

Géneration de rayonnement X par interaction laser-écoulement de poudre

Marina Servol

▶ To cite this version:

Marina Servol. Géneration de rayonnement X par interaction laser-écoulement de poudre. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Paris Sud - Paris XI, 2005. Français. NNT: . tel-00128860

HAL Id: tel-00128860 https://theses.hal.science/tel-00128860

Submitted on 3 Feb 2007

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés. ORSAY N° D'ORDRE : 8051

UNIVERSITE PARIS 11 UFR SCIENTIFIQUE D'ORSAY

THESE Spécialité : Physique

présentée pour l'obtention de grade de DOCTEUR EN SCIENCES de L'UNIVERSITE PARIS 11, ORSAY

Par Marina Servol

Sujet de la thèse :

Génération de rayonnement X par interaction laser-écoulement de poudre

Soutenue le 3 novembre 2005 devant le jury composée de :

Brigitte Cros

Jean-Claude Kieffer

Patrick Audebert

Fabien Dorchies

Jacques Dubau

Pascal Monot

Directeur de thèse Examinateur Président

Rapporteur

Rapporteur

Tuteur CEA

Remerciements

Le travail décrit dans ce manuscrit a été réalisé grâce à l'aide constante et au soutien de nombreuses personnes. Je tiens ici à les en remercier. Ma reconnaissance va tout d'abord à Didier Normand qui m'a accueillie au Service des Photons, Atomes et Molécules pendant ces trois années et m'a ainsi permis de réaliser ma thèse dans un environnement scientifique dynamique et dans une excellente ambiance. Philippe Martin m'a plus particulièrement intégrée dans son équipe qu'il anime quotidiennement avec beaucoup de dynamisme et d'humour.

Toute thèse se termine avec la lecture et l'examen du manuscrit par des rapporteurs et des examinateurs. Aussi, je remercie les différents membres de mon jury qui ont accompli ce difficile travail : Jean-Claude Kieffer qui m'accueille maintenant dans son laboratoire, Brigitte Cros et Fabien Dorchies qui ont fait une lecture et une correction très détaillée de mon rapport et Jacques Dubaud qui a été le président du jury.

Patrick Audebert, Pascal Monot ainsi que Fabien Quere ont eu la tâche importante de m'encadrer. Au cours de ces trois années, ils ont toujours pris soin de m'accompagner à chaque étape de la thèse, de me transmettre les connaissances nécessaires et de répondre à toutes les questions qui pouvaient me passer par la tête : je tiens à leur dire un immense merci pour tout cela. Je voudrais également exprimer toute ma gratitude à Thomas Gustavsson qui a su être très compréhensif lorsque j'ai choisi de changer de sujet de thèse et qui n'a jamais cessé de m'apporter son amitié par la suite.

Dans le domaine de la physique à haute intensité, un travail de thèse n'est possible que grâce à l'implication de nombreuses personnes. Je pense ainsi à Michel Bougeard qui a conçu le système d'entonnoirs adaptables, Anatoli Faenov et Tania Pikuz grâce auxquels nous avons obtenu une multitude de spectres à décripter et Olivier Peyrusse qui m'a très régulièrement secouru lorsque je ressentais des difficultés à utiliser ou comprendre son code de reproduction de ces spectres. Tiberio Ceccotti et Jean-Paul Geindre ont également été d'une aide précieuse dans la compréhension de certains phénomènes se produisant au sein des plasmas. La réalisation d'expériences d'interaction laser-matière nécessite un faisceau laser de qualité. Le maintien et la maîtrise de ce faisceau sont réalisés grâce à l'investissement, aussi bien technique qu'humain, de toute une équipe ; je tiens à remercier ici « les gens de la source » : Olivier Gobert, Michel Perdrix et Pierre Meynadier dont la gentillesse et la douceur de caractère apparaissaient à la première rencontre.

La physique des poudres n'étant pas une spécialité de notre groupe de recherche, il a été nécessaire de faire appel à d'autres équipes. Le LFP m'a ainsi très régulièrement accueillie dans ses laboratoires où j'ai pu réaliser mes expériences d'écoulement, ses membres m'ont également fréquemment apporté de précieuses explications sur le comportement capricieux des poudres. Je dois également beaucoup à un grand nombre d'industriels qui m'ont fait découvrir la diversité des milieux granulaires et m'ont souvent fourni gracieusement des poudres. Je tiens à remercier en particulier M. Thévenot de Warwick, Bertrand Labourdette de Pechiney et Florent Bourlier de PEM-AR. La caractérisation de ces poudres a été réalisée par Olivier Spalla du laboratoire Lions au CEA et Odile Duplessis que je remercie aussi.

