VonAllmen'87], on peut considérer que dans le cas d'impulsion laser nanoseconde l'énergie du rayonnement laser est instantanément transformée en chaleur. Par contre, dans le cas d'impulsion laser picoseconde ou femtoseconde on ne peut pas faire cette approximation et donc il est nécessaire de développer un modèle à deux températures qui décrit le couplage entre la température d'électron et celle de la structure cristalline [Mao'98, Wellershoff'99].

Il y a donc une différence essentielle entre le régime nanoseconde et les régimes d'impulsion laser ultra-court (ps, fs). Compte tenu de l'objectif de cette étude, dans cette étude bibliographique nous nous sommes surtout concentrés sur des modèles qui décrivent le processus d'ablation des métaux par des impulsions laser nanosecondes.

1.1. Modèles simulant l'interaction laser - cible

Plusieurs modèles d'ablation laser nanoseconde traitent les différentes étapes de ce processus, de l'interaction laser – cible jusqu'à l'expansion de la plume. Le couplage des différentes étapes se réalise soit en utilisant les résultats du modèle thermique comme conditions limites dans le modèle d'expansion de la plume, soit en résolvant simultanément les différentes équations (thermique + dynamique des fluides).

Peterlongo et al. ont développé un modèle pour décrire l'ablation de l'aluminium par une impulsion laser de 30 ns et de fluence de $3 - 4 \text{ J/cm}^2$ dans un gaz ambiant à la pression atmosphérique [Peterlongo'94]. Ils ont développé un modèle thermique à 1D pour décrire le transfert de chaleur dans la cible. Ils ont employé une source de chaleur volumique, c'est-à-dire qu'elle est décrite par la loi exponentielle d'atténuation (loi Beer-Lambert) du rayonnement du faisceau laser due à l'absorption dans le matériau. Afin de décrire la transition de phase solide - liquide ils utilisent la limite de Stefan. A partir du moment où la vaporisation commence, ils introduisent un terme dans l'équation de transfert thermique dans la cible pour prendre en compte le recul de l'interface liquide – vapeur, alors que la perte d'énergie dépensée à la transformation de phase liquide – vapeur est introduite dans la condition à la limite. Pour calculer la pression de la vapeur métallique au-dessus de la surface de la cible ils utilisent l'équation de Clausius-Clapeyron. Au niveau des résultats, ils donnent l'évolution temporelle de la température à la surface de la cible, ainsi que de la vitesse de recul de l'interface liquide – vapeur.

Vertes et al. ont étudié l'ablation de Cu par un faisceau laser à excimères de longueur d'onde de 351 nm, de durée d'impulsion de 10 ns et d'irradiance de $0,1 - 1,1 \text{ GW/cm}^2$ [Vertes'94] utilisée pour le dépôt de films. Ils ont développé un modèle thermique à 1D avec une source de chaleur volumique. A cause des différentes valeurs des propriétés du matériau dans les états solide et liquide, ils ont traité séparément le transfert de chaleur dans ces deux cas. La vaporisation est traitée comme la vaporisation normale. Au niveau des résultats, ils présentent l'évolution temporelle de la température à la surface de la cible.

Ho et al. ont utilisé un modèle pour décrire l'ablation des cibles d'aluminium, d'or et de cuivre par un laser à excimères ($\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 26 \text{ ns}$, $F = 1 - 25 \text{ J/cm}^2$) dans l'argon à différentes pressions [Ho'95]. C'est un modèle thermique à 1D avec une source de chaleur volumique. Les auteurs ont calculé la réflectivité et le coefficient d'absorption pour la

longueur d'onde du laser à excimères. Afin de prendre en compte la transition de phase, ils ont utilisé la fonction enthalpie. Pour décrire la transition entre la phase liquide et gazeuse, les auteurs ont introduit une couche de discontinuité. Au niveau des résultats, ils donnent l'évolution temporelle de la température à la surface de la cible et de la vitesse de recul de l'interface liquide – vapeur. De plus, ils ont étudié l'influence de la fluence du faisceau laser sur la température à la surface, ainsi que sur la profondeur de fusion et d'ablation pour les trois matériaux utilisés.

Jeong et al. ont développé un modèle à 1D pour simuler l'ablation de l'aluminium par une impulsion laser de 30 ns dans l'air [Jeong'98]. Ils n'ont considéré que les irradiances laser pour lesquelles il n'y a pas de formation du plasma. Ce modèle simule le transfert de chaleur dans l'échantillon, la fusion et l'évaporation de l'aluminium, ainsi que la formation de la couche de Knudsen et la dynamique de la vapeur d'aluminium et de l'air environnant. Les auteurs ont étudié la variation du seuil de fluence laser pour l'évaporation de l'aluminium avec la réflectivité de la surface de la cible. Ils ont aussi examiné l'influence de la pression ambiante ($p = 0,1 - 1$ atm) et de la fluence du faisceau laser ($F = 1 - 9$ J/cm²) sur la valeur du nombre de Mach, qui détermine la vitesse de la vapeur à la limite de la couche de Knudsen.

Gusarov et al. ont développé un modèle pour décrire l'ablation laser nanoseconde (durée d'impulsion de l'ordre de 10 ns, fluence de quelques J/cm², longueur d'onde : 248 nm, 532 nm, 1064 nm) sur du graphite et de l'or dans le vide ou dans l'hélium à basse pression [Gusarov'00a, Gusarov'00b]. Ils présentent l'évolution temporelle de la température à la surface de la cible. Plus tard, ils ont amélioré ce modèle thermique en prenant en compte la cinétique d'évaporation surfacique [Gusarov'05]. L'équation de transfert de chaleur dans la cible et les équations de dynamique des fluides ont été couplées par le bilan de masse et d'énergie à la surface de la cible et des conditions de la couche de Knudsen. Ils ont pris en compte le rayonnement thermique émis par la cible, la perte d'énergie lors de la vaporisation du matériau, ainsi que l'échange de chaleur entre la phase liquide et gazeuse. En utilisant ce modèle, les auteurs ont simulé l'ablation de l'aluminium et de l'or par deux faisceaux laser ($\lambda_1 = 193$ nm, $\tau_1 = 12$ ns, $F_1 = 5,3$ J/cm² et $\lambda_2 = 266$ nm, $\tau_2 = 6$ ns, $F_2 = 3,5$ J/cm²) dans l'argon à la pression atmosphérique. Ils ont considéré que sous ces conditions d'ablation, le claquage optique et donc la formation du plasma n'ont pas lieu.

Zhang et al. ont développé un modèle afin de décrire le processus d'ablation laser lors de PLD (pulsed laser deposition) [Zhang'01]. Une simulation a été réalisé pour du graphite, ablaté en utilisant un laser à excimères ($\lambda = 248$ nm, $\tau = 10$ ns, $E_{imp} = 0,1$ J) dans l'air à basse pression. Dans ce modèle, la partie « thermique - vaporisation - couche de Knudsen » a été

utilisée pour déterminer les conditions aux limites pour le modèle hydrodynamique d'expansion de la plume du plasma.

Les irradiances laser utilisées dans la plupart de ces modèles sont relativement faibles ($I < 1 \text{ GW/cm}^2$) et ainsi la plupart des modèles thermiques présentés dans ces articles ne prennent pas en compte l'effet d'écrantage (« plasma shielding »), c'est-à-dire l'atténuation du faisceau laser qui arrive à la surface de la cible due à l'absorption du rayonnement laser par le plasma. Par la suite, on va citer quelques modèles qui prennent en compte l'effet de « plasma shielding ».

Mao et al. ont étudié l'effet d'écrantage (« plasma shielding ») expérimentalement ainsi que par la modélisation. Ils ont développé un modèle basé sur l'évaporation thermique et l'absorption du rayonnement laser par le processus de bremsstrahlung inverse pour simuler l'effet de « plasma shielding » [Mao'97]. En utilisant ce modèle ils ont calculé les profils temporels d'impulsions laser des différentes irradiances transmis par le plasma formé lors de l'impulsion laser KrF ($\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$, $I = 0,2 - 1 \text{ GW/cm}^2$) sur des cibles de laiton.

Amoruso a présenté un modèle d'ablation des cibles d'aluminium par un faisceau laser UV ($\lambda = 350 \text{ nm}$, $\tau = 6 \text{ ns}$, $I = 0,5 - 5 \text{ GW/cm}^2$) dans le vide [Amoruso'99b]. Pour décrire le transfert de chaleur dans la cible, la fusion et la vaporisation du matériau, il a utilisé un modèle intégral basé sur l'analyse du bilan d'énergie de tous les processus physiques ayant lieu lors de l'interaction laser - cible. Il a pris en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma due au processus de bremsstrahlung inverse et de photoionisation. Il présente l'évolution temporelle de la température à la surface de la cible et l'évolution temporelle du taux d'ablation.

Bogaerts et al. ont développé un modèle à 1D pour simuler l'ablation du Cu par un faisceau laser de longueur d'onde de 266 nm, de durée d'impulsion de 10 ns et d'irradiance de $0,01 - 10 \text{ GW/m}^2$ dans le vide [Bogaerts'03] et dans l'hélium à la pression atmosphérique [Chen'05, Bogaerts'05]. Dans ce modèle, le transfert de chaleur dans la cible a été traité séparément pour l'état solide et l'état liquide du métal. Ils ont pris en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma (par le processus de bremsstrahlung inverse [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05] et la photoionisation [Chen'05, Bogaerts'05]). Ils donnent la distribution de la température dans la cible, l'évolution temporelle de la température à la surface de la cible, de la vitesse de recul de l'interface liquide - vapeur et de la profondeur de fusion et de vaporisation [Bogaerts'03, Chen'05]. En plus, ils ont étudié l'influence de la réflectivité de la cible, ainsi que de la durée d'impulsion et d'irradiance laser sur ces paramètres [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05].

Rozman et al. ont développés un modèle pour étudier l'influence des différents mécanismes d'absorption du rayonnement laser par le plasma sur le processus d'ablation laser [Rozman'08]. Les résultats sont donnés pour l'ablation des cibles du nickel par un faisceau laser KrF de longueur d'onde de 248 nm, de durée d'impulsion de 50 ns et de fluence de 2,5 – 10,5 J/cm² dans l'argon à la pression atmosphérique. Au niveau de l'absorption du rayonnement laser par le plasma, ils ont étudié la contribution de trois mécanismes : bremsstrahlung inverse, photoionisation et absorption de Mie (absorption par des clusters). La contribution des différents mécanismes d'absorption du rayonnement laser sur la température, la transmissivité et la vitesse du plasma a été étudiée en fonction du temps et du flux du faisceau laser.

Fang et al. ont présenté un modèle thermique qui prend en compte l'écrantage (« shielding effect ») du plasma, ainsi que le coefficient d'absorption et l'absorptivité du matériau en fonction de la température [Fang'08]. Ce modèle a été utilisé pour simuler l'ablation des cibles de fer par un faisceau laser UV ($\lambda = 248$ nm) de durée d'impulsion de 60 ns et de fluence de 1 – 6 J/cm². Dans ce modèle, le transfert de chaleur dans la cible a été traité séparément pour le métal solide et liquide. A partir du moment où la température à la surface de la cible devient supérieure à la température de fusion du métal, la vaporisation commence et le plasma se forme au dessus de la cible, donc il faut prendre en compte l'effet de « plasma shielding ». Dans le cas de longueur d'onde UV, c'est le processus de photoionisation qui est dominant lors de l'absorption du rayonnement laser par le plasma. Alors, seule la photoionisation a été prise en compte dans ce modèle. Au niveau des résultats, ils présentent la distribution spatiale et l'évolution temporelle de la température dans la cible, la contribution de la vaporisation du matériau et de l'effet d'écrantage à la détermination de la température de la cible et la dépendance de la profondeur d'ablation de la fluence du faisceau laser.

Aghaei et al. ont développé un modèle à 1D pour simuler l'ablation des cibles de Cu par un faisceau laser de durée d'impulsion de 10 ns, de longueur d'onde de 266 nm et d'irradiance de 10⁸ – 10⁹ W/cm² dans l'hélium à la pression atmosphérique [Aghaei'08]. Ils ont pris en compte l'effet de « plasma shielding » dû à l'absorption du rayonnement laser par le plasma lors de processus de bremsstrahlung inverse et de photoionisation. Ils présentent la distribution spatiale et l'évolution temporelle de la température dans la cible.

1.2. Synthèse de la modélisation de l'interaction laser – cible

Dans le Tableau 5.1. une rétrospective des modèles simulant l'interaction laser – cible est donnée. Pour chaque modèle on a indiqué le nombre des dimensions (D) du modèle thermique, les paramètres du faisceau laser (τ – durée d'impulsion, λ – longueur d'onde, I – irradiance, F – fluence ou E_{imp} – énergie d'impulsion laser), le matériau et les caractéristiques du milieu ambiant (nature, p - pression) pour lesquelles les résultats ont été donnés. Ensuite, on a indiqué le type de source de chaleur utilisé dans le modèle, les méthodes employées pour prendre en compte la fusion et la vaporisation du matériau, ainsi que la prise en compte de la couche de Knudsen et de l'effet « plasma shielding ». Les champs blancs indiquent que ce détail n'était pas précisé dans l'article.

À partir de là, un résumé des modèles de l'interaction laser – cible est donné.

1.2.1. Modélisation du transfert de chaleur dans la cible et de la fusion du matériau

Lors de l'interaction d'un faisceau laser nanoseconde avec des cibles métalliques, une partie d'énergie du faisceau laser est réfléchi de la surface de la cible, alors que l'autre partie est absorbée sur une petite profondeur, appelée « profondeur de pénétration » du matériau. Cet effet est pris en compte par tous les modèles cités précédemment. L'énergie du faisceau laser absorbée par la cible est ensuite transformée en chaleur et transférée par conduction thermique à l'intérieur du matériau jusqu'à une profondeur dite « la profondeur de diffusion thermique ». Cette grandeur, ainsi que la vitesse de transfert de chaleur dans la cible dépend du coefficient de diffusivité thermique du matériau. Dans le plupart des modèles, le transfert de chaleur dans la cible est décrit par l'équation 1D de transfert thermique par conduction où la source de chaleur (l'énergie du faisceau laser absorbée dans le matériau) est représentée comme une source volumique [Peterlongo'94, Vertes'94, Ho'95, Zhang'01, Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05, Fang'08, Aghaei'08] ou une source surfacique [Mao'97, Jeong'98, Amoruso'99b, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05, Rozman'08] en considérant que la profondeur d'absorption du rayonnement laser dans un métal est très petite ($\sim 10^{-8}$ m).

Suite à l'absorption d'énergie du faisceau laser et le transfert de chaleur dans la cible, la température à la surface de la cible augmente jusqu'à atteindre la température de fusion. Ainsi, une partie d'énergie du faisceau laser est utilisée pour la fusion du matériau.

Tableau 5.1. Rétrospective des modèles simulant l'interaction laser – cible.

auteurs, référence	D	impulsion laser	matériau	ambiant	source de chaleur	prise en compte de fusion du matériau	prise en compte de vaporisation du matériau	prise en compte de couche de Knudsen	prise en compte d'effet « plasma shielding »
<i>Peterlongo et al.</i> [Peterlongo'94]	1	$\tau = 30$ ns, $F = 3 - 4$ J/cm ²	Al	air, $p = 1$ atm	volumique	limite de Stefan	condition à l'interface liquide - vapeur	oui	non
<i>Vertes et al.</i> [Vertes'94]	1	$\lambda = 351$ nm, $\tau = 10$ ns, $I = 0.1 - 1.1$ GW/cm ²	Cu		volumique	métal solide et liquide traités séparément		non	non
<i>Ho et al.</i> [Ho'95]	1	$\lambda = 248$ nm, $\tau = 26$ ns, $F = 1 - 25$ J/cm ²	Al, Au, Cu	Ar, $p = 10^{-3}$ atm, 0.1 atm, 1 atm	volumique	fonction d'enthalpie	couche de discontinuité	non	non
<i>Jeong et al.</i> [Jeong'98].	1	$\tau = 30$ ns, $F = 1 - 9$ J/cm ²	Al	air, $p = 0.1 - 1$ atm	surfactive		condition à l'interface liquide - vapeur	oui	non
<i>Gusarov et al.</i> [Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05]	1	l_1 (1,2): $\lambda = 1064$ nm, $\tau = 25$ ns, $F = 4$ J/cm ² ; l_2 (1,2): $\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns, $F = 3$ J/cm ² ; l_3 (1,2): $\lambda = 532$ nm, $\tau = 11$ ns, $F = 4.9$ J/cm ² ; l_4 (3): $\lambda = 193$ nm, $\tau = 12$ ns, $F = 5.3$ J/cm ² ; l_5 (3): $\lambda = 266$ nm,	graphite (1,2), Au (1 - 3), Al (3)	vide ; He, $p = 100$ Pa ; He, Ar, Xe, $p = 10$ Pa (1,2) ; Ar, $p = 1$ atm (3)	surfactive	limite de Stefan	condition à l'interface liquide - vapeur	oui	non
<i>Zhang et al.</i> [Zhang'01]	1	$\lambda = 248$ nm, $\tau = 10$ ns, $E_{imp} = 0.1$ J	graphite	air, $p = 1$ kPa	volumique		condition à l'interface liquide - vapeur	oui	non
<i>Mao et al.</i> [Mao'97]	1	$\lambda = 248$ nm, $\tau = 30$ ns, $I = 0.2 - 1$ GW/cm ²	laiton	Ar, $p = 1.06$ MPa	surfactive		condition à l'interface liquide - vapeur	non	oui
<i>Amoruso</i> [Amoruso'99b]	1	$\lambda = 350$ nm, $\tau = 6$ ns, $I = 0.5 - 5$ GW/cm ²	Al	vide	surfactive	modèle intégral basé sur le bilan d'énergie	modèle intégral basé sur le bilan d'énergie	non	oui
<i>Bogaerts et al.</i> [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05]	1	$\lambda = 266$ nm, $\tau = 10$ ns, $I = 0.01 - 10$ GW/cm ²	Cu	vide (1); He, $p = 1$ atm (2,3)	volumique			non (1), oui (2,3)	oui
<i>Rozman et al.</i> [Rozman'08]	3	$\lambda = 248$ nm, $\tau = 50$ ns, $F = 2.5 - 10.5$ J/cm ²	Ni	Ar, $p = 1$ atm	surfactive	C_p modifié	condition à l'interface liquide - vapeur	oui	oui

<i>Fang et al.</i> [Fang'08]	1	$\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 60 \text{ ns}$, $F = 1 - 6 \text{ J/cm}^2$	Fe	p = 1 atm	volumique	métal solide et liquide traités séparément	condition à l'interface liquide - vapeur	non	oui
<i>Aghaei et al.</i> [Aghaei'08]	1	$\lambda = 266 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 0.1 - 1 \text{ GW/cm}^2$	Cu	He, p = 1 atm	volumique			oui	oui

De plus, suite à la transition de phase, les propriétés physiques du matériau changent. Afin de prendre en compte ces effets, différents auteurs ont traité séparément le transfert de chaleur dans le métal solide et liquide [Vertes'94, Fang'08]. D'autres ont employé la condition à la limite de Stefan (ou problème de Stefan) [Peterlongo'94, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05], la fonction d'enthalpie [Ho'95] ou introduit un terme de plus dans l'expression de la capacité thermique [Rozman'08] qui prend en compte l'énergie dépensée pour la fusion du matériau.

1.2.2. Modélisation de la vaporisation du matériau et de la couche de Knudsen

Avec la poursuite de l'augmentation de température à la surface de la cible, la température de vaporisation du matériau est atteinte. À ce moment, la vaporisation de la surface du métal liquide commence. Dans le cas de *vaporisation normale*, le taux de vaporisation est donné par l'équation de Hertz-Knudsen [Peterlongo'94, Vertes'94, Jeong'98, Rozman'08] et la pression de la vapeur métallique formée au-dessus de la cible peut être calculée en utilisant l'équation de Clausius-Clapeyron [Peterlongo'94, Vertes'94, Mao'97, Jeong'98, Zhang'01, Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05, Rozman'08, Fang'08, Aghaei'08]. Ici, on fait l'hypothèse que le métal liquide est en équilibre avec la vapeur métallique saturée. Néanmoins, dans le cas d'irradiance laser très élevée, un type de vaporisation explosive peut apparaître. Différents mécanismes de vaporisation dans le cas de l'ablation laser nanoseconde ont été étudiés par *Kelly et Miotello* [Kelly'96]. Ils montrent que pour les irradiances laser assez élevées, en plus de la vaporisation normale, un autre mécanisme de vaporisation appelé « l'ébullition explosive » peut se produire. Dans ce cas, une couche de liquide surchauffé à la surface de la cible se transforme rapidement dans un mélange de vapeur et de gouttelettes de métal liquide.

Dans la plupart des modèles, il est considéré que la vaporisation du matériau se réalise par le mécanisme de vaporisation normale [Peterlongo'94, Vertes'94, Mao'97, Jeong'98, Amoruso'99b, Zhang'01, Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05, Rozman'08, Fang'08, Aghaei'08]. Afin de prendre en compte l'énergie dépensée à la vaporisation du matériau, la plupart des auteurs ont introduit un terme dans l'expression de la condition à la limite correspondant à l'interface métal liquide – vapeur [Peterlongo'94, Mao'97, Jeong'98, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05, Zhang'01, Rozman'08, Fang'08]. En plus, plusieurs auteurs ont aussi pris en compte le recul de l'interface métal liquide - vapeur due à la vaporisation en introduisant un terme de plus dans l'équation de transfert thermique dans la

cible [Peterlongo'94, Jeong'98, Zhang'01, Chen'05, Bogaerts'05, Fang'08, Aghaei'08]. D'un autre côté, *Ho et al.* ont introduit une « couche de discontinuité » afin de décrire la transition de la phase liquide à la phase gazeuse du matériau [Ho'95]. Ils ont employé le bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie pour calculer les paramètres de la vapeur métallique au-dessus de la cible. *Amoruso* a utilisé un modèle intégral basé sur le bilan d'énergie pour décrire la transition de phase liquide – vapeur [Amoruso'99b].

Un autre type de couche de discontinuité, appelée « la couche de Knudsen », fait partie de plusieurs modèles d'ablation laser [Peterlongo'94, Jeong'98, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05, Zhang'01, Chen'05, Bogaerts'05, Rozman'08, Aghaei'08]. La couche de Knudsen représente une couche fine de vapeur contiguë à l'interface liquide - vapeur, de l'épaisseur de quelques libres parcours moyen d'atome, qui apparaît suite à une vaporisation rapide du matériau lors de l'impact laser. Dans cette couche, la distribution des vitesses des atomes de la vapeur initialement de type demi-Maxwell se transforme en une distribution de type Maxwell. C'est à dire, une distribution équilibrée s'établit. La couche de Knudsen est caractérisée par un changement discontinu des paramètres de la vapeur, i.e. la température, la masse volumique et la pression de la vapeur.

1.2.3. Modélisation de l'effet d'écrantage (« plasma shielding »)

Lors de l'utilisation d'irradiations laser plus élevées ($I > 0.3 \text{ GW/cm}^2$ [Mao'97]), une plume-plasma se forme au dessus de la cible. Ce plasma est très opaque au rayonnement laser. Il absorbe une grande partie d'énergie du faisceau laser due au processus de bremsstrahlung inverse et/ou de photoionisation. En conséquence, l'énergie du faisceau laser qui atteint la surface de la cible est significativement réduite. Cet effet appelé l'écrantage (« plasma shielding ») devrait être pris en compte dans tous les modèles qui simulent la formation et l'expansion du plasma. La plupart des anciens modèles thermiques [Peterlongo'94, Vertes'94, Ho'95, Jeong'98, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05, Zhang'01] ne prennent pas en compte l'effet d'écrantage due au fait que les irradiances laser utilisés dans ces modèles sont relativement faibles ($I < 1 \text{ GW/cm}^2$). *Mao et al.* ont étudié l'effet d'écrantage expérimentalement, ainsi que par la modélisation [Mao'97]. Le modèle de *Amoruso* [Amoruso'99b], ainsi que les modèles plus récents [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05, Rozman'08, Fang'08, Aghaei'08], prennent en compte cet effet. Pourtant, afin de pouvoir calculer le coefficient d'absorption du rayonnement laser par le plasma, il est nécessaire de connaître les paramètres de la plume-plasma (la densité d'électrons, des ions,

des atomes, la température d'électrons). Pour obtenir l'évolution temporelle et la distribution spatiale des paramètres du plasma, il faut modéliser l'expansion de la plume en prenant en compte tous les processus physiques ayant lieu dans le plasma. Cela conduit à un couplage incontournable entre le processus d'interaction laser – cible, l'interaction laser – plasma et l'expansion de la plume du plasma. Cela veut dire que les différentes équations du modèle doivent être résolues simultanément en fonction du temps et c'est pour cela que les modèles d'ablation laser sont très compliqués à résoudre.

2. Modélisation d'expansion de la plume du plasma

Les modèles présents dans la littérature décrivent en même temps l'interaction laser–cible et l'expansion de la plume [Peterlongo'94, Vertes'94, Ho'95, Amoruso'99b, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05, Zhang'01, Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05, Rozman'08, Aghaei'08] ou sont plutôt concentrés sur la dynamique de la plume [Kelly'90, Kelly'92, Kools'92, Anisimov'93, Arnold'99, Aden'93, Aden'96, Bulgakov'95, Bulgakov'98, Leboeuf'96, Chen'96, Wood'97, Wood'98a, Wood'98b, Le'00, Mazhukin'96, Mazhukin'02, Mazhukin'04, Laville'04, Colonna'01, Casavola'03a, Casavola'03b, Casavola'03c, Casavola'09, Wu'07, Garrelie'98, Garrelie'99, Itina'97, Itina'02, Itina'03]. Pour la modélisation d'expansion de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser, trois approches théoriques différentes ont été utilisées: l'approche analytique [Kelly'90, Kelly'92, Kools'92, Anisimov'93, Arnold'99], l'approche hydrodynamique (dynamique des fluides) [Aden'92, Aden'93, Aden'96, Peterlongo'94, Vertes'94, Ho'95, Ho'96, Bulgakov'95, Bulgakov'98, Leboeuf'96, Chen'96, Wood'97, Wood'98a, Wood'98b, Amoruso'99b, Le'00, Mazhukin'96, Mazhukin'02, Mazhukin'04, Gusarov'00a, Gusarov'00b, Gusarov'05, Zhang'01, Laville'04, Colonna'01, Casavola'03a, Casavola'03b, Casavola'03c, Casavola'09, Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05, Wu'07, Rozman'08, Aghaei'08] et l'approche Monte Carlo [Garrelie'98, Garrelie'99, Itina'97]. Ils existent aussi des modèles hybrides, qui combinent l'approche hydrodynamique et l'approche Monte Carlo [Itina'02, Itina'03].

Dans cette étude, nous nous intéressons à l'ablation laser nanoseconde des métaux dans l'air à la pression atmosphérique. Alors, dans cette étude bibliographique je me suis concentrée que sur les modèles d'ablation nanoseconde, parce que dans le cas d'ablation par des impulsions laser plus courtes (ps, fs) il y a souvent des effets qui n'apparaissent pas lors

de l'ablation nanoseconde. Mais, je me suis surtout concentrée sur les modèles hydrodynamiques, parce que cette approche est la plus appropriée pour la modélisation du début d'expansion de la plume d'ablation laser dans un gaz ambiant à la pression atmosphérique. Les arguments pour cela seront donnés plus tard.

2.1. Modèles analytiques

Les modèles analytiques ont été développés pour deux cas :

- (i) La vapeur du matériau ablaté est d'une faible densité et il n'y a pas de collisions entre les atomes de la vapeur. Dans ce cas, les particules passent directement dans une expansion adiabatique instable.
- (ii) La vapeur du matériau ablaté est d'une densité plus importante et de nombreuses collisions entre les particules de la vapeur près de la surface de la cible conduisent à la formation d'une couche de Knudsen. Ici, donc, les particules forment d'abord une couche de Knudsen et ensuite elles évoluent dans une expansion adiabatique instable.

Pour le premier cas, ils existent déjà des solutions analytiques [Kelly'90, Kelly'92, Kools'92]. Une approche analytique a été employée par *Kelly* [Kelly'90, Kelly'92] et *Kools et al.* [Kools'92] afin de résoudre le problème d'expansion adiabatique instable de la plume d'ablation laser dans le vide en prenant en compte la formation de la couche de Knudsen au-dessus de la cible. Ils ont résolu les équations hydrodynamiques d'une expansion adiabatique instable avec des conditions aux limites correspondantes. Cette approche est justifiée pour tous les cas où la masse volumique de la vapeur est assez élevée pour que le nombre des collisions entre les particules de la vapeur soit suffisamment important pour pouvoir employer la thermodynamique ou même l'hydrodynamique. *Kelly* [Kelly'92] présente la vitesse d'expansion de la plume en fonction de la distance. *Kools et al.* [Kools'92] donnent la prédiction des distributions de temps de vol des particules de la vapeur, ainsi que la distribution angulaire d'intensité.

Des descriptions analytiques détaillées de l'expansion adiabatique de la plume-plasma ont été données par *Anisimov et al.* [Anisimov'93] et *Arnold et al.* [Arnold'99]. *Anisimov et al.* ont calculé les profils d'épaisseur des films obtenus par PLD [Anisimov'93]. Ils ont utilisé les équations de dynamique du gaz pour décrire l'expansion de la plume-plasma dans le vide. *Arnold et al.* ont développé un modèle simplifié basé sur le bilan de masse, de quantité de

mouvement et d'énergie pour décrire l'expansion sphérique de la plume dans une atmosphère ambiante [Arnold'99]. D'après eux, l'énergie initialement délivrée par le faisceau laser est redistribuée entre l'énergie thermique et cinétique de la plume et des ondes de choc interne et externe, qui se forment lors de l'expansion de la plume. La position des ondes de choc ainsi que la redistribution d'énergie cinétique et thermique de la plume sont présentés en fonction du temps.

2.2. Modèles hydrodynamiques

Les modèles numériques basés sur l'approche hydrodynamique (dynamique des fluides) nous permettent de calculer l'évolution temporelle et la distribution spatiale des paramètres du plasma, par exemple la densité, la vitesse et la température des espèces du plasma, qui peuvent ensuite être comparés aux résultats expérimentaux.

Les modèles hydrodynamiques sont basés sur les équations d'Euler correspondant au bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie d'un fluide parfait (non visqueux et sans conductivité thermique) et compressible. Cette approche, basée sur l'hypothèse que la distribution des vitesses des particules est Maxwellienne et que les collisions entre les particules sont fréquentes, est appropriée pour les plumes denses. Alors, l'approche hydrodynamique est la plus adaptée pour simuler les plumes d'ablation laser formées dans un gaz ambiant à la pression élevée (au-dessus de 100 Pa), surtout au début de son expansion, car elles sont confinées et donc plus denses. Pour une description plus réaliste de l'expansion de la plume-plasma dans un gaz ambiant, il est nécessaire d'introduire une équation de bilan de masse de plus afin de traiter séparément la matière ablatée et le gaz ambiant. Les équations d'Euler sont souvent couplées avec l'équation d'état du gaz parfait, les équations de la cinétique du plasma (pour prendre en compte les processus d'ionisation, de recombinaison, d'excitation, de désexcitation...) et l'équation du Saha (pour calculer la contribution des ions des différents niveaux d'ionisation).

Différents modèles hydrodynamiques ont été développés pour simuler l'expansion de la plume d'ablation laser dans le gaz ambiant à basse pression et à la pression atmosphérique. L'expansion de la plume d'ablation laser dans le vide ou dans un gaz ambiant à basse pression a été beaucoup étudiée à cause de l'application au procédé PLD (« pulsed laser deposition »). D'autre part, l'expansion de la plume d'ablation laser à la pression atmosphérique a été

étudiée à cause de l'application au procédé LIBS (« laser induced breakdown spectroscopy ») et aux différents procédés de traitement des matériaux.

Aden et al. ont décrit l'expansion de la plume-plasma lors de PLD en utilisant les équations d'Euler pour un fluide compressible et non-dissipatif [Aden'93]. Ils ont simulé la vaporisation du Al_2O_3 induite par un faisceau laser CO_2 ($\tau = 100$ ns, $\lambda = 10.6$ μm , $F = 5 - 40$ J/cm^2) et ensuite la dynamique d'expansion de la plume des atomes à différents états d'ionisation. Dans ces équations, le taux de changement d'état d'ionisation des atomes est déterminé en utilisant le modèle collisionnel – radiatif. Dans ce cas, l'ionisation des atomes est réalisée par l'impact d'électron et la recombinaison par la recombinaison à trois corps et la recombinaison radiative. Au niveau du bilan d'énergie, ils ont traité séparément les électrons et les particules lourdes (approximation à deux fluides), considérant que les électrons absorbent de l'énergie du faisceau laser (par le processus de bremsstrahlung inverse) et même si ils transfèrent une partie de cette énergie aux particules lourdes lors des collisions, la température d'électrons est toujours plus importante que celle des particules lourdes. En plus, les auteurs ont aussi pris en compte qu'une partie de l'énergie a été dépensée à l'excitation et l'ionisation des atomes et des ions. Les conditions à la limite de l'interface cible – vapeur/plasma ont été déterminées en utilisant un modèle de vaporisation du matériau induite par un faisceau laser [Aden'92]. Au niveau des résultats, ils ont présenté la distribution de la densité d'électrons et de la vitesse des particules aux différents instants de la vie du plasma. En plus, ils ont calculé le taux de masse de la matière ablatée en fonction de la fluence du faisceau laser. D'après eux, dans le cas de l'expansion de la plume dans un gaz ambiant à basse pression, la plume est raréfiée et il n'y a pas de formation de « laser-supported absorption wave », mais c'est une onde de choc qui apparaît et qui se propage ensuite dans le gaz ambiant. D'un autre côté, l'absorption du rayonnement laser a lieu principalement dans le cœur de la plume, qui reste attaché à la surface de la cible. Par la suite, *Aden et al.* ont utilisé ce modèle pour calculer la distribution de la pression dans la plume, ainsi que la dépendance du taux de masse de la matière ablatée de la fluence du faisceau laser lors de l'ablation de Al_2O_3 par des laser CO_2 et excimer ($\tau = 50$ ns, $\lambda = 308$ nm, $F = 2 - 15$ J/cm^2) aux différentes pressions du gaz ambiant [Aden'96].

Peterlongo et al. ont développé un modèle pour décrire l'ablation de l'aluminium par une impulsion laser de 30 ns et de fluence de 3 – 4 J/cm^2 dans un gaz ambiant à la pression atmosphérique [Peterlongo'94]. En fonction du taux de vaporisation ils ont distingué trois régimes de dynamique de la plume : (i) taux faible (< 1 ML / 20 ns), les particules émises de la surface de cible n'atteignent pas l'ETL et elles exécutent un vol libre qui peut être décrit

par une fonction Maxwellienne modifiée ; (ii) taux moyen ($\sim 1 \text{ ML} / 20 \text{ ns}$), la couche de Knudsen apparaît et à sa limite externe les particules atteignent l'ETL, mais ensuite elles passent au vol libre ; (iii) taux élevé ($> 1 \text{ ML} / 20 \text{ ns}$), la dynamique des particules à la sortie de la couche de Knudsen peut être décrite par les équations de la dynamique des fluides. Le système a été considéré comme un seul fluide et l'expansion de la plume comme une expansion adiabatique instable. La plume a été traitée comme une plume de vapeur (et pas de plasma). En utilisant ce modèle, ils ont calculé la distribution de la masse volumique et de la vitesse de la vapeur métallique le long de l'axe de symétrie de la plume.

Vertes et al. ont étudié l'ablation de Cu par un faisceau laser à excimères de longueur d'onde de 351 nm, de durée d'impulsion de 10 ns et d'irradiance de 0.1 - 1.1 GW/cm² [Vertes'94] souvent utilisée pour le dépôt de films de Cu. Ils ont pris en compte l'absorption du rayonnement du faisceau laser par le plasma (processus de bremsstrahlung inverse), ainsi que la perte d'énergie du plasma lors du rayonnement bremsstrahlung. D'après eux, la génération des ions est réalisée par l'émission thermoionique de la surface de la cible et l'ionisation thermique dans la plume. Ils font l'hypothèse de l'existence de l'ETL dans le plasma et utilisent les équations de Langmuir-Saha et Saha-Eggert pour calculer les densités des particules du plasma afin de calculer le coefficient d'absorption du rayonnement laser par le processus de bremsstrahlung inverse. Au niveau des résultats, ils ont présenté la distribution de la densité et de la température des atomes/ions du cuivre le long de l'axe de symétrie de la plume pour différentes fluences du faisceau laser.

Ho et al. ont développé un modèle pour décrire l'ablation des cibles d'aluminium, d'or et de cuivre par un laser excimer ($\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 26 \text{ ns}$, $F = 1 - 25 \text{ J/cm}^2$) dans l'argon à différentes pressions [Ho'95]. Ce modèle est basé sur les équations d'Euler à 3D pour un fluide compressible et non-dissipatif. Dans ce modèle, le système a été considéré comme un seul fluide et la plume a été traitée comme une plume de vapeur (et pas de plasma). Ils ont présenté la distribution spatiale et l'évolution temporelle de la vitesse et de la pression de la vapeur, ainsi que la distribution spatiale de la masse volumique, de la température et du nombre de Mach dans la plume. Par la suite, ils ont amélioré ce modèle en prenant en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma (processus de bremsstrahlung inverse) et le transfert du rayonnement thermique dans le plasma [Ho'96]. Afin de calculer le coefficient d'absorption du rayonnement laser par le processus de bremsstrahlung inverse, ils ont fait l'hypothèse de l'existence de ETL et déterminé les densités d'électrons et des ions en utilisant l'équation de Saha-Eggert. Au niveau de résultats, ils ont présenté l'évolution temporelle et la

distribution spatiale du flux de chaleur et des différents paramètres de la plume (température, masse volumique, vitesse, pression...).

Bulgakov et al. ont développé un modèle hydrodynamique pour étudier l'interaction entre la plume d'ablation laser et le gaz ambiant lors du procédé de dépôt des films [Bulgakov'95]. La simulation a été faite pour l'ablation du supraconducteur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ dans l'atmosphère d'oxygène à basse pression (40 Pa) en utilisant le faisceau laser de durée d'impulsion de 50 ns et d'énergie d'impulsion de 42 mJ. Ils ont simplifié le système d'équations d'Euler en considérant qu'après la fin d'impulsion laser l'expansion de la plume est sphérique. Dans ce modèle, les auteurs ont employé l'approche à deux températures, c'est-à-dire ils ont considéré que la température d'électrons est différente (supérieure) de la température des particules lourdes. Au niveau du bilan de masse, les densités d'électrons et des particules lourdes ont été traitées séparément et la cinétique du plasma a été prise en compte. Les auteurs ont considéré le processus d'ionisation par l'impact d'électron, la recombinaison radiative et la recombinaison à trois corps. Dans le même temps, ils ont pris en compte le gain ou la perte d'énergie d'électrons lors des processus, ainsi que le transfert d'énergie des électrons aux particules lourdes lors des collisions. Il faut noter que les auteurs n'ont pas pris en compte la présence des ions ionisés plusieurs fois. Les vitesses de toutes les particules du plasma ont été considérées égales. Au niveau des résultats, ils ont présenté la distribution radiale de la pression et de la vitesse des particules aux différents instants de la vie du plasma, ainsi que l'évolution temporelle de la longueur de la plume, de la température, de la densité des particules et du degré d'ionisation. En plus, ils ont comparé les distributions calculées de temps de vol aux résultats expérimentaux. D'après ces simulations, les auteurs ont observé des oscillations (de la longueur) de la plume. Ils ont expliqué cet effet par la formation de l'onde de choc externe, qui continue à se propager dans le gaz ambiant, et de l'onde de choc interne, qui exécute des oscillations dans la plume. Par la suite, les auteurs ont étudié l'influence de la nature du gaz ambiant sur l'expansion de la plume d'ablation laser toujours sous les conditions de PLD [Bulgakov'98]. Ils ont simulé l'expansion dans O_2 , He, Ne, Ar et Kr. Ils ont trouvé que le comportement oscillatoire de la plume dépend significativement de la masse moléculaire du gaz ambiant. En plus, ils ont essayé de donner une explication qualitative de plusieurs effets qui apparaissent lors de l'interaction plume – gaz environnant en utilisant la théorie du jet sous-développé.

Leboeuf et al. ont développé un modèle numérique afin d'étudier les phénomènes ayant lieu lors de l'expansion de la plume d'ablation du silicium au cours du procédé PLD [Leboeuf'96, Chen'96]. Ils ont employé l'approche thermique pour décrire l'interaction laser

– cible et l'approche cinétique pour décrire la formation du plasma (basé sur un modèle cinétique du claquage). Ils ont utilisé un modèle hydrodynamique et collisionnel pour décrire l'expansion de la plume dans le vide et dans le gaz ambiant à basse pression. Dans ce modèle à 1D, ils ont pris en compte l'ionisation de la plume en utilisant l'équation de Saha, ainsi que l'absorption du rayonnement laser par le plasma. En plus, afin d'étudier l'interaction plume – substrat, ils ont employé la dynamique moléculaire. Au niveau des résultats, ils ont présenté la distribution des paramètres de la plume (la densité, la vitesse et la pression) aux différents instants de la vie du plasma. Dans le cas de la présence du gaz ambiant, ils ont observé l'effet chasse-neige du gaz ambiant, ainsi que le ralentissement, l'arrêt et même le déplacement en arrière de la matière ablatée [Leboeuf'96, Chen'96]. Plus tard, *Wood et al.* ont combiné l'approche hydrodynamique et la diffusion (« scattering ») multiple des particules afin de prendre en compte l'interaction de la matière ablatée et du gaz environnant lors de l'expansion de la plume d'ablation laser dans le gaz ambiant à la basse pression [Wood'97, Wood'98a, Wood'98b]. La plume est divisée en plusieurs composantes, c'est-à-dire ordres de diffusion, où les particules réalisent de nombreuses collisions avec le gaz ambiant. Lors des collisions, les particules peuvent être transférées d'un ordre de diffusion à l'ordre suivant. La densité de chaque ordre de diffusion évolue suivant les équations du bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie. La simulation a été faite pour l'expansion de la plume de silicium dans l'argon et dans l'hélium et les résultats ont été comparés avec les résultats expérimentaux. Ce modèle donne une explication cohérente de la division de la plume en deux composantes, une rapide et une plus lente, lors de l'ablation laser à la basse pression du gaz ambiant.

Amoruso a présenté un modèle d'ablation des cibles d'aluminium par un faisceau laser UV ($\lambda = 350 \text{ nm}$, $\tau = 6 \text{ ns}$, $I = 0.5 - 5 \text{ GW/cm}^2$) dans le vide [Amoruso'99b]. Basé sur l'hypothèse de l'homogénéité de la plume-plasma, ce modèle est constitué de cinq équations déterminant la densité des électrons ou des ions ($N_e = N_i$), la densité des atomes excités, la densité des atomes non-excités, la température des électrons et la température des particules lourdes. Dans ce modèle, *Amoruso* a pris en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma due au processus de bremsstrahlung inverse et de photoionisation, la cinétique du plasma (excitation et ionisation des atomes par l'impact d'électron, transfert d'énergie entre électrons et particules lourdes lors des collisions élastiques, recombinaison à trois corps), ainsi que le rayonnement du plasma (rayonnement bremsstrahlung). Au niveau des résultats, il donne la dépendance de la densité et de la température des particules du plasma en fonction du temps et de l'irradiance laser.

Le et al. ont développé un modèle hydrodynamique à 3D (axisymétrique), basé sur les équations de Navier-Stokes pour un fluide compressible, afin de décrire l'expansion de la plume induite par l'impact du faisceau laser ArF ($\lambda = 193 \text{ nm}$, $\tau = 15 \text{ ns}$, $F = 1.5 - 2.4 \text{ J/cm}^2$) sur la cible de silicium dans l'argon ou l'hélium à basse pression [Le'00]. Au niveau du bilan de masse, quatre espèces ont été considérées : les atomes Si I, les ions Si II, les électrons et les atomes d'Ar ou de He, en prenant en compte la cinétique du plasma. En plus, les auteurs ont pris en compte la diffusion massique et la diffusion ambipolaire (due à la présence d'un champ électrique dans le plasma), ainsi que la conductivité thermique et la viscosité du plasma. Ils font l'hypothèse qu'au début de l'expansion de la plume la température des électrons et la température des particules lourdes sont égales à cause de l'existence d'un équilibre thermodynamique locale (ETL) lors de l'impulsion laser. Par contre, après la fin d'impulsion laser, à cause d'un faible transfert d'énergie entre les électrons et les particules lourdes due à une différence importante de leurs masses, la température des électrons n'est plus égale à la température des particules lourdes. Pour cela ils emploient une approximation à deux températures. Les conditions initiales de ce modèle correspondent à la fin d'impulsion laser. Les auteurs ont comparé leurs résultats (l'évolution temporelle et la distribution spatiale de la densité de Si, de la température et du degré d'ionisation) avec des résultats obtenus par les équations d'Euler. Il est remarqué que les processus de diffusion ne deviennent importants que vers la fin d'expansion de la plume, ce qui veut dire que les équations d'Euler (qui ne prennent pas en compte l'effet de diffusion) ne peuvent être utilisés que pour décrire le début d'expansion de la plume.

Gusarov et al. ont développé un modèle hydrodynamique à 2D (axisymétrique) pour simuler l'expansion de la plume dans un gaz ambiant à la basse pression en traitant séparément la vapeur métallique et le gaz ambiant. Par contre, ils n'ont pas pris en compte la formation du plasma au-dessus de la cible. *Gusarov et al.* ont utilisé ce modèle pour décrire l'ablation laser nanoseconde (durée d'impulsion de l'ordre de 10 ns, fluence de quelques J/cm^2 , longueur d'onde : 248 nm, 532 nm, 1064 nm) sur le graphite et l'or dans le vide ou dans l'hélium à la basse pression [Gusarov'00a, Gusarov'00b]. Dans ce modèle, ils ont traité séparément la densité des atomes de la vapeur métallique et la densité des atomes du gaz ambiant. Ils présentent la distribution des paramètres de la plume (densité des atomes de la vapeur et du gaz ambiant, vitesse, pression, température), ainsi que la distribution angulaire des atomes ablatés. Plus tard, ils ont amélioré le modèle thermique en prenant en compte la cinétique d'évaporation surfacique [Gusarov'05]. L'équation du transfert de chaleur dans la cible et les équations de dynamique des fluides ont été couplées par le bilan de masse et

d'énergie à la surface de la cible et les conditions de la couche de Knudsen. En utilisant ce modèle, les auteurs ont simulé l'ablation de l'aluminium et d'or par deux faisceaux laser ($\lambda_1 = 193 \text{ nm}$, $\tau_1 = 12 \text{ ns}$, $F_1 = 5.3 \text{ J/cm}^2$ et $\lambda_2 = 266 \text{ nm}$, $\tau_2 = 6 \text{ ns}$, $F_2 = 3.5 \text{ J/cm}^2$) dans l'argon à la pression atmosphérique. Ils ont considéré que sous ces conditions le claquage optique et donc la formation du plasma n'ont pas lieu.

Mazhukin et al. ont étudié l'ablation nanoseconde d'aluminium sous différentes conditions avec un accent sur le transfert d'énergie dans le plasma par le rayonnement [Mazhukin'96, Mazhukin'02, Mazhukin'04]. Ce modèle hydrodynamique à 2D (axisymétrique) prend en compte le transfert radiatif du rayonnement laser dans le plasma, ainsi que le transfert radiatif du rayonnement émis par le plasma. Les auteurs ont utilisé ce modèle pour décrire l'expansion de la plume d'aluminium induite par l'impulsion laser ($\lambda = 10.6 \text{ }\mu\text{m}$ et $1.06 \text{ }\mu\text{m}$, $\tau = 30 \text{ ns}$, $I = 10^9 \text{ W/cm}^2$) dans N_2 à la pression atmosphérique [Mazhukin'96], ainsi que pour simuler le transfert radiatif et les spectres d'émission du plasma d'aluminium formé lors de l'impulsion laser ($\lambda = 1.06 \text{ }\mu\text{m}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 1 - 20 \cdot 10^9 \text{ W/cm}^2$) dans un gaz ambiant à $p = 2 \text{ mbar}$ [Mazhukin'02]. Plus tard, ils ont modélisé le transfert radiatif dans le plasma d'aluminium induit lors de l'ablation laser ($\lambda = 1064 \text{ nm}$, 532 nm et 248 nm , $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 1 - 20 \cdot 10^9 \text{ W/cm}^2$) dans le vide [Mazhukin'04]. Ils ont calculé les coefficients d'absorption du plasma, la perte d'énergie du plasma due au rayonnement thermique, le flux de la chaleur et la distribution de la température dans le plasma. La perte d'énergie du plasma par le rayonnement augmente avec l'augmentation d'irradiance du faisceau laser. La plupart du rayonnement est émis par les côtés et un peu par le front de la plume. La perte maximale d'énergie a été observée dans le cas de longueur d'onde du faisceau laser de 1064 nm . La distribution spectrale du rayonnement émis par le plasma diffère significativement par rapport au rayonnement du corps noir (distribution de Planck) et elle est typique pour un plasma d'une densité optique variable.

Zhang et al. ont développé un modèle afin de décrire le processus d'ablation laser lors de PLD (« pulsed laser deposition ») [Zhang'01]. Une simulation a été réalisée pour l'échantillon de graphite, ablaté en utilisant le laser KrF ($\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $E_{\text{imp}} = 0.1 \text{ J}$) dans l'air à la basse pression. Pour décrire la dynamique des fluides ils ont employé les équations d'Euler à 2D (axisymétrique). Les auteurs font l'hypothèse de l'existence de l'ETL dans le plasma et utilisent l'équation de Saha pour calculer le degré d'ionisation. En plus, ils considèrent que l'absorption du rayonnement laser est principalement réalisée par le processus de bremsstrahlung inverse. Ils donnent la distribution de la masse volumique, de la vitesse, de la pression et de la température de la plume-plasma qui montre la formation d'onde de choc.

Laville et al. ont développé un modèle numérique afin de décrire l'ablation de l'aluminium par des faisceaux laser de différentes durées d'impulsion ($\tau_1 = 100$ fs, $\tau_2 = 200$ ps, $\tau = 5$ ns) et de fluence de 20 J/cm^2 dans l'air à la pression atmosphérique [Laville'04]. Dans ce modèle, le plasma est considéré comme un seul fluide caractérisé par une seule vitesse et une température ($T_e = T_i$). Les auteurs ont étudié deux cas limites au niveau de la géométrie d'expansion de la plume: cartésien et hémisphérique. En utilisant les relations de Hugoniot, ils ont déterminé la pression de l'onde de choc formée lors de l'expansion du plasma dans le gaz ambiant. La vitesse de l'interface plasma – air a été déterminée en résolvant l'équation de Navier-Stokes. Les auteurs ont pris en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma (en résolvant l'équation de Helmholtz), le transfert radiatif dans la plume, ainsi que la perte d'énergie aux bords du plasma par le rayonnement qui est maximale au front du plasma. Au niveau des résultats, ils présentent l'évolution temporelle de la longueur de la plume, la distribution spatiale et l'évolution temporelle de la température et de la densité d'électrons et des atomes, ainsi que la dépendance de la température du plasma avec la fluence laser. Ils ont observé que plus tard dans la vie du plasma ($\sim 1 \mu\text{s}$) la durée d'impulsion laser a très peu d'influence sur les paramètres du plasma, alors que l'influence de la fluence laser est beaucoup plus importante. Par contre, pour les fluences lasers plus élevées, la température et la densité d'électrons atteignent la saturation.

Colonna et al. ont développé un modèle hydrodynamique à 1D pour simuler l'expansion de la plume formée lors de l'ablation laser du TiO à basse pression du gaz ambiant [Colonna'01]. Le plasma est considéré comme un fluide simple, caractérisé par une seule vitesse et une seule température. Ce modèle comprend aussi des réactions chimiques en considérant l'existence de l'ETL (modèle d'équilibre chimique). Les espèces prises en compte sont : e^- , TiO, Ti, Ti^+ , Ti^{2+} , O_2 , O_2^- , O, O^- , O^+ et O^{2+} . L'expansion de la plume a été simulée à partir de la fin d'impulsion laser. Les auteurs ont traité deux cas : (i) l'évaporation instantanée de la surface de la cible, où au début d'expansion la plume est confinée dans un petit volume et caractérisée par une température et une pression élevée ; (ii) l'évaporation continue, où il existe un flux constant de matière et d'énergie de la surface de la cible. Le modèle donne des profils de la masse volumique, de la température et du nombre de Mach le long de l'axe de symétrie de la plume en fonction du temps. Plus tard, *Casavola et al.* ont modifié ce modèle en remplaçant les réactions chimiques par la cinétique du plasma et en traitant différents espèces du plasma séparément [Casavola'03a, Casavola'03b]. En utilisant ce modèle, ils ont calculé l'évolution temporelle de la densité des ions et des atomes de titane afin de les

comparer avec les résultats expérimentaux (obtenus par la méthode spectroscopique de « temps de vol »). Ensuite, ils ont étudié l'influence des paramètres initiaux de la plume (température, vitesse, pression, dimensions) sur son expansion [Casavola'03c]. Récemment, *Casavola et al.* ont amélioré le modèle en passant à 2D et en le couplant avec deux modèles chimiques (ETL et non-équilibre chimique) afin d'étudier l'influence des réactions chimiques sur l'expansion de la plume d'ablation de titane dans l'atmosphère de N_2 [Casavola'09]. Les espèces prises en compte sont : e^- , Ti, Ti^+ , N_2 , N_2^+ , N et N^+ . Ils présentent la distribution spatiale de la densité de Ti, Ti^+ , N_2 , N et N^+ en comparant les trois cas : (i) ETL, (ii) non-équilibre chimique et (iii) l'approximation « free flow » où les réactions chimiques sont négligées. Leurs résultats montrent que les réactions chimiques affectent significativement l'expansion de la plume, surtout au niveau de l'énergie dépensée à la dissociation des molécules d'azote.

Bogaerts et al. ont utilisé un modèle à 1D pour simuler l'ablation du cuivre par un faisceau laser de longueur d'onde de 266 nm, de durée d'impulsion de 10 ns et d'irradiance de $0.01 - 10 \text{ GW/m}^2$ dans le vide [Bogaerts'03] et dans l'hélium à la pression atmosphérique [Chen'05, Bogaerts'05]. Ils ont pris en compte l'absorption du rayonnement laser par le plasma (par le processus de bremsstrahlung inverse [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05] et la photoionisation [Chen'05, Bogaerts'05]), la conduction thermique et la diffusion dans le plasma [Chen'05, Bogaerts'05], ainsi que la perte d'énergie par le rayonnement du plasma (rayonnement bremsstrahlung) [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05]. Les auteurs ont employé les équations d'Euler pour décrire l'expansion de la plume d'ablation dans le vide [Bogaerts'03] et les équations Navier-Stokes pour décrire son expansion dans l'atmosphère ambiante [Chen'05, Bogaerts'05]. L'expansion de la plume d'ablation dans l'atmosphère ambiante est beaucoup plus compliquée que l'expansion dans le vide à cause de la présence des termes comme la viscosité, la diffusivité et la conductivité thermique des deux gaz. À partir de la masse volumique du cuivre et de l'hélium et en utilisant l'équation de Saha-Eggert, ils ont calculé les densités de CuI, CuII, CuIII, HeI, HeII et d'électrons. Au niveau des résultats, ils présentent la distribution spatiale et l'évolution temporelle de la densité d'atomes de Cu [Bogaerts'03, Chen'05] et de He [Chen'05] ou de plusieurs espèces du plasma (CuI, CuII, CuIII, HeI, HeII, e^-) [Bogaerts'05], de la vitesse et de la température de la plume [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05]. En plus, ils ont étudié l'influence de la durée d'impulsion et de l'irradiance laser sur ces paramètres, ainsi que sur l'absorption du rayonnement laser par le plasma et le degré d'ionisation du plasma [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05].

Wu et al. ont développé un modèle hydrodynamique à 1D couplé avec « quotidian equation of state (QEOS) » afin de décrire l'expansion de la plume d'aluminium dans l'air à la pression atmosphérique lors de l'ablation laser nanoseconde [Wu'07]. D'après eux, dans le cas d'irradiance laser assez élevée (quelques GW/cm^2), le mécanisme principal de transfert de masse de l'état condensé (liquide) en état gazeux n'est plus l'évaporation surfacique, mais l'expansion hydrodynamique de la matière ablatée formant une couche macroscopique de transition entre le métal liquide et la vapeur. Alors, ils ont résolu les équations hydrodynamiques pour le domaine de la plume, comprenant aussi la couche macroscopique de transition de phase. Ils ont pris en compte la conduction thermique dans la plume/couche de transition, ainsi que le transfert de chaleur par le rayonnement. Le couplage avec « quotidian equation of state (QEOS) » a été réalisé afin de calculer la densité et la température d'électrons. Les résultats obtenus sont en accord avec des résultats expérimentaux, surtout au début d'expansion de la plume.

Rozman et al. ont utilisé son modèle pour étudier l'influence des différents mécanismes d'absorption du rayonnement laser par le plasma sur le processus d'ablation laser [Rozman'08]. Les résultats sont donnés pour l'ablation des cibles de nickel par un faisceau laser KrF de longueur d'onde de 248 nm, de durée d'impulsion de 50 ns et de fluence de 2.5 – 10.5 J/cm^2 dans l'argon à la pression atmosphérique. Au niveau de l'absorption du rayonnement laser par le plasma, ils ont étudié la contribution de trois mécanismes : bremsstrahlung inverse, photoionisation et absorption de Mie (absorption par des clusters). En plus, ils ont pris en compte la conduction thermique dans le plasma, ainsi que la perte d'énergie par le rayonnement du plasma (le rayonnement bremsstrahlung et le rayonnement de recombinaison). Les résultats sont présentés sous forme de distribution de la température dans la plume pour différents instants de la vie du plasma et pour différents flux du faisceau laser. La contribution de différents mécanismes d'absorption du rayonnement laser à la température, la transmissivité et la vitesse du plasma a été étudiée en fonction du temps et du flux du faisceau laser.

Aghaei et al. ont développé un modèle à 1D pour simuler l'ablation de cibles de cuivre par un faisceau laser de durée d'impulsion de 10 ns, de longueur d'onde de 266 nm et d'irradiance de $10^8 - 10^9 \text{ W}/\text{cm}^2$ dans He à la pression atmosphérique [Aghaei'08]. Ils ont pris en compte l'effet de « plasma shielding » due à l'absorption du rayonnement laser par le plasma lors de processus de bremsstrahlung inverse et de photoionisation. En plus, ils ont tenu compte de la conduction thermique dans le plasma. Dans cette étude, ils ont analysé la contribution du rayonnement bremsstrahlung, du rayonnement de corps noir et d'émission

spectrale (émission des raies spectrales) du plasma à la perte de son énergie. Ils présentent la distribution spatiale et l'évolution temporelle des paramètres du plasma (densité des atomes de cuivre et d'hélium, pression, température). En plus, ils donnent la distribution spatiale et l'évolution temporelle d'émission spectrale, du rayonnement bremsstrahlung et du rayonnement de corps noir.

Dans le Tableau 5.2. une rétrospective des modèles hydrodynamiques simulant l'expansion de la plume d'ablation laser est donnée. Pour chaque modèle on a indiqué le nombre des dimensions (D) du modèle hydrodynamique, les paramètres du faisceau laser (τ – durée d'impulsion, λ – longueur d'onde, I – irradiancie, F – fluence ou E_{imp} – énergie d'impulsion laser), le matériau et les caractéristiques du milieu ambiant (nature/élément, p - pression) pour lesquelles les résultats ont été présentés. Ensuite, on a indiqué les paramètres qui ont été traités séparément au niveau de bilan de masse et de bilan d'énergie. On peut voir si le système physique a été traité comme un seul fluide ou plusieurs fluides correspondants aux différentes espèces de la plume d'ablation. De même façon, on peut voir si l'approximation à une ou à deux températures a été utilisée. Les mécanismes d'absorption du rayonnement laser par le plasma utilisés dans chacun des modèles ont été notés. Ensuite, la prise en compte de la cinétique du plasma, de transfert d'énergie des électrons aux particules lourdes, ainsi que du rayonnement du plasma ont été indiquées. À la fin, la particularité du modèle a été donnée.

Les modèles hydrodynamiques sont efficaces pour la description de la formation et de l'expansion du plasma, mais souvent leurs résultats ne sont pas suffisamment en accord avec les résultats expérimentaux. Une des raisons pour cette divergence peut être le fait que la plupart des modèles ne prennent en compte que l'existence des ions une ou deux fois ionisés dans le plasma, alors que la température du plasma lors de l'impulsion laser peut atteindre les valeurs de 10^5 K.

Les modèles hydrodynamiques ne sont plus valables dès que la distribution des vitesses des particules dévie de la distribution de Maxwell. En plus, les processus de diffusion ne sont pas bien décrits par les modèles hydrodynamiques, donc le mélange des particules ablatées avec le gaz ambiant ne peut pas être étudié en utilisant ces modèles. Par contre, ce mélange des particules ablatées et du gaz ambiant n'apparaît que plus tard dans l'expansion de la plume, alors cet effet peut être négligé si on n'étudie que le début d'expansion de la plume.

Tableau 5.2. Rétrospective des modèles hydrodynamiques simulant l'expansion de la plume d'ablation laser.

auteurs, référence	D	impulsion laser	matériau	milieu ambiant	bilan de masse	bilan d'énergie	cinétique du plasma	absorption du rayonnement laser par le plasma	transfert d'énergie $e^- \rightarrow$ atome	rayonnement du plasma	particularité
Aden <i>et al.</i> [Aden'93, '96]	3	I_1 (1, 2): $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$, $\tau = 100 \text{ ns}$, $F = 5 - 40 \text{ J/cm}^2$; I_2 (2): $\lambda = 308 \text{ nm}$, $\tau = 50 \text{ ns}$, $F = 2 - 15 \text{ J/cm}^2$;	Al_2O_3	Ar, $p \leq 1 \text{ mbar}$ (1) ; $p = 0.01 - 100 \text{ mbar}$ (2)	$\rho_{\text{pl}}, \rho_{\text{am}}, n_i$	$\varepsilon_{\text{pl}}, \varepsilon_{\text{el}}$	oui	bremsstrahlung inverse	oui	non	
Peterlongo <i>et al.</i> [Peterlongo'94]	3	$\tau = 30 \text{ ns}$, $F = 3 - 4 \text{ J/cm}^2$	Al	$p = 1 \text{ atm}$	ρ	ε	non	non	non	non	
Vertes <i>et al.</i> [Vertes'94]	1	$\lambda = 351 \text{ nm}$, $\tau = 10 \text{ ns}$, $I = 0.1 - 1.1 \text{ GW/cm}^2$	Cu	basse pression	ρ	ε	non	bremsstrahlung inverse	non	bremsstrahlung	
Ho <i>et al.</i> [Ho'95, '96]	3	$\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 26 \text{ ns}$ (1, 2), 6 ns (2) $F = 1 - 25 \text{ J/cm}^2$	Al, Au, Cu	Ar, $p = 10^{-3} \text{ atm}$, 0.1 atm, 1 atm	ρ	ε	non	non (1) ; bremsstrahlung inverse (2)	non	non (1) ; transfert du rayonnement thermique (2)	
Bulgakov <i>et al.</i> [Bulgakov'95, '98]	1	$\tau = 50 \text{ ns}$, $E = 42 \text{ mJ}$	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$	O_2 (1, 2), He, Ne, Ar, Kr (2) $p = 40 \text{ Pa}$	n_i ($n_i = n_e$), n_a	p_e , p_i ($p_i = p_a$)	oui	non	oui	rayonnement de recombinaison	
Wood <i>et al.</i> [Leboeuf'96, Chen'96, Wood'97, '98a, '98b]	1	$\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 40 \text{ ns}$ (1, 2), 28 ns (3 - 5) $F = 3 \text{ J/cm}^2$	Si	He, Ar, $p \leq 250 \text{ mTorr}$	ρ (1, 2); $\rho_{\text{pl}}, \rho_{\text{bg}}$ (3 - 5)	ε (1, 2)	non	oui (1, 2)	non	non	
Amoruso [Amoruso'99b]	1	$\lambda = 350 \text{ nm}$, $\tau = 6 \text{ ns}$, $I = 0.5 - 5 \text{ GW/cm}^2$	Al	vide	n_e ($n_e = n_i$), n_a^{ex}, n_a	T_e , T_a ($T_a = T_i$)	oui	bremsstrahlung inverse, photoionisation	oui	bremsstrahlung	plasma supposé homogène
Le <i>et al.</i> [Le'00]	3	$\lambda = 193 \text{ nm}$, $\tau = 15 \text{ ns}$, $F = 1.5 - 2.4 \text{ J/cm}^2$	Si	Ar, He, $p = 0.1 - 1 \text{ Torr}$	$\rho_{\text{SiI}}, \rho_{\text{SiII}}, \rho_e$, $\rho_{\text{Ar/He}}$	E_e, E_a	oui	non	oui	non	diffusion massique et ambipolaire, conductivité thermique, viscosité
Gusarov <i>et al.</i> [Gusarov'00a, '00b, '05]	2	I_1 (1, 2): $\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\tau = 25 \text{ ns}$, $F = 4 \text{ J/cm}^2$; I_2 (1, 2): $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 30 \text{ ns}$, $F = 3 \text{ J/cm}^2$; I_3 (1, 2): $\lambda = 532 \text{ nm}$, $\tau = 11 \text{ ns}$, $F = 4.9 \text{ J/cm}^2$;	graphite (1, 2), Au (1, 2, 3), Al (3)	vide ; He, $p = 100 \text{ Pa}$; He, Ar, Xe, $p = 10 \text{ Pa}$ (1, 2) ; Ar, $p = 1 \text{ atm}$ (3)	n_v, n_g	E	non	non	non	non	considéré qu'il n'y a pas de formation du plasma

		$l_4(3): \lambda = 193 \text{ nm},$ $\tau = 12 \text{ ns}, F = 5.3 \text{ J/cm}^2;$ $l_5(3): \lambda = 266 \text{ nm},$ $\tau = 6 \text{ ns}, F = 3.5 \text{ J/cm}^2;$									
<i>Mazhukin et al.</i> [Mazhukin'96, '02, '04]	2	$l_1(1): \lambda = 10.6 \mu\text{m},$ $\tau = 30 \text{ ns}, I = 1 \text{ GW/cm}^2;$ $l_2(1): \lambda = 1064 \text{ nm},$ $\tau = 30 \text{ ns}, I = 1 \text{ GW/cm}^2;$ $l_3(2, 3): \lambda = 1064 \text{ nm},$ $\tau = 10 \text{ ns},$ $I = 1 - 20 \text{ GW/cm}^2;$ $l_4(3): \tau = 10 \text{ ns},$ $\lambda = 532 \text{ nm}, 248 \text{ nm}$ $I = 1 - 20 \text{ GW/cm}^2;$	Al	$N_2, p = 1 \text{ atm (1)} ;$ $p = 2 \text{ mbar (2)} ;$ vide (3)	ρ	ε	non	transfert radiatif du rayonnement laser dans le plasma	non	transfert du rayonnement thermique	transfert radiatif dans le plasma, caractéristiqu es spectrales du plasma
<i>Zhang et al.</i> [Zhang'01]	2	$\lambda = 248 \text{ nm},$ $\tau = 10 \text{ ns},$ $E_{\text{imp}} = 0.1 \text{ J}$	graphite	air, $p = 1 \text{ kPa}$	ρ	ε	non	bremsstrahlung inverse	non	non	
<i>Laville et al.</i> [Laville'04]	1	$\tau = 100 \text{ fs}, 200 \text{ ps}, 5 \text{ ns},$ $F = 20 \text{ J/cm}^2$	Al	air, $p = 1 \text{ atm}$	ρ	ε	non	équation de Helmholtz	non	oui	transfert radiatif
<i>Colonna et al.</i> [Colonna'01, Casavola'03a, '03b, '03c, '09]	1	$\lambda = 248 \text{ nm},$ $\tau = 30 \text{ ns},$ $F = 5 \text{ J/cm}^2$	TiO (1), Ti (2 - 5)	$p = 0.1 - 100 \text{ Pa (1)} ;$ vide (2 - 4) ; $N_2, p = 10^{-3} - 1 \text{ atm}$ (5)	$\rho(1) ;$ $\rho_i(2 - 5)$ i – espèces du plasma	ε	oui (2 - 5)	non	non	rayonnement de recombinaison (2 - 5)	réactions chimiques (1)
<i>Bogaerts et al.</i> [Bogaerts'03, Chen'05, Bogaerts'05]	1	$\lambda = 266 \text{ nm},$ $\tau = 10 \text{ ns},$ $I = 0.01 - 10 \text{ GW/cm}^2$	Cu	vide (1); He, $p = 1 \text{ atm (2, 3)}$	$\rho(1);$ ρ_v, ρ_g (2, 3)	ε	non	bremsstrahlung inverse (1 - 3), photoionisation (2, 3)	non	bremsstrahlung	viscosité, diffusivité et conductivité thermique des gaz (2, 3)
<i>Wu et al.</i> [Wu'07]	1	$\lambda = 532 \text{ nm},$ $\tau = 6 \text{ ns},$ $I = 3 - 8.1 \text{ GW/cm}^2$	Al	air, $p = 1 \text{ atm}$	$\rho_{\text{pl}}, \rho_{\text{air}}$	ε	non	non	non	transfert du rayonnement thermique	couche de transition; couplage avec QEOS
<i>Rozman et al.</i> [Rozman'08]	3	$\lambda = 248 \text{ nm},$ $\tau = 50 \text{ ns},$ $F = 2.5 - 10.5 \text{ J/cm}^2$	Ni	Ar, $p = 1 \text{ atm}$	$\rho_{\text{pl}}, \rho_{\text{bg}}$	ε	non	bremsstrahlung inverse, photoionisation, absorption Mie	non	bremsstrahlung, rayonnement de recombinaison	contributions des différents mécanismes d'absorption du rayon. las.
<i>Aghaei et al.</i> [Aghaei'08]	1	$\lambda = 266 \text{ nm},$ $\tau = 10 \text{ ns},$ $I = 0.1 - 1 \text{ GW/cm}^2$	Cu	He, $p = 1 \text{ atm}$	ρ, ρ_{am}	ε	non	bremsstrahlung inverse, photoionisation	non	bremsstrahlung, rayonnement du corps noir, émission des raies spectrales	contributions des différents mécanismes du rayonnement du plasma

2.3. Modèles Monte Carlo

Afin d'étudier plus profondément l'effet des collisions entre les particules présentes dans la plume d'ablation laser (particules ablatées et particules du gaz ambiant), prendre en compte les processus de diffusion et éviter les limitations des modèles hydrodynamiques plusieurs auteurs ont employé la simulation directe Monte Carlo. Ici, l'espace physique est divisé en un système de cellules, où la taille d'une cellule est déterminée par le libre parcours moyen des particules. La technique de Monte Carlo permet de modéliser le mouvement et les collisions des particules. Elle est donc très adaptée pour décrire l'expansion de la plume d'ablation laser dans le vide ou dans un gaz ambiant à très basse pression (au-dessous de 10 Pa), c'est-à-dire les plumes raréfiées. Pour cela, la modélisation Monte Carlo a été très souvent employée pour simuler le processus de PLD.

Garrelie et al. ont développé un modèle à 3D basé sur la simulation Monte Carlo afin de décrire l'expansion de la plume de cuivre lors de l'ablation par un faisceau KrF ($\lambda = 248$ nm, $\tau = 20$ ns, $F = 17$ J/cm²) dans le vide [Garrelie'98] et dans un gaz ambiant (Kr, Ar) à basse pression [Garrelie'99]. Leur modèle n'a pas de restrictions au niveau de la taille de la tache focale ou de la profondeur d'ablation. Ils ont étudié l'évolution temporelle de la distribution de densité et de vitesse des atomes de cuivre. Les résultats ont été comparés aux résultats expérimentaux obtenus par des mesures spectroscopiques (temps de vol) et l'imagerie [Garrelie'98]. Ensuite, les auteurs ont étudié l'influence de la nature et de la pression du gaz ambiant sur la dynamique d'expansion de la plume d'ablation [Garrelie'99]. Ce modèle Monte Carlo leur a permis de suivre le mouvement collectif des particules de la matière ablatée et du gaz ambiant. Ils présentent la distribution spatiale de la densité des atomes du cuivre et du gaz ambiant à un instant de la vie du plasma où on peut remarquer l'effet « snowplow », ainsi que l'évolution temporelle de la distribution de la pression du plasma où on peut observer les oscillations de la plume simulées par le modèle.

Itina et al. ont utilisé la simulation Monte Carlo pour étudier l'ablation laser d'une cible composée de deux espèces dans un gaz ambiant non-réactif à basse pression (jusqu'à 100 mTorr) [Itina'97]. Dans ce modèle à 3D, ils ont combiné la simulation directe Monte Carlo, pour simuler la formation et l'expansion initiale de la plume, et la simulation Monte Carlo des trajectoires aléatoires des particules ablatées dans le gaz ambiant. Cette approche leur a permis de simuler les collisions entre les particules ablatées, ainsi qu'entre les particules

ablatées et les particules du gaz ambiant. Les auteurs ont étudié l'influence du gaz ambiant sur la distribution spatiale du nombre de particules déposées sur un substrat et de leur énergie moyenne. Ils ont observé que lors des collisions, les particules du gaz ambiant diminuent l'énergie cinétique des particules ablatées. Dans le cas d'une pression de gaz ambiant assez élevée, les deux espèces deviennent thermalisées. Les particules thermalisées sont aléatoirement diffusées dès leurs trajectoires initiales produisant un flux plus uniforme.

Les modèles Monte Carlo décrivent bien les processus de diffusion, mais ils deviennent excessifs au niveau mémoire et temps de calcul dans le cas d'irradiance laser élevée et présence d'un gaz ambiant (surtout à une pression $p > 10$ Pa), où les collisions entre les particules ablatées et les particules du gaz ambiant sont aussi prises en compte.

Afin de dépasser les limites de l'approche hydrodynamique et de l'approche Monte Carlo, *Itina et al.* ont développé un modèle hybride à 3D (axisymétrique), qui combine la description continue (hydrodynamique) et microscopique (Monte Carlo), pour simuler l'expansion de la plume d'ablation laser dans un gaz ambiant [Itina'02, Itina'03]. Plus précisément, l'hydrodynamique est utilisée pour simuler l'étape de début de l'expansion de la plume, alors que la technique Monte Carlo est utilisée pour simuler l'interaction entre la matière ablatée et le gaz ambiant plus tard dans l'expansion de la plume. Ce modèle prend en compte la diffusion de masse, l'échange d'énergie entre les particules ablatées et les particules du gaz ambiant, ainsi que le mouvement collectif de toutes les espèces. Il est adapté pour la simulation de l'ablation laser dans un intervalle important de la pression du gaz ambiant (du vide jusqu'à l'ordre de 100 Pa). Dans la partie hydrodynamique du modèle, l'approche par un fluide à deux températures (T_e , T_a) a été adoptée. Les auteurs ont pris en compte l'échange d'énergie entre les électrons et les particules lourdes, ainsi que l'énergie des électrons dépensée pour l'ionisation des atomes lors de l'impact. Les auteurs ont utilisé ce modèle pour étudier l'influence du gaz ambiant (O_2 , $p = 1 - 70$ Pa) sur la dynamique d'expansion de la plume d'aluminium lors de l'ablation par faisceau laser Nd:YAG ($\lambda = 266$ nm, $\tau = 5$ ns, $E_p = 15$ mJ). Ils ont présenté l'évolution temporelle de la distribution de la densité des espèces du plasma pour différentes pressions du gaz ambiant, ainsi que l'évolution du positionnement du front et du centre de la plume avec le temps. Dans le cas de pression du gaz ambiant plus élevée (70 Pa), l'effet « snowplow » et les oscillations de la plume ont été observés. Les résultats de modélisation ont été comparés aux résultats expérimentaux obtenus par LIF (laser-induced fluorescence).

3. Conclusion

Le processus d'ablation laser nanoseconde a été modélisé par de nombreux auteurs. L'utilisation de l'approche macroscopique (thermique) pour décrire l'interaction laser – cible est justifiée dans le cas d'impulsion laser nanoseconde, surtout si l'ablation est réalisée sur des métaux. L'expansion de la plume d'ablation dans un milieu ambiant peut être décrite par des modèles analytiques, hydrodynamiques ou Monte Carlo. Le choix de l'approche dépend beaucoup des conditions sous lesquelles l'ablation laser est réalisée. Dans le vide, l'expansion de la plume est principalement dirigée en avant et elle est très similaire à l'expansion adiabatique supersonique d'un jet de gaz. Dans ce cas, l'expansion de la plume peut être correctement décrite par un modèle analytique. La présence d'un gaz environnant apporte des effets comme le confinement spatial et le ralentissement de l'expansion de la plume, la diffusion des particules de la matière ablatées et du gaz ambiant, la thermalisation de la plume... Dans ce cas, la pression du gaz ambiant a une grande importance sur le choix de l'approche de modélisation. Pour la modélisation l'expansion de la plume d'ablation laser dans le vide ou dans un gaz ambiant à très basse pression (en dessous de 10 Pa), l'approche Monte Carlo, qui prend en compte les processus de diffusion et permet d'étudier des collisions entre les particules présentes dans la plume, est très bien adaptée. Par contre, pour décrire l'expansion d'une plume dense formée lors de l'ablation laser dans un gaz ambiant à la pression élevée (au-dessus de 100 Pa), l'approche hydrodynamique est beaucoup plus appropriée. Pour les pressions intermédiaires ($10 \text{ Pa} < p < 100 \text{ Pa}$) du gaz ambiant, on peut utiliser un modèle hybride des approches hydrodynamique et Monte Carlo.

Dans cette étude, nous nous intéressons à l'ablation laser des métaux dans l'air à la pression atmosphérique, et particulièrement au début d'expansion de la plume-plasma (premières 300 ns). Alors, pour la modélisation de ce processus, on va utiliser l'approche hydrodynamique en essayant de prendre en compte la plupart des processus physiques ayant lieu lors de l'ablation laser sous ces conditions.

Chapitre 6

Modélisation d'ablation laser en COMSOL: bases théoriques et description du modèle

1. Modèle thermique	152
1.1. Transfert de chaleur dans la cible et fusion du matériau	153
1.1.1. Faisceau laser comme la source de chaleur	153
1.1.2. L'équation de conduction thermique	156
1.1.3. Conditions initiales et aux limites	160
1.2. Vaporisation du matériau et couche de Knudsen	163
1.2.1. Vaporisation rapide du matériau	163
1.2.2. Couche de Knudsen	165
1.3. Ecrantage (« plasma shielding »)	167
2. Modèle hydrodynamique: approche microscopique	173
2.1. Processus élémentaires dans le plasma	174
2.2. Bilan de masse	176
2.3. Bilan de quantité de mouvement	179
2.4. Bilan d'énergie	180
2.4.1. Approximation à une température (1T)	181
2.4.2. Approximation aux deux températures (2T)	182
2.5. Conditions initiales et aux limites	185
3. Modèle hydrodynamique: approche macroscopique	187
3.1. Ondes d'absorption du rayonnement laser	188
3.1.1. Laser-supported combustion wave (LSCW)	190
3.1.2. Laser-supported detonation wave (LSDW)	191
3.1.3. Laser-supported radiation wave (LSRW)	193
3.2. Hydrodynamique	194
3.2.1. Bilan de masse	195
3.2.2. Bilan de quantité de mouvement	195
3.2.3. Bilan d'énergie	196
3.2.4. Conditions initiales et aux limites	198
4. Développement du modèle macroscopique sous COMSOL	202
4.1. Utilisation de paramètres adimensionnels	203
4.2. Modélisation des ondes de choc en COMSOL	205

La modélisation de l'ablation des métaux par le faisceau laser nanoseconde dans l'air à la pression atmosphérique a été réalisée en utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics. C'est un logiciel de simulation qui permet de coupler plusieurs processus physiques et de résoudre ce système d'équations aux dérivées partielles par la méthode des éléments finis (FEM : Finite Element Method). La méthode des éléments finis (FEM) est une technique numérique qui sert à trouver des solutions approximatives des équations aux dérivées partielles (EDP) ou des équations intégrales. Cette technique permet de discrétiser en sous-ensemble un objet ou une partie d'un objet dont on veut étudier certaines de ses propriétés. Ces sous-ensembles, appelés « éléments », sont connectés entre eux par des noeuds. Cette discrétisation de la surface ou du volume d'un objet s'appelle le « maillage ». Ainsi, l'objet étudié est représenté par des fonctions définies sur chaque élément. Ces fonctions locales ont l'avantage d'être plus simples que celle qu'on pourrait éventuellement utiliser pour représenter la totalité de l'objet. Ce sont en particulier des polynômes ou des fonctions harmoniques.

Afin de pouvoir comparer les résultats du modèle avec les résultats expérimentaux, nous avons développé ce modèle dans le cas d'une cible d'aluminium ablatée par un faisceau laser Nd :YAG de (1064 nm), de durée d'impulsion de 5.1 ns et d'irradiance de 8.16 GW/cm² et de 4.73 GW/cm² dans l'air à la pression atmosphérique. Nous avons utilisé les propriétés thermo-physiques du matériau regroupées dans le tableau 3.3. Le processus d'ablation laser a été modélisé en deux parties: l'interaction laser – cible, qui était simulé par un modèle thermique en prenant en compte l'effet "plasma shielding" et l'expansion de la plume-plasma, qui était simulé par un modèle basé sur la dynamique des fluides (hydrodynamique). Afin de coupler ces deux modèles, les résultats du modèle thermique ont été utilisés comme conditions aux limites (correspondant à la surface de la cible) du modèle hydrodynamique.

1. Modèle thermique

Afin de décrire l'interaction entre le faisceau laser et la cible lors du processus d'ablation laser, un modèle thermique a été développé. C'est un modèle à 2D axisymétrique, où l'axe de symétrie correspond à celui du faisceau laser.

L'approche macroscopique utilisée dans ce modèle est justifiée par le fait que l'impulsion laser est de l'ordre de quelques nanosecondes et que l'ablation se réalise sur des métaux. Dans ce cas, le rayonnement laser est absorbé par des électrons libres présents dans

le métal. Ces électrons excités entrent en collisions avec des phonons de la structure cristalline du métal en leur transférant une partie de l'énergie absorbée. Comme le temps de relaxation de l'énergie dans les métaux est de l'ordre de 10^{-13} s [Von Allmen'87], on peut considérer que dans le cas de l'impulsion laser nanoseconde l'énergie du rayonnement laser est instantanément transformée en chaleur.

1.1. Transfert de chaleur dans la cible et fusion du matériau

1.1.1. Faisceau laser comme source de chaleur

En réalité, l'irradiance du faisceau laser est caractérisée par une distribution spatiale et une évolution temporelle (Chapitre 3). Dans le but d'être plus proche des conditions réelles, nous considérons que la répartition spatiale d'irradiance laser est gaussienne et que son profil temporel est décrit par une fonction appelée « pulse » (fonction de base présente par exemple dans le logiciel Origin 8) caractérisée par une largeur à mi-hauteur de $\tau_{las} = 5.1$ ns. La distribution spatiale gaussienne et l'évolution temporelle « de l'irradiance laser utilisée dans cette étude sont présentées sur la figure 6.1.

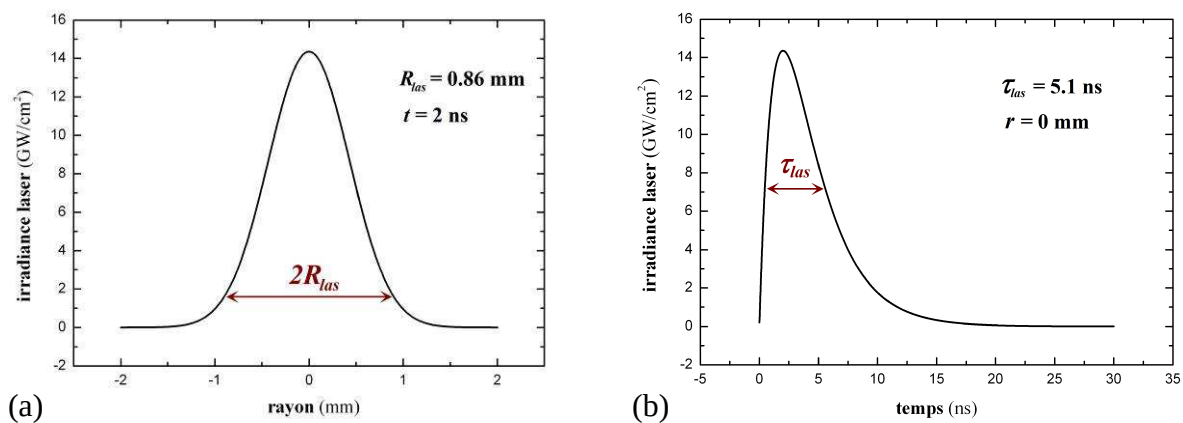


Fig. 6.1. (a) Distribution spatiale gaussienne et (b) évolution temporelle « pulse » d'irradiance laser la plus élevée utilisée dans cette étude.

Le produit de ces deux fonctions représente la fonction d'irradiance du faisceau laser utilisée dans ce modèle:

$$I_{inc}(r, t) = 2I_0 \exp\left(-\frac{2r^2}{R_{las}^2}\right) \cdot 4 \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{fit}}\right)\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{fit}}\right) \quad (6.1)$$

r représente la distance radiale de l'axe du faisceau laser, t - l'intervalle de temps depuis le déclenchement d'impulsion laser, R_{las} - le rayon du faisceau laser focalisé sur l'échantillon (le rayon de la tache focale) et τ_{fit} - un paramètre temporel qui a été ajusté à la valeur $\tau_{fit} = 2.9 \text{ ns}$ afin d'obtenir la largeur à mi-hauteur d'impulsion laser de $\tau_{las} = 5.1 \text{ ns}$. En intégrant la fonction $I_{inc}(r, t)$ par la surface et par le temps, nous obtenons l'énergie dépensée par une impulsion laser:

$$E_{imp} = 2I_0 \int_0^\infty \exp\left(-\frac{2r^2}{R_{las}^2}\right) 2r\pi dr \cdot \int_0^\infty 4 \left(1 - \exp\left(-\frac{t}{\tau_{fit}}\right)\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau_{fit}}\right) dt = I_0 R_{las}^2 \pi 2\tau_{fit} \quad (6.2)$$

Alors, on peut calculer la valeur de l'irradiance laser moyenne I_0 en introduisant les valeurs correspondantes d'énergie par impulsion laser E_{imp} et d'aire de la tache focale $R_{las}^2 \pi$, qui ont été mesurés dans la partie expérimentale (Chapitre 3). Les résultats de calcul sont donnés dans le Tableau 6.1.

Tableau 6.1. Calcul de l'irradiance laser I_0 pour les trois cas étudiés.

tension de la lampe flash (V)	1462	1550	1660
énergie par impulsion laser (J)	0.602	0.808	0.974
aire de la tache focale (mm ²)	4.31	3.34	2.34
irradiance laser I_0 (GW/cm ²)	2.408	4.171	7.177

Le faisceau laser d'irradiance $I_{inc}(r, t)$ est dirigé perpendiculairement à la surface de la cible. Lors de l'impact du faisceau laser sur la surface de la cible, une partie de l'énergie du faisceau laser incident est réfléchiée, alors que l'autre partie est absorbée par le matériau. Pour un matériau caractérisé par l'indice de réfraction complexe $n_1 + in_2$ (n_1 - la partie réelle de l'indice de réfraction, n_2 - la partie imaginaire de l'indice de réfraction), il est possible de calculer la réflectivité du rayonnement laser irradiant la surface de ce matériau:

$$R = \frac{(n_1 - 1)^2 + n_2^2}{(n_1 + 1)^2 + n_2^2} \quad (6.3)$$

R correspond à la proportion réfléchiée du faisceau laser. Si on néglige la quantité du faisceau laser diffusée par la surface, l'absorptivité du rayonnement laser par le matériau est $A = 1 - R$.

La profondeur d'absorption δ_a traduit l'évolution de la propagation d'un rayonnement de longueur d'onde λ dans un milieu absorbant, caractérisé par l'indice de réfraction complexe $n_1 + in_2$:

$$\delta_a = \frac{\lambda}{4\pi n_2} \quad (6.4)$$

Dans le cas d'un métal, l'énergie du faisceau laser est absorbée sur une petite profondeur δ_a de l'ordre de 10 nm [Bäuerle'00]. Cette énergie est instantanément transformée en chaleur, qui est ensuite dissipée dans la cible par conduction thermique. On peut estimer la profondeur de pénétration thermique par la relation [Aden'92]:

$$\delta_{th} = \sqrt{D_{th} \tau_{las}} = \sqrt{\frac{k(T) \tau_{las}}{\rho(T) c_p(T)}} \quad (6.5)$$

où τ_{las} est la durée de l'impulsion laser, $\rho(T)$ - la masse volumique, $c_p(T)$ - la chaleur spécifique et $k(T)$ - la conductivité thermique du matériau. Dans le cas du traitement d'échantillons d'aluminium à l'aide de source laser de durée d'impulsion $\tau_{las} = 5.1 \text{ ns}$, la profondeur de pénétration thermique δ_{th} est de l'ordre de 100 nm – 1 μm . Ainsi, on constate que la profondeur d'absorption d'énergie du faisceau laser δ_a est beaucoup plus petite que la profondeur de pénétration thermique δ_{th} . C'est pourquoi on peut assimiler ce transfert d'énergie à celui d'une *source de chaleur surfacique*, et donc la contribution d'énergie apportée par le faisceau laser sera prise en compte au niveau des conditions à la limite à la face supérieure de la cible.

1.1.2. L'équation de conduction thermique

La distribution de la température dans la cible peut être déterminée en résolvant l'équation de diffusion de la chaleur:

$$\rho(T) (c_p(T) + D L_f) \frac{\partial T(\vec{r}, t)}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (-k(T) \vec{\nabla} T(\vec{r}, t)) = 0 \quad (6.6)$$

où $T(\vec{r}, t)$ est la température dans la cible (en fonction des coordonnées spatiales et de temps). Cette équation fait intervenir les propriétés thermo-physiques du matériau, comme la masse volumique, la chaleur spécifique et la conductivité thermique. En général, toutes ces propriétés du matériau dépendent de la température. Par contre, dans ce modèle, la masse volumique ρ et la chaleur spécifique c_p du matériau est considérées constantes pour l'état de phase donné, et seule la conductivité thermique $k(T)$ est exprimée comme une fonction de température.

Avec l'augmentation de la température dans la cible, la fusion du matériau apparaît. Le changement de phase du matériau (état solide $\rightarrow$ état liquide), conduit au changement des valeurs de ses propriétés:

- la masse volumique [kg/m^3]: $\rho(T) = \begin{cases} \rho_s & T < T_f \\ \rho_l & T \geq T_f \end{cases} \quad (6.7)$

ρ_s - la masse volumique à l'état solide

ρ_l - la masse volumique à l'état liquide

T_f - la température de fusion

- la chaleur spécifique [$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$]: $c_p(T) = \begin{cases} c_{ps} & T < T_f \\ c_{pl} & T \geq T_f \end{cases} \quad (6.8)$

c_{ps} - la chaleur spécifique à l'état solide

c_{pl} - la chaleur spécifique à l'état liquide

T_f - la température de fusion

- la conductivité thermique [$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$]: $k(T) = \begin{cases} k_s(T) & T < T_f \\ k_l(T) & T \geq T_f \end{cases}$ (6.9)

$k_s(T)$ - la conductivité thermique à l'état solide

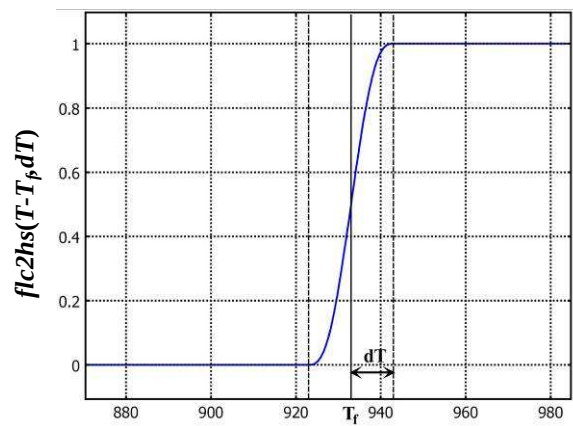
$k_l(T)$ - la conductivité thermique à l'état liquide

T_f - la température de fusion

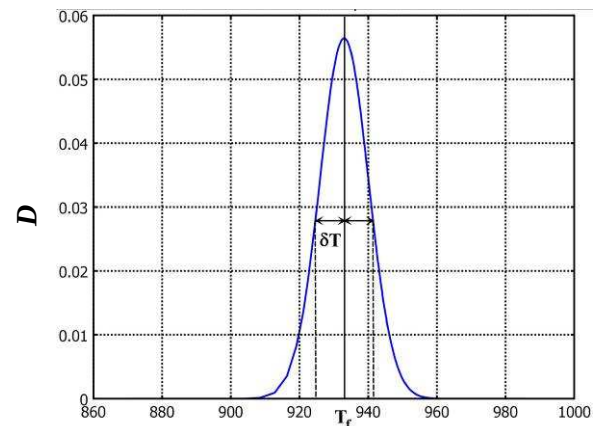
Les fonctions $k_s(T)$ et $k_l(T)$ ont été déterminées à partir des valeurs données dans [ASM'93]:

$$\begin{aligned} k_s(T) &= 39.646 + 1.684 \cdot T - 0.00541 \cdot T^2 + 8.4313 \cdot 10^{-6} \cdot T^3 - 6.537 \cdot 10^{-9} \cdot T^4 + 2 \cdot 10^{-12} \cdot T^5 \\ k_l(T) &= 40.551 + 0.0735 \cdot T - 2.315 \cdot 10^{-5} \cdot T^2 + 2.55 \cdot 10^{-9} \cdot T^3 - 1.065 \cdot 10^{-13} \cdot T^4 \end{aligned} \quad (6.10)$$

En pratique, lors de la résolution numérique de l'équation de diffusion de la chaleur, un changement rapide des paramètres physiques crée des instabilités numériques. C'est pourquoi la prise en compte du changement de phase et des propriétés physiques du matériau à l'état solide et liquide se fait en utilisant une fonction Heavyside lissée (fonction deux fois dérivable), notée *flc2hs* dans le logiciel COMSOL Multiphysics. Un exemple de la fonction Heavyside est donné sur la figure 6.2a.



(a)



(b)

Fig. 6.2. Exemple (a) de fonction Heavyside et (b) de fonction D .

Suivant que le matériau est un métal pur, cette transformation se fait à température constante ou sur un intervalle de température $2dT$. Donc, afin de prendre en compte ce changement de phase, les propriétés du matériau ont été décrites de façon suivant:

$$p = p_s + (p_l - p_s) \cdot \text{flc2hs}(T - T_f, dT); \quad dT = 10 \text{ K} \quad (6.11)$$

où p représente une propriété du matériau (ρ , c_p ou k) et l'indice indique l'état solide (s) ou liquide (l), T_f est la température de fusion et $2dT$ l'intervalle de température pendant lequel le changement de la valeur de propriété apparaît. Par exemple, la variation de la masse volumique de l'aluminium due au changement de phase à la température $T_f = 933 \text{ K}$ est présentée sur la figure 6.3. La figure 6.4 présente la variation de la conductivité thermique de l'aluminium en fonction de la température.