Beaucoup de personnes n'ont pas hésité à m'apporter régulièrement leur aide aussi bien scientifiquement que techniquement. Je remercie pour cela Sandrine Dobosz qui a pris en charge l'impression de mon manuscrit après mon départ au Canada, Pascal d'Oliveira que j'ai souvent consulté lorsque j'avais besoin explications sur les lasers, Daniel Crozat pour m'avoir allouer une place dans son atelier durant toute la durée des expériences, Jean-François Hergott, Fabrice Réau, le fournisseur officiel de bonbons de notre groupe, Hervé Lagadec, Bertrand Carré qui m'a très régulièrement prêté son portable à la fin de ma thèse et que j'avais pris l'habitude de rencontrer le week-end durant l'été de ma rédaction, Hamed Merdji, Pierre Breger, David Garzella et Marie-Emanuelle Couprie qui m'ont permis de découvrir les synchrotrons, Olivier Sublemontier, Martin Schmidt, Martine Mayne, Dominique Porterat, Dédé et Didier de l'atelier ainsi qu'Eric Caprin qui nous dépannent très fréquemment à la dernière minute et trouvent des solutions auxquelles nous ne pensions absolument pas. Enfin, Jacqueline Bandura et Véronique Gereczy m'ont très régulièrement expliqué toutes les démarches administratives qu'elles ont eu à chaque fois le don de simplifier par leur efficacité.

Fabien Dorchies n'a pas eu que le rôle d'examinateur mais, accompagné de Christophe Bonté, il m'a permis de découvrir la physique de l'interaction laser-agrégats. De même Claude Chenais-Popovics, qui m'avait fait découvrir la physique des plasmas au cours d'un de mes premiers stages, m'a en début de thèse initiée à l'utilisation d'une caméra streak lors d'une expérience qui se déroulait avec Serena Bastiani et Thomas Oksenhendler. Je les remercie de m'avoir permis de connaître des domaines connexes à celui dans lequel je travaillais.

Je tiens également à remercier les nombreuses personnes qui ont participé à instaurer une bonne ambiance au laboratoire. Je pense en premier lieu à Emanuela Marino qui m'a vue, lorsque que nous étions encore en prépa, débarquer par erreur dans sa chambre d'internat, voisine de la mienne, et qui est depuis toujours restée mon amie. Je pense également à Gilles Doumy qui a effectué sa thèse dans le même groupe que moi. Merci aussi à Hélène Paolacci, Hicham Maskrot pour m'avoir aidée dans la caractérisation

de mes poudres, Eugène Moisenko, notre post-doc russe, Sébastien Saugoult qui attaque maintenant sa toute dernière année, Christian Cornaggia son humouristique encadrant, Anna Levy qui commence, elle, tout juste sa thèse, Pierre-Henri Aubert, Stéphane Paradowsky, notre ingénieur apprenti, Wutharah Chin qui m'a conseillée dans les démarches administratives de fin de thèse, ainsi qu'Elodie Lazarrotto, Delphine Onidas et Véronique Allard avec qui j'ai souvent discuté entre deux analyses de spectres.

Je tiens aussi à exprimer ma reconnaissance à tous ceux venus à ma soutenance. Cela m'a en effet beaucoup touchée de voir les personnes avec qui j'ai partagé ces trois ans être présents pour la toute dernière étape.

Enfin, je souhaite dire un immense merci à ma famille qui m'a largement aidée tout au long de ma thèse. Merci de vous être autant investis notamment pour ma soutenance, ma petite sœur ayant même participé à une grande partie de mes répétitions, toutes ses remarques ont toujours été d'une grande justesse et d'une grande utilité. Soha, bien que ne comprenant pas grand chose à mon sujet de thèse, m'a toujours accueillie avec une joie sans limite et m'a régulièrement permis de me détendre en sa compagnie. Je l'en remercie infiniment. Je pense pour finir à Mathieu, qui me rejoindra d'ici quelques mois dans les grands froids du Canada et qui bien que rédigeant lui aussi sa thèse, s'est toujours montré le plus merveilleux garçon que je connaisse.

Introduction

L'apparition des lasers ultrabrefs et intenses a permis aux groupes de recherche d'étudier le comportement de la matière sous haute densité d'énergie. Les études ont mis à jour une multitude de phénomènes exotiques habituellement observés sur de grandes installations (accélérateurs de particules, synchrotrons, ...) : accélération de particules à des énergies de l'ordre du MeV [1],[2], émission de rayonnement X pulsé, fusion et fission d'éléments [3]... L'ensemble des travaux réalisés a permis d'accéder à une bonne compréhension des mécanismes mis en jeu et laisse également envisager l'utilisation des lasers intenses en complément des grandes installations. Ainsi en est-il de la génération du rayonnement X pulsé. La courte longueur d'onde des rayons X (0,1 à 100 Å) permet en effet de sonder la matière avec une résolution de l'ordre de la distance interatomique et de fournir ainsi une information directe sur la structure atomique d'un matériau. Délivrés de façon pulsée, ils permettent à la façon d'un stroboscope de sonder la dynamique de phénomènes à différents instants. La résolution temporelle de cette technique provient de la durée de l'impulsion qui doit, dans tous les cas, être plus courte que le mécanisme sondé. Actuellement, les études se portent sur des phénomènes mettant en jeu des processus élémentaires ultrabrefs : vibration de réseau cristallin (100^{aines} de fs), vibration de molécules (10^{aines} de fs), fluorescence (100^{aines} de fs)... Les mécanismes permettant le phénomène d'émission de rayonnement X grâce à l'irradiation de la matière par une impulsion femtosecondes permettent d'obtenir des impulsions suffisamment brèves pour résoudre ces phénomènes.

Le principe de la génération de rayonnement X par interaction laser-solide est le suivant. L'énergie de l'impulsion est concentrée sur une surface de matériau de l'ordre de $10*10 \text{ à } 100*100 \text{ }\mu\text{m}$. Cette énergie est transférée aux électrons qui atteignent ainsi des températures élevées et appelés *électrons thermiques* (1 keV). Un plasma fortement ionisé se développe alors à la surface du matériau. Ses ions, en raison de la forte température, peuvent être dans un état excité. Pour retourner dans leur état fondamental, ils peuvent libérer l'excès d'énergie sous forme d'un photon du domaine des rayonnements X. Ce rayonnement est appelé *rayonnement thermique*. Parallèlement, une partie de l'énergie transmise par le laser génère des électrons d'énergie très supérieure à celle des électrons thermiques, ont une énergie suffisante pour pénétrer à l'intérieur de la cible restée solide et ioniser les atomes. Le rayonnement émis par ces ions est appelé K α . Ce dernier mécanisme permet d'obtenir un rayonnement dont la durée dépend de la durée de l'impulsion car les électrons

Introduction

suprathermiques ne sont créés que durant l'impulsion du laser. En choisissant une impulsion de l'ordre de 100 fs, on génère donc un rayonnement dont la durée est subpicoseconde et qui est suffisamment court [4] pour résoudre temporellement des phénomènes ultrabrefs.

L'interaction laser-solide n'est pas la seule interaction permettant une émission de rayonnement X brève. Depuis une quinzaine d'années, des études portent sur l'interaction laser-agrégats. Les jets d'agrégats sont généralement créés par la détente supersonique d'un gaz rare. Ils sont constitués d'un gaz au sein duquel se trouvent des agglomérats d'atomes dont la taille moyenne varie de 1 à 100 nm. La densité moyenne est ainsi très faible tandis que la densité locale au sein des agrégats est approximativement celle du solide. Ce type de cible permet un chauffage volumique de la cible et assure une absorption efficace de l'énergie laser pouvant atteindre jusqu'à 80%. La structure des jets d'agrégats permet de limiter les débris ; cependant, en raison de la présence de gaz, les caractéristiques du faisceau laser peuvent, à forte densité, être modifiées avant l'interaction avec les agrégats. Une durée d'émission courte est également attendue dans ce type d'expériences en raison de la courte durée de vie des agrégats (de l'ordre de la picoseconde). Cependant, la création d'agrégats est généralement difficile lorsque l'on n'utilise pas de gaz rare. Cela limite les matériaux utilisables et donc la gamme spectrale d'émission.

Les études, qu'elles aient portées sur l'émission par des cibles solides ou des jets d'agrégats, ont eu pour but d'une part de comprendre les mécanismes entrant précisément en jeu aux différentes étapes de l'interaction et dans différentes conditions : ainsi l'effet de la durée de l'irradiation, de la présence de préplasma [5] ou l'influence du matériau utilisé comme cible ont fait l'objet d'études particulières. Il est apparu qu'une impulsion brève permettait outre l'émission de rayonnement X bref, le dépôt d'énergie laser dans des zones très denses avant la détente de la cible. L'étude du matériau utilisé a montré que certaines structures telles que les cibles poreuses ou structurées permettaient une meilleure absorption de l'énergie laser et donc une émissivité plus importante. L'effet d'un préplasma contrôlé en structurant la surface de la cible a démontré le même effet. Les différentes études menées ont également permis de caractériser les émissions en terme d'émissivité et de durée et d'optimiser ces paramètres. Cela a permis à plusieurs expériences d'application de voir le jour aussi bien dans le domaine déjà évoqué de l'étude de la dynamique de phénomènes ultracourts (expériences de diffraction [4], [6]) que dans les applications médicales (radiographie [7], angiographie) ou industrielles (lithographie [8]). Pour ces applications, un certain nombre d'exigences sont communes : rafraîchissement automatique de la cible qui doit présenter à chaque tir une nouvelle zone, forte émissivité de façon à limiter le nombre de tirs laser nécessaire, haut taux de répétition pour augmenter le rapport signal sur bruit et réduire la durée des expériences, simplicité de mise en œuvre et coût peu élevé. Ainsi, pour réaliser une figure de diffraction, typiquement 10¹¹ photons sont nécessaires [9]. Avec les systèmes actuels, les émissivités ne peuvent atteindre que 10⁸ - 10⁹ photons par tir ; cela explique pourquoi l'on souhaite obtenir des taux de répétition de l'ordre du kHz qui permettent d'accumuler rapidement le nombre de photons nécessaires.