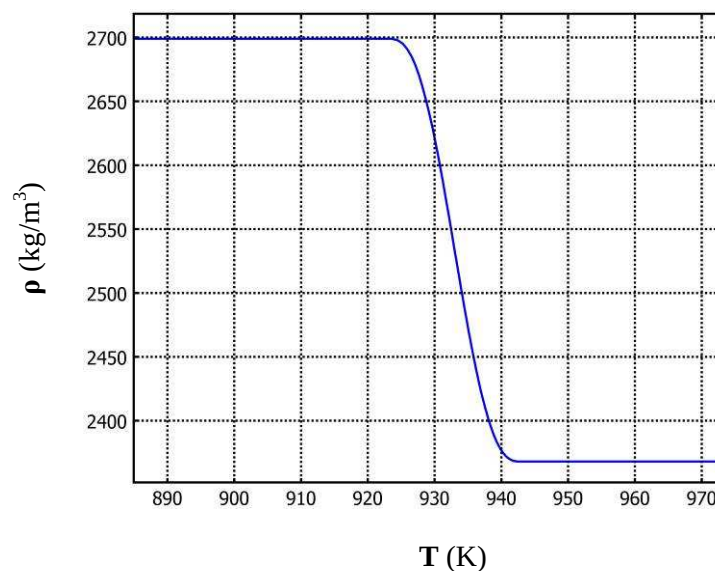


Fig. 6.3. Variation de la masse volumique de l'aluminium lors du changement de phase à $T_f = 933 \text{ K}$.

Afin de prendre en compte l'énergie dépensée lors de la fusion du matériau, un terme supplémentaire DL_f a été introduit dans l'équation de conduction thermique (6.6). L_f représente la chaleur latente de fusion du matériau et D une fonction gaussienne normalisée autour de la température de fusion T_f :

$$D = \frac{\exp\left(-\frac{(T-T_f)^2}{(\delta T)^2}\right)}{\sqrt{\pi(\delta T)^2}} ; \quad \delta T = 10 \text{ K} \quad (6.12)$$

où δT est la demi-largeur à mi-hauteur de cette fonction gaussienne (Fig. 6.2b).

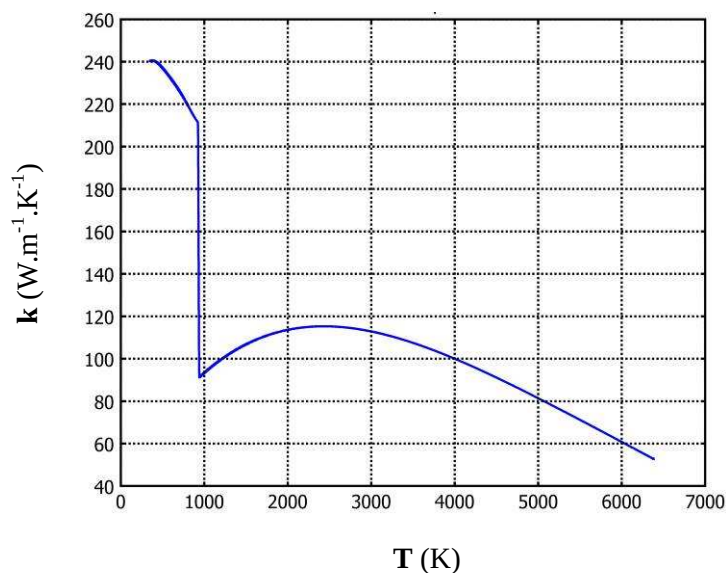


Fig. 6.4. Conductivité thermique de l'aluminium en fonction de la température.

La résolution de l'équation de conduction thermique (6.6) en géométrie axisymétrique a été effectuée sur un domaine rectangulaire de dimensions $1.5 \text{ mm} \times 2 \text{ }\mu\text{m}$ représentant une partie de la cible (Fig. 6.5). L'axe de symétrie, qui correspond à l'axe du faisceau laser, se trouve à la limite gauche du domaine rectangulaire. On a alors deux variables spatiales : r - la distance radiale de l'axe de symétrie et z - la distance de la surface de la cible. Le maillage du domaine rectangulaire a été adapté à cette géométrie et au fort gradient thermique au voisinage de la surface irradiée (Fig. 6.5). Le flux d'énergie induit un gradient très important suivant la direction des z , avec une évolution de la température localisée en surface (la couche maximale fondue est de l'ordre de $0.5 \text{ }\mu\text{m}$ en z et 1 mm en r). Donc, le maillage est plus fin à la surface de la cible et il augmente vers l'intérieur de la cible. De plus, il y a facteur d'échelle de 300 entre la dimension radiale des mailles par rapport à la dimension en z .

En fait seuls les paramètres de surface nous intéressent pour la seconde partie de la modélisation, puisqu'ils nous permettront de définir les conditions limites du modèle de dynamique de la plume.

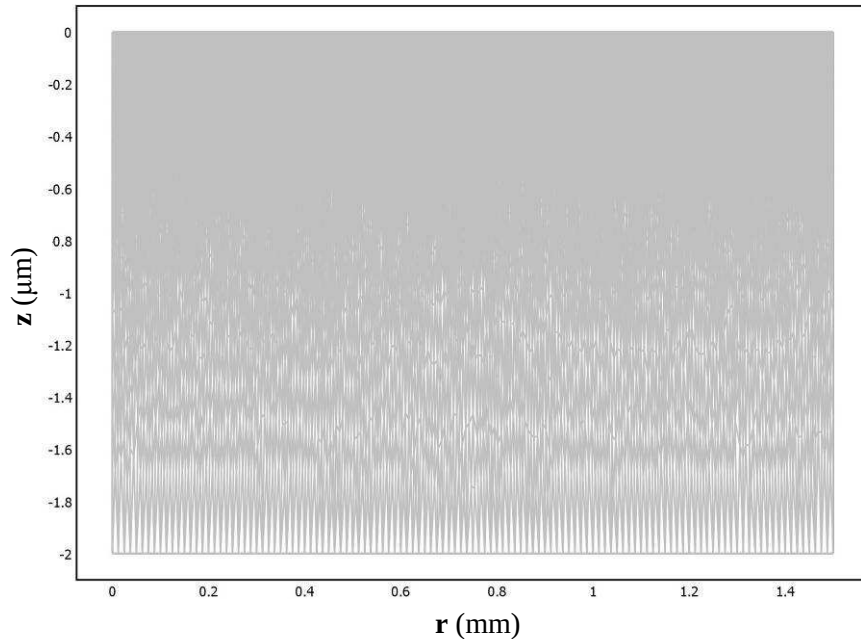


Fig. 6.5. Géométrie du modèle avec le maillage imposé.

1.1.3. Conditions initiales et aux limites

Afin de résoudre l'équation de diffusion de la chaleur, il est nécessaire de définir les conditions initiales et aux limites du domaine étudié.

Conditions initiales : nous considérons qu'à l'instant initial ($t = 0$) la cible se trouve à la température ambiante, d'où :

$$T(r, z, t = 0) = T_0 = 300 \text{ K} \quad (6.13)$$

Conditions aux limites :

- la limite gauche correspond à l'axe de symétrie
- la limite inférieure du domaine rectangulaire ($z = -2 \mu\text{m}$) reste à la température ambiante (pour les conditions étudiées la profondeur thermique est toujours inférieure à $2 \mu\text{m}$) :

$$T(r, z = -2 \mu\text{m}, t) = 300 \text{ K} \quad (6.14)$$

- la limite droite du domaine rectangulaire ($r = 1.5 \text{ mm}$) reste à la température ambiante, car pour les conditions étudiées le rayon thermique est toujours inférieur à 1.5 mm :

$$T(r = 1.5 \text{ mm}, z, t) = 300 \text{ K} \quad (6.15)$$

- la condition en surface de la cible (limite supérieure du domaine) évolue temporellement et peut être divisée en cinq étapes:

La première étape correspond au début d'impulsion laser, où la température à la surface de la cible est inférieure ou égale à la température de fusion du matériau ($T_s(t) \leq T_f$). La source de chaleur correspond à la partie d'énergie du faisceau laser absorbée par le matériau à la surface de la cible. La quantité d'énergie du faisceau laser absorbée par l'unité de surface du matériau dans l'unité de temps peut être exprimée par:

$$\alpha I_{inc}(r,t) \quad (6.16)$$

où α représente le facteur d'absorption de l'irradiation laser en surface du matériau. Ce facteur dépend de la longueur d'onde du rayonnement laser, ainsi que de l'état de la surface de l'échantillon [ASM'93a]. Dans cette étude, nous avons considéré que le facteur d'absorption ne varie pas avec la température de la surface pour l'état de phase donné. Par contre, le changement de phase du matériau conduit au changement de l'état de la surface de l'échantillon, donc la valeur de α change :

$$\text{facteur d'absorption du rayonnement laser: } \alpha(T) = \begin{cases} \alpha_s & T < T_f \\ \alpha_l & T \geq T_f \end{cases} \quad (6.17)$$

α_s - facteur d'absorption du rayonnement laser à l'état solide

α_l - facteur d'absorption du rayonnement laser à l'état liquide

T_f - la température de fusion

Durant cette étape, l'irradiance laser arrivant à la surface de la cible est égale à l'irradiance laser incidente $I_{inc}(r,t)$. Tant qu'il n'y a pas de vapeur ou de plasma au-dessus de la cible, la surface de l'échantillon est soumise à des pertes d'énergie par convection et rayonnement thermique vers le milieu ambiant. Le flux perdu par unité de surface due à la convection dans l'air s'écrit :

$$I_{conv} = -h_{air}(T_s - T_0) \quad (6.18)$$

où h_{air} est le coefficient d'échange convectif avec l'air, T_s - la température de la surface de l'échantillon, et T_0 - la température du milieu ambiant i .e. l'air ($T_0 = 300 K$).

Le flux rayonné par l'unité de surface du matériau est selon la loi de Stefan :

$$I_{\text{rayon}} = -\varepsilon \sigma_{SB} (T_s^4 - T_0^4) \quad (6.19)$$

où ε est l'émissivité du matériau traité.

La deuxième étape commence à partir du moment où la température à la surface de la cible dépasse la température de fusion du matériau ($T_s(t) > T_f$). Comme l'irradiance du faisceau laser est très importante, ceci arrive assez rapidement après le début d'impulsion laser. À partir de ce moment, la vaporisation du matériau de la surface de l'échantillon commence. Même si la vaporisation du matériau pour les températures entre T_f et T_v est relativement faible, il faut quand même prendre en compte la perte d'énergie par ce processus:

$$q_{\text{vap}} = \rho_l L_v v_{\text{rec}} \quad (6.20)$$

où ρ_l est la masse volumique du matériau à l'état liquide, L_v - la chaleur latente de vaporisation du matériau et v_{rec} représente la vitesse de l'interface liquide – vapeur. La détermination de ce dernier paramètre sera expliquée plus tard (§6.1.2). Maintenant, que l'on a de la vapeur au-dessus de la cible, qui est à la même température que la surface de la cible, il n'y a plus de convection par l'air, ni de perte d'énergie par rayonnement thermique.

La troisième étape commence à partir du moment où l'irradiance laser atteint la valeur critique I_{cl} ($t \geq t_{cl}$), conduisant à un claquage dans la vapeur et à la formation d'une plume-plasma au-dessus de la cible. Très rapidement, ce plasma devient opaque au rayonnement laser conduisant à l'effet d'écrantage (« plasma shielding »). L'effet d'écrantage (« plasma shielding ») représente l'atténuation du faisceau laser arrivant à la surface de la cible due à l'absorption du rayonnement laser par le plasma formé au-dessus de la cible. Afin de prendre en compte cet effet, nous avons introduit un facteur de transmission de la plume τ_{pl} . Ce paramètre indique la partie d'énergie du faisceau laser, qui est transmise par la plume et qui arrive à la surface de la cible. L'explication de l'effet "plasma shielding" et la détermination du facteur de transmission de la plume seront données plus tard (§6.1.3). Par contre, il faut toujours tenir compte qu'une partie d'énergie du faisceau laser qui arrive à la surface de la cible sert à la vaporisation du matériau (q_{vap}). Cette troisième étape dure jusqu'à la fin d'impulsion laser ($t \leq \tau_{las}$).

La quatrième étape est comptée à partir de la fin d'impulsion laser ($t > \tau_{las}$). Maintenant, il n'y a plus de source de chaleur (faisceau laser), mais la plume-plasma se trouve toujours au-dessus de la cible. La vie du plasma dure beaucoup plus longtemps que la durée d'impulsion laser. Lorsque l'impulsion laser est terminée, le système commence à se refroidir. Le plasma perd son énergie due à son expansion adiabatique dans l'air, mais aussi par rayonnement. La vaporisation du matériau de la surface de la cible continue tant que la température à la surface de la cible est supérieure à la température de fusion du matériau ($T_s(t) > T_f$). La quatrième étape finit avec la vaporisation du matériau.

La cinquième étape dure jusqu'à la fin de la vie du plasma. Dans le cas de l'ablation laser dans l'air à la pression atmosphérique, la plume-plasma est confinée et elle ne s'éloigne presque pas de la surface de la cible. Donc, il n'y a pas de refroidissement de la cible par la convection de l'air, ni par le rayonnement jusqu'à la fin de la vie du plasma. Par contre, la température à la surface de la cible continue à diminuer suite à la diffusion thermique dans le volume de la cible.

Afin de tenir compte des cinq étapes du processus d'ablation laser, les conditions imposées à la face supérieure ($z = 0$) de la cible peuvent s'écrire de façon suivante :

$$-\vec{n} \cdot (-k \nabla T) = \begin{cases} \alpha I_{inc}(r, t) - h_{air}(T_s - T_0) - \varepsilon \sigma_{SB}(T_s^4 - T_0^4) & 0 < t < t_{cl} \wedge T_s(t) \leq T_f \\ \alpha I_{inc}(r, t) - q_{vap} & 0 < t < t_{cl} \wedge T_f < T_s(t) \leq T_v \\ \alpha \tau_{pl} I_{inc}(r, t) - q_{vap} & t_{cl} \leq t \leq \tau_{las} \wedge T_s(t) \geq T_v \\ -q_{vap} & t > \tau_{las} \wedge T_s(t) > T_f \\ 0 & t > \tau_{las} \wedge T_s(t) \leq T_f \end{cases} \quad (6.21)$$

1.2. Vaporisation du matériau et couche de Knudsen

1.2.1. Vaporisation rapide du matériau

La dynamique de la vaporisation du matériau traité à l'aide d'un faisceau laser est surtout déterminée par la température à la surface de la cible $T_s(t)$. Cette température est calculée en utilisant l'équation de conduction thermique (6.6), qui prend en compte les paramètres laser et les propriétés du matériau (section précédente).

En général, les paramètres qui caractérisent la vaporisation du matériau sont :

- la pression de la vapeur au-dessus de la cible
- le taux de vaporisation (la masse du matériau évaporé par l'unité de la surface en unité de temps)
- la vitesse de recul (la vitesse de l'interface vapeur - liquide)

Dans le cas des conditions expérimentales considérées dans cette étude la vaporisation rapide du matériau apparaît à la surface de la cible. Ce type de vaporisation a été étudié par *Knight* [Knight'79]. Il donne des relations entre les paramètres caractérisant la vaporisation rapide et la vaporisation normale (§6.1.2.2).

Donc, afin de déterminer les paramètres de la vapeur formée au dessus de la cible, il faut d'abord calculer les paramètres correspondant à la vaporisation normale. Dans le cas de vaporisation normale, le métal liquide est en équilibre avec la vapeur métallique saturée, qui se trouve au-dessus de la cible. La pression de la vapeur métallique saturée p_v peut être déterminée en utilisant la relation de Clausius-Clapeyron :

$$p_v(T_s) = p_{at} \exp\left(\frac{\Delta H_v (T_s - T_v)}{R T_s T_v}\right) \quad (6.22)$$

où p_{at} est la pression atmosphérique, ΔH_v - l'enthalpie de vaporisation du matériau, et T_v - la température d'ébullition du matériau à la pression atmosphérique. On voit que la pression de la vapeur saturée p_v est une fonction de la température à la surface de la cible T_s .

À partir de la formule de Hertz-Knudsen nous pouvons déterminer le taux de vaporisation (la masse du matériau évaporé par l'unité de la surface en unité de temps) :

$$\frac{dm_v}{Sdt}(T_s) = \beta p_v(T_s) \sqrt{\frac{m_a}{2\pi k_B T_s}} \quad (6.23)$$

où $p_v(T_s)$ est la pression de la vapeur saturée au dessus de la cible (relation 6.22), m_a - la masse d'atome du matériau et T_s - la température à la surface de la cible. β est un facteur de correction pour prendre en compte les particules de la vapeur qui retournent à la surface de la cible. D'après *Anisimov* [Anisimov'68], 18% des particules de la vapeur retournent à la surface, donc $\beta = 0.82$.

La vitesse de recul v_{rec} représente la vitesse de déplacement de l'interface vapeur - liquide lors du processus de vaporisation. Elle peut être simplement calculée par :

$$v_{rec}(T_s) = \frac{1}{\rho_l} \frac{dm_v}{Sdt}(T_s) \quad (6.24)$$

où ρ_l est la masse volumique du matériau à l'état liquide.

Comme tous les paramètres caractérisant la vaporisation du matériau sont fonctions de la température à la surface de la cible $T_s(t)$, qui est elle-même une fonction du temps, les évolutions temporelles des paramètres $p_v(t)$, $\frac{dm_v}{Sdt}(t)$ et $v_{rec}(t)$ sont obtenues.

1.2.2. Couche de Knudsen

Lors d'ablation par un faisceau laser de forte puissance, une vaporisation rapide se produit à la surface du matériau traité. Cette vaporisation rapide a lieu lorsque la densité d'énergie absorbée est beaucoup plus grande que la quantité d'énergie nécessaire pour vaporiser le matériau traité [Zweig'91].

Knight a développé un modèle pour décrire la vaporisation rapide du matériau à partir d'une interface liquide - vapeur en milieu atmosphérique lors de l'ablation laser [Knight'79]. La présence d'une atmosphère conduit à l'augmentation des forces induites lors de la vaporisation du matériau.

En général, les particules émises lors d'une vaporisation thermique ne sont pas en équilibre. *Knight* a supposé que la vaporisation s'effectuait de façon quasi-équilibrée. Du fait d'une vaporisation intense, la vapeur est très dense et de nombreuses collisions entre atomes ont lieu au voisinage de la surface de la cible. Dans une couche, appelée couche de Knudsen, la distribution de vitesses des atomes se réorganise. Cette couche possède une épaisseur de quelques libres parcours moyen d'atome. La distribution des vitesses des atomes initialement de type demi-Maxwell se transforme en une distribution de type Maxwell avec une vitesse du centre de masse dirigée perpendiculairement à la surface de la cible. C'est à dire, une distribution équilibrée s'établit. Dans son modèle, *Knight* a traité la couche de Knudsen comme une discontinuité hydrodynamique (en introduisant des conditions de saut pour exprimer le bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie. A partir de cela, il a déterminé les conditions de saut T_K/T_s , ρ_K/ρ_v et p_K/p_v qui caractérisent la couche de Knudsen.

La couche de Knudsen est caractérisée par un changement discontinu des paramètres de la vapeur, c'est-à-dire la température, la masse volumique, la vitesse et la pression de la vapeur.

La température T_K , la masse volumique ρ_K et la pression de la vapeur p_K à la limite externe de la couche de Knudsen peuvent être déterminées à l'aide des relations suivantes [Knight'79] :

$$\frac{T_K}{T_s} = \left[\sqrt{1 + \pi \left(\frac{m}{2} \frac{\gamma-1}{\gamma+1} \right)^2} - \sqrt{\pi} \frac{m}{2} \frac{\gamma-1}{\gamma+1} \right]^2 \quad (6.25)$$

$$\frac{\rho_K}{\rho_v} = \sqrt{\frac{T_s}{T_K}} \left[\left(m^2 + \frac{1}{2} \right) \exp(m^2) \operatorname{erfc}(m) - \frac{m}{\sqrt{\pi}} \right] + \frac{1}{2} \frac{T_s}{T_K} \left[1 - \sqrt{\pi} m \exp(m^2) \operatorname{erfc}(m) \right] \quad (6.26)$$

$$\frac{p_K}{p_v} = \frac{\rho_K}{\rho_v} \frac{T_K}{T_s} \quad (6.27)$$

T_s est la température à la surface de la cible et ρ_v et p_v sont, respectivement, la masse volumique et la pression de la vapeur métallique saturée. La fonction erreur complémentaire, $\operatorname{erfc}(m)$ est exprimée par :

$$\operatorname{erfc}(m) = 1 - \operatorname{erf}(m) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_m^\infty e^{-x^2} dx \quad (6.28)$$

Le paramètre m est défini comme :

$$m = M_v \sqrt{\frac{\gamma}{2}} \quad (6.29)$$

où $\gamma = c_p / c_v$ est l'indice adiabatique de la vapeur du métal ($\gamma = 5/3$).

Le nombre de Mach M_v est défini à la limite externe de la couche de Knudsen. Il s'agit d'un paramètre qui caractérise le niveau de non-équilibre de la vaporisation. En général, le nombre de Mach est un nombre sans dimension qui exprime le rapport de la vitesse locale d'un fluide sur la vitesse du son dans ce même fluide.

Le nombre de Mach qui caractérise la vaporisation du métal lors de l'ablation laser dépend de la pression ambiante et de l'irradiance du faisceau laser [Jeong'98]. Dans le cas d'irradiance laser très élevé et à la pression atmosphérique, M_v atteint très rapidement la

valeur de 1 [Jeong'98]. Alors, nous considérons que sous les conditions étudiées la vaporisation du matériau dans l'atmosphère ambiante est en régime sonique ($M_v = 1$). Donc, le calcul est suivant :

$$M_v = 1, \quad \gamma = \frac{5}{3} = 1.667 \quad \rightarrow \quad m = M_v \sqrt{\frac{\gamma}{2}} = 0.913 \quad (6.30)$$

Dans le tableau de la fonction $erfc(m)$, la valeur la plus proche de m calculé est :

$$m = 0.913 \approx 0.91 \quad \rightarrow \quad erfc(0.91) = 0.1981 \quad (6.31)$$

Finalement, en utilisant (6.25), (6.26) et (6.27) nous obtenons les relations entre les paramètres de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen et les paramètres de la vapeur métallique saturée :

$$\frac{T_K}{T_s} = 0.6691, \quad \frac{\rho_K}{\rho_v} = 0.3095, \quad \frac{p_K}{p_v} = 0.2071 \quad (6.32)$$

Une fois que le nombre de Mach est déterminé, on peut calculer la vitesse des atomes de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen:

$$v_K = m \sqrt{\frac{2k_B T_K}{m_a}} = M_v \sqrt{\gamma \frac{k_B T_K}{m_a}} \quad (6.33)$$

où M_v est le nombre Mach, γ - l'indice adiabatique de la vapeur du métal, T_K - la température à la limite externe de la couche de Knudsen et m_a - la masse d'un atome.

Dans le modèle hydrodynamique qui décrit l'expansion de la plume d'ablation laser, les paramètres ρ_K , p_K et v_K seront utilisés comme conditions aux limites.

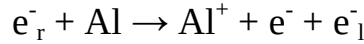
1.3. Ecrantage (« plasma shielding »)

La vapeur formée au dessus de la cible contient des atomes et des électrons libres provenant du métal irradié. Ces électrons, faisant partie de la vapeur métallique, commencent à absorber l'énergie du faisceau laser suivant le processus de bremsstrahlung inverse (dominant pour les longueurs d'onde IR) et/ou de photoionisation (dominant pour les longueurs d'onde UV). Dans cette étude, nous avons utilisé le faisceau laser Nd:YAG de longueur d'onde de 1064 nm, donc nous allons nous concentrer sur le processus de

bremsstrahlung inverse [Mao'97, Amoruso'99a]. Ce processus peut être représenté à l'aide de l'équation bilan suivante :



où l'indice l indique un électron lent et indice r un électron rapide. Alors, un électron peut absorber un photon du faisceau laser d'énergie $h\nu = hc/\lambda$ (où λ est la longueur d'onde du rayonnement laser) lors d'une collision élastique avec un atome ou un ion et ainsi augmenter son énergie cinétique. Après plusieurs absorptions des photons, l'électron acquiert une énergie cinétique plus grande que l'énergie d'ionisation des atomes constituant la vapeur. Cet électron est maintenant capable d'ioniser un atome de la vapeur lors de l'impact. Ce processus s'appelle *ionisation par l'impact d'électron* :



Al indique un atome et Al^+ un ion (une fois ionisé) d'aluminium. Si l'irradiance laser atteint ou dépasse la valeur critique $I \geq I_{cl}$, un processus d'avalanche se produit, augmentant très rapidement le nombre des électrons et des ions dans la vapeur, ce qui conduit à la formation d'un plasma au dessus de la cible. De nombreux électrons du plasma continuent à absorber le rayonnement laser par le processus de *bremsstrahlung inverse*, conduisant très rapidement à l'apparition d'un effet d'écrantage (« plasma shielding »). L'écrantage représente l'atténuation du faisceau laser qui arrive à la surface de la cible due à l'absorption du rayonnement laser par le plasma formé au-dessus de la cible [Mao'97, Aguilera'98].

Afin d'introduire l'effet d'écrantage dans le modèle, il faut d'abord bien connaître le processus de *bremsstrahlung inverse*. En général, le processus de *bremsstrahlung inverse* peut avoir lieu soit pendant l'interaction d'électron avec un atome (« electron-neutral scattering ») soit avec un ion (« electron-ion scattering ») [Amoruso'99a, Amoruso'99b]. Donc, le coefficient linéique d'absorption d'énergie du faisceau laser par le processus de *bremsstrahlung inverse* α_{IB} est égal à:

$$\alpha_{IB} = \alpha_{IB,e-n} + \alpha_{IB,e-i} \quad (6.34)$$

où $\alpha_{IB,e-n}$ est le coefficient linéique d'absorption de l'énergie laser par le processus de *bremsstrahlung inverse* pendant l'interaction d'électron avec un atome et $\alpha_{IB,e-i}$ pendant

l'interaction avec un ion. Ces coefficients $\alpha_{IB,e-i}$ et $\alpha_{IB,e-n}$ peuvent être exprimés comme [Root'89, Bogaerts'03]:

$$\alpha_{IB,e-i}(r, z, t) = \left[1 - \exp\left(-\frac{hc}{\lambda k_B T_e}\right) \right] \frac{4e^6 \lambda^3}{3hc^4 m_e} \left(\frac{2\pi}{3m_e k_B T_e} \right)^{1/2} N_e \sum_i Z_i^2 N_i \quad (6.35)$$

$$\alpha_{IB,e-n}(r, z, t) = \left[1 - \exp\left(-\frac{hc}{\lambda k_B T_e}\right) \right] \sigma N_e N_a \quad (6.36)$$

où λ est la longueur d'onde du faisceau laser, Z_i détermine la charge électrique des ions ($Z_i = q_i / e$; $Al^+ \rightarrow Z_1 = 1$, $Al^{2+} \rightarrow Z_2 = 2$, ...) et σ est la section efficace d'absorption du photon par l'électron lors de l'interaction avec un atome ($\sigma = 10^{-36} cm^5$ [Root'89]). On voit que les coefficients $\alpha_{IB,e-i}$ et $\alpha_{IB,e-n}$ dépendent des paramètres du plasma : la densité d'électrons $N_e(r, z, t)$, la température d'électrons $T_e(r, z, t)$, la densité des ions $N_i(r, z, t)$ et la densité des atomes $N_a(r, z, t)$. Du fait que le plasma induit par faisceau laser est inhomogène et non-stationnaire, tous les paramètres du plasma sont fonctions des coordonnées spatiales (r - la distance à l'axe du faisceau laser, z - la distance de la surface de la cible) et du temps. Donc, les coefficients $\alpha_{IB,e-i}$ et $\alpha_{IB,e-n}$ sont forcément aussi des fonctions des coordonnées spatiales et du temps.

En général, la probabilité d'absorption du photon pendant l'interaction électron - ion est beaucoup plus grande que dans le cas de l'interaction électron - atome. Néanmoins, au début de la vaporisation, le coefficient $\alpha_{IB,e-n}$ est prépondérant car la vapeur ne contient que des atomes et des électrons [Amoruso'99a]. Suite à la vaporisation rapide, la densité des atomes et des électrons augmentent très rapidement, donc le coefficient $\alpha_{IB,e-n}$ augmente aussi et les électrons absorbent de plus en plus d'énergie du faisceau laser. Une fois que les électrons ont acquis assez d'énergie pour ioniser les atomes lors de l'impact, la densité des ions commence à augmenter, alors que la densité des atomes diminue. Lors du claquage, le nombre des électrons et des ions augmente très rapidement conduisant à la formation d'un plasma. En conséquence, le coefficient $\alpha_{IB,e-i}$ devient prépondérant et très important transformant le plasma en un milieu opaque au rayonnement laser.

Après avoir traversé du plasma, l'irradiance à la surface de la cible, peut s'écrire de façon suivante:

$$I(r,t) = I_{inc}(r,t) \exp \left(- \int_{z_{pl}}^0 \alpha_{IB}(r,z,t) dz \right) \quad (6.37)$$

où $I_{inc}(r,t)$ est l'irradiance sans absorption (6.1), $\alpha_{IB}(r,z,t)$ - le coefficient linéique d'absorption d'énergie du faisceau laser par le processus de bremsstrahlung inverse (6.34) et z_{pl} - la longueur de la plume-plasma. Afin de calculer $\alpha_{IB}(r,z,t)$, nous avons besoin des paramètres du plasma $N_e(r,z,t)$, $T_e(r,z,t)$, $N_i(r,z,t)$ et $N_a(r,z,t)$, qui peuvent être obtenus comme les résultats d'un modèle hydrodynamique basé sur **l'approche microscopique** (§6.2).

Cependant, on peut aussi analyser ce problème d'un point de vue **macroscopique**. *Chen et al.* ont étudié le claquage dans l'air à la pression atmosphérique produit par un faisceau laser Nd :YAG de longueur d'onde de 1064 nm et de durée d'impulsion de 6.5 ns [Chen'00]. Ils ont mesuré le pourcentage d'énergie du faisceau laser transmis par le plasma formé dans l'air sous ces conditions. Les résultats, montrant le pourcentage d'absorption du faisceau laser par le plasma en fonction de l'énergie incidente par impulsion laser, sont présentés sur la figure 6.6. On voit qu'une fois que le claquage s'est produit, le pourcentage d'absorption augmente très rapidement avec l'énergie d'impulsion laser et il atteint une saturation à environ 90%. D'après les auteurs, la saturation de l'absorption du plasma est atteinte pour une valeur d'énergie d'impulsion laser trois fois plus élevée que le seuil de claquage. Si encore plus d'énergie est dépensée dans le plasma, le plasma a tendance à se dilater, plutôt que de devenir plus dense. En plus, sur la figure 6.6. on peut remarquer que déjà 50% d'énergie incidente est absorbée si l'énergie par impulsion utilisée est juste au dessus du seuil de claquage. Cela implique que la densité d'électrons atteint une valeur importante très rapidement – en approximativement 1 - 2 ns [Chen'00]. Alors, dans le cas d'irradiance laser plus élevée, l'augmentation de la densité d'électrons, et donc du pourcentage d'absorption du rayonnement laser, après le claquage se passera encore plus vite. D'après le modèle de *Gupta et al.* [Gupta'04], cela se passera en 0.3 ns et 1 ns respectivement pour l'irradiance laser de $I = 8.16 \text{ GW/cm}^2$ et de $I = 4.73 \text{ GW/cm}^2$. Ce modèle a été développé pour l'ablation de l'aluminium par l'impulsion laser de longueur d'onde de 532 nm et de durée d'impulsion de 6 ns dans le vide.

Les mesures d'absorption du rayonnement laser par le plasma induit lors de l'ablation du cuivre dans le vide et dans l'air à la pression atmosphérique ont été réalisées par *Fabbro et al.* [Fabbro'90]. Le pourcentage d'absorption est présenté en fonction de l'irradiance laser pour différentes longueurs d'onde (1064 nm et 530 nm) et durées d'impulsion laser (3 ns et 30 ns) (Fig. 6.7). On voit que dans le cas de l'ablation du cuivre par le faisceau laser de

longueur d'onde de 1064 nm, de durée d'impulsion de 3 ns et d'irradiance de 5 – 10 GW/cm² dans l'air à la pression atmosphérique, le pourcentage d'absorption est de l'ordre de 90%. Le seuil de claquage sous ces conditions est $I_{cl} = 0.6$ GW/cm² [Fabbro'90].

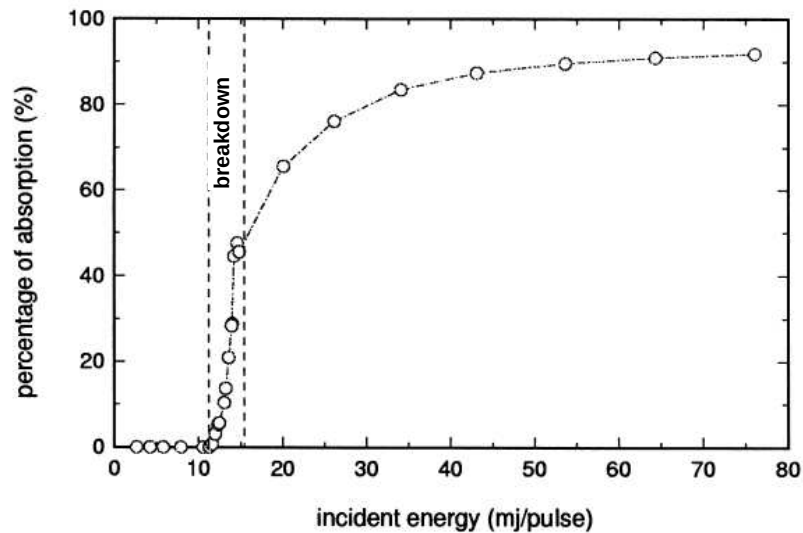


Fig. 6.6. Pourcentage d'absorption du rayonnement laser par le plasma formé dans l'air en fonction de l'énergie incidente par impulsion [Chen'00].

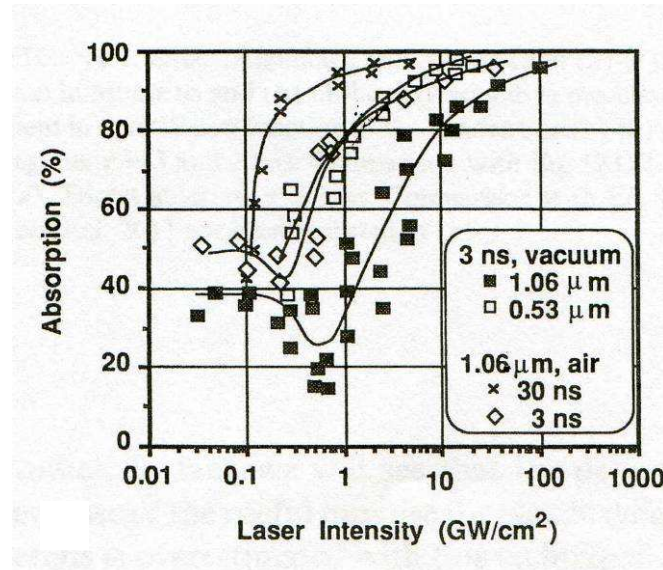


Fig. 6.7. Pourcentage d'absorption du rayonnement laser par le plasma formé lors de l'ablation du Cu en fonction d'irradiance laser [Fabbro'90].

Alors, on va faire l'hypothèse que dans le cas de l'ablation de l'aluminium sous des conditions similaires (longueur d'onde: 1064 nm, durée d'impulsion laser: 5.1 ns, irradiance laser: 4.73 – 8.16 GW/cm², milieu ambiant: air à $p = 1$ atm) le pourcentage

d'absorption du rayonnement laser par le plasma sera environ 90%. L'énergie d'ionisation de l'aluminium ($E_{ion} = 5.986$ eV) est inférieure à celle du cuivre ($E_{ion} = 7.726$ eV), mais on peut faire l'hypothèse que pour les irradiances laser indiquées la saturation du facteur d'absorption du rayonnement laser est déjà atteinte.

Le seuil de claquage de la vapeur d'aluminium a été mesuré par Cabalin *et al.* [Cabalin'98]. Ils ont observé que lors de l'ablation des cibles d'aluminium par le faisceau laser de longueur d'onde de 1064 nm et de durée d'impulsion de 5 ns dans l'air à la pression atmosphérique, la formation du plasma apparaît à la fluence laser de $F_{cl} = 1.01$ J/cm², correspondant à l'irradiance laser de $I_{cl} = 0.202$ GW/cm².

En conséquence, afin de prendre en compte l'effet d'écrantage (« plasma shielding ») dans notre modèle d'ablation laser basé sur l'approche macroscopique, nous avons introduit un facteur de transmission de la plume τ_{pl} . Ce paramètre indique la proportion d'énergie du faisceau laser transmise par la plume et arrivant à la surface de la cible. Avant le claquage, τ_{pl} est égal à 1, c'est-à-dire le rayonnement laser est entièrement transmis par la vapeur. À partir de l'instant de claquage t_{cl} , le plasma se forme et τ_{pl} diminue très rapidement atteignant la valeur de 0.1 (correspondant à l'absorption de 90%). Ici, encore une fois, la fonction Heavyside a été utilisée. Du fait que l'irradiance laser augmente très rapidement au début d'impulsion laser (Fig. 6.1b), le seuil de claquage est atteint en moins de 0.1 ns. À partir du profil temporel d'irradiance du laser incident $I_{inc}(t)$, on peut déterminer la valeur t_{cl} : $t_{cl} = 1.05 \cdot 10^{-11}$ s pour une irradiance moyenne de $I = 8.16$ GW/cm² et $t_{cl} = 1.8 \cdot 10^{-11}$ s pour une irradiance de $I = 4.73$ GW/cm². Ensuite, comme l'irradiance laser utilisée est très supérieure au seuil de claquage, on considère que la saturation du facteur d'absorption de la plume est atteinte en moins d'une nanoseconde ($dt = 0.5$ ns pour $I = 8.16$ GW/cm² et $dt = 0.7$ ns pour $I = 4.73$ GW/cm²). La fonction décrivant d'évolution temporelle du facteur de transmission de la plume τ_{pl} , qui a été introduite dans le modèle thermique, est présentée sur la figure 6.8.

La figure 7.1 (du chapitre 7) présente le profil temporel de l'irradiance laser obtenue en surface, après prise en compte de l'effet d'écrantage.

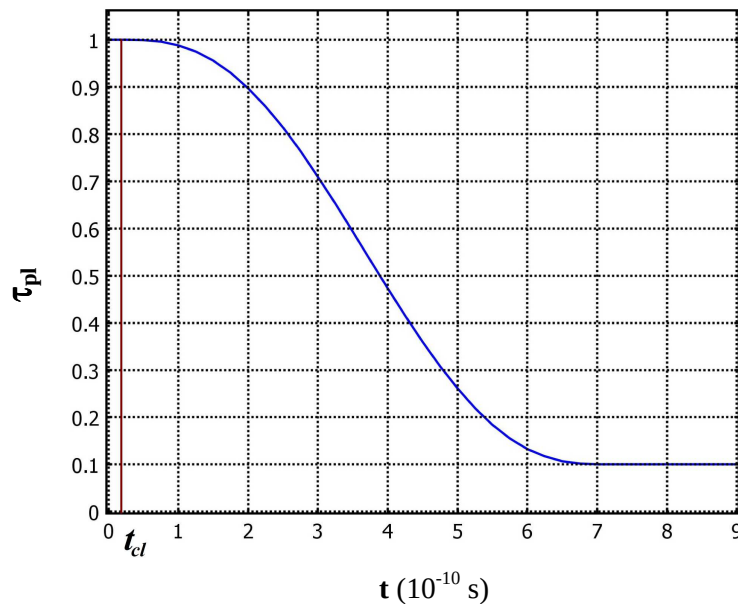


Fig. 6.8. Facteur de transmission de la plume τ_{pl} en fonction du temps ($I = 4.73 \text{ GW/cm}^2$)

2. Modèle hydrodynamique: approche microscopique

Au début de son expansion, la plume-plasma d'aluminium, formée dans l'air à la pression atmosphérique est très confinée et donc très dense. Alors, nous allons employer l'hydrodynamique (dynamique des fluides) afin de décrire l'expansion de cette plume. Le plasma est considéré comme un fluide parfait (non visqueux et sans conductivité thermique) compressible. Les équations d'Euler décrivent le bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie d'un tel fluide. Cette approche est basée sur l'hypothèse que la distribution des vitesses des particules est Maxwellienne et que les collisions entre les particules sont fréquentes.

Dans le modèle thermique, on a considéré que le faisceau laser est dirigé perpendiculairement à la surface de la cible et que l'irradiance laser a une distribution spatiale gaussienne autour de l'axe de symétrie du faisceau laser. En conséquence, la plume-plasma formée au dessus de la cible aura le même axe de symétrie que le faisceau laser.

Le modèle basé sur la dynamique des fluides, développé en COMSOL Multiphysics, est un modèle à 2D : une dimension spatiale « z » et une dimension temporelle « t ». « z » représente la distance de la surface de la cible le long de l'axe de symétrie du faisceau laser ($r = 0$) et « t » est le temps calculé depuis début d'impulsion laser. Les variables dépendantes

qui figurent dans les équations d'Euler, sont les densités des différents espèces du plasma N_e , N_a , $N_i^{(k)}$, la masse volumique de l'air ρ_{air} , la vitesse du fluide (plasma + air) v et sa densité d'énergie ξ . L'équation de bilan de masse pour l'air a été introduite afin de traiter séparément la matière ablatée et le gaz ambiant. En plus, des termes décrivant différents processus physiques ayant lieu dans le plasma, comme l'absorption du rayonnement laser par le plasma, la cinétique du plasma (excitation, ionisation, recombinaison), ainsi que le rayonnement du plasma ont été introduits dans les équations d'Euler.

2.1. Processus élémentaires dans le plasma

Le plasma formé au dessus de la cible lors de l'ablation laser contient des électrons (e^-), des atomes (Al) et des ions du métal vaporisé à différents niveaux d'ionisation (Al^+ , Al^{2+} , Al^{3+} , Al^{4+} , ...). Le niveau maximal d'ionisation dépend des conditions dans le plasma, surtout de la température. Avant d'écrire les équations d'Euler, il faut d'abord faire une analyse des processus élémentaires dominants dans un plasma d'ablation laser, qui conduisent à la création et l'annihilation des espèces du plasma, ainsi qu'à l'absorption et l'émission du rayonnement.

Pour généraliser, on va introduire la notation $Al^{(i)}$ où $i = 0, 1, 2, 3, \dots$ indique le nombre de fois que l'espèce a été ionisée. Alors, $Al^{(0)}$ correspond à un atome d'aluminium (Al), $Al^{(1)}$ à un ion d'aluminium une fois ionisé (Al^+), $Al^{(2)}$ à un ion d'aluminium deux fois ionisé (Al^{2+})... tous dans l'état stationnaire. $Al^{(i)*}$ représente un atome ou un ion d'aluminium dans l'état excité. e^-_l symbolise un électron lent (d'énergie cinétique basse) et e^-_r un électron rapide (d'énergie cinétique haute). $h\nu$ représente un photon.

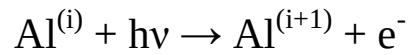
Les processus élémentaires les plus importantes sont représentés par l'équation correspondante [Zel'dovich'02, Milic'77]:

- **bremsstrahlung inverse** : un électron lent absorbe un photon du rayonnement laser lors d'une collision élastique avec un atome ou un ion, et ainsi augmente son énergie cinétique :



Cet effet est dominant si l'irradiation laser est dans la région IR. Un électron peut absorber plusieurs photons et ainsi significativement augmenter son énergie.

- **photoionisation** : un atome/ion absorbe un photon d'irradiation laser dont l'énergie est suffisamment élevée pour que l'ionisation de cet atome/ion se produise :

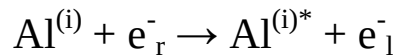


Cet effet est dominant si l'irradiation laser est dans la région UV.

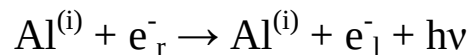
- **ionisation d'atome ou d'ion par l'impact d'électron** : un électron ayant une énergie cinétique assez élevée transmet une partie de cette énergie à un atome/ion lors d'un impact, induisant l'ionisation de cet atome/ion :



- **excitation d'atome ou d'ion par l'impact d'électron** : un électron n'ayant pas assez d'énergie cinétique pour réaliser une ionisation d'atome/ion lors d'impact, peut être capable de réaliser une excitation :

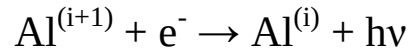


- **émission du rayonnement bremsstrahlung** (rayonnement de freinage): une partie d'énergie cinétique d'un électron rapide se transforme en rayonnement, lors de sa collision élastique avec un atome ou un ion :



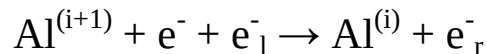
Ce rayonnement fait partie du rayonnement du plasma et contribue au continuum du spectre du plasma.

- **recombinaison radiative / photorecombinaison** : pendant la recombinaison d'un ion et d'un électron, l'énergie d'ionisation est transformée en rayonnement

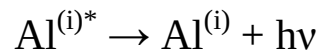


Ce rayonnement fait partie du rayonnement du plasma et contribue au continuum du spectre du plasma.

- **recombinaison à trois corps** : lors de l'interaction entre trois particules (un ion et deux électrons), une recombinaison entre l'ion et un électron se produit et l'énergie d'ionisation est transmise au second électron, faisant augmenter son énergie cinétique :



- **désexcitation radiative d'atome ou d'ion**: après un court séjour dans l'état excité l'atome ou l'ion se désexcite en rayonnant un photon :



Ce rayonnement fait partie du rayonnement du plasma et produit les raies spectrales du spectre du plasma.

2.2. Bilan de masse

Au niveau de bilan de masse, l'évolution de la densité de chaque espèce du plasma (électrons, atomes, ions) est analysée séparément. Les densités des espèces du plasma sont fonctions de z et de t non seulement à cause de l'expansion du plasma, mais aussi à cause de leur processus de création et annihilation, qui ont lieu dans le plasma. Dans le cas du plasma induit par faisceau laser de longueur d'onde de 1064 nm, les processus de création et

annihilation des espèces du plasma sont l'ionisation d'atome/ion par l'impact d'électron, la recombinaison radiative et la recombinaison à trois corps, décrites dans la section précédente.

Alors, le bilan de masse peut être décrit de façon suivante :

$$\begin{aligned}\frac{\partial N_e}{\partial t} + \nabla \cdot (N_e \vec{v}) &= \omega_e \\ \frac{\partial N_l^{(i)}}{\partial t} + \nabla \cdot (N_l^{(i)} \vec{v}) &= \omega_l^{(i)} \\ \frac{\partial \rho_{air}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_{air} \vec{v}) &= 0\end{aligned}\tag{6.38}$$

ou à 1 dimension spatiale :

$$\begin{aligned}\frac{\partial N_e}{\partial t} + N_e \frac{\partial v}{\partial z} + v \frac{\partial N_e}{\partial z} &= \omega_e \\ \frac{\partial N_l^{(i)}}{\partial t} + N_l^{(i)} \frac{\partial v}{\partial z} + v \frac{\partial N_l^{(i)}}{\partial z} &= \omega_l^{(i)} \\ \frac{\partial \rho_{air}}{\partial t} + \rho_{air} \frac{\partial v}{\partial z} + v \frac{\partial \rho_{air}}{\partial z} &= 0\end{aligned}\tag{6.39}$$

où $N_e(z,t)$ représente la densité d'électrons, $N_l^{(i)}(z,t)$ - la densité d'une espèce des particules lourdes (atomes et ions) où i ($i = 0, 1, 2, 3, \dots$) indique son niveau d'ionisation et $\rho_{air}(z,t)$ - la masse volumique de l'air.

Nous avons introduit les paramètres $\omega_e(z,t)$ et $\omega_l^{(i)}(z,t)$ afin de prendre en compte la création et l'annihilation des espèces du plasma due aux trois processus élémentaires : l'ionisation d'atome/ion par l'impact d'électron, la recombinaison radiative et la recombinaison à trois corps. La cinétique du plasma permet de décrire le changement de la densité de chaque espèce du plasma avec le temps, due aux processus de création ou d'annihilation de cette espèce dans la plume. La vitesse de changement de la densité d'une espèce du plasma suite à un processus élémentaire est proportionnelle aux densités des espèces du plasma qui participent dans ce processus. Si le nombre d'espèce du plasma analysée augmente suite au processus considéré – le signe associé est « + », si le nombre d'espèce du plasma analysée diminue – le signe associé est « - ».