Dans cette thèse, nous avons souhaité étudier un système permettant à la fois de mener une étude fondamentale sur l'interaction laser-matière avec un nouveau système et offrant la possibilité de disposer d'une source de rayonnement X. Notre choix s'est porté sur les écoulements de poudre. Ces écoulements sont constitués de grains qui contrairement aux agrégats ne sont pas entourés de gaz. L'interaction du laser avec la matière est donc directe et la forte densité du grain doit permettre une bonne absorption de l'énergie laser. D'autre part, au niveau fondamental, cette cible met en jeu un milieu avec lequel l'interaction n'a encore jamais été étudiée : les milieux granulaires. Dans cette thèse se posent donc deux problématiques : la nécessité de trouver un système de distribution de la poudre permettant une utilisation aisée de la source, et celle d'étudier l'interaction pour en déterminer les spécificités notamment en regard d'une cible plane. Une partie de l'étude a donc été menée dans le but de trouver un système simple, peu coûteux et permettant d'optimiser les conditions d'interaction du laser avec l'écoulement. Notre choix s'est porté sur un système de sablier. La réalisation complète du système demandait également qu'un intérêt particulier soit porté au choix des poudres de façon à disposer de poudres adaptées au système choisi et présentant, par leur structure, un intérêt fondamental. Des expériences ont été menées ensuite pour déterminer les propriétés de ce nouveau type de cible. L'accent a été mis sur l'étude des différences avec les cibles planes, mais également sur le dépôt de l'énergie dans différentes configurations d'interaction. Les effets des changements de caractéristiques des faisceaux d'électrons suprathermiques et de la présence de préplasma importants ont ainsi été étudiés.

Dans le chapitre 1, nous présentons les phénomènes ayant lieu au cours de l'interaction d'un solide avec un laser femtoseconde. Pour cela nous présentons les différents processus permettant l'absorption puis le dépôt de l'énergie du laser au sein de la matière. Le dépôt d'énergie par les électrons suprathermiques est plus particulièrement décrit car il permet la création de lacunes conduisant à l'émission du rayonnement K α . Les différents phénomènes permettant d'expliquer l'allure d'un spectre d'émission sont également présentés.

Dans le second chapitre, nous présentons l'élaboration du système d'écoulement. Le but est d'obtenir un écoulement de poudre de qualité permettant au faisceau d'interagir avec les grains de poudre le plus fréquemment possible. Pour cela, il est nécessaire d'avoir une forte concentration de grains et un écoulement continu. Ces conditions nous ont amené à nous intéresser à la physique des milieux granulaires et plus particulièrement à celle des écoulements.

Le chapitre 3 est consacré à la présentation du dispositif expérimental permettant de déterminer les caractéristiques de notre source. Le laser ainsi que les différents diagnostics donnant accès au profil spatial de la zone d'émission, aux caractéristiques spectrales et à l'émissivité sont présentés.

Dans le chapitre 4, nous exposons les différents résultats obtenus au cours de cette étude. Les caractéristiques de la source de rayonnement sont décrites en terme d'émissivité, de profil d'émission et de taux de répétition. En particulier, les différences entre l'interaction avec un écoulement et une cible plane sont soulignées. Une étude de la dépendance de l'émission avec les conditions lasers est également effectuée. De plus, nous présentons diverses simulations permettant une description plus précise des phénomènes ayant lieu au sein du plasma et affectant l'émission.

Enfin, les conclusions de cette étude sont présentées en synthétisant les différents résultats obtenus au niveau de l'élaboration de la source et de son étude.

Références de l'introduction

- T. M. Antonsen, Jr. and P. Mora. Self-focusing and Raman scattering of laser pulses in tenuous plasmas. Phys. Rev. Lett. 69, 2204–2207 (1992).
- [2] Fabien Dorchies, Etude du sillage laser : application à l'accélération d'électrons, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique, soutenue le 17 juin 1998.
- [3] Max Tabak, James Hammer, Michael E. Glinsky, William L. Kruer, Scott C. Wilks, John Woodworth, E. Michael Campbell, and Michael D. Perry, Rodney J. Mason. Ignition and high gain with ultrapowerful lasers. Physics of Plasmas -- May 1994 -- Volume 1, Issue 5, pp. 1626-1634.
- [4] A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Förster, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier & D. Hulin, Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution, Nature, 410, 65 (2001).
- [5] Antoine Rousse, Génération d'électrons rapides et émission dans l'interaction d'une impulsion laser sub-picoseconde et intense avec une cible solide, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique, soutenue le 12 octobre1994.
- [6] A. Cavalleri, Cs. Tóth, C. W. Siders, and J. A. Squier, F. Ráksi, P. Forget and J. C. Kieffer, Femtosecond Structural Dynamics in VO2 during an Ultrafast Solid-Solid Phase Transition, Phys. Rev. Lett. 87, 237401 (2001).
- [7] F. Dorchies, L.M. Chen, Z. Ichalalene, Z. Jiang, J.C. Kieffer, C.C. Chamberlain and A. Krol, Imagerie médicale avec des sources X créées par laser, J. Phys. IV France, Vol. 108, p. 147, (2003).
- [8] T. Ceccotti. EUV lithography development in Europe : present status and perspectives (Invited Paper). Laser-Generated and Other Laboratory X-Ray and EUV Sources, Optics, and Applications. Proceedings of SPIE, San Diego 2003.
- [9] Jean-François Adam and Jean-Pierre Moy, Jean Susini, Table-top water window transmission x-ray microscopy: Review of the key issues, and conceptual design of an instrument for biology, Rev. Sci. Instrum. 76, 091301 (2005).

Plan Général

Introduction	1
Chapitre 1 : Mécanismes de génération de rayonn	ement X
Introduction	13
1) Structure du plasma	14
a) La zone de détente du plasma	15
b) L'épaisseur de peau	16
c) La zone de conduction de l'énergie	18
2) Mécanismes d'absorption de l'énergie laser	
a) L'absorption collisionnelle	19
b) L'absorption résonnante	20
c) Effet Brunel	24
d) Absorption et longueur de gradient	25
3) Conduction de l'énergie par les électrons	
a) Conduction par les électrons thermiques	
b) Dépôt d'énergie par les électrons suprathermiques	30
4) Le rayonnement X	34
a) Génération de rayonnement X	35
b) Caractéristiques de l'émission de rayonnement X	41
c) Optimisation du rayonnement X	51
5) Les codes de simulation	51
a) Simulations hydrodynamiques : FILM	52
b) Simulation des spectres : TRANSPEC	53
Conclusion	57
Références du chapitre 1	59

Chapitre 2 : Le dispositif d'écoulement de poudre

Introduction	65
1) Notions théoriques sur les écoulements de poudre	66
a) Propriétés statiques des milieux granulaires	67
b) Ecoulement en espace libre :avalanche	70
c) Ecoulement dans un sablier	74
2) Dispositif expérimental de distribution de poudre	
a) Le choix des poudres	83
b) Présentation du système	
c) Caractéristiques de l'écoulement	93
Conclusion	101
Références du chapitre 2	

Chapitre 3 : Dispositif expérimental

Introduction1	107
1) Conditions de l'interaction1	108
a) Le laser1	108
b) Focalisation du faisceau sur l'écoulement 1	114
2) Diagnostics 1	116
a) Mesure du profil de la zone d'émission1	117
b) Mesure du profil d'écoulement1	119
c) Caractérisation spectrale de la source1	119
d) Emissivité de la raie K $lpha$ 1	127
Conclusion1	132
Références du chapitre 3 1	133

Chapitre 4 : Résultats et Discussion

Introduction	. 137
Partie A - Géométrie de l'interaction	. 138
1) Fluctuations spatiales de l'écoulement	138
a) Fluctuations tir à tir de l'intensité	138
b) Fluctuations spatiales de la source	139
2) Interstices entre les grains de l'écoulement	143
a) Fraction d'énergie du faisceau perçue par les grains d'une couche	144
b) Effet d'ombre des couches superficielles sur l'émission des couches profondes	148
3) Forme des grains	149
a) Intensité perçue par les grains	149
b) Absorption de la cible	150
4) Effet fusée : limitation du taux de répétition	153
Partie B - Physique de l'interaction	. 156
1) Le plasma thermique	157
a) Densité et température électronique de la zone d'émission	158
b) Dynamique de l'interaction	165
2) Le plasma froid et dense	177
a) Profondeur de dépôt des électrons suprathermiques	178
b) Emission de rayonnement K $lpha$	182
3) Effet d'un préplasma important	186
Conclusion	. 189
Références du chapitre 4	. 191
Conclusion	. 193
Annexe	. 197
Appendice	. 215