Le processus d'ionisation d'atome par l'impact d'électron augmente le nombre d'électrons, alors que les processus de recombinaison radiative et de recombinaison à trois corps diminuent le nombre d'électrons. En prenant en compte l'interaction des électrons avec toutes les espèces du plasma, la variation de la densité d'électrons par unité du temps suite à ces trois types des processus élémentaires peut être décrite de façon suivante :

$$\omega_e = \sum_i (K_{ion}^{(i+1)} N_l^{(i)} N_e - K_{3rec} N_l^{(i+1)} N_e^2 - K_{rr} N_l^{(i+1)} N_e) \quad i = 0, 1, 2, 3... \quad (6.40)$$

où $K_{ion}^{(i+1)} N_l^{(i)} N_e$ est la contribution due au processus d'ionisation d'atome/ion par l'impact d'électron, $K_{3rec} N_l^{(i+1)} N_e^2$ - la contribution due à la recombinaison de trois corps et $K_{rr} N_l^{(i+1)} N_e$ - la contribution due à la recombinaison radiative.

De même façon, on peut décrire la variation de la densité de chaque espèce des particules lourdes dans une unité du temps $dN_l^{(i)} / dt$ [Aden'93]:

$$\omega_l^{(i)} = (K_{ion}^{(i)} N_l^{(i-1)} - K_{3rec} N_l^{(i)} N_e - K_{rr} N_l^{(i)} - (K_{ion}^{(i+1)} N_l^{(i)} - K_{3rec} N_l^{(i+1)} N_e - K_{rr} N_l^{(i+1)})) N_e \quad i = 0, 1, 2, 3... \quad (6.41)$$

Dans le cas de l'atome d'aluminium ($i = 0$), on n'aura que la deuxième partie de l'expression (6.41).

Les coefficients K_{ion} , K_{3rec} et K_{rr} sont définis par les relations suivantes [Zel'dovich'02, Lovetsky'75, Bulgakov'95, Le'00]:

- le coefficient de taux d'ionisation d'atome/ion par l'impact d'électron :

$$K_{ion}^{(i)} = 2 \frac{(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{h^3} K_{3rec} \exp\left(-\frac{I_{ion}^{(i)}}{T_e}\right) \quad (6.42)$$

- le coefficient de taux de la recombinaison à trois corps:

$$K_{3rec} = \frac{4\pi\sqrt{2\pi}}{9} \frac{e^{10}}{m_e^{1/2} (kT_e)^{9/2}} \quad (6.43)$$

- le coefficient de taux de la recombinaison radiative:

$$K_{rr} = \frac{2 \cdot 10^{-13}}{\sqrt{T_e}} \quad (6.44)$$

$I_{ion}^{(i)}$ représente le potentiel d'ionisation d'atome/ion et T_e - la température d'électrons, tous les deux exprimés en eV.

On voit que le système des équations décrivant le bilan de masse (6.39) dans ce modèle est déjà assez complexe. Les équations décrivant le bilan de masse des espèces du plasma

sont couplées, du fait des expressions $\omega_e(z,t)$ et $\omega_l^{(i)}(z,t)$ qui prennent en compte les processus de leur création et annihilation. En plus, les coefficients de taux de ces processus dépendent de la température d'électrons qui est une fonction de z et t .

2.3. Bilan de quantité de mouvement

Dans ce modèle hydrodynamique, nous considérons que toutes les espèces dans le fluide étudié se déplacent avec la même vitesse $\vec{v}(\vec{r},t)$, qui est une fonction des coordonnées spatiales et du temps. Alors, dans ce cas, le bilan de quantité de mouvement peut être écrit de façon suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho\vec{v}) + \nabla \cdot (\rho\vec{v}\vec{v}) + \nabla p = 0 \quad (6.45)$$

où ρ représente la masse volumique du fluide entier, c'est-à-dire la somme de la masse volumique du plasma ρ_{pl} et de l'air ρ_{air} :

$$\rho = \rho_{pl} + \rho_{air} = \rho_e + \sum_i \rho_l^{(i)} + \rho_{air} = m_e N_e + \sum_i m_l^{(i)} N_l^{(i)} + \rho_{air} \quad i = 0,1,2,3... \quad (6.46)$$

où ρ_e et $\rho_l^{(i)}$ sont respectivement la masse volumique d'électrons et des différentes particules lourdes du plasma, et m_e et $m_l^{(i)}$ sont leurs masses correspondantes. p représente la pression du fluide, c'est-à-dire la somme de la pression du plasma p_{pl} et de l'air p_{air} [Zel'dovich'02]:

$$p = p_{pl} + p_{air} = (N_e + \sum_i N_l^{(i)}) k_B T + \frac{\rho_{air} R T_{air}}{M_{air}} \quad i = 0,1,2,3... \quad (6.47)$$

où $T(\vec{r},t)$ est la température du plasma, dans le cas où l'approximation à une température a été employée (nous faisons l'hypothèse que les températures de toutes les espèces du plasma sont égales $T_e(\vec{r},t) = T_l(\vec{r},t) = T(\vec{r},t)$). Si l'approximation à deux températures est employée, l'expression (6.47) aura la forme :

$$p = p_{pl} + p_{air} = N_e k T_e + \sum_i N_l^{(i)} k_B T_l + \frac{\rho_{air} R T_{air}}{M_{air}} \quad i = 0,1,2,3... \quad (6.48)$$

où $T_e(\vec{r}, t)$ représente la température d'électrons et $T_l(\vec{r}, t)$ - la température des particules lourdes. Le terme $\rho_{air}RT_{air}/M_{air}$ représente la pression de l'air non-perturbé, qui se trouve devant la plume-plasma. Par contre, dans l'air qui a été chauffé par le plasma, les molécules sont forcément dissociées et donc les atomes de N et de O se comportent comme des particules lourdes du plasma.

En prenant en compte le bilan de masse, l'équation (6.45) peut être transformée en :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \rho(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} + \nabla p = 0 \quad (6.49)$$

ou dans le cas d'un système à 1 dimension spatiale (z):

$$\frac{\partial v_z}{\partial t} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (6.50)$$

où v_z représente la vitesse du fluide dans la direction de l'axe de symétrie du système (z).

2.4. Bilan d'énergie

Dans un plasma d'ablation formé par un faisceau laser Nd:YAG de longueur d'onde $\lambda = 1064 \text{ nm}$, ce sont plutôt des électrons qui absorbent l'énergie du rayonnement laser (par le processus de bremsstrahlung inverse) et puis transmettent une partie de cette énergie aux particules lourdes (atomes, ions) lors de collisions élastiques ou non-élastiques. Toutes les espèces du plasma émettent du rayonnement : les électrons émettent du rayonnement bremsstrahlung, alors que les atomes et les ions rayonnent lors des processus de désexcitation et de recombinaison radiative (photorecombinaison). En plus de la recombinaison radiative, il existe aussi la recombinaison à trois corps (section 2.1).

L'énergie interne d'un gaz ionisé comprend l'énergie thermique de toutes les particules du gaz (atomes, ions, électrons), ainsi que l'énergie potentielle des atomes et des ions due à leur structure énergétique [Zel'dovich'02]. Dans le cas de l'expansion de la plume-plasma dans l'air, il faut aussi prendre en compte l'énergie cinétique de ce fluide.

Au niveau du bilan d'énergie, nous pouvons considérer deux modèles :

- modèle à une température (1T) :

Nous considérons que les températures de toutes les espèces du plasma au même endroit et au même instant sont égales : $T_e(\vec{r}, t) = T_i(\vec{r}, t) = T(\vec{r}, t)$

- modèle à deux températures (2T) :

Nous considérons que la température des électrons T_e et la température des particules lourdes T_i (atomes et ions) sont différentes à cause du faible échange d'énergie entre ces deux types de particules : $T_e(\vec{r}, t) \neq T_i(\vec{r}, t)$

2.4.1. Approximation à une température (1T)

L'approximation d'égalité des températures de toutes les espèces du plasma est souvent employée dans les modèles (Chapitre 5, Tableau 5.2). Par contre, à cause d'une grande différence entre la masse des électrons et des particules lourdes (atomes, ions), leurs vitesses diffèrent significativement. Du fait de leur masse beaucoup plus petite, les électrons ont toujours une vitesse plus élevée.

En général, le plasma induit par faisceau laser gagne de l'énergie en absorbant une partie de l'énergie du faisceau laser. Dans le même temps, le plasma perd de l'énergie par le rayonnement qu'il émet. Alors, le bilan d'énergie peut être écrit de façon suivante :

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} + \nabla \cdot (\xi + p) \vec{v} = \alpha_{IB} I_{inc}(r, t) \exp \left(- \int_{z_{pl}}^z \alpha_{IB} dz \right) - \xi_{br} - \xi_{rr} - \xi_{dis} \quad (6.51)$$

où ξ représente la densité d'énergie, p la pression et $\vec{v}$ la vitesse du fluide « plasma + l'air ». Du côté droit de l'équation (6.51) on a des termes exprimant le gain ou la perte d'énergie du plasma. Le premier terme correspond à l'absorption du rayonnement laser par le plasma, où α_{IB} est le coefficient linéique d'absorption du rayonnement laser due à l'effet de bremsstrahlung inverse (6.34) et $I_{inc}(r, t)$ l'irradiance incidente du faisceau laser (6.1). z_{pl} est la longueur de la plume-plasma. Les termes qui suivent correspondent aux rayonnements du plasma : ξ_{br} - rayonnement bremsstrahlung (1.13), ξ_{rr} - rayonnement de recombinaison (1.16) et ξ_{dis} - rayonnement spectral (1.19).

La densité d'énergie du plasma ξ est définie par l'expression suivante [Aden'93]:

$$\xi = \frac{(N_e + \sum_i N_l^{(i)})k_B T}{\gamma - 1} + \sum_i \omega_l^{(i)} \left(\sum_{j=1}^i E_{ex}^{(j)} + E_{ion}^{(i)} \right) + \frac{\rho_{air} R T_{air}}{(\gamma_{air} - 1) M_{air}} + \frac{\rho v^2}{2} \quad i = 0, 1, 2, 3... \quad (6.52)$$

où N_e est la densité d'électrons, $N_l^{(i)}$ - la densité d'espèce i des particules lourdes et T est la température de toutes les espèces du plasma. γ représente l'indice adiabatique du plasma ($\gamma = 1.67$) et γ_{air} - l'indice adiabatique de l'air ($\gamma_{air} = 1.4$). $\omega_l^{(i)}$ est le taux de création et d'annihilation d'espèce i des particules lourdes, donné par l'expression (6.41), $E_{ex}^{(j)}$ est une énergie d'excitation d'une espèce de particule lourde et $E_{ion}^{(i)}$ est l'énergie d'ionisation d'espèce i des particules lourdes. Les deux premiers termes de l'expression (6.52) représentent la densité d'énergie interne du plasma. Le troisième terme correspond à la densité d'énergie interne de l'air non-perturbé et le quatrième terme est la densité d'énergie cinétique due au mouvement du fluide « plasma + l'air » avec la vitesse $\vec{v}$.

2.4.2. Approximation à deux températures (2T)

À cause d'une grande différence entre la masse des électrons et des particules lourdes (atomes, ions), le transfert d'énergie entre eux est difficile. L'énergie transférée lors un impact élastique électron - atome est de l'ordre de grandeur de $m_e / m_l \ll 1$ de leur énergie cinétique. Donc, les énergies thermiques des électrons et des particules lourdes, c'est-à-dire leurs températures, diffèrent significativement, surtout au début d'expansion du plasma.

Il existe plusieurs modèles à deux températures dans la littérature (Chapitre 5, Tableau 5.2). Si nous considérons que la température des électrons T_e et la température des particules lourdes (atomes et ions) T_l sont différentes, il faut analyser séparément le bilan d'énergie des électrons et le bilan d'énergie des particules lourdes.

Dans l'approche à deux températures, on a deux équations de bilan d'énergie – une pour les électrons et l'autre pour les particules lourdes. Alors, il faut séparer les expressions exprimant le gain ou la perte d'énergie du plasma en fonction du type des particules qui absorbent ou émettent le rayonnement. En plus, il faut prendre en compte l'échange d'énergie entre les électrons et les particules lourdes lors de leurs interactions.

L'équation de bilan d'énergie d'électrons peut être écrite de façon suivante :

$$\frac{\partial \xi_e}{\partial t} + \nabla \cdot (\xi_e + p_e) \vec{v} = \alpha_{IB} I_{inc}(r, t) \exp\left(-\int_{z_{pl}}^z \alpha_{IB} dz\right) + \xi_{3rec} - \xi_{br} - \xi_{e-l} - \xi_{ex} - \xi_{ion} \quad (6.53)$$

où la densité d'énergie d'électrons est donné par :

$$\xi_e = \frac{N_e k_B T_e}{\gamma - 1} + \frac{m_e N_e v^2}{2} \quad (6.54)$$

et la pression d'électrons est :

$$p_e = N_e k_B T_e \quad (6.55)$$

L'équation de bilan d'énergie des particules lourdes peut être écrite de façon suivante :

$$\frac{\partial \xi_l}{\partial t} + \nabla \cdot (\xi_l + p_l) \vec{v} = \xi_{e-l} + \xi_{ex} + \xi_{ion} - \xi_{3rec} - \xi_{rr} - \xi_{dis} \quad (6.56)$$

où la densité d'énergie des particules lourdes est:

$$\xi_l = \sum_i N_l^{(i)} \frac{k_B T_l}{\gamma - 1} + \sum_i \omega_l^{(i)} \left(\sum_{j=1}^i E_{ex}^{(j)} + E_{ion}^{(i)} \right) + \frac{\rho_{air} R T_{air}}{(\gamma_{air} - 1) M_{air}} + \frac{(\sum_i m_l^{(i)} N_l^{(i)} + \rho_{air}) v^2}{2} \quad (6.57)$$

et la pression des particules lourdes :

$$p_l = \sum_i N_l^{(i)} k_B T_l + \frac{\rho_{air} R T_{air}}{M_{air}} \quad (6.58)$$

Dans l'équation (6.53), qui décrit le bilan d'énergie pour les électrons, on voit que les électrons gagnent de l'énergie en absorbant l'énergie du faisceau laser par le processus de bremsstrahlung inverse (le premier terme du côté droit), ainsi que pendant la recombinaison à trois corps. L'énergie d'ionisation libérée durant la recombinaison à trois corps est distribuée entre l'atome et l'électron. La densité d'énergie transmise des atomes aux électrons par unité de temps, lors des processus de recombinaison à trois corps, est exprimée par [Bulgakov'95]:

$$\xi_{3rec} = \sum_i \frac{2}{3} K_{3rec} N_l^{(i)} N_e^2 E_{(i)}^* \quad (6.59)$$

où K_{3rec} est donné par l'expression (6.43). $E_{(i)}^*$ peut avoir des valeurs:

$$E_{(i)}^* = \begin{cases} k_B T_e & E_{(i)}^* < k_B T_e \\ 4.3 \cdot 10^{-4} E_{ion}^{(i)} N_e^{1/3} T_e^{-1/2} & k_B T < E_{(i)}^* < E'_{(i)} \\ 3.1 \cdot 10^{-4} E_{ion}^{(i)} N_e^{1/6} T_e^{1/12} & E_{(i)}^* > E'_{(i)} \\ E_{ion}^{(i)} & E_{(i)}^* > E_{ion}^{(i)} \end{cases} \quad (6.60)$$

où $E_{ion}^{(i)}$ est l'énergie d'ionisation d'espèce i des particules lourdes et $E'_{(i)}$ est défini comme :

$$E'_{(i)} = 2.1 \cdot 10^{-4} E_{ion}^{(i)} T_e^{2/3} \quad (6.61)$$

D'un autre côté, les électrons perdent de l'énergie par rayonnement bremsstrahlung (1.13), ainsi que lors des collisions élastiques et rigides avec des particules lourdes. Lors des collisions élastiques, les électrons transmettent une partie de leur énergie cinétique aux particules lourdes [Bulgakov'95]:

$$\xi_{e-l} = K_{e-l} N_e \sum_i N_l^{(i)} \frac{T_e - T_l}{T_e^{3/2}} \quad (6.62)$$

où le coefficient K_{e-l} est exprimé par :

$$K_{e-l} = \frac{80(2\pi m_e)^{1/2} e^4}{3k_B^{1/2} m_l} \quad (6.63)$$

où m_l est la masse d'une particule lourde.

Les collisions rigides où les électrons perdent de l'énergie sont l'excitation et l'ionisation d'atome ou d'ion par l'impact d'électron. ξ_{ex} représente la densité d'énergie transmise des électrons aux particules lourdes par unité de temps, lors des processus d'excitation d'atome ou d'ion par l'impact d'électron. La densité d'énergie transmise des électrons aux particules lourdes par unité de temps, lors des processus d'ionisation d'atome ou d'ion par l'impact d'électron, est [Bulgakov'95]:

$$\xi_{ion} = \sum_i \frac{2}{3} K_{ion}^{(i)} N_l^{(i)} N_e E_{ion}^{(i)} \quad (6.64)$$

où $K_{ion}^{(i)}$ est donné par l'expression (6.42).

En général, nous considérons que dans tous les processus d'excitation et d'ionisation, l'atome ou l'ion se trouvent à l'état de base au début du processus. De même, nous

considérons que dans tous les processus de désexcitation ou de recombinaison, l'atome ou l'ion se trouvent à l'état de base à la fin de processus.

L'équation (6.56) décrit le bilan d'énergie pour les particules lourdes. Leur énergie cinétique augmente à cause des collisions élastiques avec des électrons (ξ_{e-l}). L'énergie d'excitation (ξ_{ex}) et d'ionisation (ξ_{ion}), transmise des électrons aux particules lourdes lors des collisions rigides, contribue au changement de la structure énergétique des particules lourdes et augmente leur énergie potentielle. D'autre part, l'énergie potentielle des particules lourdes diminue suite au rayonnement émis lors des processus de recombinaison radiative (ξ_{rr}). Il en est de même pour le rayonnement distinct ξ_{dis} lors des processus de désexcitation radiative. L'énergie libérée lors des recombinaisons à trois corps est distribuée entre les atomes et les électrons. Une partie de cette énergie est transmise aux électrons (ξ_{3rec}) et l'autre partie est transformée en énergie cinétique des atomes, qu'on va considérer négligeable.

Par l'analyse des processus élémentaires dans le plasma, nous pouvons conclure que le processus d'excitation des particules lourdes par impact d'électron est en équilibre dynamique avec le processus de désexcitation radiative spontanée. Donc, nous pouvons considérer que $\xi_{ex} \approx \xi_{dis}$. Ainsi ces deux termes s'éliminent mutuellement dans l'équation (6.56).

2.5. Conditions initiales et aux limites

Dans ce modèle, une géométrie à 2D a été employée (voir §6.4). Cette géométrie est définie par deux variables indépendantes : z - la distance de la surface de la cible le long de l'axe de symétrie de la plume et t - le temps calculé depuis le début d'impulsion laser. Le système d'équations aux dérivées partielles a été résolu sur un domaine rectangulaire des dimensions $1.5 \text{ mm} \times 150 \text{ ns}$ (Fig. 6.9). Ainsi, les résultats représentent l'évolution temporelle de la longueur de la plume.

Afin de résoudre le système d'équations différentielles par la méthode des éléments finis (COMSOL Multiphysics), il est nécessaire de définir les conditions initiales et aux limites. Les limites du domaine sur lequel le calcul a été réalisé sont présentées sur la figure 6.9.

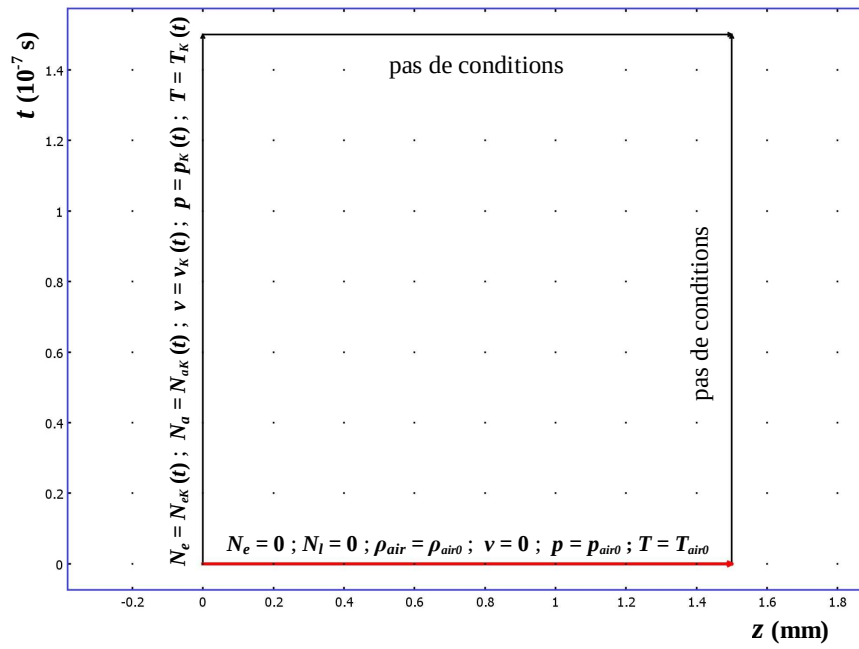


Fig. 6.9. Conditions aux limites du domaine de calcul

Les conditions initiales pour la modélisation de l'expansion du plasma formé lors d'un impact du faisceau laser sur la surface d'une cible métallique dans l'air à la pression atmosphérique sont suivantes :

$$\begin{aligned}
 N_e &= 0 \\
 N_l^{(i)} &= 0 \quad i = 0, 1, 2, 3... \\
 \rho_{air} &= \rho_{air0} = 1.3 \text{ kg/m}^3 \\
 \vec{v} &= 0 \\
 p &= p_{air0} = p_{at} = 101325 \text{ Pa} \\
 T &= T_{air0} = 300 \text{ K}
 \end{aligned} \tag{6.65}$$

Les seules conditions aux limites sont les conditions à l'interface avec la couche de Knudsen (notée en rouge sur la figure 6.9):

$$\begin{aligned}
 N_e &= N_{eK} \\
 N_l^{(0)} &= N_{aK} = \frac{p_K}{k_B T_K} \\
 N_l^{(i)} &= 0 \quad i = 1, 2, 3... \\
 \rho_{air} &= 0 \\
 \vec{v} &= v_K \vec{e}_z \\
 p &= p_K \\
 T &= T_K
 \end{aligned} \tag{6.66}$$

où N_{eK} et N_{aK} représentent respectivement la densité des électrons et des atomes du matériau traité à la limite externe de la couche de Knudsen. T_K , p_K et v_K sont définis respectivement par (6.25), (6.27) et (6.33).

Les électrons primaires, qui tirent leur origine du métal irradié, peuvent être émis par l'émission thermoïonique de la surface du métal solide ou liquide. Dans ce cas, le nombre d'électrons émis par une unité de surface dans une unité du temps, est déterminé par la formule Richardson-Dushman :

$$N_e^{ti}(T_s) = \frac{4\pi m_e k_B^2 T_s^2}{h^3} \exp\left(-\frac{\phi}{k_B T_s}\right) \quad (6.67)$$

où T_s est la température de la surface de la cible et ϕ est le travail de sortie du métal irradié.

3. Modèle hydrodynamique: approche macroscopique

Le processus d'expansion de la plume-plasma peut être aussi décrit d'un point de vue macroscopique. L'approche macroscopique simplifie beaucoup le modèle hydrodynamique. Dans ce cas, on étudie que l'évolution des paramètres macroscopiques du fluide, c'est-à-dire la masse volumique du plasma ρ_{pl} , la masse volumique de l'air ρ_{air} , la vitesse du fluide $\vec{v}$ et la pression du fluide p .

Lors de l'ablation laser, le faisceau laser induit un claquage dans la vapeur métallique formée au-dessus de la cible et engendre un plasma, qui très rapidement devient opaque au rayonnement laser. Ce plasma, caractérisé par une température et une pression très élevées, s'étend avec une vitesse supersonique dans l'atmosphère ambiante. Pour des irradiances laser supérieures au seuil du claquage, l'absorption du rayonnement laser par la plume augmente si rapidement, que la formation du plasma apparaît avant même que l'expansion de la plume devienne remarquable. Dans une approche macroscopique, l'absorption du rayonnement laser est décrite par des ondes d'absorption, qui dirigent l'expansion de la plume jusqu'à la fin d'impulsion laser. Après la fin d'impulsion laser, l'expansion de la plume-plasma est gérée par la dynamique des fluides.

3.1. Ondes d'absorption du rayonnement laser

L'expansion de la plume-plasma, caractérisée par une température et une pression très élevée, induit une onde de choc dans l'atmosphère ambiante. Une partie d'énergie de la plume-plasma est transférée à l'atmosphère ambiante par la conduction thermique, le transfert radiatif et/ou l'échauffement par le passage (la propagation d'onde de choc). La contribution de ces mécanismes de transfert d'énergie à l'évolution de la plume dépend des paramètres du faisceau laser (longueur d'onde, durée d'impulsion, irradiance), propriétés du matériau de la cible et propriétés du gaz ambiant (nature, pression). Le mécanisme dominant de transfert d'énergie détermine le type d'onde d'absorption qui va se former dans la plume [Root'89]. Par exemple, dans le cas d'une faible irradiance laser, c'est la conduction thermique qui domine, parce que la plume-plasma est spatialement et optiquement trop fine pour transférer l'énergie par le rayonnement. Ce cas correspond à la formation de « laser-supported combustion wave (LSCW) ». Dans le cas d'irradiance laser plus élevée, l'échauffement par le passage/la propagation d'onde de choc devient dominant et « laser-supported detonation wave (LSDW) » apparaît. Pour l'irradiance laser encore plus élevée, le transfert radiatif d'énergie est le plus efficace et dans ce cas on a la formation de « laser-supported radiation wave (LSRW) ». Alors, d'une manière ou l'autre, la couche du gaz ambiant la plus proche de la plume est chauffée et elle commence à absorber une partie du rayonnement laser. Dès que le nombre d'électrons atteint une valeur critique, la couche chauffée du gaz ambiant devient très opaque au rayonnement laser et elle se chauffe très rapidement jusqu'à la température du plasma. Maintenant, la couche chauffée devient la source du rayonnement thermique et le processus se répète avec la couche suivante du gaz ambiant. De cette manière, la plume-plasma se propage dans l'atmosphère ambiante. Le mécanisme dominant de transfert d'énergie peut changer avec l'évolution du plasma. Due à la formation des couches du gaz absorbantes devant elle, la plume-plasma change sa forme initiale confinée en une onde d'absorption qui se propage dans le gaz ambiant. La plupart d'énergie du faisceau laser est absorbée dans le front de la plume (l'onde d'absorption) en écrantant le reste de la plume du rayonnement laser. L'onde d'absorption se propage dans la direction du faisceau laser et ça dure jusqu'à la fin d'impulsion laser. Le plasma derrière l'onde d'absorption exécute aussi l'expansion dans la direction radiale.

Une représentation des trois types d'onde d'absorption à 1D est donnée sur les figures 6.10 et 6.11. Sur chaque image, trois régions sont présentées : le plasma, l'onde d'absorption et le gaz ambiant. On peut voir que, dans tous les cas, l'onde d'absorption représente une zone d'un changement rapide (un saut) des propriétés du gaz. Sur la figure 6.10, en dessous d'un schéma, les variations de la vitesse, de la pression, de la température et de la masse volumique du gaz le long de l'axe de symétrie de la plume (z) sont présentées pour chacun des types d'onde d'absorption. De même façon, sur la figure 6.11 les profils d'irradiance laser, du rayonnement du plasma, de la pression et de la température le long de l'onde d'absorption sont présentés.

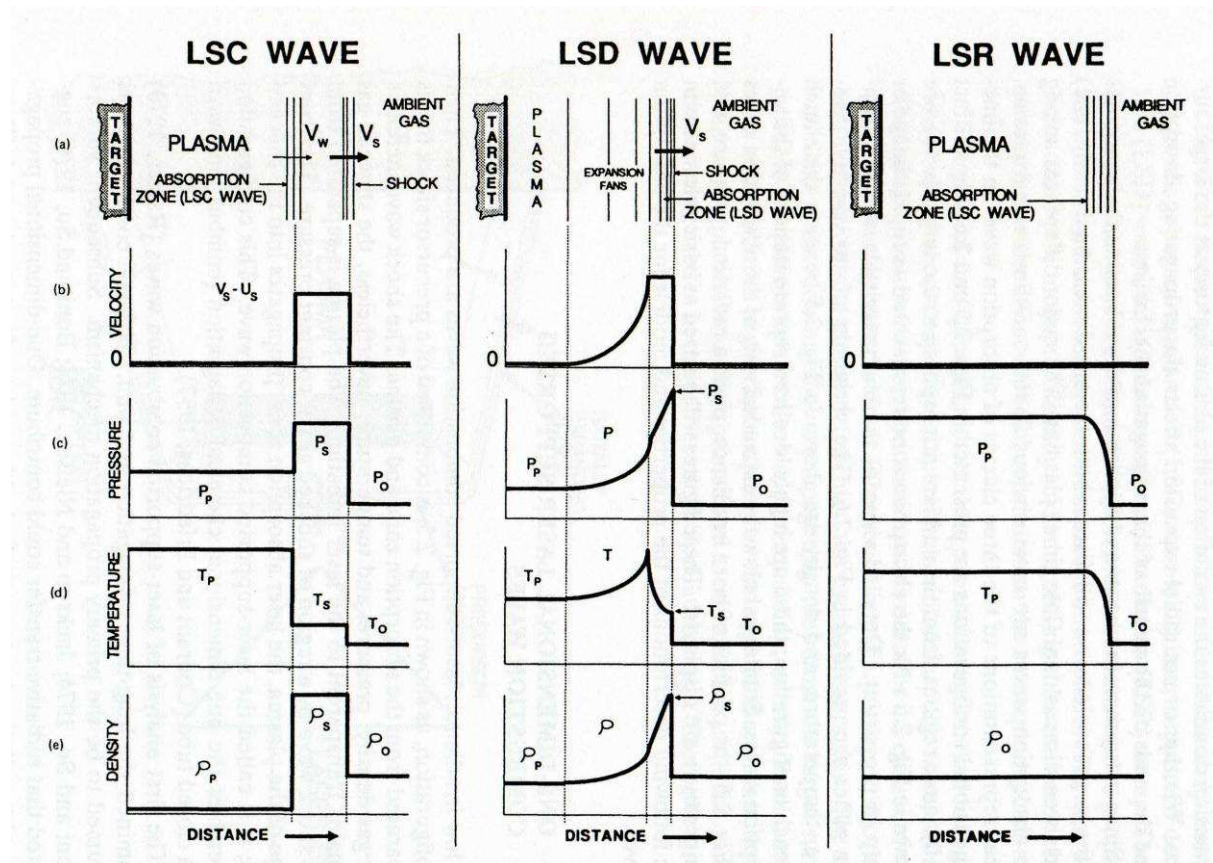


Fig. 6.10. Comparaison des trois mécanismes d'absorption du rayonnement laser : (a) configuration, (b) la vitesse, (c) la pression, (d) la température et (e) la masse volumique du gaz [Root'89].

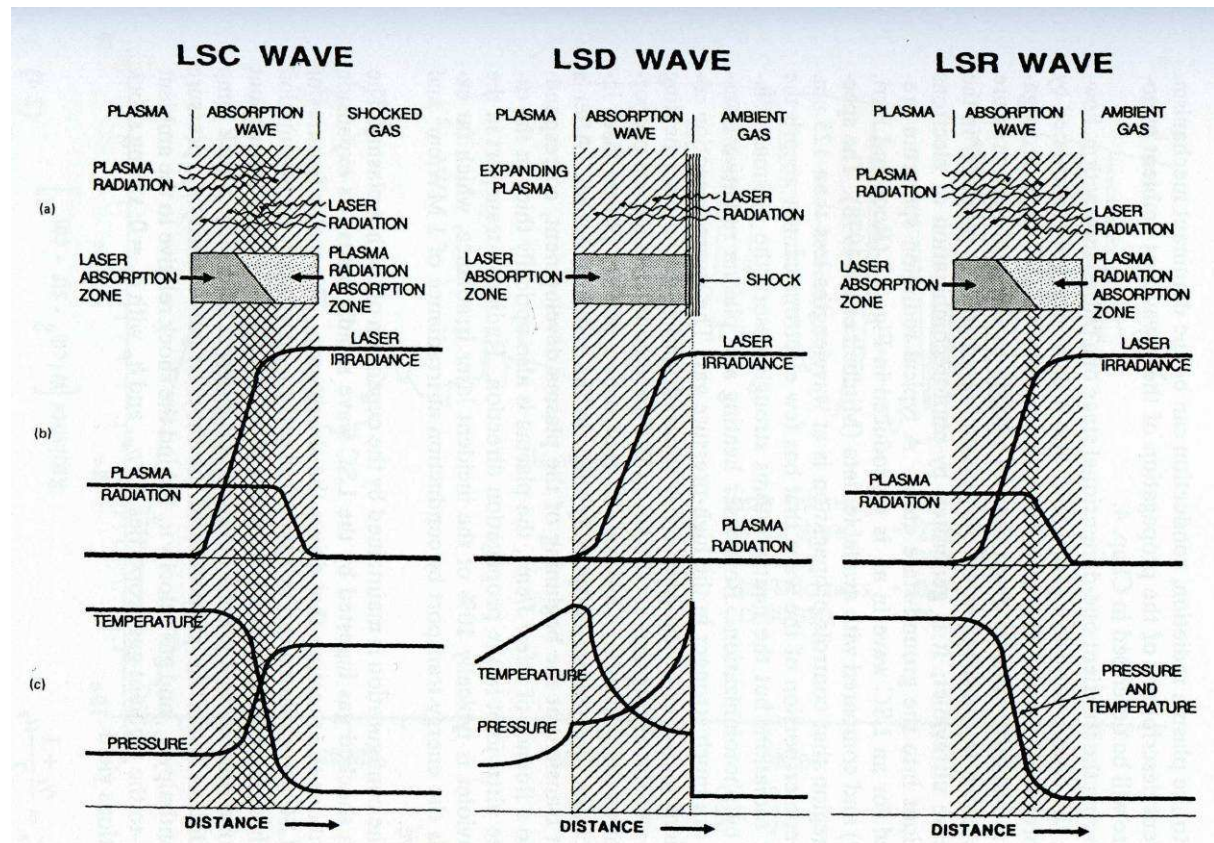


Fig. 6.11. Comparaison des trois mécanismes d'absorption du rayonnement laser : (a) configuration, (b) irradiance laser et rayonnement du plasma et (c) la pression et la température du gaz [Root'89].

3.1.1. Laser-supported combustion wave (LSCW)

Laser-supported combustion wave se forme lors de l'ablation laser en utilisant des irradiances laser plus faibles, $I < 10^8 \text{ W/cm}^2$. Dans ce cas, la conduction thermique est le mécanisme dominant de transfert d'énergie du plasma vers le gaz ambiant. Une onde de choc précurseur, qui est séparée de l'onde d'absorption et du plasma, augmente la pression, la température et la masse volumique du gaz ambiant. Pourtant, il reste transparent au rayonnement laser. La région entre l'onde de choc et l'onde d'absorption est caractérisée par une pression, une température et une masse volumique constante. Alors, l'onde d'absorption se propage dans ce gaz à haute pression formé par le passage de l'onde de choc. Ce gaz à haute pression absorbe le rayonnement du plasma d'un côté et le rayonnement laser de l'autre. Il se chauffe très rapidement et atteint la température du plasma.

Le cas de *laser-supported combustion wave* n'était pas considéré dans cette étude, car les irradiances laser utilisées sont bien supérieures à 10^8 W/cm^2 .

3.1.2. Laser-supported detonation wave (LSDW)

Laser-supported detonation wave apparaît lors de l'ablation laser en utilisant des irradiances laser $10^8 \text{ W/cm}^2 < I < 10^9 \text{ W/cm}^2$. Dans ce cas, l'onde de choc précurseur est suffisamment forte pour chauffer le gaz ambiant jusqu'à la température où il sera capable de commencer l'absorption du rayonnement laser sans avoir été en plus chauffé par le rayonnement du plasma. La zone d'absorption du rayonnement laser (l'onde d'absorption) est une couche fine du gaz, qui se trouve juste derrière l'onde de choc (Fig. 6.10). Elle est caractérisée par des sommets des paramètres v , p , T et ρ et se déplace avec la même vitesse que l'onde de choc. Derrière l'onde de choc, le faisceau laser chauffe le gaz jusqu'à sa vitesse locale devient sonique (dans le point Chapman-Jouget). La propagation de LSDW est complètement contrôlée par l'absorption d'énergie du faisceau laser entre l'onde de choc et le point Chapman-Jouget. Le comportement du gaz derrière le point Chapman-Jouget n'a aucun effet sur la propagation du plasma.

Raizer a étudié des différents mécanismes d'absorption du rayonnement laser par un gaz [Raizer'65]. À partir des équations de bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie à travers l'onde d'absorption et d'équation d'état du gaz, il a déterminé l'équation d'adiabate de choc du gaz dans lequel l'énergie du faisceau laser a été dépensée :

$$p = \left(2\sqrt{1-\eta} \frac{I_{las}\sqrt{\rho_0}}{\frac{\gamma+1}{\gamma-1}\eta-1} \right)^{\frac{2}{3}} \quad \text{où} \quad \eta = \frac{\rho_0}{\rho} \quad (6.68)$$

où I_{las} représente l'irradiance laser incidente, ρ_0 - la masse volumique initiale du gaz ambiant, ρ - la masse volumique du gaz derrière l'onde d'absorption et γ - l'indice adiabatique. Pour l'air à la température de $T \approx 5 \cdot 10^5 - 10^6 \text{ K}$, l'indice adiabatique a la valeur de $\gamma = 1.33$. L'adiabate de choc du gaz qui a absorbé l'énergie du faisceau laser, appelée aussi la courbe de Hugoniot d'onde d'absorption, est présenté sur la figure 6.12.

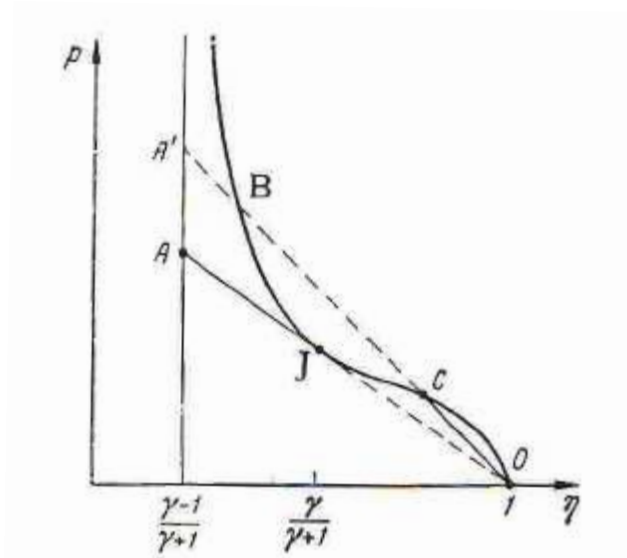


Fig. 6.12. La courbe de Hugoniot d'onde d'absorption [Raizer'65].

La vitesse d'onde d'absorption est déterminée par la pente de la droite qui relie le point 0, correspondant à l'état initial du gaz, et le point sur l'adiabate de choc correspondant à l'état final du gaz (Fig. 6.12). On peut voir que pour une valeur d'irradiance laser donnée, il existe un minimum de la vitesse de propagation d'onde d'absorption, qui correspond au point J, appelé le point Chapman-Jouget. Dans le cas de LSDW, le gaz est comprimé et chauffé par l'onde de choc jusqu'à ce qu'il atteigne l'état correspondant au point A (Fig. 6.12). Ensuite, en absorbant du rayonnement laser son énergie augmente et il atteint le point J à la fin d'impulsion laser. Alors, à la fin d'impulsion laser, le gaz qui a absorbé le rayonnement laser (l'onde d'absorption - LSDW) est caractérisé par [Raizer'65]:

- la masse volumique de LSDW:

$$\rho_{lsdw} = \rho_0 \frac{\gamma+1}{\gamma} \quad (6.69)$$

- la vitesse de LSDW:

$$v_{lsdw} = \sqrt[3]{2(\gamma^2 - 1) \frac{I_{las}}{\rho_0}} \quad (6.70)$$

- la pression de LSDW:

$$p_{lsdw} = \left(\frac{2I_{las} \sqrt{\rho_0} (\gamma-1)}{\sqrt{\gamma+1}} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (6.71)$$

Sur la figure 6.10, on peut remarquer que la pression, ainsi que la masse volumique du gaz, atteignent leur maximum dans la région d'onde de choc, devant l'onde d'absorption. D'un autre côté, la température augmente aussi, mais elle atteint son sommet vers la fin d'onde d'absorption. Lors de processus d'absorption du rayonnement laser, la pression et la masse volumique diminuent jusqu'à la valeur du point Chapman-Jouget. Derrière le point Chapman-Jouget, tous les paramètres du gaz diminuent due à l'expansion isentropique par des ondes de raréfaction.

3.1.3. Laser-supported radiation wave (LSRW)

Laser-supported radiation wave se produit lors de l'ablation laser en utilisant des irradiances assez élevées, $I > 10^9 \text{ W/cm}^2$. Dans ce cas, le gaz ambiant se chauffe par l'absorption du rayonnement du plasma. Le rayonnement du plasma est tellement important, que même avant que l'onde de choc arrive, le gaz ambiant est déjà chauffé jusqu'à la température où il commence à absorber le rayonnement laser. Dans le cas idéal de LSRW, il n'y a pas de variation de masse volumique (Fig. 6.10). Le changement rapide de la pression et de la température du gaz dans la zone d'absorption provient simplement de son échauffement local lors de l'absorption du rayonnement et pas de propagation d'une onde de choc. Sur la Figure 6.10 on voit que la distribution de la pression et de la température dans la plume-plasma derrière l'onde d'absorption est très uniforme. La température du plasma est de l'ordre de 10^5 K . Les lois d'échelle pour la vitesse de propagation de LSRW et pour la température du plasma sont suivantes [Root'89]:

- la vitesse de LSRW :

$$v_{lsrw} = V I_{las}^{4/(\beta+4)} \quad (6.72)$$

- la température du plasma derrière LSRW:

$$T_{pl} = T I_{las}^{1/(\beta+4)} \quad (6.73)$$

où $\beta = 1.6$ (pour des températures élevées qui caractérisent LSRW) et V et T sont des constantes. Pour le faisceau laser de longueur d'onde de 1064 nm et l'irradiance I_{las} mesurée en GW/cm^2 , $V = 1 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ et $T = 104500 \text{ K}$. La vitesse de LSRW augmente plus

rapidement avec l'irradiance laser que les vitesses de LSCW et de LSDW. Par contre, la pression et la température du plasma derrière LSRW augment très lentement avec l'irradiance laser. Ce comportement démontre que LSRW est plus efficace pour transférer l'énergie absorbée et chauffer des grandes quantités du gaz, que pour augmenter son enthalpie locale.

3.2. Hydrodynamique

Dans l'approche macroscopique, on étudie que l'évolution des paramètres macroscopiques du fluide, c'est-à-dire la masse volumique du plasma ρ_{pl} , la masse volumique de l'air ρ_{air} , la vitesse du fluide $\vec{v}$ et la pression du fluide p . L'avantage d'approche macroscopique est qu'on n'est pas obligé d'introduire la cinétique du plasma, parce que toutes les variations des densités des différentes espèces du plasma sont déjà prises en compte dans les expressions décrivant l'évolution de la masse volumique du plasma ρ_{pl} . En plus, le remplacement de la densité d'énergie par la pression nous permet de simplifier l'équation de bilan d'énergie, parce que toutes les variations des températures des différentes espèces du plasma sont déjà prises en compte dans les expressions décrivant l'évolution de la pression du plasma. Par contre, comme dans le cas d'approche macroscopique nous n'avons pas d'informations au niveau des densités et des températures des particules du plasma, il faut trouver des moyens pour décrire les processus d'absorption ou d'émission du rayonnement, comme on a fait par exemple dans le cas de « plasma shielding » (section 1.3). Ou bien, il faut étudier le processus d'expansion de la plume à partir d'un certain moment où les paramètres du plasma sont décrits par la théorie, comme dans le cas d'ondes d'absorption (section 3.1).

La géométrie de ce modèle hydrodynamique basé sur l'approche macroscopique est la même que dans le cas d'approche microscopique. Alors, c'est un modèle à 2D : une dimension spatiale « z » et une dimension temporelle « t ». « z » représente la distance de la surface de la cible le long de l'axe de symétrie du faisceau laser ($r = 0$) et « t » est le temps calculé depuis le début d'impulsion laser. Par contre, dans ce modèle, l'échelle du temps ne commence pas à 0, mais à 5,6 ns correspondant à la fin d'impulsion laser. Plus des détails seront donnés plus tard.

3.2.1. Bilan de masse

Dans le modèle hydrodynamique basé sur l'approche macroscopique, on a étudié que l'évolution de la masse volumique du plasma ρ_{pl} et de la masse volumique de l'air ρ_{air} . Alors, ici aussi, le plasma et l'air ont été traités séparément. Le bilan de masse pour le plasma est décrit par l'expression suivante:

$$\frac{\partial \rho_{pl}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_{pl} \vec{v}) = 0 \quad (6.74)$$

ou à 1D spatiale (z) :

$$\frac{\partial \rho_{pl}}{\partial t} + \rho_{pl} \frac{\partial v_z}{\partial z} + v_z \frac{\partial \rho_{pl}}{\partial z} = 0 \quad (6.75)$$

La cinétique du plasma n'était pas introduite, parce que toutes les variations des densités des différentes espèces du plasma sont déjà prises en compte dans la masse volumique du plasma ρ_{pl} . Dans le cas d'air, le bilan de masse est décrit par :

$$\frac{\partial \rho_{air}}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_{air} \vec{v}) = 0 \quad (6.76)$$

ou à 1D spatiale (z) :

$$\frac{\partial \rho_{air}}{\partial t} + \rho_{air} \frac{\partial v_z}{\partial z} + v_z \frac{\partial \rho_{air}}{\partial z} = 0 \quad (6.77)$$

Nous supposons que les deux fluides (plasma et l'air) se déplacent avec la même vitesse $\vec{v}$, qui est une fonction des coordonnées spatiales et du temps. v_z est la composante de la vitesse dans la direction de l'axe de symétrie de la plume.

3.2.2. Bilan de quantité de mouvement

Bilan de quantité de mouvement est décrit de même façon que dans le cas d'approche microscopique :

$$\rho \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \rho(\vec{v} \cdot \nabla) \vec{v} + \nabla p = 0 \quad (6.78)$$

ou à 1D spatiale (z) :

$$\frac{\partial v_z}{\partial t} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} + \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} = 0 \quad (6.79)$$

où v_z est la vitesse du fluide dans la direction de l'axe de symétrie de la plume. ρ représente la masse volumique du fluide entier, c'est-à-dire la somme de la masse volumique du plasma ρ_{pl} et de l'air ρ_{air} :

$$\rho = \rho_{pl} + \rho_{air} \quad (6.80)$$

et p représente la pression du fluide entier, c'est-à-dire la somme de la pression du plasma p_{pl} et de l'air p_{air} :

$$p = p_{pl} + p_{air} \quad (6.81)$$

3.2.3. Bilan d'énergie

Dû au fait que dans l'approche macroscopique on ne traite pas séparément les différentes espèces du plasma, l'approximation à deux températures n'est pas possible. En plus, on a décidé de remplacer la densité d'énergie par la pression, parce que très souvent les caractéristiques d'ondes d'absorption sont décrites par la masse volumique, la vitesse et la pression du fluide (section 3.1).

Dans ce modèle, l'expansion de la plume-plasma est étudiée à partir de la fin d'impulsion laser ($t = 5,6$ ns). Alors, le terme exprimant l'absorption du rayonnement laser par le plasma n'est pas pris en compte dans ce bilan d'énergie. En revanche, les paramètres caractérisant d'onde d'absorption du rayonnement laser, qui dirige l'expansion du plasma jusqu'à la fin d'impulsion laser, seront pris en compte au niveau des conditions initiales/aux limites du modèle. Donc, le bilan d'énergie du fluide « plasma + l'air » après la fin d'impulsion laser peut être décrit de la façon suivante :

$$\frac{\partial \xi}{\partial t} + \nabla \cdot (\xi + p) \vec{v} = -Q_{br} - Q_{rr} - Q_{dis} \quad (6.82)$$

où ξ représente la densité d'énergie, $\vec{v}$ la vitesse et p la pression du fluide « plasma + l'air ». Les termes de côté droite d'équation correspondent aux rayonnement du plasma : Q_{br} - rayonnement bremsstrahlung, Q_{rr} - rayonnement de recombinaison et Q_{dis} - rayonnement discret (rayonnement des raies spectrales).