Chapitre 1

Mécanismes de génération de rayonnement X

Introduction	13
1) Structure du plasma	14
a) La zone de détente du plasma	15
b) L'épaisseur de peau	16
c) La zone de conduction de l'énergie	18
2) Mécanismes d'absorption de l'énergie laser	18
a) L'absorption collisionnelle	19
b) L'absorption résonnante	20
b-1) Description du phénomène	20
b-2) Amortissement du phénomène	21
b.2.1) Phénomènes d'amortissement	21
b.2.2) Comparaison des contributions des phénomènes d'amortissement	23
c) Effet Brunel	24
d) Absorption et longueur de gradient	25
d-1) Polarisation S	25
d-2) Polarisation P	26
3) Conduction de l'énergie par les électrons	28
a) Conduction par les électrons thermiques	28
a-1) Libre parcours moyen des électrons inférieur à la longueur de gradient	28
a-2) Libre parcours moyen des électrons supérieur à la longueur de gradient	29
b) Dépôt d'énergie par les électrons suprathermiques	30
b-1) Energie des électrons suprathermiques	30
b-2) Diffusion des électrons dans la matière	31
b.2.1) Solide froid	32
b.2.2) Solide faiblement ionisé	32
b.2.3) Plasma thermique	33
4) Le rayonnement X	34
a) Génération de rayonnement X	35

a-1) Création des différents états ioniques : ionisation en couche externe	35
a.1.1) Photoionisation	
a.1.2) Ionisation collisionnelle :	
a.1.3) Autoionisation	
a-2) Création de la lacune en couche K	
a.2.1) Ionisation et excitation collisionnelle	
a.2.2) Photoionisation par rayonnement X	40
a-3) Désexcitation	41
b) Caractéristiques de l'émission de rayonnement X	41
b-1) Position des raies	42
b-2) Largeur des raies	43
b.2.1) Elargissement Doppler	43
b.2.2) Elargissement Stark	44
b.2.3) Transfert de rayonnement	46
b-3) Rapport des raies	48
b-4) Durée d'émission	49
c) Optimisation du rayonnement X	51
5) Les codes de simulation	
a) Simulations hydrodynamiques : FILM	52
a-1) Description du code	52
a-2) Profils créés par des impulsions de 60 fs et 1 ps	52
b) Simulation des spectres : TRANSPEC	53
b-1) Description du code	53
b-2) Spectre émis par une impulsion de 60 fs	55
Conclusion	
Références du chapitre 1	

Chapitre 1

Mécanisme de génération de rayonnement X

Introduction

L'émission de rayonnement X par interaction laser/matière est l'issue de nombreux phénomènes d'absorption, de transport et de dépôt de l'énergie transmise par le laser. L'absorption débute par l'induction de collisions entre électrons de conduction et atomes dans les métaux et par la photoionisation dans les diélectriques parfaits. Ces derniers présentent alors également une population d'électrons libres. Dans un second temps, la matière absorbe l'énergie de l'impulsion par différents processus :

- dans la partie sous-dense et dans l'épaisseur de peau, l'absorption collisionnelle met en jeu une collision entre un électron et un photon dans le champ d'un ion
- au niveau de la densité critique, par absorption résonnante et effet Brunel.

Pour des intensités supérieures à 10¹⁵ W.cm⁻², l'absorption collisionnelle permet aux électrons du plasma sous-dense d'atteindre des températures de plusieurs centaines d'eV. Ces électrons sont appelés *électrons thermiques*. Les deux autres phénomènes d'absorption induisent la génération d'électrons de plusieurs dizaines de keV appelés *électrons suprathermiques*. Ces derniers pénètrent dans la partie plus froide de la cible et créent des lacunes en couche interne lors de collisions avec les ions. Des photons dont l'énergie se situe dans le domaine du rayonnement X sont émis lorsque les électrons des couches supérieures comblent la lacune. Dans la zone chaude, les lacunes sont également créées par excitation électronique grâce aux électrons thermiques. Les émissions de ces deux zones diffèrent par leur longueur d'onde mais aussi par la durée, plus courte pour la zone froide.

Le but de cette partie est de présenter en détail l'ensemble de ces mécanismes pour un plasma de silicium. Une première partie est consacrée à la description spatiale du plasma au maximum de l'intensité du laser. Dans une seconde partie nous abordons les différents mécanismes d'absorption de l'énergie laser intervenant dans notre régime d'intensité, c'està-dire entre 10¹⁵ et quelques 10¹⁷ W.cm⁻². Le dépôt de l'énergie absorbée par les électrons thermiques et suprathermiques est ensuite discuté. Enfin, nous nous concentrons sur la génération de rayonnement X ainsi que sur ses caractéristiques.

1) Structure du plasma

La structure d'un plasma résultant de l'interaction d'un solide avec un laser est intimement liée à la forme et la durée de l'impulsion lumineuse. Les impulsions femtosecondes permettent de chauffer un matériau avant que celui-ci ne se détende et d'interagir ainsi avec des densités proches de celles du solide En régime femtoseconde, on peut distinguer trois zones distinctes à l'intérieur du plasma. Ces zones sont représentées sur la figure 1 réalisée à partir de simulations hydrodynamiques du code FILM présenté ultérieurement :

- la zone d'expansion du plasma ((1) sur le schéma) correspond à une zone de faible densité électronique et de forte température ; dans cette zone, l'ionisation moyenne est très élevée,
- l'épaisseur de peau où l'onde est évanescente ((2)),
- la zone de conduction thermique (3) est chauffée uniquement par les électrons thermiques et suprathermiques puisque le laser ne peut pénétrer dans cette zone. La température électronique y est plus faible tandis que la densité est élevée ; dans cette zone, les atomes sont faiblement ionisés.



Figure 1 : Structure d'un plasma généré par l'interaction entre une impulsion de 60 fs induisant une intensité de 10¹⁷ W.cm⁻² et une cible métallique d'aluminium. Cette simulation est réalisée avec le code instationnaire FILM au maximum de l'impulsion laser. O zone d'expansion du plasma - O épaisseur de peau du plasma - O zone de conduction thermique.

Dans cette partie, nous décrivons l'état d'un plasma généré à partir d'une cible diélectrique au maximum de l'impulsion d'un laser de longueur d'onde égale à 800 nm, de durée d'impulsion à mi-hauteur de 60 fs, focalisé de façon à obtenir des intensités de l'ordre de 10¹⁵ W.cm⁻² à 10¹⁷ W.cm⁻² sur la cible. Le code FILM ne traitant pas la photoionisation, processus créant les premiers électrons libres pour un diélectrique parfait, la simulation présentée concerne un milieu métallique. Les différences entre ces deux cas sont par la suite soulignées.

a) La zone de détente du plasma

Bien que la zone de détente soit plus courte en régime femtoseconde qu'en régime nanoseconde, le chauffage de la matière par le laser provoque la détente de celle-ci hors des limites du solide et crée un gradient de densité et de température électronique. L'ionisation des atomes et le départ des électrons induit en effet une séparation de charges et génère un champ qui accélère les ions vers l'extérieur. Dans cette zone la température électronique est très grande et le degré d'ionisation y est donc très élevé. Dans le cas du silicium et pour une impulsion de 10^{16} - 10^{17} W.cm⁻², la température atteint quelques centaines d'eV et les ions prépondérants sont les ions d'état ionique *Z** supérieur à 12 [1].

Il est possible d'obtenir une image de cette zone d'expansion durant l'impulsion laser en utilisant un modèle unidimensionnel très simple. On considère tout d'abord que durant l'impulsion, l'apport d'énergie du laser compense le refroidissement du plasma dû à l'expansion et à la conduction thermique vers des zones plus profondes et plus froides du plasma. Pour cette raison, on suppose que durant l'impulsion, l'évolution est isotherme. On considère de plus que l'épaisseur du plasma est supérieure à la longueur de Debye qui est de l'ordre de 17 Å à 10^{22} cm⁻³ et 500 eV pour une ionisation moyenne \overline{Z} de 12. Grâce à cela, nous pouvons appliquer la condition de neutralité $n_e = \overline{Z} n_i$ et donc déduire n_e de n_i . En assimilant le gaz d'électrons à un gaz parfait, et en considérant que la température électronique est définie localement, on trouve une densité d'électrons n_e à un instant *t* intervenant après le début de l'expansion et à une distance *x* de la surface originelle de la cible égale à [2] :

$$n_e(x,t) = n_o exp\left(-\frac{x}{c_s t}\right)$$
(1)

Dans cette expression, n_0 est la densité électronique à l'instant initial, c_s représente la *vitesse sonore ionique* et s'écrit :

$$c_{\rm s} = \sqrt{\frac{\overline{Z}T_{\rm e}}{M}}$$
 soit en unités pratiques $c_{\rm s} [cm.s^{-1}] = 9.79.10^{5} \sqrt{\frac{\overline{Z}T_{\rm e}}{A}}$ (2)

où \overline{Z} est l'état d'ionisation moyen du plasma, M la masse de l'ion, T_e la température

électronique en eV et où A représente le nombre de masse de l'ion.

Cette zone est ainsi caractérisée par une densité électronique qui décroît pour un instant donné de façon exponentielle lorsqu'on s'éloigne de la cible. La longueur caractéristique $L_{détente}$ à un instant *t* de cette détente est donnée simplement par :

$$\mathcal{L}_{détente} = \mathbf{c}_s t \tag{3}$$

Pour un plasma de silicium de 500 eV, avec une ionisation moyenne \overline{Z} de 12, la vitesse sonore ionique est de 1,4.10⁷ cm.s⁻¹ et la détente atteint au maximum de l'impulsion laser de 60 fs une longueur de l'ordre de 40 Å. Dans la simulation hydrodynamique présentée ici, ces ions se sont éloignés d'environ 30 Å de la surface originelle du solide. L'ordre de grandeur obtenu par (3) est donc correct.