La densité d'énergie peut être exprimée par :

$$\xi = \frac{p}{\gamma - 1} + \frac{\rho v^2}{2} \quad (6.83)$$

où v est la norme de la vitesse $\vec{v}$, ρ la masse volumique et γ l'indice adiabatique du fluide. Le premier terme représente la densité d'énergie interne du fluide [Zel'dovich'02] et le deuxième la densité d'énergie cinétique du fluide qui se déplace avec la vitesse $\vec{v}$. La vapeur métallique est un gaz monoatomique, donc la valeur de son indice adiabatique est $\gamma_{met} = 1.67$. Par contre, l'indice adiabatique de l'air est $\gamma_{air} = 1.4$ à la température ambiante de $T = 300$ K (parce qu'il est un gaz diatomique), et $\gamma = 1.33$ à la température de $T \approx 5 \cdot 10^5 - 10^6$ K [Raizer'65]. Néanmoins, il faut prendre en compte que après la fin d'impulsion laser la température du plasma diminue très rapidement et elle est plutôt de l'ordre de 10^4 K dans l'intervalle temporel d'intérêt. À cette température les molécules d'air sont dissociées, donc on peut considérer qu'on a un gaz purement monoatomique. Alors, nous avons utilisé la valeur de $\gamma = 1.67$.

En négligeant le rayonnement du plasma et en prenant en compte l'expression (6.83), le bilan de masse (6.74) et le bilan de quantité de mouvement (6.78), l'équation (6.82) peut être transformée en :

$$\frac{\partial p}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \nabla) p + \gamma p \nabla \cdot \vec{v} = 0 \quad (6.84)$$

ou à 1D spatiale (z) :

$$\frac{\partial p}{\partial t} + v_z \frac{\partial p}{\partial z} + \gamma p \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (6.85)$$

où p est la pression du fluide, γ - l'indice adiabatique du fluide et v_z la vitesse du fluide le long de l'axe de symétrie de la plume. Alors, le bilan d'énergie est exprimé en utilisant la pression du fluide comme la variable dépendante. Par contre, le point négatif est qu'on ne prend pas en compte la perte d'énergie par le rayonnement du plasma, ce qui peut être important, surtout au début d'expansion de la plume.

3.2.4. Conditions initiales et aux limites

Dans ce modèle, une géométrie à 2D a été employée (voir §6.4). Cette géométrie est définie par deux variables indépendantes : z - la distance de la surface de la cible le long de l'axe de symétrie de la plume et t - le temps calculé depuis le début d'impulsion laser. Les équations d'Euler ont été appliquées sur un domaine rectangulaire des dimensions $1.5 \text{ mm} \times 150 \text{ ns}$ (Fig. 6.14). Alors, les résultats représenteront l'évolution temporelle de la longueur de la plume.

Dans ce modèle, l'expansion de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser a été calculée à partir de l'instant correspondant à la fin d'impulsion laser ($t_{inc} = 5.6 \text{ ns}$). C'est l'instant où l'irradiance laser a diminué et atteint la valeur à mi-hauteur ($I_0/2$). Une illustration est donnée sur la Fig 6.13.

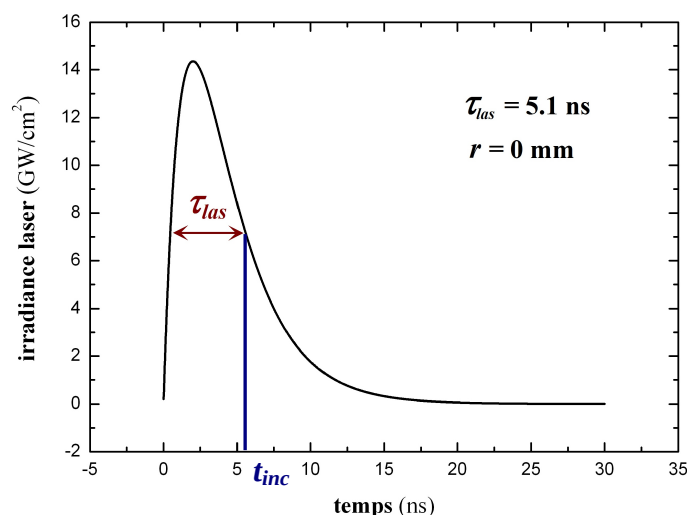


Fig. 6.13. Le profil temporel d'impulsion laser.

Afin de résoudre le système d'équations différentielles par la méthode des éléments finis (COMSOL Multiphysics) dans le plan défini par une dimension spatiale (z) et le temps (t), il est nécessaire de définir les conditions initiales et aux limites. Les limites du domaine sur lequel le calcul a été réalisé sont présentées sur la figure 6.14. On a cinq limites, énumérés de 1 à 5.

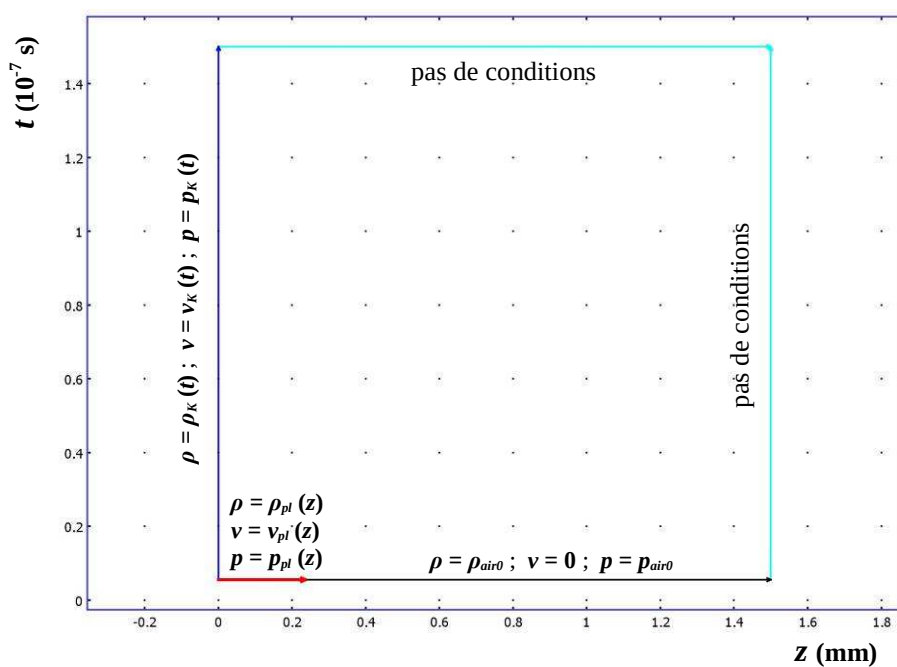


Fig. 6.14. Les conditions aux limites du domaine de calcul.

Limite 1 (gauche) correspond à la surface de la cible ($z = 0$ mm) pour l'intervalle temporel de $t_{inc} = 5.6$ ns jusqu'à $t_{fin} = 200$ ns. Alors, les conditions à cette limite correspondent aux évolutions temporelles des paramètres de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen $\rho_K(t)$, $v_K(t)$ et $p_K(t)$. Ces données sont obtenues comme des résultats du modèle thermique (section 1).

Limite 2 (bas1) correspond à la plume-plasma formée au dessus de la cible à la fin d'impulsion laser ($t_{inc} = 5.6$ ns). Il ne faut pas oublier que la dimension spatiale z correspond à l'axe de symétrie de la plume. Donc, la longueur de la *limite 2* représente la longueur maximale de la plume au moment de la fin d'impulsion laser l_{pl} . Alors, les conditions à cette limite correspondent aux distributions des paramètres du plasma $\rho_{pl}(z)$, $v_{pl}(z)$ et $p_{pl}(z)$ le long de l'axe de symétrie de la plume à la fin d'impulsion laser ($t_{inc} = 5.6$ ns). Les formes de

ces distributions dépendent du type de l'onde d'absorption qui dirigeait la propagation de la plume-plasma lors de l'impulsion laser (Fig. 6.10) :

- (a) *laser-supported detonation wave* (LSDW), qui se propage grâce à l'onde de choc, est une couche fine du plasma, caractérisée par des paramètres très élevés, qui se trouve juste derrière l'onde de choc. Dans ce cas, une distribution de forme « pulse » a été utilisée pour décrire la distribution des paramètres de la plume-plasma à la fin d'impulsion laser. Un exemple est donné sur la figure 6.15. Les valeurs aux sommets de ces distributions correspondent aux paramètres ρ_{lsdw} , v_{lsdw} et p_{lsdw} (expressions (6.69), (6.70) et (6.71)), qui caractérisent LSDW à la fin d'impulsion laser. Les valeurs minimales de ces distributions correspondent aux paramètres de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen à la fin d'impulsion laser $\rho_K(t = 5.6 \text{ ns})$, $v_K(t = 5.6 \text{ ns})$ et $p_K(t = 5.6 \text{ ns})$. La longueur de la plume-plasma a été calculée comme :

$$l_{pl} = v_{lsdw} \tau_{las} \quad (6.86)$$

où v_{lsdw} est la vitesse de propagation de LSDW (6.70) et τ_{las} la durée d'impulsion laser.

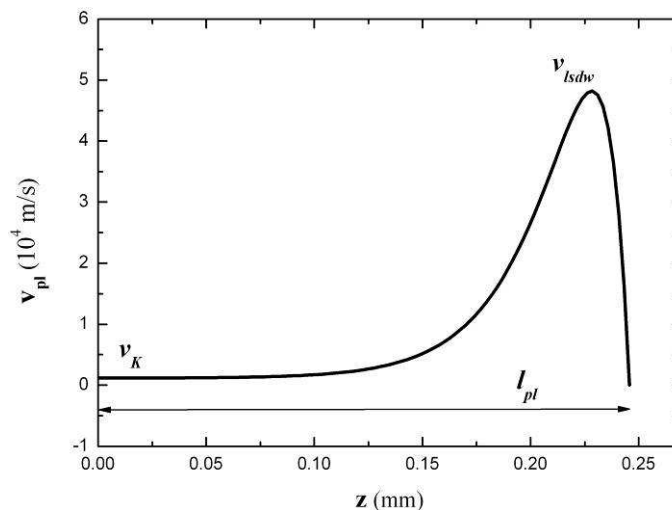


Fig. 6.15. Distribution de la vitesse dans la plume-plasma à la fin d'impulsion laser.

- (b) *laser-supported radiation wave* (LSRW), qui se propage grâce au rayonnement thermique, forme une plume-plasma caractérisée par une distribution uniforme de

la masse volumique, de la pression et de la température (Fig. 6.10). La valeur de la masse volumique a été déterminée comme :

$$\rho_{pl} = \rho_{air0} + \rho_{am} \quad (6.87)$$

où ρ_{air0} est la masse volumique initiale de l'air ($\rho_{air0} = 1.3 \text{ kg/m}^3$) et ρ_{am} est la masse volumique moyenne de la matière ablatée. Pour déterminer cela, on considère que la matière ablatée lors de l'impulsion laser a été uniformément distribuée le long de la longueur de la plume :

$$\rho_{am} = \frac{1}{l_{pl}} \int_0^{5.6 \text{ ns}} \frac{dm_v}{Sdt} dt \quad (6.88)$$

où dm_v/Sdt est la masse de la matière ablatée par l'unité de surface de la cible dans l'unité du temps (6.23) et l_{pl} est la longueur de la plume-plasma calculée comme :

$$l_{pl} = v_{lsrw} \tau_{las} \quad (6.89)$$

où v_{lsrw} est la vitesse de propagation de LSRW (6.70) et τ_{las} la durée d'impulsion laser. Au bord de LSRW il y a une chute de pression et de température (Fig. 6.10). Pour décrire cette distribution on a utilisé la fonction :

$$y = y_0 + A(1 - e^{-B(x_0 - x)}) \quad (6.90)$$

où x_0 , y_0 , A et B sont constantes. Un exemple de cette distribution est donné sur la Figure 6.16. La valeur de pression au plateau a été déterminée à partir de l'expression de la température du plasma T_{pl} (6.73) et en utilisant l'équation d'état de gaz parfait :

$$\bar{p}_{pl} = \left(\frac{\rho_{am}}{M_{Al}} + \frac{0.78\rho_{air0}}{M_N} + \frac{0.21\rho_{air0}}{M_O} + \frac{0.01\rho_{air0}}{M_{Ar}} \right) RT_{pl} \quad (6.91)$$

où on prend en compte la présence de la matière ablatée (Al), ainsi que des atomes de l'air (N, O, Ar). R est la constante universelle du gaz et M_{Al} , M_N , M_O et

M_{Ar} sont respectivement les masses molaires de l'aluminium, d'azot, d'oxygène et d'argon.

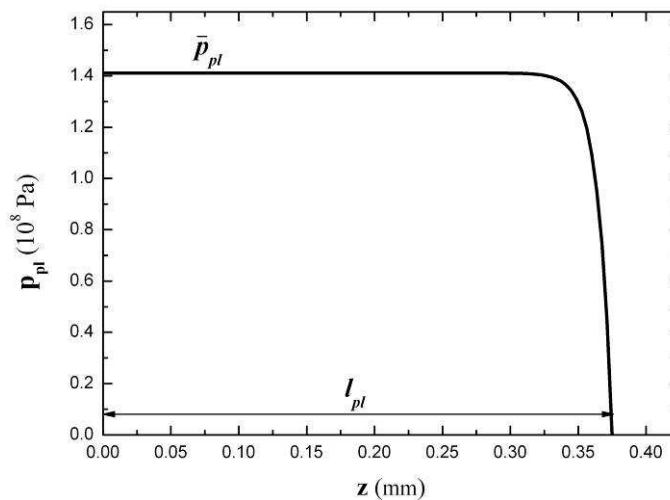


Fig. 6.16. Distribution de la pression du plasma formé par LSRW.

Limite 3 (bas2) correspond à l'air non-perturbé qui se trouve devant la plume-plasma à la fin d'impulsion laser ($t_{inc} = 5.6$ ns). Alors, les conditions à cette limite sont les suivantes :

$$\rho_{air0} = 1.3 \text{ kg/m}^3, \quad v_{air0} = 0 \text{ m/s}, \quad p_{air0} = 1 \text{ atm} = 101325 \text{ Pa} \quad (6.92)$$

Aux limites 4 et 5 (droite et haut) il n'y a pas de conditions, parce que l'expansion de la plume-plasma dépasse ces limites.

Le maillage du domaine de calcul a été réalisé de façon présentée sur la Figure 6.17. La taille du maillage est la plus fine au tour du point ($z = 0, t = 5.6$ ns) et elle agrandit vers les valeurs plus élevées des coordonnées z et t .

4. Développement du modèle macroscopique sous COMSOL

Lors du développement du modèle hydrodynamique en COMSOL Multiphysics on a rencontré quelques problèmes de convergence, due aux ordres de grandeurs très différents des variables. De plus, il n'est pas possible de résoudre numériquement le système d'équations comme une équation d'évolution comme on pouvait le faire dans le cas de l'équation de la chaleur : c'est-à-dire résoudre la partie spatiale (z) par la méthode des éléments finis par

itérations successives de la variable de temps. C'est pourquoi, nous avons utilisé la méthode classique associée au modèle de tube de choc, qui consiste à résoudre le problème stationnaire dans le plan (z,t). L'intérêt est de pouvoir faire converger la résolution en utilisant le logiciel d'éléments finis COMSOL Multiphysics. L'inconvénient est de travailler avec une dimension de plus, donc un nombre d'équations à résoudre variant quadratiquement.

Différentes techniques ont été utilisées afin de permettre la convergence du problème (§ 6.4.1) et (§ 6.4.2). De plus le maillage a été adapté en fonction des zones de plus grande variation (Fig. 6.17).

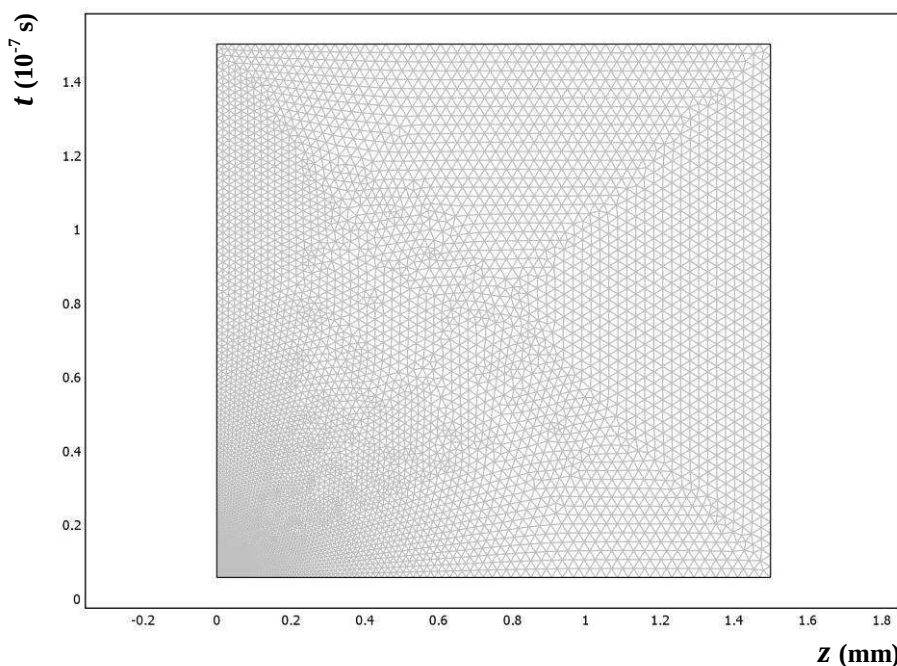


Fig. 6.17 Le maillage du domaine de calcul pour la dynamique des fluides.

4.1. Utilisation de paramètres adimensionnels

Du fait que le plasma formé lors de l'ablation laser est caractérisé par des paramètres très élevés (vitesse, pression, température) qui ont des gradients importants et évoluent très rapidement avec le temps (de l'ordre de la nanoseconde), nous avons été obligé d'utiliser des paramètres adimensionnels. Cela a été effectué de façon suivante :

$$\rho_{pl}^* = \frac{\rho_{pl}}{\rho_{\max}}, \quad \rho_{air}^* = \frac{\rho_{air}}{\rho_{\max}}, \quad v_z^* = \frac{v_z}{v_{\max}}, \quad p^* = \frac{p - p_{air0}}{p_{\max} - p_{air0}} \quad (6.93)$$

où ρ_{pl}^* , ρ_{air}^* , v_z^* et p^* représentent des paramètres adimensionnels et ρ_{max} , v_{max} et p_{max} les valeurs maximales de ces paramètres dans le modèle. Par exemple, dans le modèle qui considère la formation de LSDW au front de la plume lors de l'impulsion laser: $\rho_{max} = \rho_{lsdw}$, $v_{max} = v_{lsdw}$ et $p_{max} = p_{lsdw}$. De même façon, les coordonnées t et z sont aussi passés aux valeurs adimensionnelles :

$$t^* = \frac{t}{t_{max}}, \quad z^* = \frac{z}{z_{max}} \quad (6.94)$$

où t_{max} et z_{max} correspondent aux valeurs maximales de t et z utilisées dans ce modèle, c'est-à-dire aux dimensions du domaine de calcul (Figs. 6.14 et 6.17).

En introduisant les expressions (6.93) et (6.94) dans l'équation de bilan de masse (6.75) on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\rho_{max}}{t_{max}} \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial t^*} + v_{max} v_z^* \frac{\rho_{max}}{z_{max}} \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial z^*} + \rho_{max} \rho_{pl}^* \frac{v_{max}}{z_{max}} \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} &= 0 \\ \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial t^*} + \frac{v_{max} t_{max}}{z_{max}} v_z^* \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial z^*} + \frac{v_{max} t_{max}}{z_{max}} \rho_{pl}^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} &= 0 \\ \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial z^*} + C_1 \rho_{pl}^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} &= 0 \end{aligned} \quad (6.95)$$

où C_1 est une constante définie comme :

$$C_1 = \frac{v_{max} t_{max}}{z_{max}} \quad (6.96)$$

De même façon, à partir de l'équation (6.77) on obtient :

$$\frac{\partial \rho_{air}^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial \rho_{air}^*}{\partial z^*} + C_1 \rho_{air}^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \quad (6.97)$$

En introduisant les expressions (6.93) et (6.94) dans l'équation de bilan de quantité de mouvement (6.79), on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{v_{max}}{t_{max}} \frac{\partial v_z^*}{\partial t^*} + v_{max} v_z^* \frac{v_{max}}{z_{max}} \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} + \frac{1}{\rho_{max} \rho^*} \frac{(p_{max} - p_{air0})}{z_{max}} \frac{\partial p^*}{\partial z^*} &= 0 \\ \frac{\partial v_z^*}{\partial t^*} + \frac{v_{max} t_{max}}{z_{max}} v_z^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} + \frac{(p_{max} - p_{air0}) t_{max}}{\rho_{max} z_{max} v_{max}} \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial p^*}{\partial z^*} &= 0 \end{aligned} \quad (6.98)$$

$$\frac{\partial v_z^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} + C_2 \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial p^*}{\partial z^*} = 0$$

où C_2 est une constante définie comme :

$$C_2 = \frac{(p_{\max} - p_{air0})t_{\max}}{\rho_{\max} z_{\max} v_{\max}} \quad (6.99)$$

et ρ^* est égale à :

$$\rho^* = \rho_{pl}^* + \rho_{air}^* = \frac{\rho_{pl} + \rho_{air}}{\rho_{\max}} \quad (6.100)$$

En introduisant les expressions (6.93) et (6.94) dans l'équation de bilan d'énergie (6.85), on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{(p_{\max} - p_{air0})\partial p^*}{t_{\max} \partial t^*} + v_{\max} v_z^* \frac{(p_{\max} - p_{air0})\partial p^*}{z_{\max} \partial z^*} + \gamma((p_{\max} - p_{air0})p^* + p_{air0}) \frac{v_{\max}}{z_{\max}} \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \\ \frac{\partial p^*}{\partial t^*} + \frac{v_{\max} t_{\max}}{z_{\max}} v_z^* \frac{\partial p^*}{\partial z^*} + \gamma \left(p^* + \frac{p_{air0}}{p_{\max} - p_{air0}} \right) \frac{v_{\max} t_{\max}}{z_{\max}} \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \quad (6.101) \\ \frac{\partial p^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial p^*}{\partial z^*} + \gamma(p^* + \Delta p) C_1 \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \end{aligned}$$

où Δp est une constante définie comme :

$$\Delta p = \frac{p_{air0}}{p_{\max} - p_{air0}} \quad (6.102)$$

4.2. Modélisation des ondes de choc en COMSOL

Les ondes de choc apparaissent suite à l'augmentation importante et rapide des propriétés du gaz, comme la température ou la pression. Les ondes de choc sont généralement associées aux processus violents, comme par exemple explosions ou vols supersoniques. En général, les ondes de choc représentent des discontinuités dans le bilan de masse, de quantité de mouvement et d'énergie.

Dans cette étude, les équations d'Euler ont été utilisées pour décrire l'expansion de la plume-plasma formée lors de l'ablation laser dans l'atmosphère ambiante. Pour l'intervalle

temporel considéré, on peut négliger les effets de viscosité et de la conduction thermique dans le fluide compressible étudié.

Les équations d'Euler ont été introduites en COMSOL en utilisant la forme générale de PDE (partial differential equations).

Nous souhaitons résoudre un système stationnaire de 4 équations différentielles couplées (6.95), (6.97), (6.98) et (6.101) dans un espace à deux dimensions (z et t), avec un maillage très fin (Fig. 6.17). Une première méthode consiste à résoudre par une méthode directe, conduisant à un énorme système d'équations non linéaires. La méthode adoptée a été de résoudre ce système par une méthode itérative, utilisant une variable, nommée *time*, jusqu'à convergence vers une solution stationnaire. Dans ce cas, les équations (6.95), (6.97), (6.98) et (6.101) ont été écrites de façon suivante :

$$\frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial time} + \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial \rho_{pl}^*}{\partial z^*} + C_1 \rho_{pl}^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \quad (6.103)$$

$$\frac{\partial \rho_{air}^*}{\partial time} + \frac{\partial \rho_{air}^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial \rho_{air}^*}{\partial z^*} + C_1 \rho_{air}^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \quad (6.104)$$

$$\frac{\partial v_z^*}{\partial time} + \frac{\partial v_z^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} + C_2 \frac{1}{\rho^*} \frac{\partial p^*}{\partial z^*} = 0 \quad (6.105)$$

$$\frac{\partial p^*}{\partial time} + \frac{\partial p^*}{\partial t^*} + C_1 v_z^* \frac{\partial p^*}{\partial z^*} + \gamma(p^* + \Delta p) C_1 \frac{\partial v_z^*}{\partial z^*} = 0 \quad (6.106)$$

où *time* représente le temps virtuel, qui correspond aux nombres d'itérations conduisant à la convergence du modèle numérique.

De plus, dans le but de stabiliser le système numérique, nous avons utilisé une méthode permettant d'amortir les variations brusques. Cela a été fait en utilisant « streamline diffusion » [COMSOL 3.5a] qui facilite la convergence du modèle.

Chapitre 7

Modélisation d'ablation laser en COMSOL: résultats et analyse

1. Résultats du modèle thermique.....	210
1.1. Température de la cible	211
1.1.1. Distribution de la température dans la cible	211
1.1.2. Température à la surface de la cible	215
1.2. Paramètres de vaporisation du matériau à la surface de la cible	216
1.2.1. Pression de la vapeur métallique	217
1.2.2. Taux de vaporisation du matériau	218
1.2.3. Vitesse de recul et la profondeur d'ablation	219
1.3. Paramètres à la limite externe de la couche de Knudsen	220
1.3.1. Température de la vapeur	220
1.3.2. Pression de la vapeur	221
1.3.3. Masse volumique de la vapeur	221
1.3.4. Vitesse de la vapeur	222
2. Résultats du modèle hydrodynamique (approche macroscopique).....	223
2.1. Distributions des paramètres dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns	223
2.2. Résultats du modèle hydrodynamique	227
2.2.1. Masse volumique du plasma	227
2.2.2. Masse volumique de l'air	231
2.2.3. Vitesse du fluide « plasma + air »	234
2.2.4. Pression du fluide « plasma + air »	236
3. Comparaison avec des résultats expérimentaux	238
4. Modèle hydrodynamique microscopique	241
5. Conclusion.....	242

Dans ce chapitre, les résultats de la simulation numérique du processus d'ablation laser réalisée en COMSOL Multiphysics sont présentés. Le modèle thermique, développé dans cette étude, donne la distribution de température dans la cible en fonction du temps, ainsi que l'évolution temporelle des paramètres de vaporisation du matériau à partir de la surface de la cible. Les résultats du modèle thermique sont ensuite utilisés pour la détermination des conditions aux limites pour le modèle hydrodynamique. Nous présentons uniquement les résultats du modèle hydrodynamique basé sur l'approche macroscopique. Ce modèle donne l'évolution temporelle des différents paramètres du plasma et de l'air environnant le long de l'axe de symétrie de la plume. Ces résultats sont ensuite comparés aux résultats expérimentaux présentés dans la première partie de la thèse.

Tableau 7.1. Résumé des différentes étapes de la modélisation

Profil temporel de l'irradiance laser		
Prise en compte de l'effet d'écrantage : τ_{pl}	(§ 6.1.3)	Fig.7.1

Modèle thermique (2D axisymétrique)		
Equation de diffusion de la chaleur	(eq. 6.6)	
Conditions limites	(eq. 6.21)	Figs.7.2-3
Vaporisation : $p_v(t)$, $\frac{dm_v}{Sdt}(t)$ et $v_{rec}(t)$	(eqs. 6.22-24)	Figs.7.6-8
Paramètres en surface de la couche de Knudsen : ρ_K , v_K et p_K	(eqs. 6.32-33)	Figs.7.9-12

Modèle dynamique des fluides : approche macroscopique (1D en z et 1D en t)		
Equations d'Euler	(eqs. 6.75, 77, 79, 85)	
Conditions limites (LSDW) : ρ_{lsdw} , v_{lsdw} et p_{lsdw}	(eqs. 6.69-71)	Figs.7.13-15
Résultats : ρ_{pl} , ρ_{air} , v et p		Figs.7.16-23

Les différentes étapes de la modélisation sont présentées dans le tableau 7.1. Dans un premier temps nous effectuons une simulation thermique de la diffusion de la chaleur à l'intérieur de la cible. Cette simulation est effectuée dans une géométrie 2D axisymétrique, tenant compte de la symétrie du faisceau laser. Cependant compte tenu de l'effet d'écrantage dû à la présence de la plume, il est nécessaire de corriger le profil temporel d'irradiance à la surface de la cible. Le calcul de l'évolution de température à la surface permet de déterminer les paramètres physiques de la vapeur issu de la surface et en limite supérieure de la couche de Knudsen. Ces paramètres sont ensuite utilisés comme conditions limites d'une simulation de la dynamique interne à la plume. Cette simulation est réalisée à 1 dimension, c'est-à-dire l'axe de symétrie de la plume (z). Pour la résolution numérique nous nous sommes placés dans une géométrie où z est en abscisse et le temps est en ordonnée. Dans cette configuration, les différents modèles dynamiques peuvent être appliqués. Dans l'approche macroscopique, nous résolvons les équations d'Euler (système de 4 équations aux dérivées partielles), avec des conditions aux limites dépendant du schéma d'expansion de la plume (LSDW, LSRW). L'approche microscopique est plus complexe, puisqu'il est nécessaire de résoudre les équations d'Euler couplées à plusieurs autres équations (6.39 - 6.67).

Dans cette étude, le calcul a été réalisé dans le cas de l'aluminium pour deux valeurs d'irradiance laser moyenne : $I_{las} = 8,16 \text{ GW/cm}^2$ et $I_{las} = 4,73 \text{ GW/cm}^2$. La valeur moyenne d'irradiance laser est définie comme :

$$I_{las} = \frac{1}{R_{las}^2 \pi \tau_{las}} \int_0^\infty \int_0^\infty I_{inc}(r,t) 2r \pi dr dt \quad (7.1)$$

où R_{las} est le rayon de la tache focale, τ_{las} - la durée d'impulsion laser et $I_{inc}(r,t)$ est donné par l'expression (6.1). Dans le cas de l'irradiance laser plus élevée, on a considéré que c'est *laser-supported radiation wave* (LSRW) qui dirige l'expansion de la plume lors de l'impulsion laser. Par contre, pour l'irradiance laser inférieure à 5 GW/cm^2 , on a considéré que le régime de *laser-supported detonation wave* (LSDW) est prédominant [Conesa'04].

Malheureusement, le modèle hydrodynamique (LSRW) n'a pas donné de résultats raisonnables dans le cas d'irradiance laser $I_{las} = 8,16 \text{ GW/cm}^2$. Alors, dans ce chapitre, nous ne présentons que les résultats de calcul réalisé pour l'irradiance laser de $I_{las} = 4,73 \text{ GW/cm}^2$.

1. Résultats du modèle thermique

Le modèle thermique simule l'interaction faisceau laser – cible en prenant en compte l'effet d'écrantage (Chapitre 6, section 1). Ce modèle thermique sert à déterminer les paramètres de vaporisation du matériau, qui sont ensuite utilisés pour calculer des conditions aux limites pour le modèle hydrodynamique.

L'influence significative de l'effet « plasma shielding » (effet d'écrantage dû à la présence de la plume) peut être observé sur la figure 7.1 en comparant le profil temporel d'irradiance laser incidente (en l'absence de cet effet) et d'irradiance laser arrivant à la surface de la cible. On voit que l'atténuation d'irradiance du faisceau laser par la plume du plasma est très importante. Le premier sommet de la courbe « $\tau_{pl} I_{inc}$ » correspond au claquage du gaz et à la formation du plasma au-dessus de la cible. À partir de ce moment, l'absorption du plasma augmente très rapidement conduisant à la réduction d'irradiance laser qui arrive à la surface

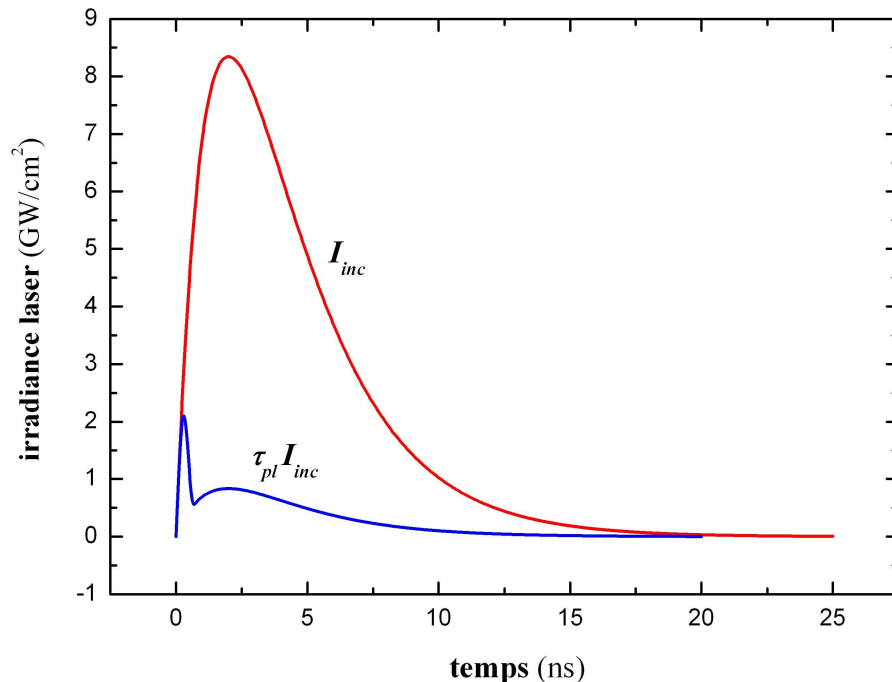


Fig. 7.1. Comparaison des profils temporels d'irradiance laser incidente et d'irradiance laser arrivant à la surface de la cible (le cas d'irradiance laser moyenne de $4,73 \text{ GW}/\text{cm}^2$).

de la cible. Une fois que l'absorptivité du plasma atteint la valeur de 90%, elle n'évolue plus (saturation). À partir du moment où l'absorptivité du plasma devient constante, l'irradiance laser arrivant à la surface de la cible suit l'évolution d'irradiance laser incidente. Alors, la courbe « $\tau_{pl} I_{inc}$ » manifeste une légère augmentation et atteint son deuxième sommet au moment où l'irradiance laser incidente atteint son maximum. Ensuite, on a la diminution d'irradiance laser qui est légèrement plus lente que l'augmentation.

1.1. Température de la cible

Au niveau des résultats, le modèle thermique donne la distribution de la température dans la cible, ainsi que les paramètres de vaporisation du matériau calculés à partir des valeurs de température à la surface de la cible.

1.1.1. Distribution de la température dans la cible

La distribution de la température dans la cible à $t = 4,3$ ns (instant où la température atteint la valeur maximale) est présentée sur la figure 7.2. L'échelle de température est donnée du côté droit de l'image. La ligne blanche correspond à la température de fusion d'Al ($T_f = 933$ K). Il ne faut pas oublier que ce modèle est axisymétrique, où l'axe de symétrie se trouve à la limite gauche du domaine de calcul. Alors, on voit que la température est la plus élevée au point ($r = 0, z = 0$) correspondant à l'intersection de l'axe de symétrie du faisceau laser et de la surface de la cible. La forme de distribution de température dans la cible est déterminée par le profil spatial gaussien d'irradiance du faisceau laser employé dans ce modèle.

Sur la figure 7.3, on peut voir l'évolution temporelle de la distribution de température dans la cible pendant les premières 40 ns d'interaction. On observe que la diffusion de la chaleur dans la cible, ainsi que l'augmentation de la température à la surface, est très rapide lors de l'impulsion laser. Cela est dû à la présence d'une source de chaleur importante à la surface de la cible (faisceau laser). À partir du moment où l'impulsion laser est terminée, le refroidissement commence. D'un côté, on a le refroidissement à la surface de la cible à cause de perte d'énergie lors de la vaporisation du matériau (tant que la température à la surface est

supérieure à la température de fusion). D'un autre côté, la diffusion de la chaleur vers l'intérieur de la cible continue. Entre $t = 6$ ns et $t = 17$ ns, on peut remarquer que le rayon de la zone fondue à la surface de la cible diminue, alors que la profondeur de la zone fondue continue à augmenter. La diffusion de la chaleur vers l'intérieur de la cible continue jusqu'au moment où il n'y plus assez d'énergie à diffuser. Donc l'expansion de la zone fondue s'arrête (vers $t = 17$ ns) et elle commence à se réduire. Alors le rayon et la profondeur de la zone fondue diminuent avec le temps ($t = 18 - 40$ ns).

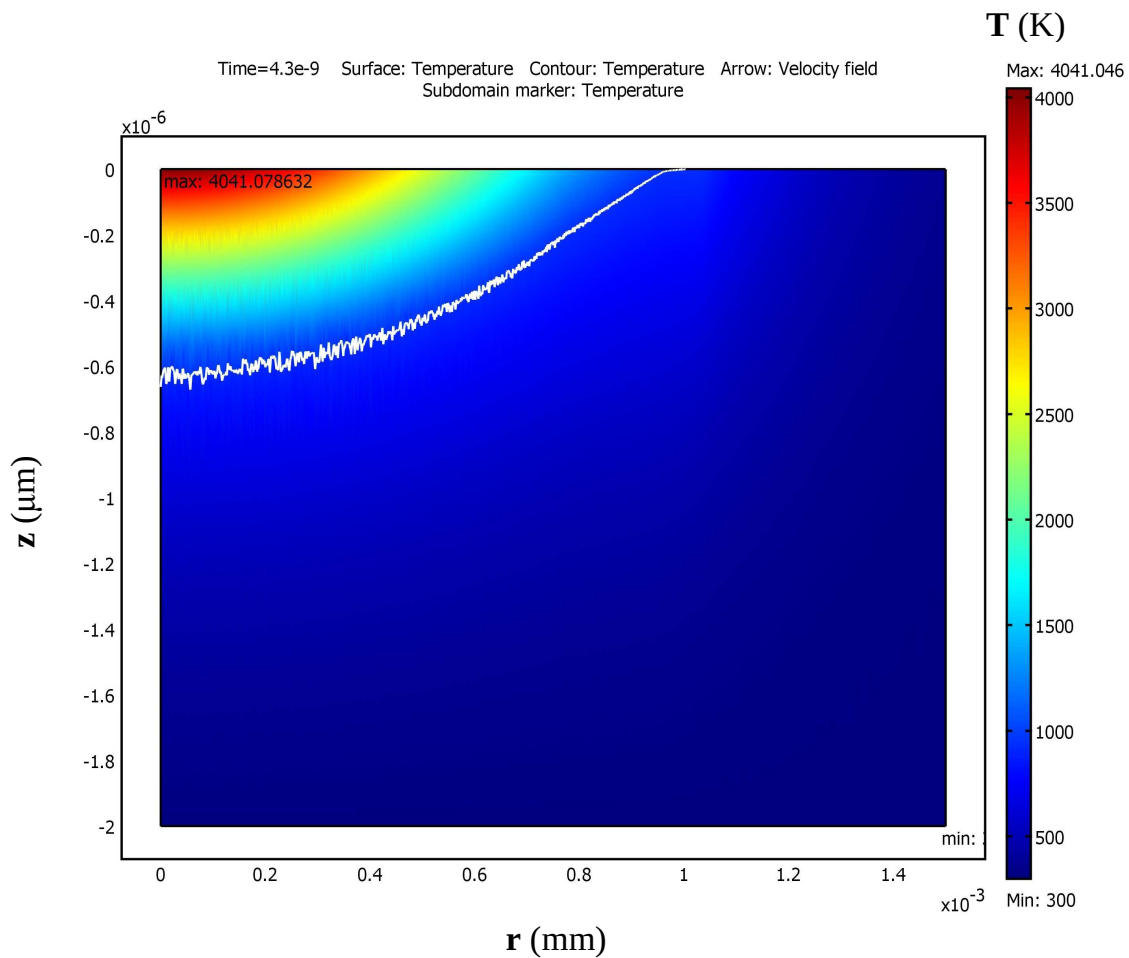
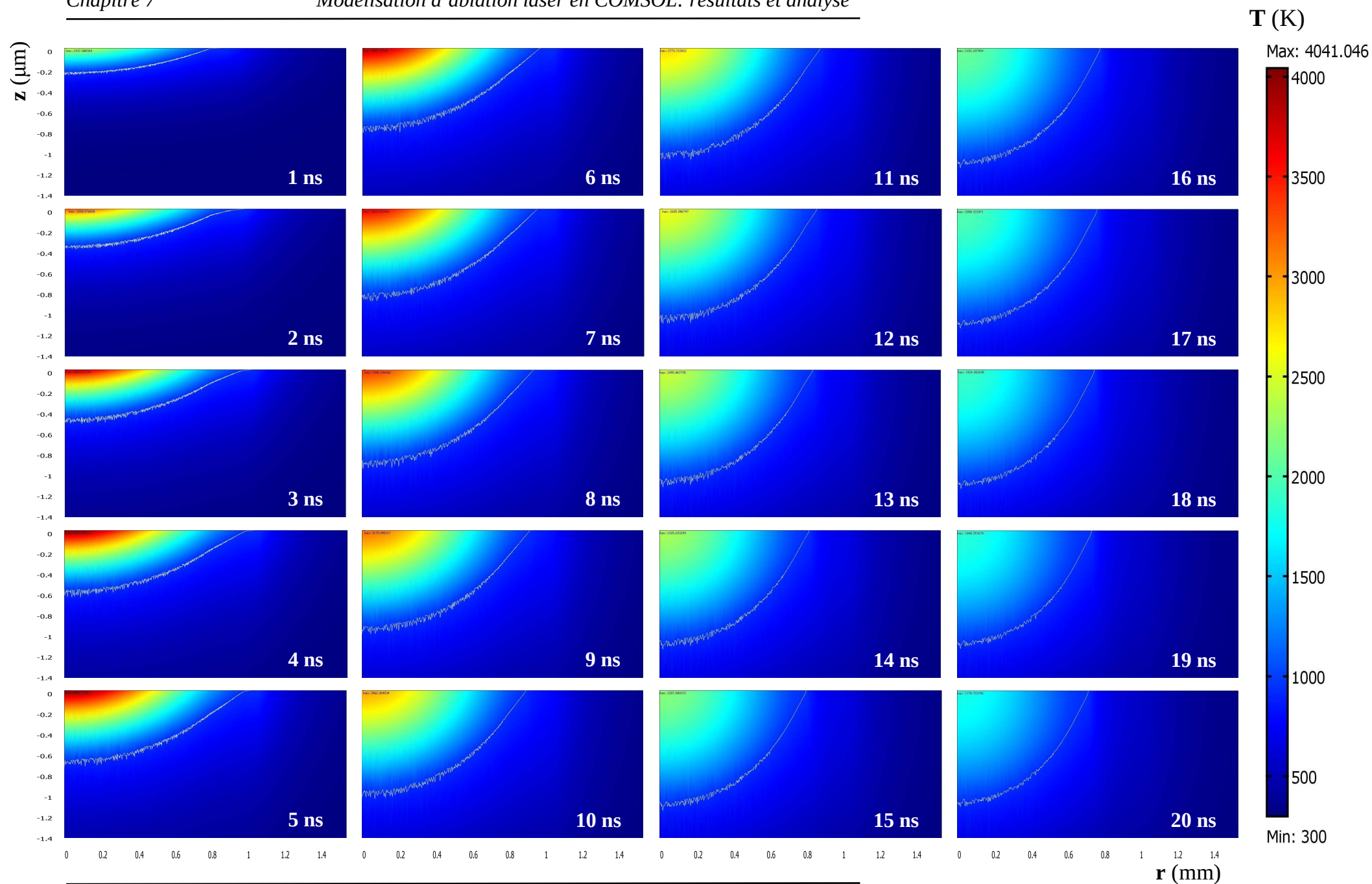


Fig. 7.2. Distribution de la température dans la cible à $t = 4,3$ ns dans le cas d'ablation par le faisceau laser d'irradiance moyenne de $4,73 \text{ GW/cm}^2$.



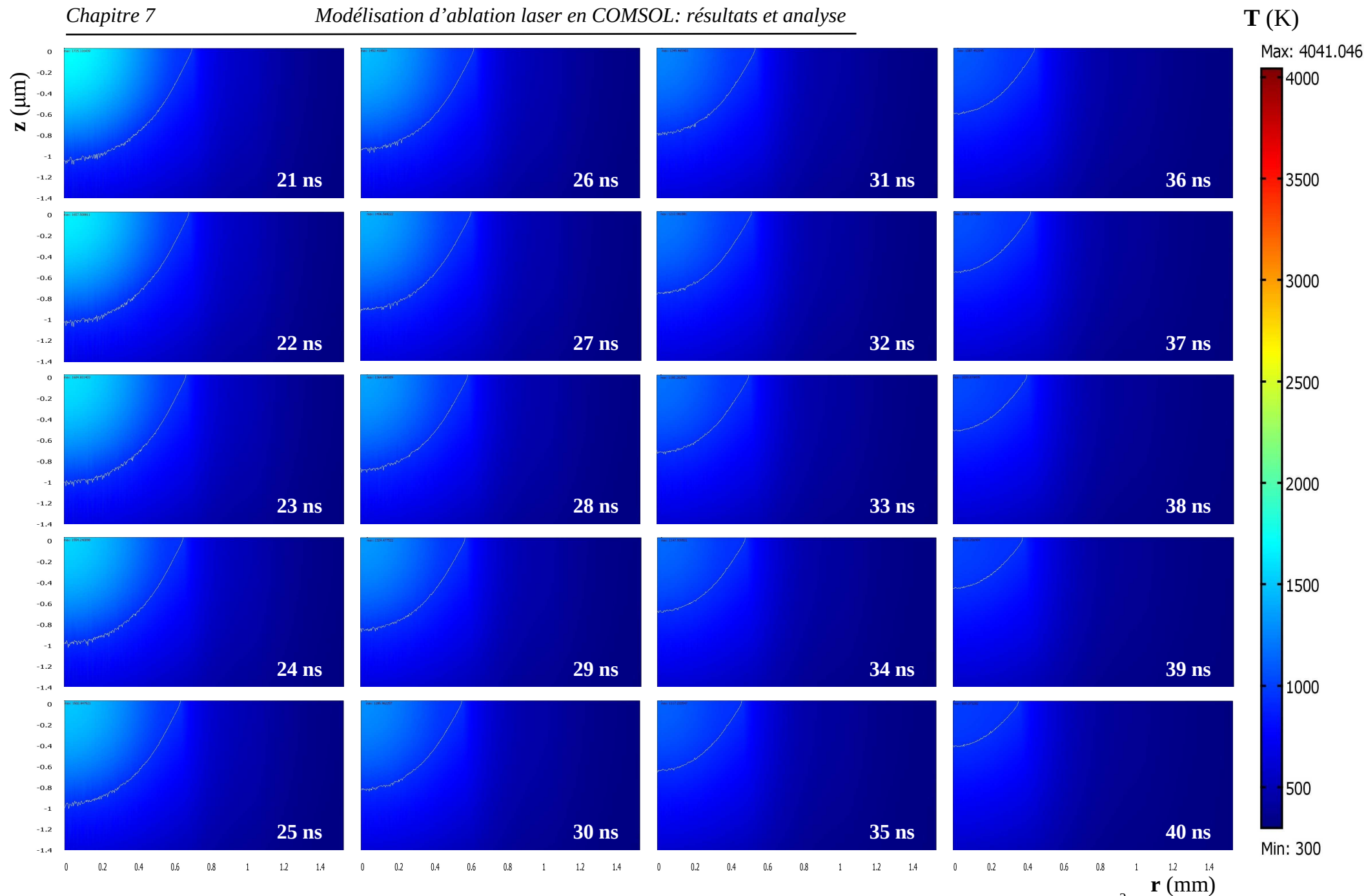


Fig. 7.3. Evolution temporelle de la distribution de température dans la cible pendant les premières 40 ns pour $I_{las} = 4,73 \text{ GW/cm}^2$.

1.1.2. Température à la surface de la cible

La figure 7.4 présente l'évolution temporelle de la température à l'intersection de l'axe de symétrie du faisceau laser et de la surface de la cible ($r = 0, z = 0$) pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible pour l'irradiance laser moyenne de $4,73 \text{ GW/cm}^2$.

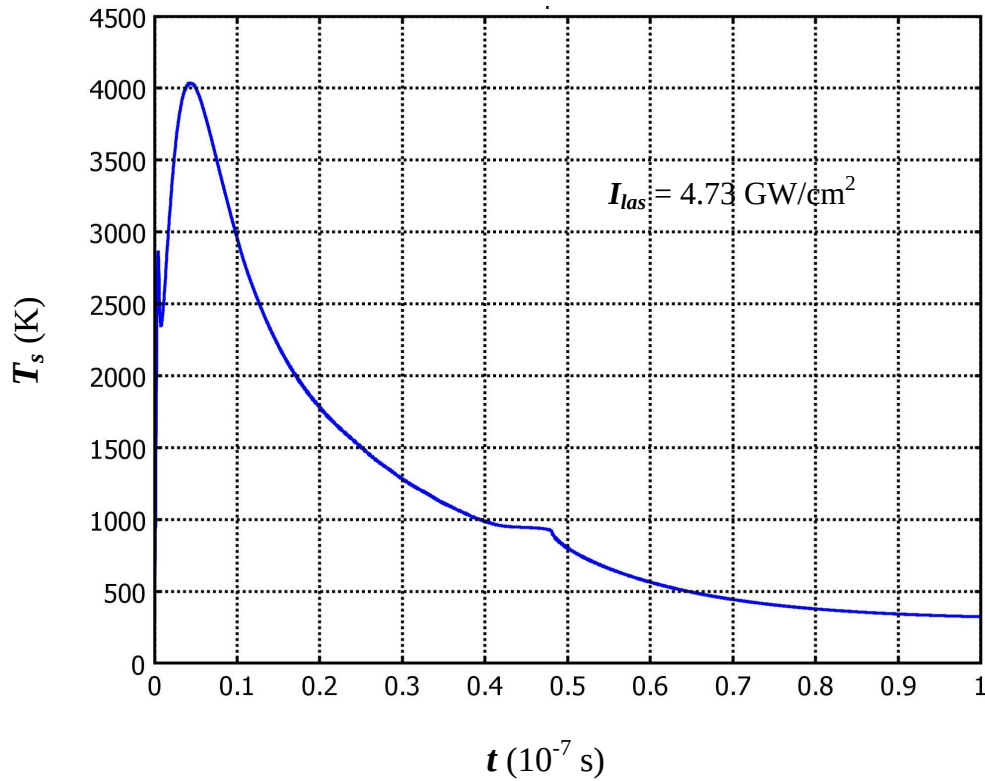


Fig. 7.4. Evolution temporelle de la température au point ($r = 0, z = 0$) de la cible pendant les premières 100 ns d'interaction laser - cible.

Sur le graphe, on observe une augmentation de température très rapide lors de l'impulsion laser, suivi par une diminution de température un peu plus lente après la fin d'impulsion laser. De plus, on peut remarquer le plateau correspondant au processus de solidification du matériau à $T_f = 933 \text{ K}$ vers $t = 42 - 47 \text{ ns}$. Pour l'irradiance laser utilisée, la température maximale est de $T_{max} = 4041 \text{ K}$.

Si on zoome sur l'intervalle des premières 20 ns (Fig. 7.5), on peut remarquer un petit pic dans la partie croissante de la courbe, correspondant au moment du claquage du gaz et la formation du plasma. Avant le claquage, l'irradiance laser non-atténuée augmente la température à la surface de la cible très rapidement. Une fois que le plasma s'est formé,

l'irradiance laser qui atteint la surface de la cible est significativement réduite (Fig. 7.1) conduisant à une diminution de la température à la surface de la cible. Par contre, à cet instant l'irradiance laser incidente n'a pas encore atteint son maximum (Fig. 7.1). Donc, elle continue à augmenter, conduisant à l'augmentation d'irradiance laser à la surface de la cible et ainsi à l'augmentation de la température de la cible. La température atteint son maximum à l'instant $t = 4,3$ ns.

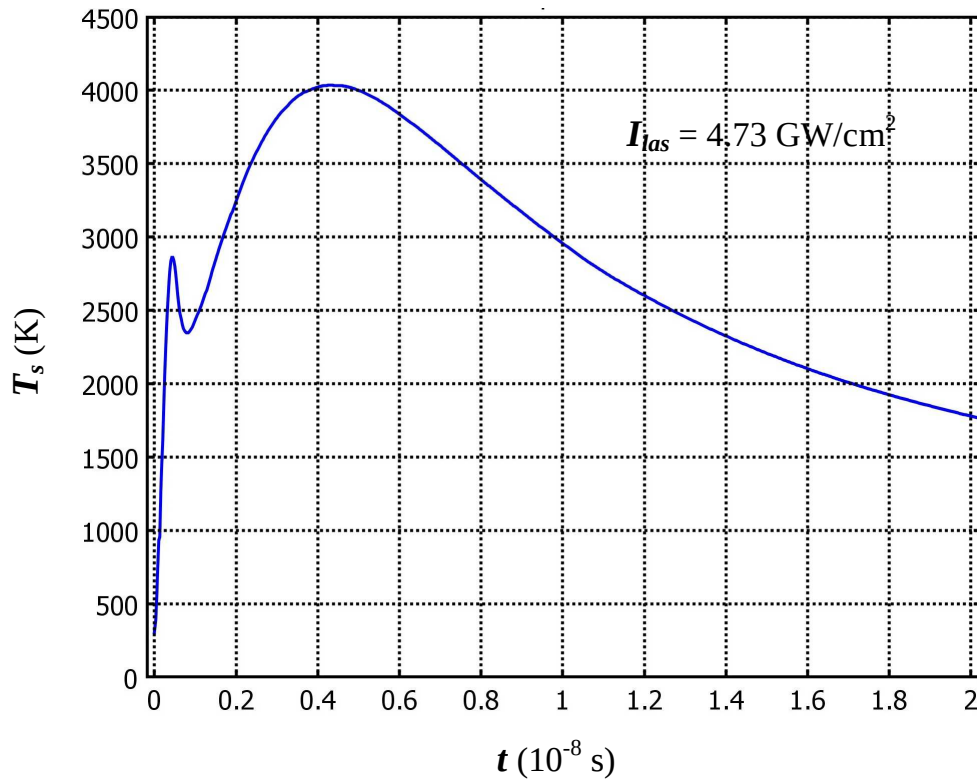


Fig. 7.5. Evolution temporelle de la température dans le point ($r = 0$, $z = 0$) de la cible pendant les premières 20 ns d'interaction laser - cible.

1.2. Paramètres de vaporisation du matériau à la surface de la cible

Les paramètres qui caractérisent la vaporisation du matériau de la surface de la cible sont : le taux de vaporisation (la masse du matériau évaporée de l'unité de surface dans l'unité du temps) dm_v/Sdt , la pression de la vapeur au dessus de la cible p_v et la vitesse de recul de l'interface liquide – vapeur v_{rec} . Tous ces paramètres dépendent de la température à la surface de la cible T_s , dont la distribution spatiale et l'évolution temporelle ont été calculées par le

modèle thermique. Alors, à partir des résultats de $T_s(r,t)$, le modèle thermique calcule les valeurs de $p_v(r,t)$, $dm_v(r,t)/Sdt$ et $v_{rec}(r,t)$ en utilisant les expressions (6.22), (6.23) et (6.24), respectivement.

1.2.1. Pression de la vapeur métallique

La figure 7.6. présente l'évolution temporelle de la pression de la vapeur métallique (Al) au dessus de la cible au point ($r = 0$, $z = 0$) pendant les premières 100 ns.

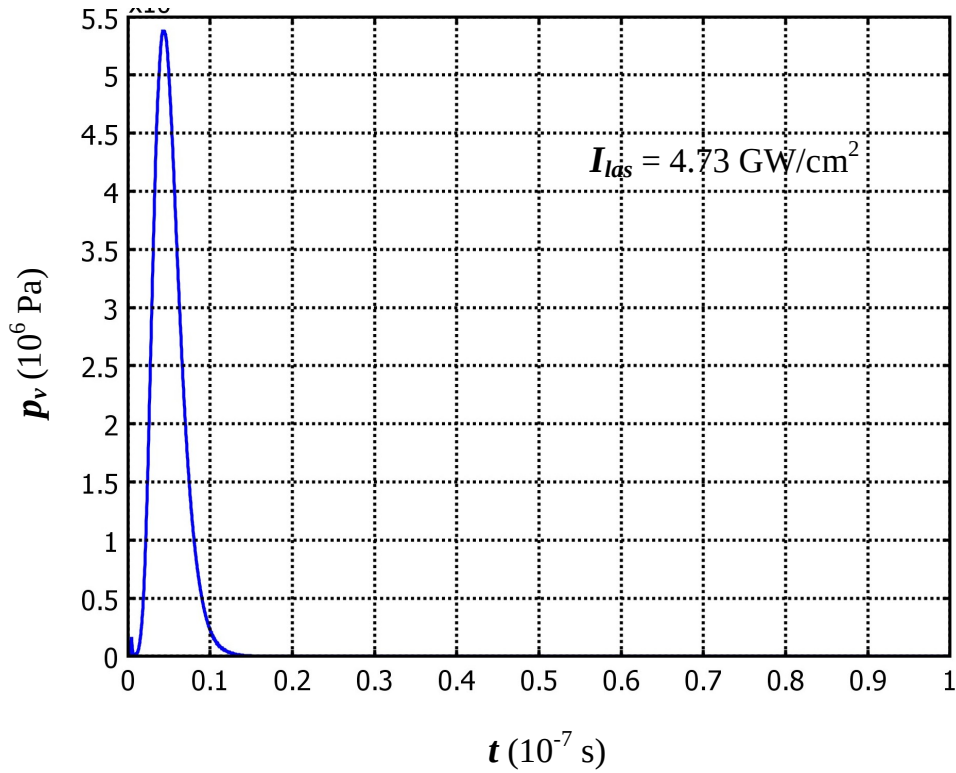


Fig. 7.6. Evolution temporelle de la pression de la vapeur métallique (Al) au dessus de la cible dans le point ($r = 0$, $z = 0$) pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

La pression de la vapeur au-dessus de la cible augmente très rapidement. Elle atteint le maximum de $p_v = 5,378 \cdot 10^6 \text{ Pa}$ à $t = 4,3 \text{ ns}$. Ensuite, la pression diminue presque aussi rapidement qu'elle a augmenté. Après 15 ns, elle devient négligeable.

1.2.2. Taux de vaporisation du matériau

La figure 7.7 présente l'évolution temporelle du taux de vaporisation du matériau à la surface de la cible au point ($r = 0, z = 0$).

On peut remarquer que la forme de cette courbe est très similaire à celle de la pression de la vapeur. Alors, le taux de vaporisation du matériau de la cible (Al) augmente très rapidement et atteint le maximum de $dm_v/Sdt = 1578 \text{ kg.m}^{-2}\text{s}^{-1}$ à $t = 4,3 \text{ ns}$. Ensuite, le taux de vaporisation diminue aussi rapidement et il devient négligeable après 15 ns.

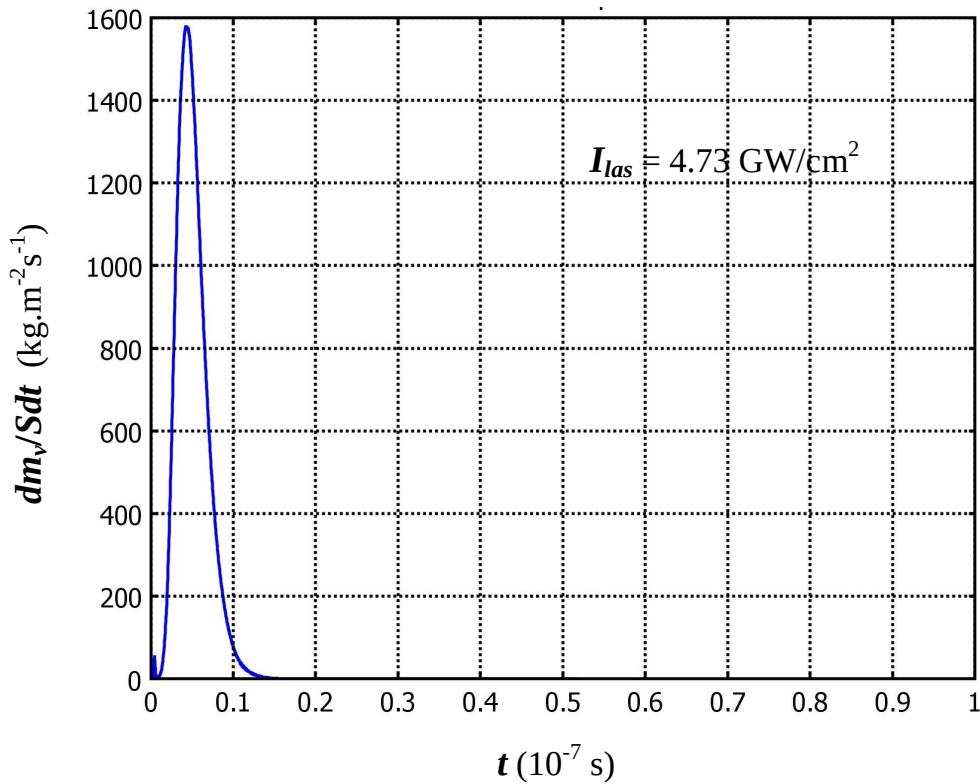


Fig. 7.7. Evolution temporelle du taux de vaporisation du matériau de la surface de la cible dans le point ($r = 0, z = 0$) pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

En intégrant le taux de vaporisation sur le temps, on peut obtenir la masse du matériau (Al) évaporée par l'unité de surface de la cible lors d'ablation par un seul impact du faisceau laser :

$$\frac{m_v}{S} = \int_0^{\infty} \frac{dm_v}{Sdt}(t) dt = 6,533 \cdot 10^{-6} \text{ kg/m}^2 \quad (7.2)$$

1.2.3. Vitesse de recul et la profondeur d'ablation

La figure 7.8 présente l'évolution temporelle de la vitesse de recul de l'interface métal liquide – vapeur au point ($r = 0, z = 0$).

La vitesse de recul est déterminée à partir du taux de vaporisation du matériau (6.24). La vitesse de recul augmente très rapidement, atteint le maximum de $v_{rec} = 0,6664$ m/s à l'instant $t = 4,3$ ns, ensuite, elle diminue aussi rapidement et devient négligeable après 15 ns.

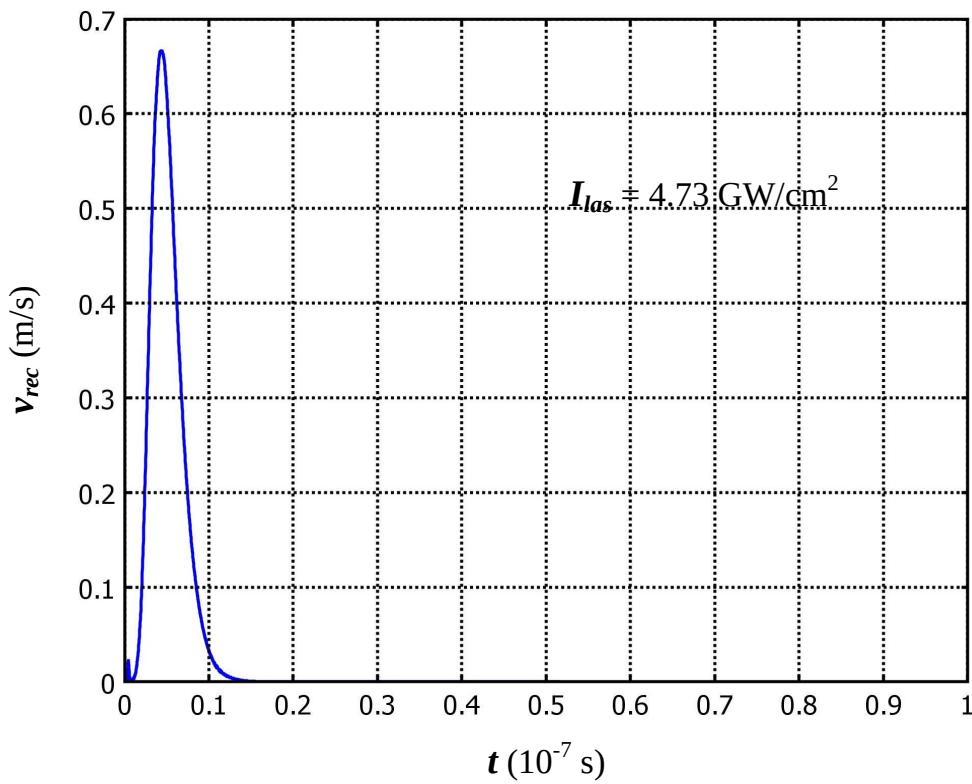


Fig. 7.8. Evolution temporelle de la vitesse de recul de l'interface liquide - vapeur dans le point ($r = 0, z = 0$) pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

En intégrant la vitesse de recul sur le temps, on peut obtenir la profondeur d'ablation du matériau lors d'un seul impact du faisceau laser :

$$d_{ab} = \int_0^{\infty} v_{rec}(t) dt = 2,76 \cdot 10^{-9} \text{ m} \quad (7.3)$$

1.3. Paramètres à la limite externe de la couche de Knudsen

Le calcul des paramètres de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen a été réalisé à partir des paramètres $T_s(t)$ et $p_v(t)$ et en utilisant les relations (6.32). Ces paramètres sont calculés afin d'être ensuite introduits dans le modèle hydrodynamique au niveau des conditions aux limites.

1.3.1. Température de la vapeur

Dans ce modèle, on considère que la vapeur métallique émise de la surface de la cible est caractérisée par la température $T_s(t)$. Le rapport entre la température de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen T_K et la température T_s est donné par (6.32). La figure 7.9. présente l'évolution temporelle de la température de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen.

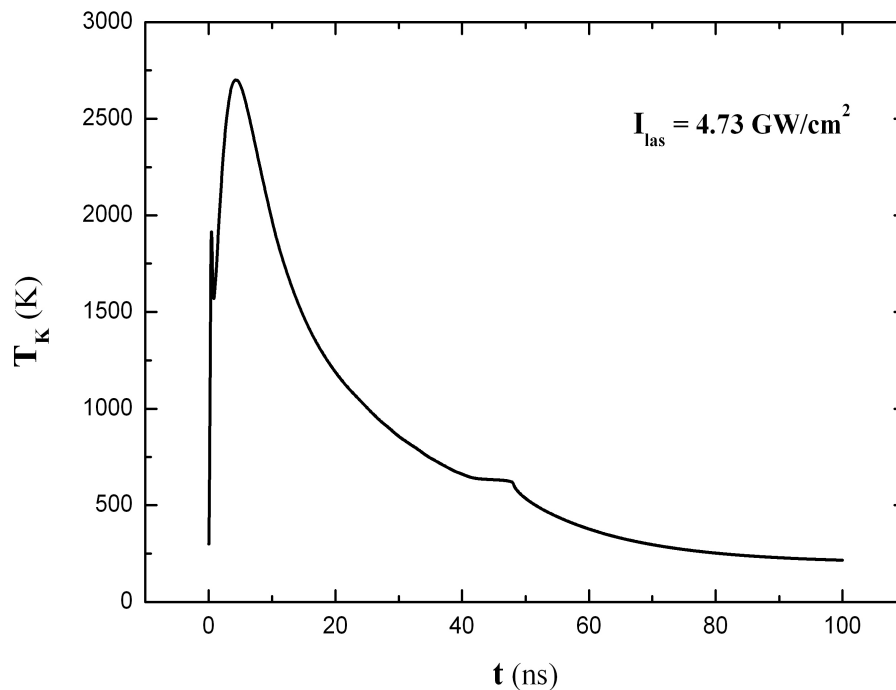


Fig. 7.9. Evolution temporelle de la température de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

1.3.2. Pression de la vapeur

La pression de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen p_K est déterminée à partir de la pression de la vapeur au dessus de la cible p_v et en utilisant la relation (6.32). La figure 7.10. présente l'évolution temporelle de la pression de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen.

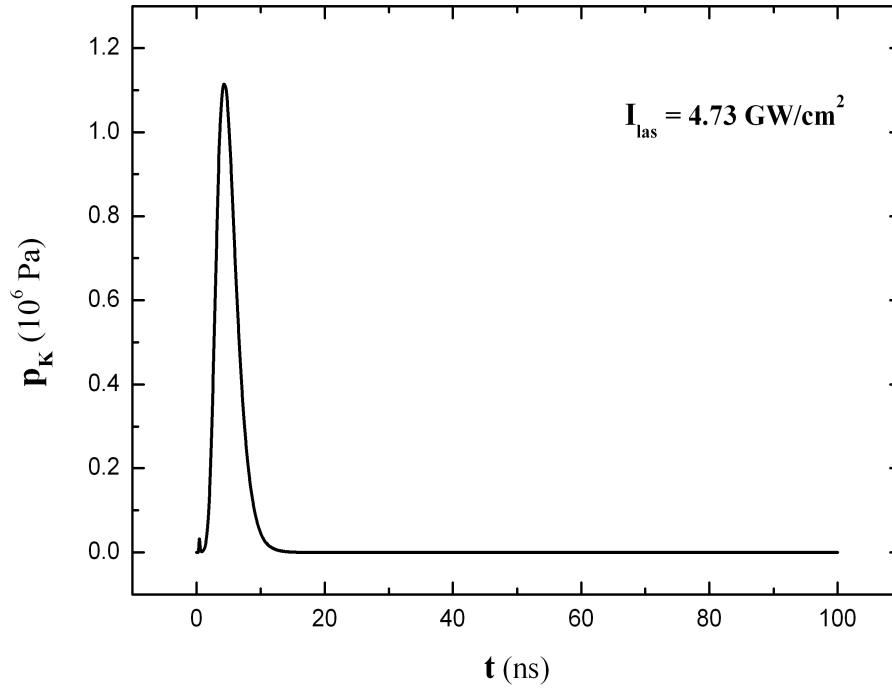


Fig. 7.10. Evolution temporelle de la pression de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

1.3.3. Masse volumique de la vapeur

La masse volumique de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen a été calculée à partir des paramètres $T_K(t)$ et $p_K(t)$, en utilisant l'équation d'état de gaz parfait :

$$\rho_K(t) = \frac{p_K(t)M_{Al}}{RT_K(t)} \quad (7.4)$$

où M_{Al} est la masse molaire d'Al et R - la constante universelle du gaz. La figure 7.11 présente l'évolution temporelle de la masse volumique de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen.

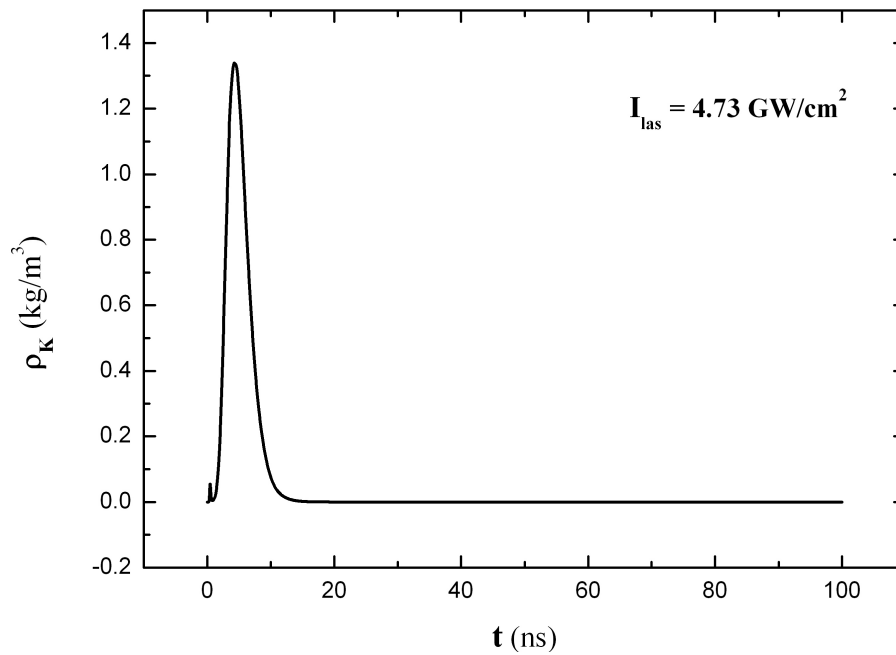


Fig. 7.11. Evolution temporelle de la masse volumique de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

1.3.4. Vitesse de la vapeur

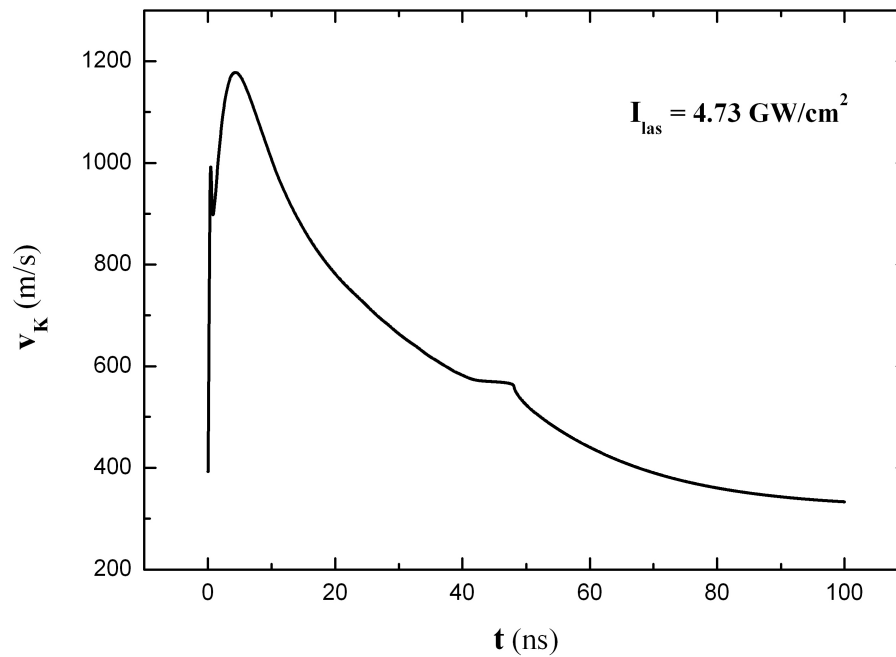


Fig. 7.12. Evolution temporelle de la vitesse de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen pendant les premières 100 ns d'interaction laser – cible.

La vitesse de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen a été calculée à partir de la température $T_K(t)$, en utilisant l'expression (6.33). Les résultats sont présentés sur la figure 7.12.

Les fonctions décrivant les évolutions temporelles des paramètres qui caractérisent la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen $\rho_K(t)$, $v_K(t)$ et $p_K(t)$ pour $t \geq 5.6$ ns ont été introduites dans le modèle hydrodynamique comme les conditions à la limite 1 (Chapitre 6, section 3.2.4).

2. Résultats du modèle hydrodynamique (approche macroscopique)

Le modèle hydrodynamique, développé dans cette étude, simule l'expansion de la plume du plasma formée lors de l'ablation laser d'une cible métallique dans l'air à la pression atmosphérique. Les résultats de cette simulation sont présentés en fonction du temps (t) et de la distance de la surface de la cible mesurée le long de l'axe de symétrie de la plume (z). Ce modèle hydrodynamique est basé sur une approche macroscopique, c'est-à-dire il calcule que des paramètres macroscopiques, comme la masse volumique du plasma $\rho_{pl}(z,t)$ et de l'air environnant $\rho_{air}(z,t)$, ainsi que la vitesse $v(z,t)$ et la pression $p(z,t)$ du fluide « plasma + air ». Les processus microscopiques, comme par exemple l'absorption du rayonnement laser lors du processus de bremsstrahlung inverse, ont été pris en compte par une approche macroscopique, en introduisant des conditions aux limites qui décrivent l'onde d'absorption par des paramètres macroscopiques. Dans cette étude, le calcul a été réalisé pour l'irradiance laser moyenne de $I_{las} = 4,73 \text{ GW/cm}^2$.

2.1. Distributions des paramètres dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns

Les conditions à la limite 2 du domaine de calcul de modèle hydrodynamique (Chapitre 6, section 3.2.4) décrivent la plume du plasma à la fin d'impulsion laser ($t = 5,6$ ns). À ce moment, la plume est caractérisée par une distribution des paramètres $\rho_{pl}(z)$, $v_{pl}(z)$ et $p_{pl}(z)$ prenant en compte la présence de l'onde d'absorption au front de la plume. Dans ce modèle, il

est considéré que le type d'onde d'absorption qui se forme au front de la plume est *laser-supported detonation wave* (LSDW) (Chapitre 6, section 3.1). La distribution des paramètres caractérisant la plume du plasma formée par LSDW est présentée sur la figure 6.9. Nous avons approximé ces distributions par des fonctions de type « pulse » :

$$y = y_0 + A \left(1 - \exp\left(-\frac{x - x_0}{t_1}\right) \right)^p \exp\left(-\frac{x - x_0}{t_2}\right) \quad (7.5)$$

où x_0 , y_0 , A , t_1 , t_2 et p sont des constantes. Afin de déterminer ces constantes, il faut d'abord calculer les paramètres caractérisant LSDW, qui correspondent au sommet des courbes.

Les paramètres qui caractérisent LSDW sont sa vitesse de propagation v_{lsdw} , ainsi que la masse volumique ρ_{lsdw} et la pression p_{lsdw} du plasma dans la zone de LSDW. Ces paramètres ont été calculés en utilisant les expressions (6.70), (6.69) et (6.71), respectivement. Les résultats de calcul sont présentés dans le Tableau 7.2. De plus, il faut calculer la longueur de la plume l_{pl} à $t = 5,6$ ns, parce qu'elle détermine la longueur de la limite 2 du domaine de calcul. Les valeurs des paramètres de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen à $t = 5,6$ ns sont aussi présentées dans le tableau, parce qu'ils caractérisent la plume à la surface de la cible.

Tableau 7.2. Paramètres caractérisant la plume du plasma à $t_{inc} = 5,6$ ns .

paramètre	valeur	
irradiance laser moyenne I_{las} (GW/cm ²)	8,16	4,73
irradiance laser à $r = 0$ mm, I_{las} (GW/cm ²)	16,32	9,46
masse volumique du plasma de LSDW, ρ_{lsdw} (kg/m ³)	2,277	2,277
vitesse de propagation de LSDW, v_{lsdw} (m/s)	$5,78 \cdot 10^4$	$4,82 \cdot 10^4$
longueur de la plume du plasma, l_{pl} (m)	$2,95 \cdot 10^{-4}$	$2,46 \cdot 10^{-4}$
pression du plasma de LSDW, p_{lsdw} (Pa)	$1,86 \cdot 10^9$	$1,30 \cdot 10^9$
masse volumique de la vapeur à la limite de la couche de Knudsen, ρ_K (kg/m ³)	14,531	1,058
vitesse de la vapeur à la limite de la couche de Knudsen, v_K (m/s)	1427	1160
pression de la vapeur à la limite de la couche de Knudsen, p_K (Pa)	$1,78 \cdot 10^7$	$8,54 \cdot 10^5$

La distribution de la masse volumique dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns est présentée sur la figure 7.13. Le front de la plume, correspondant à LSDW, est caractérisé par une valeur de masse volumique plus élevée ρ_{lsdw} , alors qu'à la surface de la cible la masse volumique de la plume est égale à celle de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen ρ_K .

La distribution de la vitesse de la plume du plasma à $t = 5,6$ ns est présentée sur la figure 7.14. Le front de la plume, correspondant à l'onde d'absorption (LSDW), se propage avec une vitesse très élevée v_{lsdw} , alors que la vitesse à la surface de la cible est celle de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen v_K .

La distribution de la pression dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns est présentée sur la figure 7.15. La pression du plasma sur le front supérieur de la plume est très élevée due à la présence de LSDW. De l'autre côté, à la surface de la cible la pression de la plume devient égale à celle de la vapeur métallique à la limite externe de la couche de Knudsen p_K .

Ces distributions ont été introduites dans le modèle hydrodynamique comme conditions à la limite 2 du domaine de calcul.

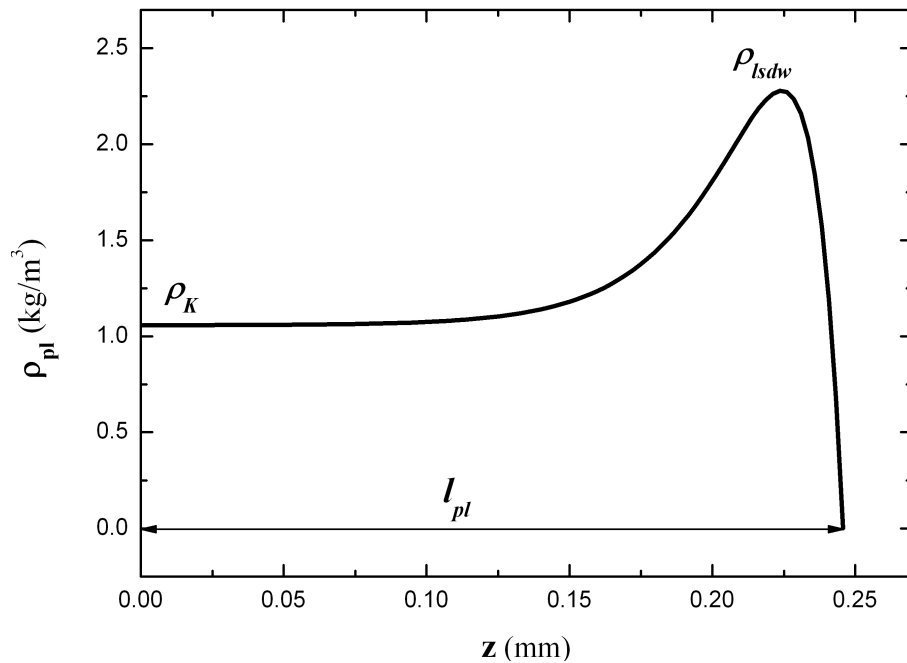


Fig. 7.13. Distribution de la masse volumique dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns.

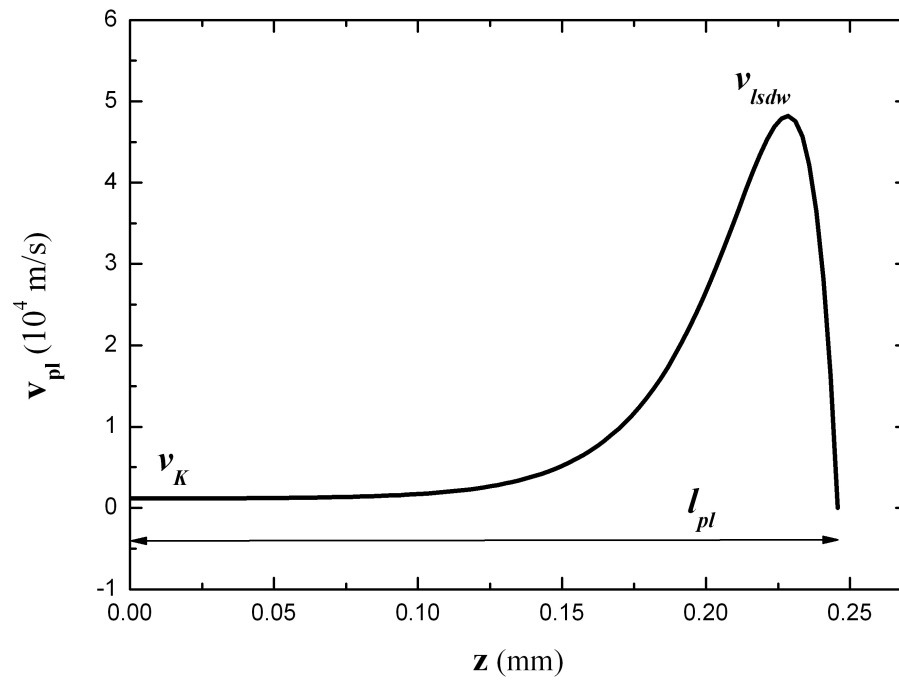


Fig. 7.14. Distribution de la vitesse dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns .

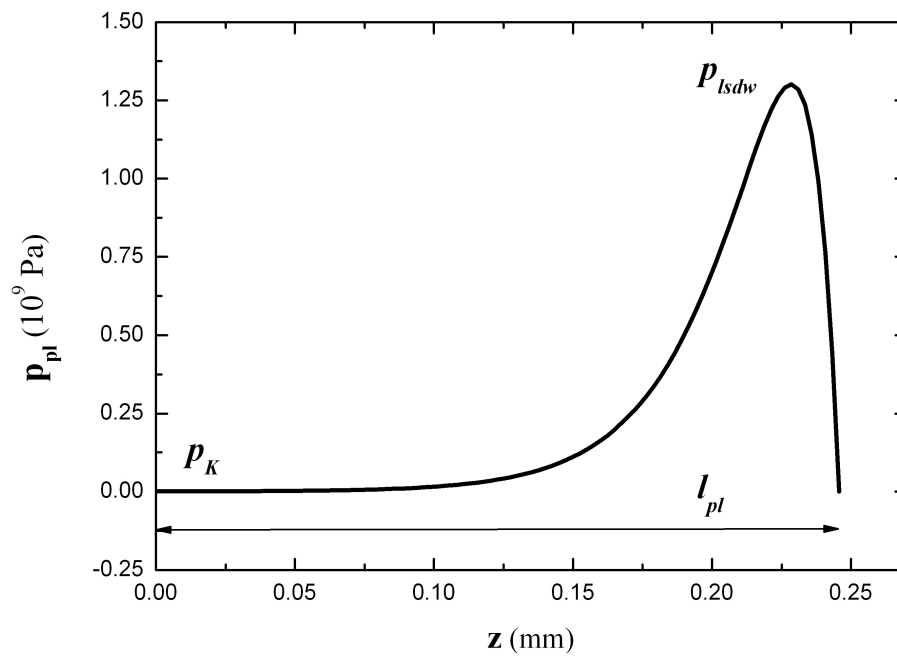


Fig. 7.15. Distribution de la pression dans la plume du plasma à $t = 5,6$ ns .

2.2. Résultats du modèle hydrodynamique

Les résultats du modèle hydrodynamique développé dans cette étude représentent l'évolution temporelle des distributions des paramètres de la plume (la masse volumique du plasma ρ_{pl} , la masse volumique de l'air ρ_{air} , la vitesse du fluide v et la pression du fluide p) le long de l'axe z (l'axe de symétrie de la plume). Alors, sur les images présentées, l'abscisse correspond à la dimension spatiale (z) et l'ordonnée au temps (t). L'échelle des couleurs à côté de chaque image indique les valeurs du paramètre calculé. De plus, l'évolution temporelle des distributions des paramètres de la plume sont aussi présentées sous forme de graphes, afin de pouvoir précisément déterminer la position du front de la plume ainsi que les valeurs des paramètres ρ_{pl} , ρ_{air} , v et p calculés aux différents instants.

2.2.1. Masse volumique du plasma

La figure 7.16 montre l'évolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la masse volumique du plasma ρ_{pl} . La première chose qu'on remarque sur cette image est qu'il existe une accumulation de matière proche de la surface de la cible. Cela peut correspondre au confinement de la matière ablatée. La valeur maximale de la masse volumique de $16,3 \text{ kg/m}^3$ correspondent à la matière accumulée proche de la surface de la cible vers $t = 30 \text{ ns}$.

Suite aux valeurs importantes de la masse volumique du plasma proche de la surface de la cible, il est difficile d'observer l'expansion de la plume du plasma sur la figure 7.16. Alors, il faut changer l'échelle, c'est-à-dire réduire la valeur maximale d'échelle. Cela a été fait sur la figure 7.17. Maintenant, on peut remarquer l'expansion de la plume du plasma, même si les valeurs de la masse volumique au front de la plume sont assez faibles. Les surfaces blanches correspondent aux valeurs de ρ_{pl} supérieures à 2 kg/m^3 .

Afin de déterminer le positionnement exact du front de la plume du plasma aux différents instants, il faut étudier l'évolution temporelle de la distribution de la masse volumique du plasma le long de l'axe z , présentée en forme des graphes sur la figure 7.18.

La distribution de la masse volumique du plasma le long de l'axe z est présentée à différents instants de l'expansion de la plume avec un pas de 10 ns.

Sur la figure 7.18, on peut remarquer qu'à 10 ns la distribution de la masse volumique dans la plume du plasma est presque homogène, mais ensuite la matière est confinée vers la surface de la cible. En conséquence, la masse volumique dans la plume du plasma qui se détend devient assez faible. Néanmoins, on peut déterminer la position du front de la plume du plasma. Sur la figure 7.18, on peut observer que la longueur de la plume augmente avec le temps, mais l'expansion de la plume est significativement ralentie.

La longueur de la plume du plasma peut être comparée avec la longueur du cœur de la plume mesurée dans la partie expérimentale de cette étude. Par contre, il faut tenir compte, que ce qu'on appelle ici « la plume du plasma » n'est pas seulement la plume de matière ablatée. C'est un mélange de matière ablatée et d'air, qui forme la plume à la fin de l'impulsion laser ($t = 5,6$ ns). Cependant, on va supposer que « la plume du plasma » dans la simulation numérique correspond au cœur de la plume observée par l'imagerie (Chapitre 4), afin de réaliser une comparaison entre les résultats de modélisation et les résultats expérimentaux.

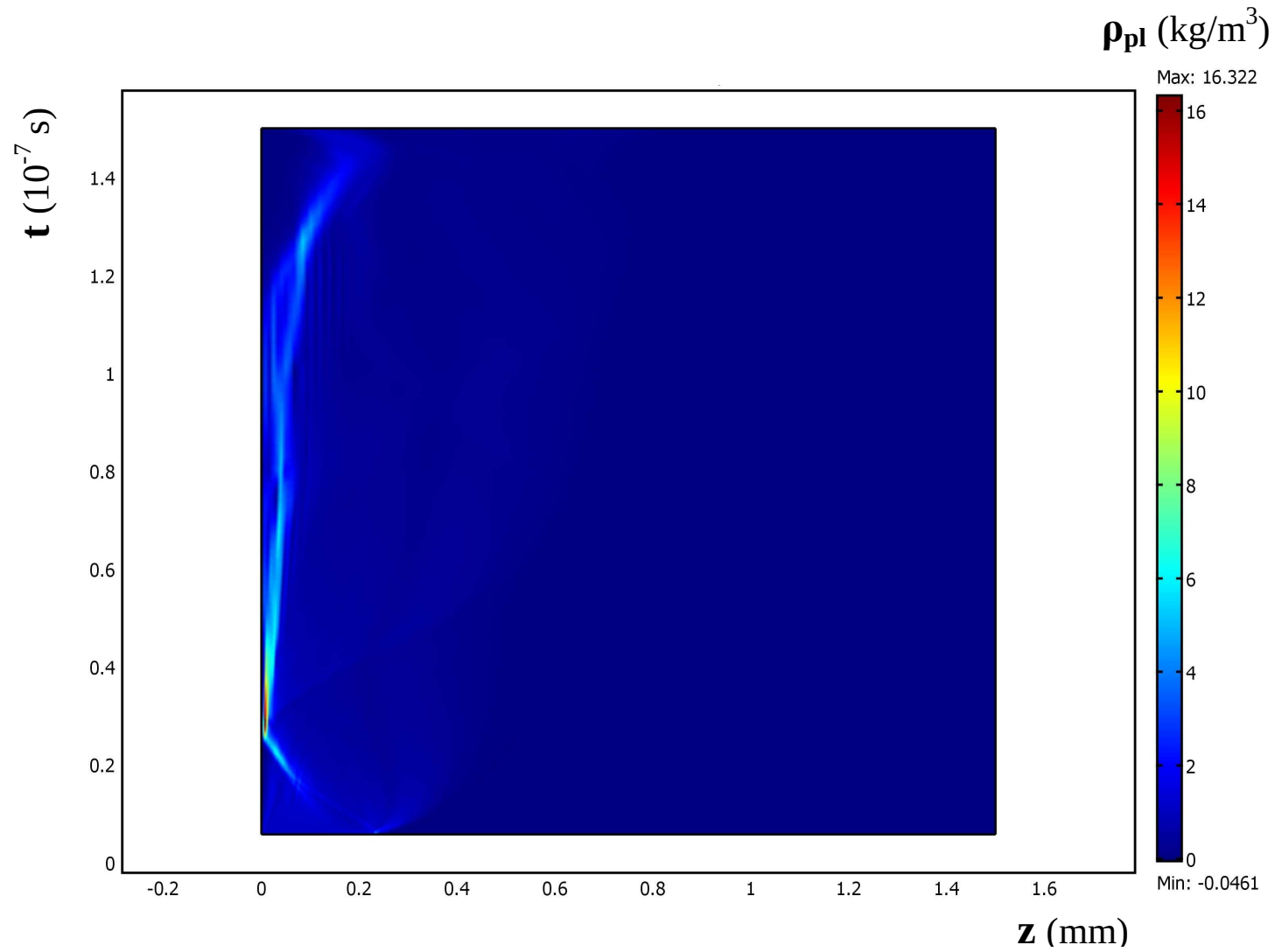


Fig. 7.16. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la masse volumique du plasma ρ_{pl} .

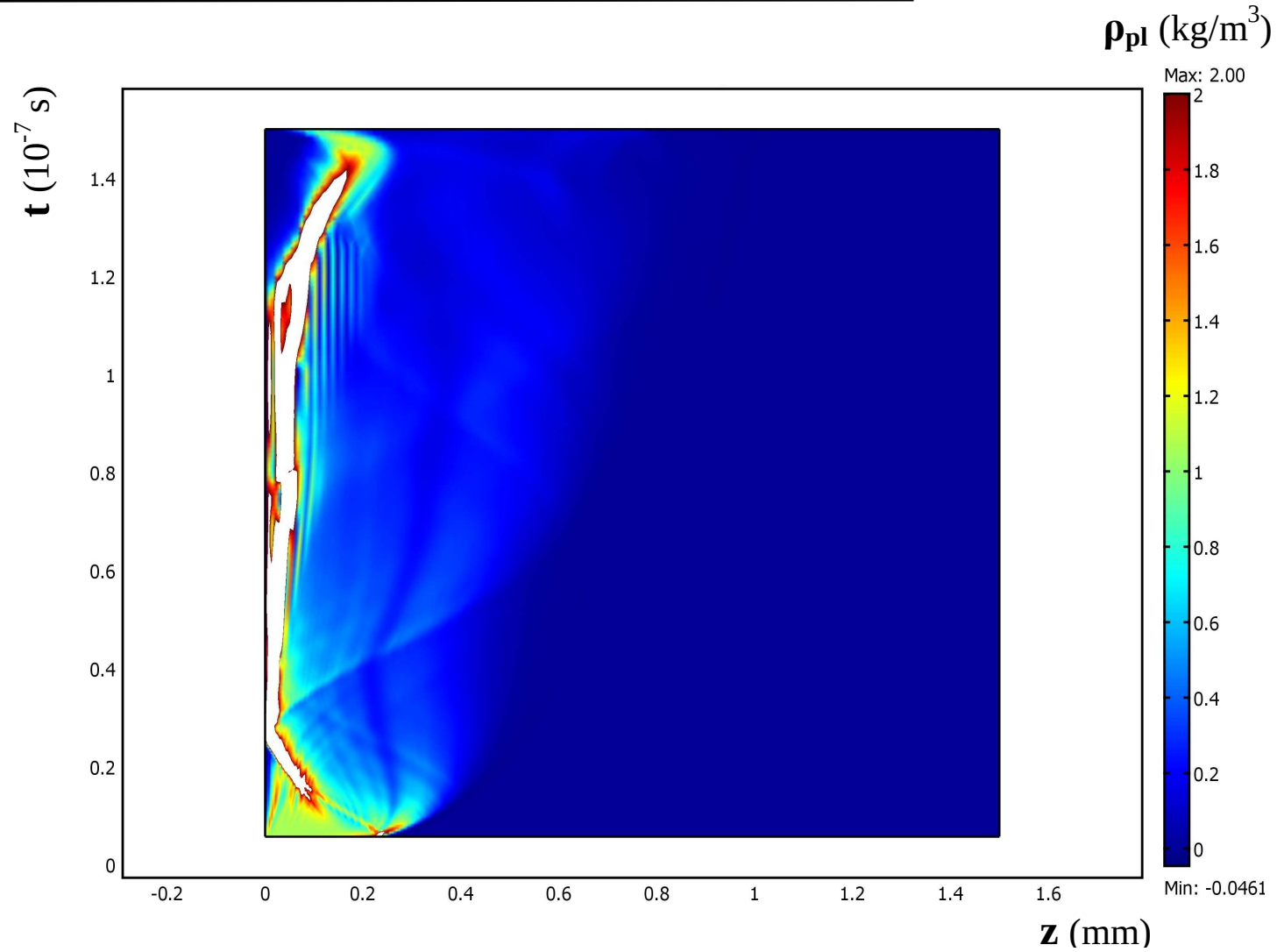


Fig. 7.17. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la masse volumique du plasma ρ_{pl} après le changement d'échelle (valeur maximale $\rho_{pl}^{\max} = 2 \text{ kg/m}^3$).

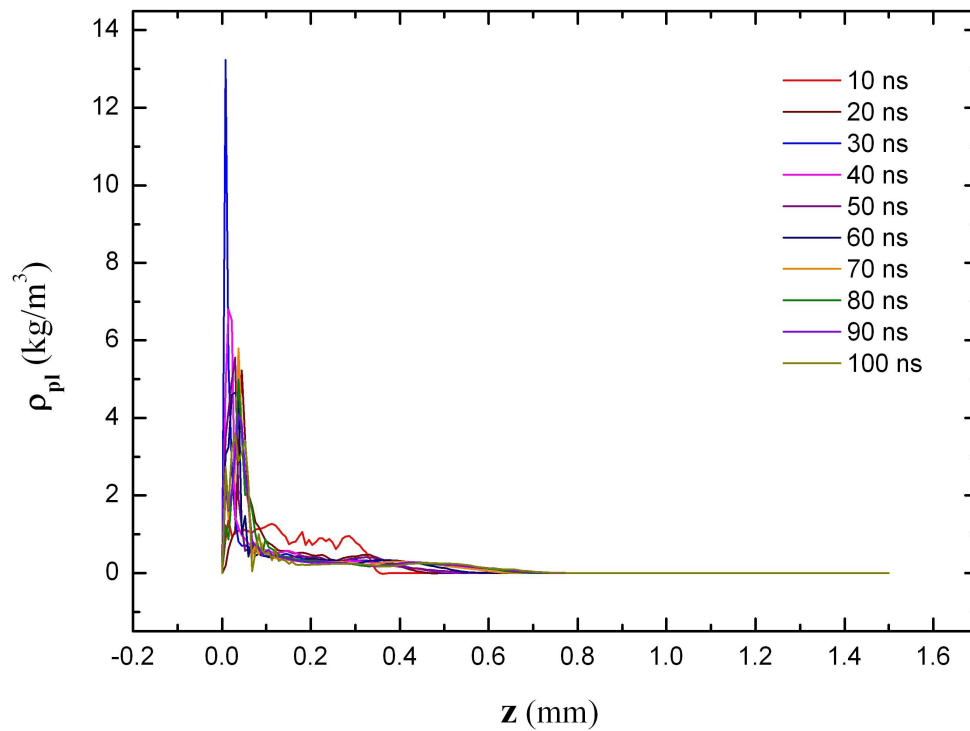


Fig. 7.18. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la masse volumique du plasma ρ_{pl} pour les premières 100 ns d'expansion de la plume avec un pas de 10 ns.

2.2.2. Masse volumique de l'air

La figure 7.19 montre l'évolution temporelle de la distribution de la masse volumique de l'air environnant ρ_{air} le long de l'axe z . Sur cette image, on peut nettement voir la propagation de l'onde de choc, qui se forme suite à la compression de l'air environnant lors de l'expansion de la plume du plasma. En plus, on peut remarquer un élargissement de la zone correspondant à l'air environnant. Cela est dû au fait que le ralentissement de l'expansion de la plume du plasma est plus important que le ralentissement de la propagation de l'onde de choc formée dans l'air environnant devant elle. Du fait de la formation de l'onde de choc, la masse volumique de l'air environnant atteint la valeur maximale de $8,5 \text{ kg/m}^3$.

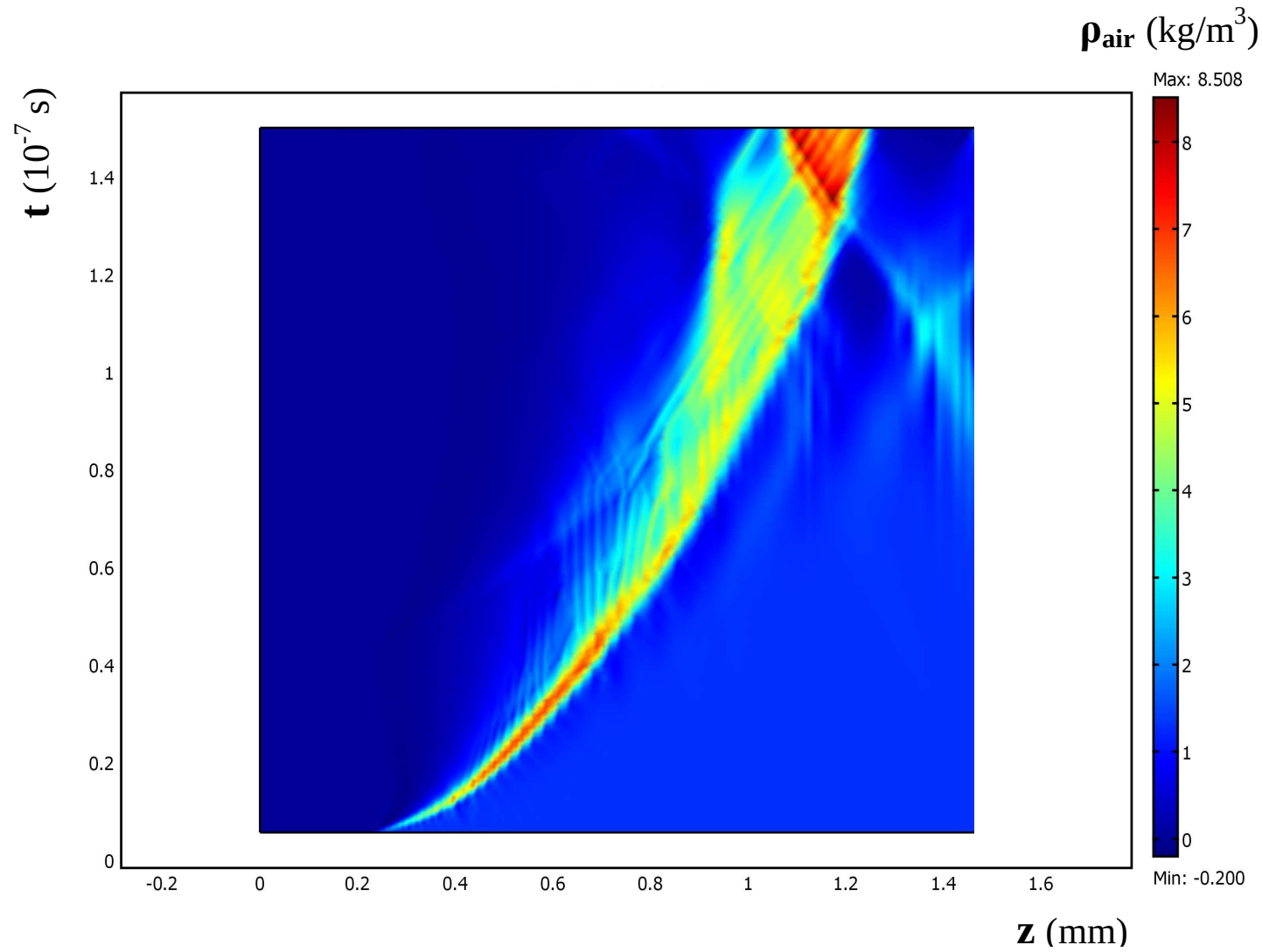


Fig. 7.19. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la masse volumique de l'air environnant ρ_{air} .

La figure 7.20. représente l'évolution temporelle de la distribution de la masse volumique de l'air environnant le long de l'axe z pendant les premières 150 ns d'expansion de la plume avec un pas de 10 ns. Sur cette image, on peut nettement voir que l'onde de choc formée dans l'air environnant se propage le long de l'axe z avec le temps.

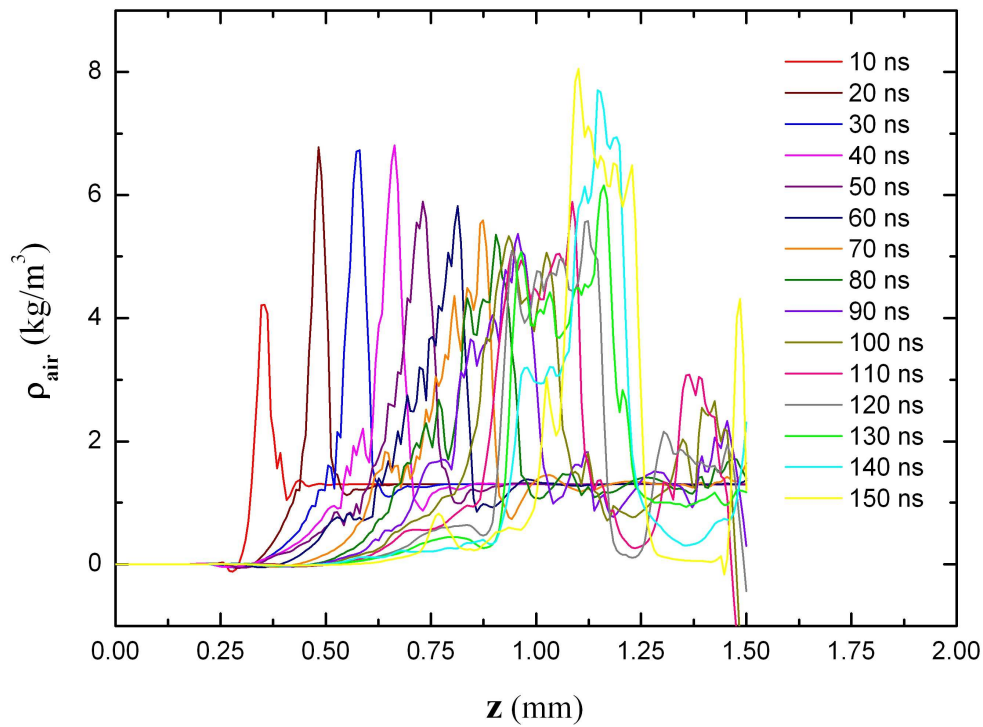


Fig. 7.20. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la masse volumique de l'air environnant ρ_{air} pour les premières 150 ns d'expansion de la plume avec un pas de 10 ns.

Afin de faire une comparaison avec les résultats expérimentaux, on va supposer que la zone de l'air environnant chauffée lors de la compression par la plume du plasma correspond à la périphérie de la plume observée par l'imagerie (Chapitre 4). Alors, on va comparer la position du front de l'onde de choc formée dans l'air environnant avec la longueur de la périphérie de la plume, mesurée dans la première partie de cette étude.

2.2.3. Vitesse du fluide « plasma + air »

La figure 7.21. représente l'évolution temporelle de la distribution de la vitesse du fluide « plasma + air » le long de l'axe z . Sur cette image, on peut voir l'expansion du fluide étudié dans l'air ambiant non-perturbé. Le front du fluide correspond au front de l'onde de choc formée dans l'air environnant. La vitesse du fluide est la plus élevée au front de la plume à la fin de l'impulsion laser ($t = 5,6 \text{ ns}$) – elle est de l'ordre de 10^4 m/s . Avec l'expansion hydrodynamique de la plume, la vitesse du fluide diminue jusqu'à quelques 10^3 m/s . Sur la figure 7.21. on peut distinguer deux régimes de mouvement du fluide « plasma + air ». À partir du point caractérisé par les paramètres les plus élevés, une partie du fluide se propage dans l'air ambiant (dirigée par l'onde de choc), alors que l'autre partie se déplace vers la surface de la cible. Cette dernière correspond à l'onde de détente. Entre 20 ns et 30 ns, l'onde de détente est réfléchiée de la surface de la cible et elle change sa direction de propagation. L'onde de détente réfléchiée se propage dans un gaz raréfié avec une vitesse supérieure à celle de l'onde de choc, et elle atteint le front de l'onde de choc (le front du fluide) vers 120 ns.

La figure 7.22. présente l'évolution temporelle de la distribution de la vitesse du fluide « plasma + air » le long de l'axe z pendant les premières 100 ns avec un pas de 10 ns. Sur cette image, on peut observer la propagation de l'onde de choc formée dans l'air environnant avec le temps, ainsi que la diminution de sa vitesse.

L'évolution temporelle de la vitesse du front du fluide (l'onde de choc) peut être comparée avec les résultats expérimentaux décrivant l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion de la périphérie de la plume dans la direction longitudinale.

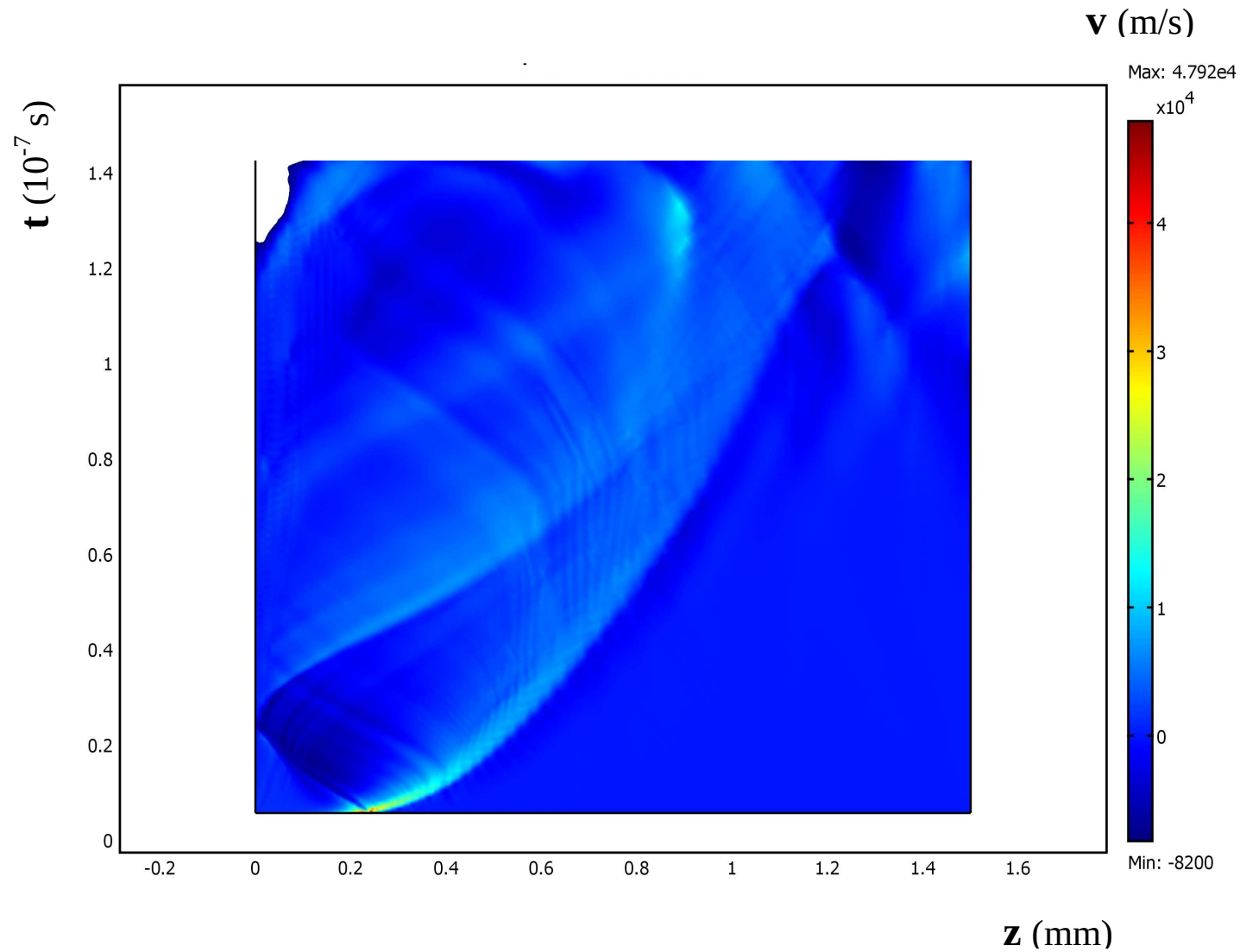


Fig. 7.21. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la vitesse du fluide « plasma + air » v .

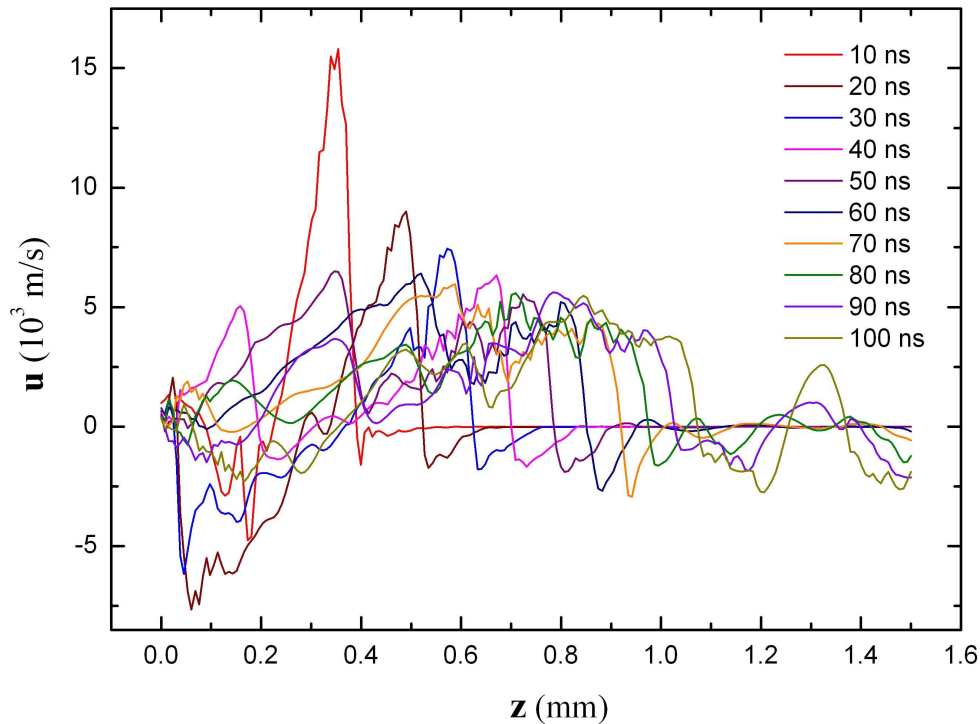


Fig. 7.22. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la vitesse du fluide « plasma + air » v pour les premières 100 ns d'expansion de la plume avec un pas de 10 ns.

2.2.4. Pression du fluide « plasma + air »

La figure 7.23. représente l'évolution temporelle de la distribution de la pression du fluide « plasma + air » le long de l'axe z . Sur cette image, on peut observer le même comportement du fluide que sur la figure 7.21. La pression est la plus élevée au point correspondant au front de la plume à la fin d'impulsion laser. Avec l'expansion de la plume, la pression diminue. Ici aussi, on peut distinguer qu'une partie du fluide se propage dans l'air ambiant et que l'autre partie est réfléchi de la surface de la cible et rattrape le front du fluide vers 120 ns.

La figure 7.24. présente l'évolution temporelle de la distribution de la pression du fluide « plasma + air » le long de l'axe z pendant les premières 100 ns avec un pas de 10 ns. Sur cette image, on peut observer la propagation de l'onde de choc formée dans l'air environnant avec le temps, ainsi que la diminution de la pression qui la caractérise.

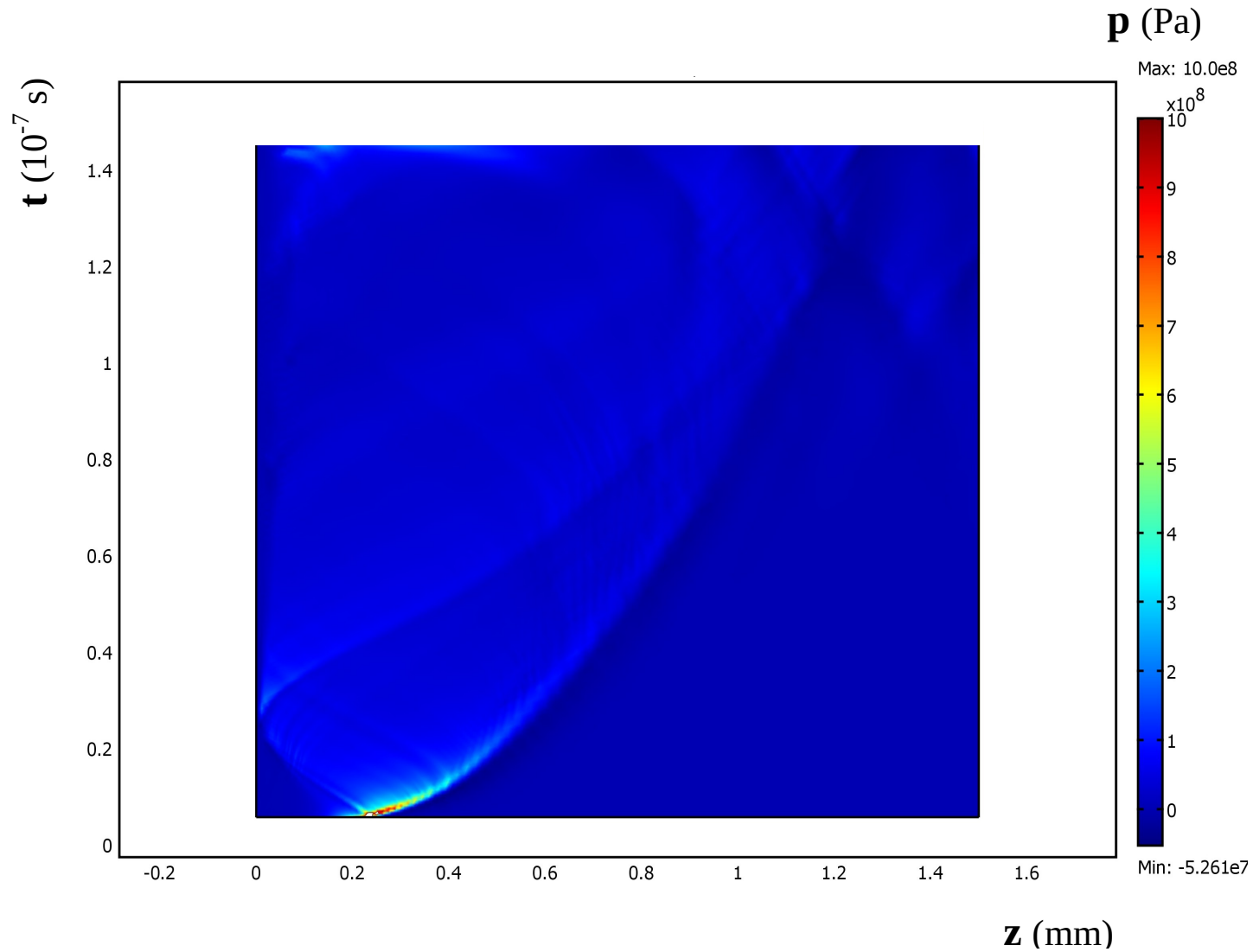


Fig. 7.23. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la pression du fluide « plasma + air » p .

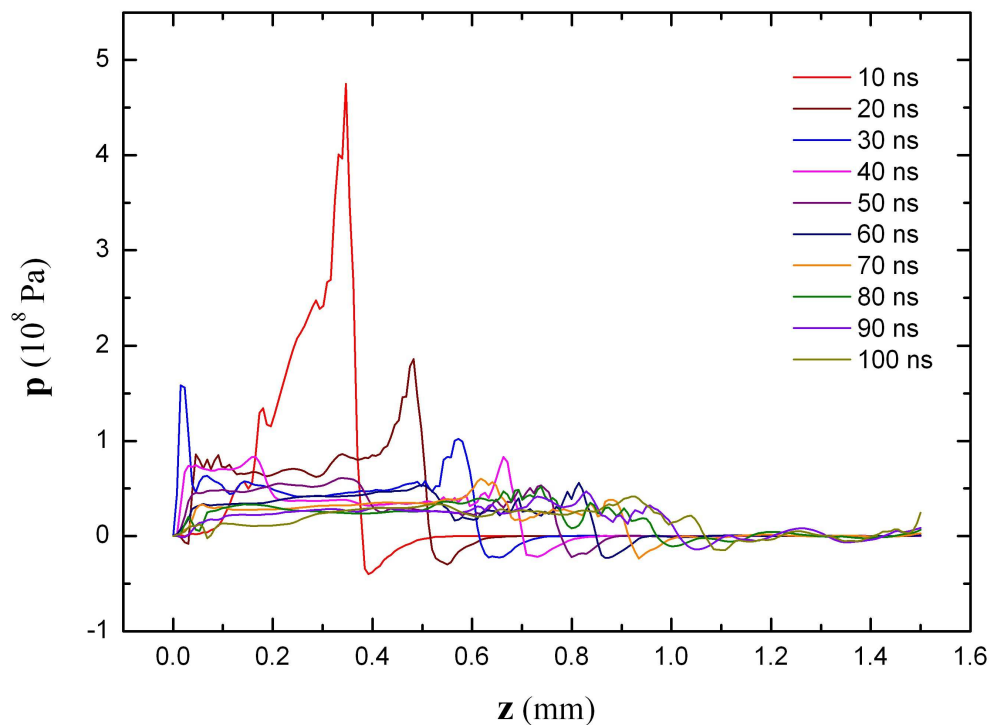


Fig. 7.24. Evolution temporelle de la distribution spatiale (le long de l'axe z) de la pression du fluide « plasma + air » p pour les premières 100 ns d'expansion de la plume avec un pas de 10 ns.

3. Comparaison avec des résultats expérimentaux

Afin de comparer les résultats de la simulation numérique avec des résultats expérimentaux, nous avons extrait des informations à partir de l'évolution temporelle des distributions spatiales des paramètres de la plume présentés sur les figures 7.18, 7.20, 7.22 et 7.24. La longueur de la plume du plasma (Fig. 7.18), ainsi que le positionnement du front de l'onde de choc (Fig. 7.20) ont été déterminés aux différents instants de l'expansion de la plume. La position du front de l'onde de choc peut toujours être vérifié en analysant les figures 7.22 et 7.24. À partir de la figure 7.22, l'évolution temporelle de la vitesse de l'onde de choc a été déterminée.

L'évolution temporelle de la longueur de la plume a été comparée avec l'évolution temporelle de la longueur du cœur de la plume déterminée expérimentalement dans cette étude. La comparaison est présentée sur la figure 7.25. Les points expérimentaux manquent en débutant à partir de 100 ns. De la même façon, l'évolution temporelle de la position du front

de l'onde de choc a été comparée avec l'évolution temporelle de la longueur de la périphérie de la plume mesurée par l'imagerie. La comparaison est présentée sur la figure 7.26.

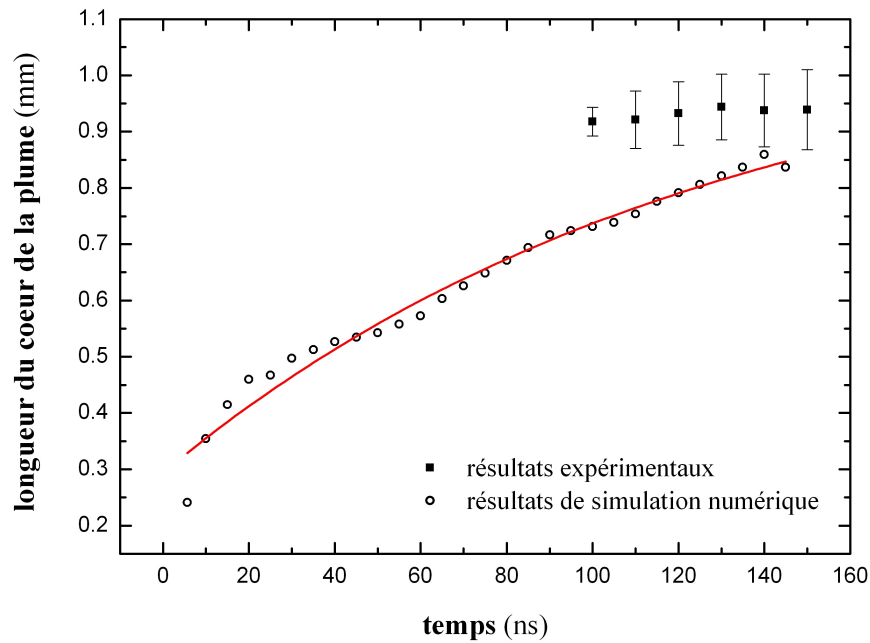


Fig. 7.25. Comparaison: la longueur du cœur de la plume (expérience) et la longueur de la plume du plasma (simulation numérique) en fonction du temps.

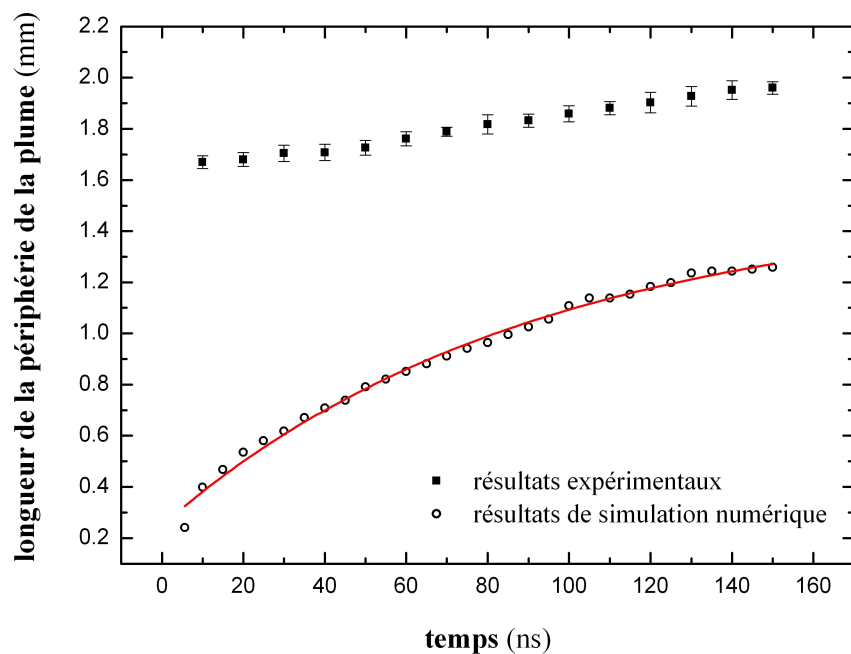


Fig. 7.26. Comparaison: la longueur de la périphérie de la plume (expérience) et le positionnement du front de l'onde de choc (simulation numérique) en fonction du temps.

Sur les deux figures 7.25 et 7.26 on peut remarquer que les résultats comparés sont de même ordre de grandeur, mais que les résultats expérimentaux sont toujours plus élevés que les résultats de simulation numérique. La différence entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques est plus prononcée dans le cas de la périphérie de la plume. On a l'impression que la périphérie de la plume atteint une longueur plus importante beaucoup plus rapidement que ce que prévoit le modèle hydrodynamique.

D'autre part, on a comparé l'évolution temporelle de la vitesse de l'onde de choc formée dans l'air environnant avec l'évolution temporelle de la vitesse d'expansion de la périphérie de la plume dans la direction longitudinale, déterminée expérimentalement. La comparaison est présentée sur la figure 7.27. Ici, on peut observer que la vitesse de l'onde de choc calculée diminue rapidement au même ordre de grandeur, mais elle reste quand même supérieure à la vitesse d'expansion de la périphérie de la plume. D'après les résultats expérimentaux, il semble que la plume se propage très rapidement au début de son expansion ($t < 10$ ns) et déjà à 10 ns sa longueur est plus importante et sa vitesse est plus réduite que celle que prévoit le modèle hydrodynamique.

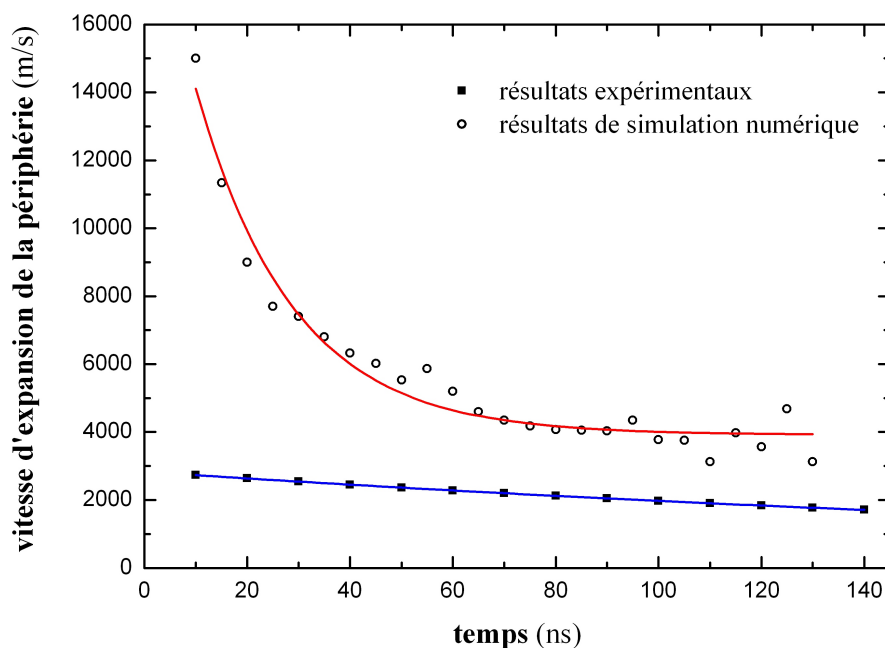


Fig. 7.27. Comparaison : la vitesse longitudinale d'expansion de la périphérie de la plume (expérience) et la vitesse de l'onde de choc (simulation numérique) en fonction du temps.

4. Modèle hydrodynamique microscopique

Un modèle microscopique a été développé sur le même principe que celui présenté dans le tableau 7.1. C'est-à-dire que dans un premier temps la simulation thermique permet de déterminer l'évolution de température en surface, puis les paramètres physiques de la vapeur issue de la surface et en limite supérieure de la couche de Knudsen. Ces paramètres sont ensuite utilisés comme conditions limites d'une simulation de la dynamique interne à la plume. L'approche microscopique est plus complexe, puisque les équations d'Euler (eqs. 6.39, 6.50 et 6.51) comportent un second terme. L'équation de bilan de masse (6.39) fait intervenir les processus de création et l'annihilation des espèces du plasma (eqs. 6.40-41). L'équation de bilan d'énergie (6.51) fait intervenir l'absorption du rayonnement laser par le plasma, ainsi que les densités d'énergie de rayonnement du plasma par bremsstrahlung, recombinaison et rayonnement spectral.

La méthode de résolution adoptée consiste à résoudre dans un premier temps les équations d'Euler sans second terme suivant le même schéma d'éléments finis que dans l'étude précédente. Ce premier calcul permet de traiter l'aspect onde de choc, qui numériquement peut être une cause d'instabilité numérique et divergence du calcul. Puis l'idée est d'utiliser cette première solution comme condition initiale du problème complet avec second membre.

Cependant, le nombre de variables en chaque point du maillage devient important. Donc un schéma par éléments finis, le nombre d'équations à traiter devient très grand. Dans ce cas il aurait été nécessaire soit de réduire le nombre de mailles (mais les phénomènes sont très localisés, donc demandant un maillage fin) ou d'utiliser les moyens d'un centre de calcul.

De plus, cette méthode de résolution est adaptée dans le cas d'un système d'équations linéaires, mais les équations de la mécanique des fluides sont non linéaires et les équations reliant les variables sont aussi fortement non linéaires.

En conséquence, nous n'avons pas réussi à faire converger ce calcul.

Il semble donc que l'utilisation de la méthode des éléments finis qui est à la base du logiciel COMSOL Multiphysics ne soit pas adaptée à ce type de problème. Dans la suite de ce travail, il est donc nécessaire d'approfondir la recherche bibliographique des méthodes numériques permettant de résoudre un tel problème. On peut déjà noter que la plupart des

auteurs de modèles d'ablation laser basés sur l'approche microscopique développent leurs propres codes basés sur des méthodes en volumes finis.

5. Conclusion

Le modèle d'ablation laser basé sur l'approche macroscopique présenté dans cette thèse est un modèle assez simple. Le fait qu'il ne calcule que les paramètres macroscopiques de la plume du plasma permet d'éviter l'introduction de la cinétique du plasma ainsi que d'autres expressions qui le rendraient beaucoup plus complexe. Les modèles plus complexes, qui calculent des paramètres microscopiques comme la densité d'électrons, la densité des particules lourdes, la température d'électrons... nécessitent une mémoire d'ordinateur excessive ou d'utilisation de méthodes de résolutions adaptées.

Le modèle hydrodynamique développé dans cette étude peut être encore amélioré en prenant en compte la perte d'énergie du plasma par le rayonnement. Comme cela dépend des paramètres microscopiques (densités des particules, température d'électrons), il faut trouver un moyen d'estimer l'évolution temporelle des distributions de ces paramètres.

Nous avons fait un calcul de l'évolution des paramètres suivant l'axe de symétrie ($r = 0$). Cette méthode permet maintenant une convergence assez rapide. Il doit maintenant être possible de généraliser ce calcul à l'évolution dans l'espace, c'est-à-dire faire un calcul dans le demi-plan (r, z) compte tenu de la symétrie cylindrique. Suivant notre méthode, cela revient à faire des calculs dans un espace à 3 dimensions (r, z, t) .

D'autre part, la comparaison des résultats de simulation numérique avec des résultats expérimentaux indiquent que la propagation de la plume est beaucoup plus rapide au début de son expansion ($t < 10$ ns), conduisant au fait qu'à l'instant $t = 10$ ns sa longueur est plus importante et sa vitesse est plus réduite que celles que prévoit le modèle hydrodynamique. Cela peut indiquer que même à l'irradiance laser de $4,73 \text{ GW/cm}^2$, le régime dirigeant l'expansion de la plume lors de l'impulsion laser est plus violent. Alors, dans ce cas, il faut peut être s'orienter vers le régime de *laser-supported radiation wave* (LSRW). La description de LSRW présentée dans le Chapitre 6, pourrait être utile pour la suite.

Conclusion et perspectives

L'ablation laser dans l'air à la pression atmosphérique est aujourd'hui souvent appliquée dans l'industrie, l'analyse chimique, la chirurgie, ... Pour une meilleure maîtrise et un développement plus approfondi des technologies laser basées sur l'effet d'ablation, il est nécessaire de mieux comprendre les phénomènes à l'origine de l'interaction laser-matière. L'étude de la dynamique et des paramètres de la plume du plasma formée lors de l'ablation laser est très importante, parce qu'ils influent sur l'ensemble des processus physiques ayant lieu à la surface du matériau traité.

Dans ce travail, nous avons étudié la dynamique d'expansion de la plume du plasma formée lors de l'impact du faisceau laser Nd :YAG nanoseconde (durée d'impulsion : 5,1 ns, longueur d'onde : 1064 nm, irradiance $\sim \text{GW/cm}^2$) sur des échantillons métalliques (Al, Ti, Fe) dans l'air à la pression atmosphérique.

La première partie comprend une étude expérimentale, où la structure et la dynamique de la plume ont été étudiées par le biais de l'imagerie rapide. Cette technique nous a permis d'observer l'évolution spatio-temporelle de la plume au début de son expansion (premières 330 ns). Les résultats obtenus par l'imagerie rapide indiquent que la plume d'ablation laser a une structure : deux régions ont été distinguées – le cœur et la périphérie de la plume. A notre avis, le cœur de la plume est la partie centrale de la plume contenant principalement de la matière ablatée chauffée et ionisée, alors que la périphérie de la plume correspond principalement à l'air environnant chauffée et ionisée d'abord par l'absorption du rayonnement laser et ensuite par la compression hydrodynamique. La dynamique de ces deux régions de la plume a été étudiée et les vitesses de leur expansion ont été déterminées. Le comportement de la plume peut être décrit comme une expansion adiabatique rapide dans un gaz ambiant, qui suit une expansion beaucoup plus violente ayant lieu lors de l'impulsion laser et attribué à LSRW ou FIW. Dans cette étude, nous avons aussi examiné l'influence de l'irradiance laser et de la composition de la cible sur la dynamique de la plume. Dans les deux cas, nous avons observé des influences significatives de ces paramètres sur l'expansion de la plume. L'influence de l'irradiance laser sur l'expansion de la plume peut être expliquée par la quantité d'énergie apportée à la surface de la cible et à la plume du plasma par le faisceau

laser. D'un autre côté, la composition de la cible a surtout une influence sur l'expansion du cœur de la plume, ce qui soutient l'hypothèse que le cœur contient principalement de la matière ablatée.

Afin de vérifier la composition des deux régions de la plume, il faudrait réaliser des mesures spectroscopiques. En utilisant la technique de temps de vol, les vitesses des atomes et des ions présentes dans la plume peuvent être déterminées et comparées ensuite aux vitesses d'expansion des deux régions de la plume mesurées dans cette étude. L'analyse détaillée de la distribution spatiale des paramètres de la plume du plasma (densité des électrons, densité des atomes, densité des ions, température) aux différents instants de son expansion peut apporter beaucoup d'informations complémentaires au niveau de la structure et de la dynamique de la plume.

L'étude de la structure et de la dynamique de la plume du plasma est très importante pour une meilleure compréhension des processus physiques ayant lieu sur et au-dessus de la surface de la cible lors de l'interaction laser - matière. Les résultats obtenus par ces études expérimentales peuvent être utilisés pour la vérification des modèles et conduire à un développement plus approfondis des modèles d'ablation laser.

Dans *la deuxième partie* de ce travail, une simulation numérique du processus d'ablation laser a été réalisée en utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics. L'ablation laser implique des processus physiques complexes et simultanés, comme le transfert de chaleur dans la cible, la fusion et la vaporisation du matériau traité, la formation et l'expansion de la plume du plasma au-dessus de la cible, l'interaction du plasma avec le faisceau laser, le rayonnement du plasma, ... En plus, ces processus sont souvent fortement couplés. Dans cette étude, un modèle thermique a été développé pour simuler l'interaction laser – cible. Ce modèle nous donne l'évolution temporelle de la distribution de la température dans la cible. A partir de la température à la surface de la cible, nous avons calculé l'évolution temporelle des paramètres de vaporisation, et ensuite les paramètres de la vapeur à la limite externe de la couche de Knudsen. Ces résultats ont été employés comme conditions à la limite du modèle hydrodynamique, développé pour simuler l'expansion de la plume du plasma dans l'air ambiant. Deux approches ont été proposées : l'approche microscopique et l'approche macroscopique. Le modèle basé sur l'approche microscopique n'a pas réussi à converger à cause de la nécessité d'une mémoire excessive, donc les résultats ne sont pas présentés. Par contre, le modèle basé sur l'approche macroscopique est beaucoup plus simple, donc il demande moins de mémoire vive. Les résultats de simulation basés sur l'approche macroscopique donnent l'évolution temporelle et la distribution spatiale (1D) des paramètres

de la plume : masse volumique du plasma, masse volumique de l'air environnant, vitesse du fluide (plasma + air), pression du fluide. Ces résultats montrent l'expansion ralentie de la plume du plasma dans l'air ambiant, ainsi que la formation de l'onde de choc dans l'air environnant comprimé devant la plume. Les vitesses calculées par le modèle numérique sont du même ordre de grandeur que celles mesurées par l'imagerie rapide.

En perspective, au niveau du modèle microscopique, il faut trouver des moyens pour réduire ses exigences au niveau de mémoire vive ou bien utiliser une station de calcul. Le modèle basé sur l'approche macroscopique peut être encore amélioré, en prenant en compte la perte d'énergie par le rayonnement du plasma. Pour cela, il faut bien estimer les distributions spatio-temporelles des paramètres du plasma dans la plume.

Bibliographie

- [Abdelli-Messaci'09] S. Abdelli-Messaci, T. Kerdja, S. Lafane, S. Malek, *Fast imaging of laser-induced plasma emission from a ZnO target*, Spectrochimica Acta Part B **64** (2009) 968-973.
- [Aden'92] M. Aden, E. Beyer, G. Herziger and H. Kunze, *Laser-induced vaporization of a metal surface*, Journal of Physics D: Applied Physics **25** (1), (1992) 57-65.
- [Aden'93] M. Aden, E. W. Kreutz, A. Voss, *Laser-induced plasma formation during pulsed laser deposition*, Journal of Physics D: Applied Physics **26**, (1993) 1545-1553.
- [Aden'96] M. Aden, E. W. Kreutz, *Material removal and plasma dynamics during pulsed laser deposition by excimer and CO₂ laser radiation*, Applied Surface Science **96-98**, (1996) 39-44.
- [Aghaei'08] M. Aghaei, S. Mehrabian, S. H. Tavassoli, *Simulation of nanosecond pulsed laser ablation of copper samples: A focus on laser induced plasma radiation*, Journal of Applied Physics **104**, (2008) 053303.
- [Aguilera'98] J. A. Aguilera, C. Aragon, F. Penalba, *Plasma shielding effect in laser ablation of metallic samples and its influence on LIBS analysis*, Applied Surface Science **127-129** (1998) 309-314.
- [Aguilera'99] J. A. Aguilera, C. Aragon, *A comparison of the temperatures and electron densities of laser-produced plasmas obtained in air, argon and helium at atmospheric pressure*, Applied Physics A: Materials Science & Processing **69** (1999) S475-S478.
- [Aguilera'02] J. A. Aguilera, C. Aragon, *Temperature and electron density distributions of laser-induced plasmas generated with an iron sample at different ambient gas pressures*, Applied Surface Science **197-198** (2002) 273-280.

- [Aguilera'03a] J. A. Aguilera, C. Aragon, J. Bengoechea, *Spatial characterisation of laser-induced plasmas by deconvolution of spatially resolved spectra*, Applied Optics **42** (2003) 5938-5946.
- [Aguilera'03b] J. A. Aguilera, J. Bengoechea, C. Aragon, *Curves of growth of spectral lines emitted by a laser-induced plasma: influence of the temporal evolution and spatial inhomogeneity of the plasma*, Spectrochimica Acta Part B **58** (2003) 221-237.
- [Aguilera'04a] J. A. Aguilera, J. Bengoechea, C. Aragon, *Spatial characterisation of laser induced plasmas obtained in air and argon with different laser focusing distances*, Spectrochimica Acta Part B **59** (2004) 461-469.
- [Aguilera'04b] J. A. Aguilera, C. Aragon, *Characterisation of a laser-induced plasma by spatially resolved spectroscopy of neutral atom and ion emissions. Comparison of local and spatially integrated measurements*, Spectrochimica Acta Part B **59** (2004) 1861-1876.
- [Akashev'01] L. A. Akashev, V. I. Kononenko, *Optical properties of liquid aluminium and Al-Ce alloy*, High Temperature **39** (2001) 384-387.
- [Amoruso'98] S. Amoruso, M. Armenante, V. Berardi, R. Bruzzese, R. Velotta, X. Wang, *High fluence visible and ultraviolet laser ablation of metallic targets*, Applied Surface Science **127-129** (1998) 1017-1022.
- [Amoruso'99a] S. Amoruso, R. Bruzzese, N. Spinelli, R. Velotta, *Characterisation of laser-ablation plasmas*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **32** (1999) R131-R172.
- [Amoruso'99b] S. Amoruso, *Modeling of UV pulsed-laser ablation of metallic targets*, Applied Physics A **69**, (1999) 323-332.
- [Amoruso'04] S. Amoruso, B. Toftmann, J. Schou, R. Velotta, X. Wang, *Diagnostics of laser ablated plasma plumes*, Thin Solid Films **453-454** (2004) 562-572.
- [Amoruso'07] S. Amoruso, A. Sambri and X. Wang, *Plume expansion dynamics during laser ablation of manganates in oxygen atmosphere*, Applied Surface Science **253** (2007) 7696-7701.
- [Andor] Andor Technology : Manuel de référence de la camera ICCD
- [Andreic'93] Z. Andreic, V. Henc-Bartolic, H. J. Kunze, *Dynamics of aluminium plasma produced by a nitrogen laser*, Physics Scripta **48** (1993) 331-339.

- [Anisimov'68] S. I. Anisimov, Soviet Physics JETP **27**, (1968) 182.
- [Anisimov'93] S. I. Anisimov, D. Bauerle, B. S. Luk'yanchuk, *Gas dynamics and film profiles in pulsed-laser deposition of materials*, Physical Review B **48** (16), (1993) 12076-12081.
- [Aragon'02] C. Aragon, V. Madurga, J. A. Aguilera, *Application of laser-induced breakdown spectroscopy to the analysis of the composition of thin films produced by pulsed laser deposition*, Applied Surface Science **197-198** (2002) 217-223.
- [Aragon'04] C. Aragon, F. Penalba, J. A. Aguilera, *Spatial characterisation of laser-induced plasmas: distributions of neutral atom and ion densities*, Applied Physics A: Materials Science & Processing **79** (2004) 1145-1148.
- [Aragon'05] C. Aragon, F. Penalba, J. A. Aguilera, *Curves of growth of neutral atom and ion lines emitted by a laser induced plasma*, Spectrochimica Acta Part B **60** (2005) 879-887.
- [Aragon'08] C. Aragon, J. A. Aguilera, *Characterization of laser induced plasmas by optical emission spectroscopy: A review of experiments and methods*, Spectrochimica Acta Part B **63** (2008) 893-916.
- [Arnold'99] N. Arnold, J. Gruber, J. Heitz, *Spherical expansion of the vapour plume into ambient gas: an analytical model*, Applied Physics A **69**, (1999) S87-S93.
- [ASM'93a] J. R. Davis (ed.), *ASM Specialty Handbook: Aluminium and Aluminium Alloys*, (ASM International, Materials Park USA, 1993).
- [ASM'93b] J. R. Davis (ed.), *ASM Specialty Handbook: Titanium and Titanium Alloys*, (ASM International, Materials Park USA, 1993).
- [Barthélemy'05a] O. Barthélemy, J. Margot, M. Chaker, M. Sabsabi, F. Vidal, T. W. Johnston, S. Laville, B. Le Drogoff, *Influence of the laser parameters on the space and time characteristics of an aluminium laser-induced plasma*, Spectrochimica Acta Part B **60** (2005) 905-914.
- [Barthélemy'05b] O. Barthélemy, J. Margot and M. Chaker, *Characterization of the expansion of an aluminium laser-induced plasma in ambient air by fast photography*, IEEE Transactions on Plasma Science **33** (2005) 476-477.

- [Bäuerle'00] D. Bäuerle, *Laser Processing and Chemistry*, (Springer-Verlag, Berlin, 2000).
- [Becker'98] M. F. Becker, J. R. Brock, H. Cai, D. E. Henneke, J. W. Keto, J. Lee, W. T. Nichols, H. D. Glicksman, *Metal nanoparticles generated by laser ablation*, *Nanostructured Materials* **10**, (1998) 853-863.
- [Becker'02] J. S. Becker, *Applications of inductively coupled plasma mass spectrometry and laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry in materials science*, *Spectrochimica Acta Part B* **57**, (2002) 1805-1820.
- [Bengoechea'06] J. Bengoechea, J. A. Aguilera, C. Aragon, *Application of laser-induced plasma spectroscopy to the measurement of Stark broadening parameters*, *Spectrochimica Acta Part B* **61** (2006) 69-80.
- [Bittencourt'04] J. A. Bittencourt, *Fundamentals of Plasma Physics*, (Springer-Verlag, New York, 2004).
- [Bogaerts'03] A. Bogaerts, Z. Chen, R. Gijbels, A. Vertes, *Laser ablation for analytical sampling: what can we learn from modelling?*, *Spectrochimica Acta Part B* **58**, (2003) 1867-1893.
- [Bogaerts'05] A. Bogaerts, Z. Chen, *Effect of laser parameters on laser ablation and laser-induced plasma formation: A numerical modelling investigation*, *Spectrochimica Acta Part B* **60**, (2005) 1280-1307.
- [Borchert'05] H. Borchert, K. Darée and M. Hugenschmidt, *Plasma formation during the interaction of picosecond and nanosecond laser pulses with BK7 glass*, *Journal of Physics D: Applied Physics* **38** (2005) 300-305.
- [Bordatchev'07] E. V. Bordatchev, Y. Lai, S. K. Nikumb, *Comparative analysis of microactuators fabricated by femtosecond and nanosecond laser micromachining*, *Journal of Physics: Conference Series* **59**, (2007) 700-703.
- [Bulgakov'95] A. V. Bulgakov, N. M. Bulgakova, *Dynamics of laser-induced plume expansion into an ambient gas during film deposition*, *Journal of Physics D: Applied Physics* **28**, (1995) 1710-1718.
- [Bulgakov'98] A. V. Bulgakov and N. M. Bulgakova, *Gas-dynamic effects of the interaction between a pulsed-laser ablation plume and the ambient gas: analogy with an underexpanded jet*, *Journal of Physics D: Applied Physics* **31**, (1998) 693-703.

- [Burakov'07] V. S. Burakov, S. N. Raikov, *Quantitative analysis of alloys and glasses by a calibration-free method using laser-induced breakdown spectroscopy*, Spectrochimica Acta Part B **62**, (2007) 217-223.
- [Buzas'08] A. Buzas, L. Egerhazi, Zs. Geretovszky, *High repetition rate PLD grown titanium oxide thin films*, Journal of Physics D: Applied Physics **41**, (2008) 085205 (6pp).
- [Cabalin'98] L. M. Cabalin, J. J. Laserna, *Experimental determination of laser induced breakdown thresholds of metals under nanosecond Q-switched laser operation*, Spectrochimica Acta Part B **53**, (1998) 723-730.
- [Capitelli'02] F. Capitelli, F. Colao, M. R. Provenzano, R. Fantoni, G. Brunetti, N. Senesi, *Determination of heavy metals in soils by Laser Induced Breakdown Spectroscopy*, Geoderma **106**, (2002) 45-62.
- [Capitelli'04] M. Capitelli, A. Casavola, G. Colonna, A. De Giacomo, *Laser-induced plasma expansion: theoretical and experimental aspects*, Spectrochimica Acta Part B **59** (2004) 271-289.
- [Cappelli'07] E. Cappelli, S. Orlando, M. Servidori, C. Scilletta, *Nano-graphene structures deposited by N-IR pulsed laser ablation of graphite on Si*, Applied Surface Science **254**, (2007) 1273-1278.
- [Casavola'03a] A. Casavola, G. Colonna, A. De Giacomo and M. Capitelli, *Laser ablation of titanium metallic targets : Comparison between theory and experiment*, Journal of Thermophysics and Heat Transfer **17** (2), (2003) 225-231.
- [Casavola'03b] A. R. Casavola, G. Colonna, A. De Giacomo, O. De Pascale, M. Capitelli, *Experimental and theoretical investigation of laser-induced plasma of a titanium target*, Applied Optics **42** (30), (2003) 5963-5970.
- [Casavola'03c] A. Casavola, G. Colonna, M. Capitelli, *Non-equilibrium conditions during a laser induced plasma expansion*, Applied Surface Science **208-209**, (2003) 85-89.
- [Casavola'09] A. R. Casavola, G. Colonna, M. Capitelli, *Kinetic model of titanium laser induced plasma expansion in nitrogen environment*, Plasma Sources Science Technology **18**, (2009) 025027 (8pp).
- [Chen'96] K. R. Chen, J. N. Leboeuf, R. F. Wood, D. B. Geohegan, J. M. Donato, C. L. Liu, A. A. Puretzky, *Laser-solid interaction and dynamics of laser-ablated materials*, Applied Surface Science **96-98**, (1996) 45-49.

- [Chen'00] Y. L. Chen, J. W. L. Lewis, C. Parigger, *Spatial and temporal profiles of pulsed laser-induced air plasma emissions*, Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer **67**, (2000) 91-103.
- [Chen'05] Z. Chen, A. Bogaerts, *Laser ablation of Cu and plume expansion into 1 atm ambient gas*, Journal of Applied Physics **97**, (2005) 063305.
- [Cibert'08] C. Cibert, H. Hidalgo, C. Champeaux, P. Tristant, C. Tixier, J. Desmaison, A. Catherinot, *Properties of aluminium oxide thin films deposited by pulsed laser deposition and plasma enhanced chemical vapor deposition*, Thin Solid Films **516**, (2008) 1290-1296.
- [Colombelli'05] J. Colombelli, E. G. Reynaud, E. H. K. Stelzer, *Subcellular nanosurgery with a pulsed subnanosecond UV-A laser*, Medical Laser Application **20**, (2005) 217-222.
- [Colonna'01] G. Colonna, A. Casavola, M. Capitelli, *Modelling of LIBS plasma expansion*, Spectrochimica Acta Part B **56**, (2001) 567-586.
- [COMSOL 3.5a] COMSOL Multiphysics, version 3.5a : Manuel de référence
- [Conesa'04] S. Conesa, S. Palanco and J. J. Laserna, *Acoustic and optical emission during laser-induced plasma formation*, Spectrochimica Acta Part B **59** (2004) 1395-1401.
- [Corsi'04] M. Corsi, G. Cristoforetti, M. Giuffrida, M. Hidalgo, S. Legnaioli, V. Palleschi, A. Salvetti, E. Tognoni, C. Vallebona, *Three-dimensional analysis of laser induced plasmas in single and double pulse configuration*, Spectrochimica Acta Part B **59** (2004) 723-735.
- [Cowpe'08] J. S. Cowpe, J. S. Astin, R. D. Pilkington, A. E. Hill, *Temporally resolved laser induced plasma diagnostics of single crystal silicon – Effects of ambient pressure*, Spectrochimica Acta Part B **63** (2008) 1066-1071.
- [CRC'89] R. C. Weast (ed.), *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, (CRC Press, Boca Raton Florida, 1989).
- [DeGiacomo'01a] A. De Giacomo, V. A. Shakhmatov, O. De Pascale, *Optical emission spectroscopy and modeling of plasma produced by laser ablation of titanium oxides*, Spectrochimica Acta Part B **56** (2001) 753-776.
- [DeGiacomo'01b] A. De Giacomo, V. A. Shakhmatov, G. S. Senesi, S. Orlando, *Spectroscopic investigation of the technique of plasma assisted pulsed*

- laser deposition of titanium dioxide*, Spectrochimica Acta Part B **56** (2001) 1459-1472.
- [DeGiacomo'03] A. De Giacomo, *Experimental characterisation of metallic titanium laser induced plasma by time and space resolved optical emission spectroscopy*, Spectrochimica Acta Part B **58** (2003) 71-83.
- [DeGiacomo'05] A. De Giacomo, M. Dell'Aglio, A. Santagata, R. Teghil, *Early stage emission spectroscopy study of metallic titanium plasma induced in air by femtosecond- and nanosecond-laser pulses*, Spectrochimica Acta Part B **60** (2005) 935-947.
- [DeGiacomo'08] A. De Giacomo, M. Dell'Aglio, R. Gaudiuso, G. Cristoforetti, S. Legnaioli, V. Palleschi, E. Tognoni, *Spatial distribution of hydrogen and other emitters in aluminium laser-induced plasma in air and consequences on spatially integrated Laser-Induced Breakdown Spectroscopy measurements*, Spectrochimica Acta Part B **63** (2008) 980-987.
- [DeGiorgi'94] M. L. De Giorgi, J. Hermann, A. Luches, A. Perrone, L. Renna, *Spectroscopic studies of XeCl-laser-induced plasma on Ti targets in nitrogen containing atmospheres*, Applied Physics A: Materials Science & Processing **58** (1994) 595-599.
- [Donnelly'07] T. Donnelly, S. Krishnamurthy, K. Carney, N. McEvoy, J. G. Lunney, *Pulsed laser deposition of nanoparticle films of Au*, Applied Surface Science **254**, (2007) 1303-1306.
- [Dubey'08] A. Kr. Dubey, V. Yadava, *Experimental study of Nd:YAG laser beam machining – An overview*, Journal of Materials Processing Technology **195**, (2008) 15-26.
- [Dumitru'05] G. Dumitru, B. Luscher, M. Krack, S. Bruneau, J. Hermann, Y. Gerbig, *Laser processing of hardmetals: Physical basics and applications*, International Journal of Refractory Metals and Hard Materials **23**, (2005) 278-286.
- [Eason'09] R. W. Eason, T. C. May-Smith, C. Grivas, M. S. B. Darby, D. P. Shepherd, R. Gazia, *Current state-of-the-art of pulsed laser deposition of optical waveguide structures: Existing capabilities and future trends*, Applied Surface Science **255**, (2009), 5199-5205.

- [Etsion'05] I. Etsion, *State of the art in laser surface texturing*, Journal of Tribology **127**, (2005) 248-253.
- [Fabbro'90] R. Fabbro, J. Fournier, P. Ballard, D. Devaux, J. Virmont, *Physical study of laser-produced plasma in confined geometry*, Journal of Applied Physics **68**, (1990) 775-784.
- [Fang'08] R. Fang, D. Zhang, Z. Li, F. Yang, L. Li, X. Tan, M. Sun, *Improved thermal model and its application in UV high-power pulsed laser ablation of metal target*, Solid State Communications **145**, (2008) 556-560.
- [Fantoni'08] R. Fantoni, L. Caneve, F. Colao, L. Fornarini, V. Lazic, V. Spizzichino, *Methodologies for laboratory Laser Induced Breakdown Spectroscopy semi-quantitative and quantitative analysis – A review*, Spectrochimica Acta Part B **63**, (2008) 1097-1108.
- [Fichet'01] P. Fichet, P. Mauchien, J. F. Wagner, C. Moulin, *Quantitative elemental determination in water and oil by laser induced breakdown spectroscopy*, Analytica Chimica Acta **429**, (2001) 269-278.
- [Focsa'09] C. Focsa, P. Nemec, M. Ziskind, C. Ursu, S. Gurlui, V. Nazabal, *Laser ablation of As_xSe_{100-x} chalcogenide glasses: plume investigations*, Applied Surface Science **255** (2009) 5307-5311.
- [Garrelie'98] F. Garrelie, J. Aubreton, A. Catherinot, *Monte Carlo simulation of the laser-induced plasma plume expansion under vacuum: Comparison with experiments*, Journal of Applied Physics **83**, (1998) 5075-5082.
- [Garrelie'99] F. Garrelie, C. Champeaux, A. Catherinot, *Expansion dynamics of the plasma plume created by laser ablation in a background gas*, Applied Physics A **69**, (1999) S55-S58.
- [Gravel'09] J. F. Y. Gravel, D. Boudreau, *Study by focused shadowgraphy of the effect of laser irradiance on laser-induced plasma formation and ablation rate in various gases*, Spectrochimica Acta, Part B **64** (2009) 56-66.
- [Griem'64] H. R. Griem, *Plasma Spectroscopy*, (McGraw-Hill, New York, 1964).
- [Griem'74] H. R. Griem, *Spectral Line Broadening by Plasmas*, (Academic Press, New York, 1974).
- [Griem'97] H. R. Griem, *Principles of Plasma Spectroscopy*, (Cambridge University Press, Cambridge, 1997).

- [Gurlui'08] S. Gurlui, M. Agop, P. Nica, M. Ziskind and C. Focsa, *Experimental and theoretical investigation of a laser-produced aluminium plasma*, Physical Review E **78**, 026405 (2008).
- [Gusarov'00a] A. V. Gusarov, A. G. Gnedovets, I. Smurov, *Two-dimensional gas-dynamic model of laser ablation in an ambient gas*, Applied Surface Science **154-155**, (2000) 66-72.
- [Gusarov'00b] A. V. Gusarov, A. G. Gnedovets, I. Smurov, *Gas dynamics of laser ablation: influence of ambient atmosphere*, Journal of Applied Physics **88** (7), (2000) 4352-4364.
- [Gusarov'05] A. V. Gusarov, I. Smurov, *Thermal model of nanosecond pulsed laser radiation: Analysis of energy and mass transfer*, Journal of Applied Physics **97**, (2005) 014307.
- [Harilal'02] S. S. Harilal, C. V. Bindhu, M. S. Tillack, F. Najmabadi and A. C. Gaeris, *Plume splitting and sharpening in laser-produced aluminium plasma*, Journal of Physics D: Applied Physics **35** (2002) 2935-2938.
- [Harilal'03] S. S. Harilal, C. V. Bindhu, M. S. Tillack, F. Najmabadi and A. C. Gaeris, *Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases*, Journal of Applied Physics **93** (2003) 2380-2388.
- [Harilal'04] S. S. Harilal, M. S. Tillack, *Laser Plasma Density Measurements using Interferometry*, rapport UCSD-ENG-114, Center for Energy Research, University of California, San Diego, 2004.
- [Hauer'05] M. Hauer, D. J. Funk, T. Lippert and A. Wokaun, *Time resolved techniques as probes for the laser ablation process*, Optics and Lasers in Engineering **43** (2005) 545-556.
- [Hermann'95] J. Hermann, A. L. Thomann, C. Boulmer-Leborgne, B. Dubreuil, *Plasma diagnostics in pulsed laser TiN layer deposition*, Journal of Applied Physics **77** (1995) 2928-2936.
- [Hermann'98a] J. Hermann, C. Boulmer-Leborgne, D. Hong, *Diagnostics of the early phase of an ultraviolet laser induced plasma by spectral line analysis considering self-absorption*, Journal of Applied Physics **83** (1998) 691-696.

- [Hermann'98b] J. Hermann, C. Vivien, A. P. Carricato, C. Boulmer-Leborgne, *A spectroscopic study of laser ablation plasmas from Ti, Al and C targets*, Applied Surface Science **127-129** (1998) 645-649.
- [Ho'95] J. R. Ho, C. P. Grigoropoulos, J. A. C. Humphrey, *Computational study of heat transfer and gas dynamics in the pulsed laser evaporation of metals*, Journal of Applied Physics **78** (7), (1995) 4696-4709.
- [Ho'96] J. R. Ho, C. P. Grigoropoulos, J. A. C. Humphrey, *Gas dynamics and radiation heat transfer in the vapor plume produced by pulsed laser irradiation of aluminium*, Journal of Applied Physics **79** (9), (1996) 7205-7215.
- [Hutchinson'02] I. H. Hutchinson, *Principles of Plasma Diagnostics*, (Cambridge University Press, Cambridge, 2002).
- [Iida'88] T. Iida and R. I. L. Guthrie, *The Physical Properties of Liquid Metals*, (Clarendon Press, Oxford, 1988).
- [Ilyin'08] A. A. Ilyin, O. A. Bukin, A. V. Bulanov, *Regimes of laser plasma expansion at optical breakdown in the normal atmosphere*, Technical Physics **53**, (2008) 693-696.
- [Itina'97] T. E. Itina, W. Marine, M. Autric, *Monte Carlo simulation of pulsed laser ablation from two-component target into diluted ambient gas*, Journal of Applied Physics **82**, (1997) 3536-3542.
- [Itina'02] T. E. Itina, J. Hermann, P. Delaporte, M. Sentis, *Laser-generated plasma plume expansion: Combined continuous-microscopic modelling*, Physical Review E **66**, (2002) 066406 (12pp).
- [Itina'03] T. E. Itina, J. Hermann, Ph. Delaporte, M. Sentis, *Combined continuous-microscopic modelling of laser plume expansion*, Applied Surface Science **208-209**, (2003) 27-32.
- [Jandeleit'98] J. Jandeleit, A. Horn, R. Weichenhain, E. W. Kreutz, R. Poprawe, *Fundamental investigations of micromachining by nano- and picosecond laser radiation*, Applied Surface Science **127-129**, (1998) 885-891.
- [Jeong'98] S. H. Jeong, R. Greif, R. E. Russo, *Numerical modeling of pulsed laser evaporation of aluminium targets*, Applied Surface Science **127-129**, (1998) 177-183.

- [Kelly'90] R. Kelly, *On the dual role of the Knudsen layer and unsteady, adiabatic expansion in pulse sputtering phenomena*, The Journal of Chemical Physics **92** (8), (1990) 5047-5056.
- [Kelly'92] R. Kelly, *Gas dynamics of the pulsed emission of a perfect gas with applications to laser sputtering and to nozzle expansion*, Physical Review A **46** (2), (1992) 860-875.
- [Kelly'96] R. Kelly, A. Miotello, *Comments on explosive mechanisms of laser sputtering*, Applied Surface Science **96-98** (1996) 205-215.
- [Knight'79] C. J. Knight, *Theoretical Modeling of Rapid Surface Vaporization with Back Pressure*, American Institute of Aeronautics and Astronautics Journal **17** (5), (1979) 519-523.
- [Knight'00] A. K. Knight, N. L. Scherbarth, D. A. Cremers, M. J. Ferris, *Characterization of laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS) for applications to space exploration*, Applied Spectroscopy **54**, (2000) 331-340.
- [Kools'92] J. C. S. Kools, T. S. Baller, S. T. De Zwart and J. Dieleman, *Gas flow dynamics in laser ablation deposition*, Journal of Applied Physics **71** (9), (1992) 4547-4556.
- [Laville'04] S. Laville, F. Vidal, T. W. Johnston, M. Chaker, B. Le Droff, O. Barthelemy, J. Margot, M. Sabsabi, *Modeling the time evolution of laser-induced plasmas for various pulse durations and fluences*, Physics of Plasmas **11** (5), (2004) 2182-2190.
- [Le'00] H. C. Le, D. E. Zeitoun, J. D. Parisse, M. Sentis, W. Marine, *Modeling of gas dynamics for a laser-generated plasma: propagation into low-pressure gases*, Physical Review E **62** (3), (2000) 4152-4161.
- [Leboeuf'96] J. N. Leboeuf, K. R. Chen, J. M. Donato, D. B. Geohegan, C. L. Liu, A. A. Puretzky, R. F. Wood, *Modeling of dynamical processes in laser ablation*, Applied Surface Science **96-98**, (1996) 14-23.
- [Liu'08] M. Liu, B. Y. Man, X. C. Lin, X. Y. Li, *Effects of pressure on pulsed laser deposition of HgCdTe films*, Materials Chemistry and Physics **108**, (2008) 274-277.
- [Lovetsky'75] E. E. Lovetsky, A. N. Polianitshev and V. S. Fetisov, Soviet Journal of Plasma Physics **1**, (1975) 422.

- [Luke'03] J. R. Luke, C. R. Phipps, G. G. McDuff, *Laser plasma thruster*, Applied Physics A **77**, (2003) 343-348.
- [Mao'97] X. Mao, R. E. Russo, *Observation of plasma shielding by measuring transmitted and reflected laser pulse temporal profiles*, Applied Physics A: Materials Science & Processing **64** (1997) 1-6.
- [Mao'98] S. S. Mao, X. L. Mao, R. Greif, R. E. Russo, *Simulation of infrared picosecond laser-induced electron emission from semiconductors*, Applied Surface Science **127-129**, (1998) 206-211.
- [Mao'07] X. Mao, S. Wen and R. E. Russo, *Time resolved laser-induced plasma dynamics*, Applied Surface Science **253** (2007) 6316-6321.
- [Mathew'07] M. V. Mathew, S. S. Harilal, M. S. Tillack, *Emission characteristics and dynamics of neutral species in a laser-produced tin plasma*, Journal of Physics D: Applied Physics **40** (2007) 447-452.
- [Mazhukin'96] V. I. Mazhukin, I. Smurov, G. Flamant, *2D-simulation of the system: laser beam + laser plasma + target*, Applied Surface Science **96-98**, (1996) 89-96.
- [Mazhukin'02] V. I. Mazhukin, V. V. Nossov, G. Flamant, I. Smurov, *Modeling of radiation transfer and emission spectra in laser-induced plasma of Al vapour*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **73**, (2002) 451-460.
- [Mazhukin'04] V. I. Mazhukin, V. V. Nossov, I. Smurov, G. Flamant, *Modelling of radiation transfer in low temperature nanosecond laser-induced plasma of Al vapour*, Journal of Physics D: Applied Physics **37**, (2004) 185-199.
- [McWhirter'65] R. W. P. McWhirter, *Spectral Intensities*, in: R. H. Huddleston, S. L. Leonard (Eds.), *Plasma Diagnostic Techniques*, (Academic Press, New York, 1965).
- [Milic'77] B. Milic, *Osnove fizike gasne plazme (Bases de la physique du plasma)*, (Naučna knjiga, Beograd, 1977) – en serbe.
- [Molpeceres'05] C. Molpeceres, S. Lauzurica, J. L. Ocana, J. J. Gandia, L. Urbina, J. Carabe, *Microprocessing of ITO and a-Si thin films using ns laser sources*, Journal of Micromechanics and Microengineering **15**, (2005) 1271-1278.

- [Monge'99] E. M. Monge, C. Aragon, J. A. Aguilera, *Space- and time-resolved measurements of temperatures and electron densities of plasmas formed during laser ablation of metallic samples*, Applied Physics A: Materials Science & Processing **69** (1999) S691-S694.
- [Mukherjee'06] D. Mukherjee, A. Rai, M. R. Zachariah, *Quantitative laser-induced breakdown spectroscopy for aerosols via internal calibration: Application to the oxidative coating of aluminium nanoparticles*, Aerosol Science **37**, (2006) 677-695.
- [Nwaejike'09] N. Nwaejike, P. D. Srodon, C. Kyriakides, *Endovenous laser ablation for short saphenous vein incompetence*, Annals of Vascular Surgery **23**, (2009) 39-42.
- [Ou'08a] Q. Ou, K. Shinji, A. Ogino, M. Nagatsu, *Enhanced photoluminescence of nitrogen-doped ZnO nanoparticles fabricated by Nd :YAG laser ablation*, Journal of Physics D: Applied Physics **41**, (2008) 205104 (5pp).
- [Ou'08b] Q. Ou, T. Tanaka, M. Mesko, A. Ogino, M. Nagatsu, *Characteristics of graphene-layer encapsulated nanoparticles fabricated using laser ablation method*, Diamond & Related Materials **17**, (2008) 664-668.
- [Peterlongo'94] A. Peterlongo, A. Miotello and R. Kelly, *Laser-pulse sputtering of aluminium: Vaporization, boiling, superheating and gas-dynamic effects*, Physical Review E **50** (6), (1994) 4716-4727.
- [Quantel] Quantel : Manuel de référence du laser Brilliant b
- [Radziemski'02] L. J. Radziemski, *From LASER to LIBS, the path of technology development*, Spectrochimica Acta Part B **57**, (2002) 1109-1113.
- [Raizer'65] Yu. P. Raizer, *Heating of a gas by a powerful light pulse*, Soviet Physics JETP **21**, (1965) 1009-1017.
- [Root'89] R. G. Root, in *Laser-Induced Plasmas and Applications*, ed. L. J. Radziemski and D. A. Cremers (Marcel Dekker, New York, 1989).
- [Rozman'08] R. Rozman, I. Grabec, E. Govekar, *Influence of absorption mechanisms on laser-induced plasma plume*, Applied Surface Science **254**, (2008) 3295-3305.
- [Sabsabi'95] M. Sabsabi, P. Cielo, *Quantitative analysis of aluminium alloys by laser-induced breakdown spectroscopy and plasma characterisation*, Applied Spectroscopy **49** (1995) 499-507.

- [Salle'05] B. Salle, D. A. Cremers, S. Maurice, R. C. Wiens, *Laser-induced breakdown spectroscopy for space exploration applications: Influence of the ambient pressure on the calibration curves prepared from soil and clay samples*, Spectrochimica Acta Part B **60**, (2005) 479-490.
- [Sanginés'08] R. Sanginés and H. Sobral, *Laser resonant absorption photography of pulsed-laser ablation on iron targets*, IEEE Transactions on Plasma Science **36** (2008) 1118-1119.
- [Santagata'05] A. Santagata, A. Di Trollo, G. P. Parisi, R. Larciprete, *Space and time resolved emission spectroscopy of Sr₂FeMoO₆ laser induced plasma*, Applied Surface Science **248** (2005) 19-23.
- [Schittenhelm'98] H. Schittenhelm, G. Callies, P. Berger and H. Hugel, *Two-wavelength interferometry on excimer laser induced vapour/plasma plumes during the laser pulse*, Applied Surface Science **127-129** (1998) 922-927.
- [Serbin'02] J. Serbin, T. Bauer, C. Fallnich, A. Kasenbacher, W. H. Arnold, *Femtosecond lasers as novel tool in dental surgery*, Applied Surface Science **197-198**, (2002) 737-740.
- [Tao'06] Y. Tao, M. S. Tillack, S. S. Harilal, K. L. Sequoia, B. O'Shay and F. Najmabadi, *Effect of shockwave-induced density jump on laser plasma interactions in low-pressure ambient air*, Journal of Physics D: Applied Physics **39** (2006) 4027-4030.
- [Thorne'99] A. Thorne, U. Litzen and S. Johansson, *Spectrophysics: Principles and Applications*, (Springer-Verlag, Berlin, 1999).
- [Varga'08] Z. Varga, *Application of laser ablation inductively coupled plasma mass spectrometry for the isotopic analysis of single uranium particles*, Analytica Chimica Acta **625**, (2008) 1-7.
- [Vertes'94] A. Vertes, R. W. Dreyfus, D. E. Platt, *Modeling the thermal-to-plasma transitions for Cu photoablation*, IBM Journal of Research and Development **38** (1), (1994) 3-10.
- [Vijayalakshmi'98] S. Vijayalakshmi, M. A. George, J. Sturmann, H. Grebel, *Pulsed laser deposition of Si nanoclusters*, Applied Surface Science **127-129**, (1998) 378-382.
- [Viskup'09] R. Viskup, B. Praher, T. Stehrer, J. Jasik, H. Wolfmeir, E. Arenholz, J. D. Pedarnig and J. Heitz, *Plasma plume photography and spectroscopy of Fe-oxide materials*, Applied Surface Science **255** (2009) 5215-5219.

- [Vogel'03] A. Vogel, V. Venugopalan, *Mechanisms of pulsed laser ablation of biological tissues*, Chemical Reviews **103**, (2003) 577-644.
- [VonAllmen'87] M. Von Allmen, *Laser Beam Interactions with Materials*, (Springer, Heidelberg, 1987).
- [Wang'96] X. T. Wang, B. Y. Man, G. T. Wang, Z. Zhao, Y. Liao, B. Z. Xu, Y. Y. Xia, L. M. Mei, X. Y. Hu, *Optical spectroscopy of plasma produced by laser ablation of Ti alloy in air*, Journal of Applied Physics **80** (1996) 1783-1786.
- [Wang'98] X. Wang, B. Man, *Laser-induced plasma on the surface of aluminium target in air*, Journal of the Korean Physical Society **32** (1998) 373-379.
- [Wellershoff'99] S. S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Gdde, E. Matthias, *The role of electron-phonon coupling in femtosecond laser damage of metals*, Applied Physics A **69**, (1999) S99-S107.
- [Wikipdia] Wikipdia - Physique des plasmas :
http://fr.wikipedia.org/wiki/Physique_des_plasmas
- [Willmott'00] P. R. Willmott, J. R. Huber, *Pulsed laser vaporization and deposition*, Reviews of Modern Physics **72** (1), (2000) 315-328.
- [Wood'97] R. F. Wood, K. R. Chen, J. N. Leboeuf, A. A. Puretzky and D. B. Geohegan, *Dynamics of plume propagation and splitting during pulsed-laser ablation*, Physical Review Letters **79** (8), (1997) 1571-1574.
- [Wood'98a] R. F. Wood, J. N. Leboeuf, K. R. Chen, D. B. Geohegan, A. A. Puretzky, *Dynamics of plume propagation, splitting and nanoparticle formation during pulsed-laser ablation*, Applied Surface Science **127-129**, (1998) 151-158.
- [Wood'98b] R. F. Wood, J. N. Leboeuf, D. B. Geohegan, A. A. Puretzky and K. R. Chen, *Dynamics of plume propagation and splitting during pulsed-laser ablation of Si in He and Ar*, Physical Review B **58** (3), (1998) 1533-1543.
- [Wu'07] B. Wu, Y. C. Shin, H. Pakhal, N. M. Laurendeau and R. P. Lucht, *Modelling and experimental verification of plasmas induced by high-power nanosecond laser-aluminium interactions in air*, Physical Review E **76**, (2007) 026405.

- [Yamamoto'07] T. Yamamoto, K. Kikunaga, K. Obara, N. Terada, N. Kikuchi, T. Tanaka, K. Tokiwa, T. Watanabe, A. Sundaresan, Shipra, *Deposition of superconducting (Cu,C)-Ba-O films by pulsed laser deposition at moderate temperature*, Superconductor Science and Technology **20**, (2007) S461-S466.
- [Ying'96] Z. C. Ying, R. L. Hettich, R. N. Compton, R. E. Haufler, *Synthesis of nitrogen-doped fullerenes by laser ablation*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **29**, (1996) 4935-4942.
- [Zel'dovich'02] Ya. B. Zel'dovich and Yu. P. Raizer, *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena*, ed. W. D. Hayes and R. F. Probstein (Dover Publications, Mineola NY, 2002).
- [Zhang'01] Z. Zhang, Z. X. Han, G. S. Dulikravich, *Numerical simulation of laser induced plasma during pulsed laser deposition*, Journal of Applied Physics **90** (12), (2001) 5889-5897.
- [Zorba'04] V. Zorba, I. Alexandrou, I. Zergioti, A. Manousaki, C. Ducati, A. Neumeister, C. Fotakis, G. A. J. Amaratunga, *Laser microstructuring of Si surfaces for low-threshold field-electron emission*, Thin Solid Films **453-454**, (2004) 492-495.
- [Zweig'91] A. D. Zweig, *A thermo-mechanical model for laser ablation*, Journal of Applied Physics **70** (3), (1991) 1684-1691.

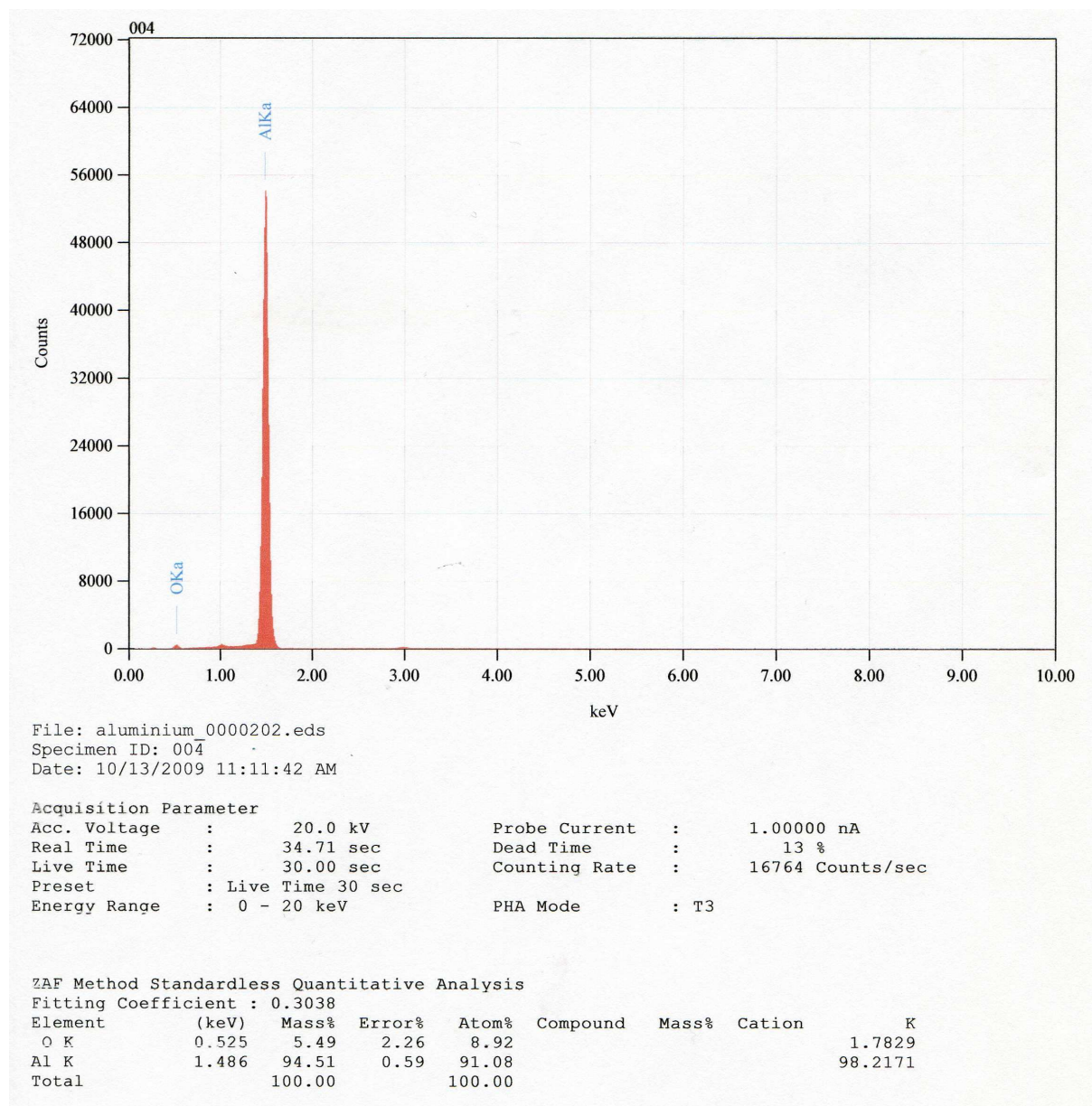
Annexe 1

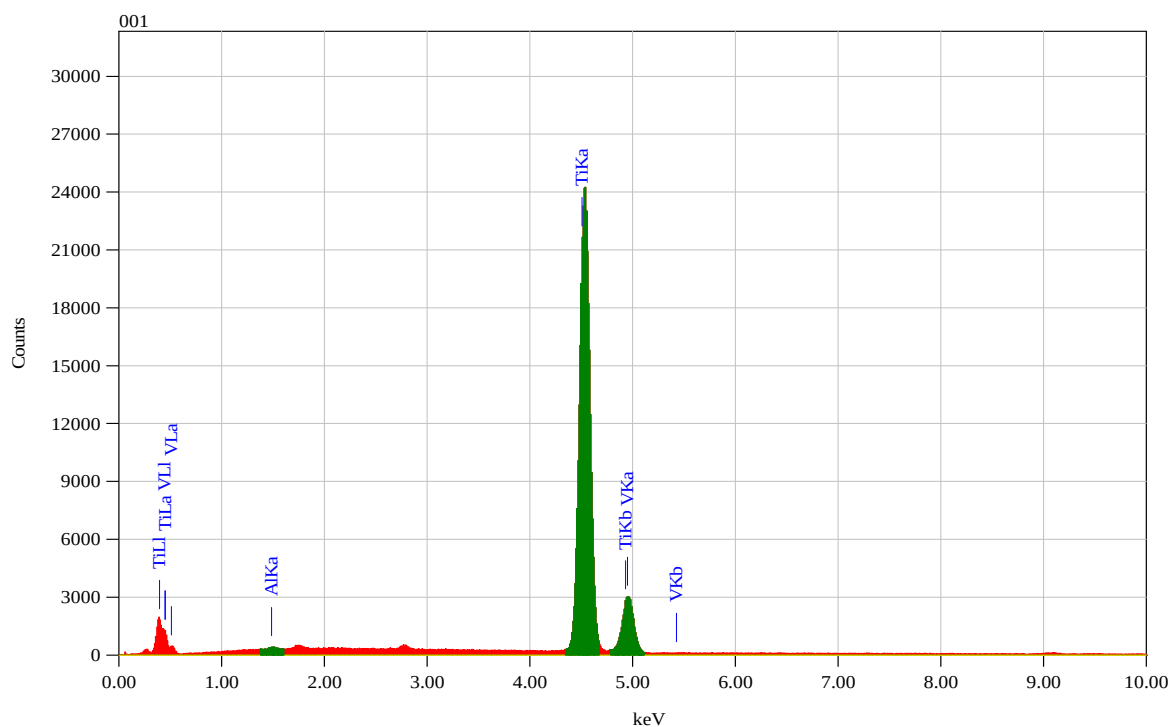
Composition des échantillons métalliques

L'ablation laser des échantillons métalliques a été réalisée dans cette étude, afin d'examiner la structure et la dynamique de la plume du plasma formée lors de ce processus. Nous avons utilisé des échantillons de l'aluminium, du titane (CP4) et du fer (Armco) commercialement purs. La composition de ces échantillons a été vérifiée par MEB (microscopie électronique à balayage).

Les paramètres opératoires du MEB utilisés pour l'analyse, le spectre obtenu et l'estimation des pourcentages des éléments présents dans l'échantillon sont présentés sur les fichiers fournis par la MEB.

Dans les trois cas, on peut remarquer que le pourcentage estimé d'élément dominant (Al, Ti ou Fe) est de environ 95 %.

Echantillons d'aluminium

Echantillons de titane (CP4)

File: View000_0000002
 Specimen ID: 001
 Date: 03/05/2010 13:50:10

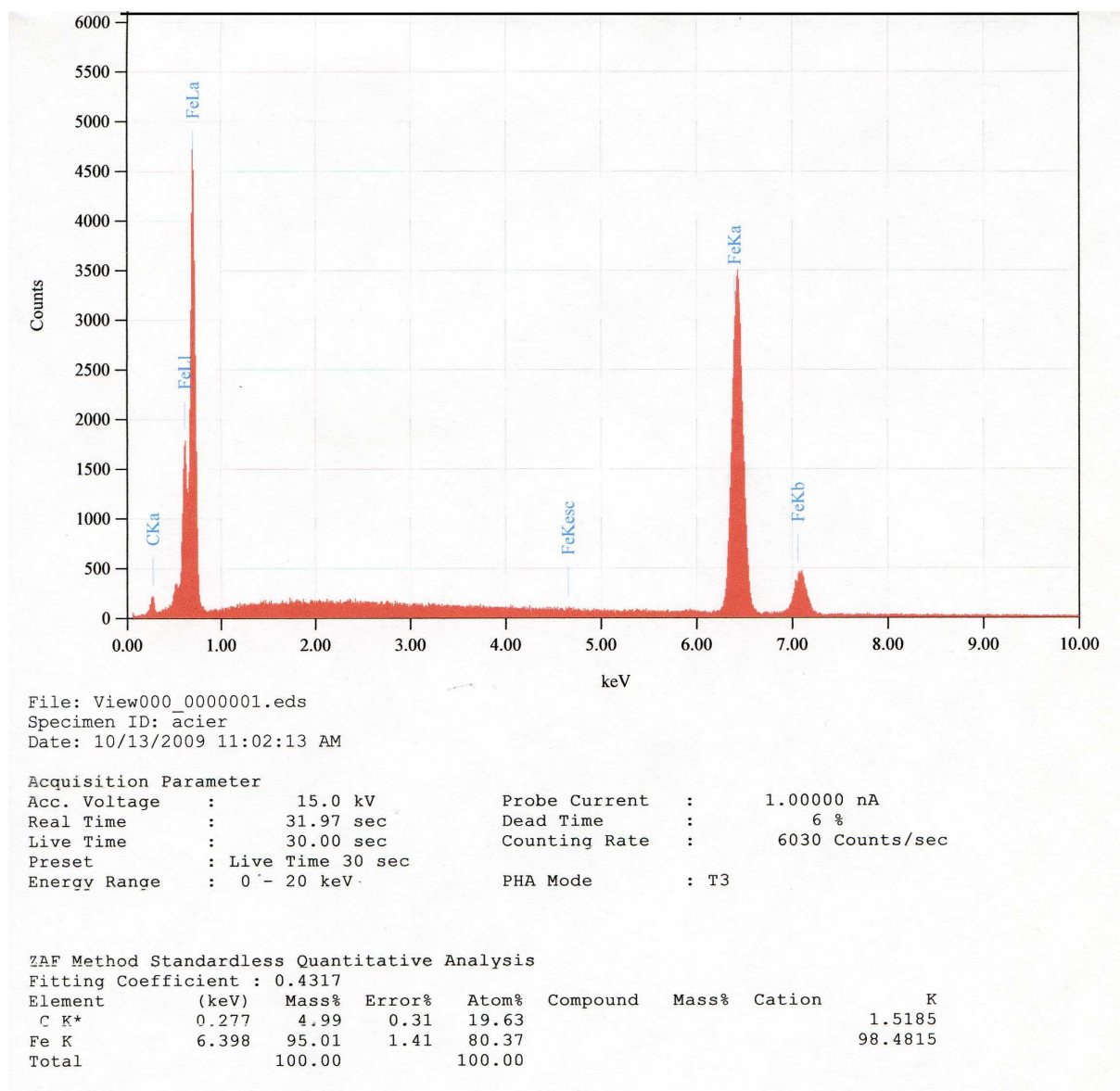
Acquisition Parameter

Acc. Voltage	: 20.0 kV	Probe Current	: 1.00000 nA
Real Time	: 35.20 sec	Dead Time	: 14 %
Live Time	: 30.00 sec	Counting Rate	: 17446 Counts/sec
Preset	: Live Time 30 sec		
Energy Range	: 0 - 20 keV	PHA Mode	: T3

ZAF Method Standardless Quantitative Analysis

Fitting Coefficient : 0.5439

Element	(keV)	Mass%	Error%	Atom%	Compound	Mass%	Cation	K
Al K*	1.486	0.25	0.96	0.44				0.1436
Ti K*	4.508	95.96	1.28	96.00				96.1267
V K*	4.949	3.79	1.55	3.57				3.7298
Total		100.00		100.00				

Echantillons de fer (Armco)

Annexe 2

Caractéristiques de « gater » de la camera ICCD

« Gater » représente l'ensemble de circuits qui fait partie de l'intensificateur d'image et qui gère le temps d'exposition (« gate width ») de la camera ICCD. À cause de la construction électronique dans la camera, le temps d'exposition réel (optique) est à peu près 10 ns plus court que celui du signal TTL appliqué à l'entrée de « gate ». Donc, pour les valeurs de temps d'exposition de l'ordre de la nanoseconde, il faut utiliser le tableau de « gater characteristics » fourni par le fabricant, afin de déterminer le temps d'exposition réel (optique). Dans cette étude, nous avons employé le signal TTL de 15 ns, ce qui correspond à un temps d'exposition réel (optique) de 5.4 ns.


ANDOR

TECHNOLOGY

ICCD PERFORMANCE

Summary of System Test Data

Gating Characteristics

Gate I/P (TTL) (ns)	Optical Gate @ center (ns) ± 10	Intensity (% of CW) ± 11	Optical Gate @ edge (ns) ± 12	Intensity (% of CW)
13	2.6	34.3	2.7	36.4
14	5.5	46.7	5.4	48.8
15	5.4	61.8	5.5	64.3
16	5.4	71.7	5.2	75.4
17	5.6	78.1	5.4	84.1
18	6.1	82.5	6	87.2
19	6.6	84.8	6.5	88.5
20	7.7	83	7.6	87.9
21	8.8	85.2	8.4	88.5
22	9.6	83.3	9.4	89.2
23	10.4	84.1	10.4	89.8
24	11.1	84.8	10.9	89.7
25	11.9	83.9	11.9	87.2
26	13.1	83.2	13.2	87.5
27	14.4	83.5	14.1	89.6
28	15.8	84	15.4	87.7
29	16.9	84.2	16.7	87.8
30	18.4	83.5	17.9	88.4
31	20.5	84.3	20.4	88

Outside this range, subtract ~ **13** ns from the TTL Gate Input to calculate the Optical Gate Width.