Dans le cas d'une intensité supérieure à 10¹⁷ W.cm⁻², un raidissement du gradient de densité [3] peut intervenir grâce à la force pondéromotrice qui pousse les électrons des zones de champ fort au centre de l'impulsion vers les zones de champ faible.

b) L'épaisseur de peau

Lorsqu'on focalise un laser intense sur un diélectrique, les électrons peuvent passer de la bande de valence à la bande de conduction par ionisation multiphotonique. Dès que la densité d'électrons devient suffisante, le matériau acquiert des propriétés conductrices et devient réfléchissant. Comme dans un métal, le laser est réfléchi lorsque sa pulsation et la pulsation du plasma sont égales. Cette dernière est définie par :

$$\omega_{pe} = \left(\frac{n_e e^2}{m_e \varepsilon_0}\right)^{1/2} \tag{4}$$

où ε_0 est la permittivité électrique, m_e la masse de l'électron et *e* sa charge. La densité de cette zone est appelée *densité critique* et notée n_c par la suite. Elle s'écrit :

$$n_c = \frac{m_e \varepsilon_0 \omega^2}{e^2} \quad \text{soit} : n_c \, [cm^{-3}] = 1, 1.10^{21} \lambda^{-2} [\mu \text{m}] \text{ en unités pratiques}$$
(5)

où ω est la pulsation du laser. Ainsi, l'énergie du laser est déposée à des densités d'autant plus élevées que sa longueur d'onde est courte. Cela explique que la fréquence du laser soit doublée dans certaines expériences : la densité critique est alors quatre fois plus élevée.

Au-delà de cette densité, le laser se propage de façon évanescente sur *l'épaisseur de peau* δ . Cette épaisseur s'écrit lorsque $v_{ei} > \omega$ [4] :

$$\delta = \frac{c}{\omega_{pe}} \left(\frac{v_{ei}}{\omega \cos \theta} \right)^{1/2}$$
(6)

et lorsque
$$v_{ei} \ll \omega$$
, $\delta = \frac{c}{\omega_{pe}}$ (7)

où ω est la pulsation du laser, θ l'angle d'incidence du laser, c la vitesse de la lumière et où ω_{pe} et v_{ei} sont respectivement la pulsation plasma et la fréquence de collisions électron-ion et sont égales à :

et
$$v_{ei} = \frac{1}{3(2\pi)^{3/2}} \frac{Z\omega_{pe}^4}{n_e v_{th}^3} \ln\Gamma$$
 soit en unités pratiques : $v_{ei} = 2,91.10^{-6} \frac{Zn_e [cm^{-3}]}{T_e^{3/2} [eV]} \ln\Gamma$ (8)

où In Γ est le logarithme coulombien.

En régime femtoseconde, la densité critique est très proche de la région à la densité du solide. Nous avons vu au paragraphe précédent que la longueur caractéristique de la zone d'expansion est inférieure à 100 Å, le laser se couple donc aisément au solide, c'est-à-dire à une zone de densité électronique égale à 6.10²³ cm⁻³. Dans ce cas, d'après *(6*), le laser ne pénètre que de 100 Å au sein de la cible solide ce qui est de l'ordre de la longueur d'expansion du plasma. Cette égalité entre longueur de pénétration du laser et expansion est choisie pour définir une irradiation laser se faisant en gradient court. Le graphique de la figure 2 présente à partir des équations d'échelle de Rozmus et Tikhonchuk [5] et dans le cas du silicium, les conditions pour lesquelles ce critère est réalisé en tenant compte de l'intensité du laser et de la durée de l'impulsion. On peut observer que l'interaction directe avec le solide n'est possible qu'en impulsion courte ou à faible intensité. Ainsi, pour une impulsion de 1 ps, l'intensité doit être inférieure à 10¹³ W.cm⁻², alors qu'en régime femtoseconde, on peut utiliser des intensités de 10¹⁷ W.cm⁻². Cela démontre l'avantage des interactions en régime femtoseconde lorsque l'on souhaite déposer l'énergie d'une impulsion intense à une densité élevée. Nous avons adjoint à la définition de la zone pour laquelle l'expansion est plus faible que l'épaisseur de peau la délimitation de la zone pour laquelle la force pondéromotrice permet de confiner le plasma. Cette force crée en effet un raidissement du gradient de densité en attirant les électrons des zones de champ fort vers les zones de champ faible. Cette zone intervient quelle que soit la durée laser à des intensités laser supérieures à 5.10¹⁸ W.cm⁻².

Grâce à ce graphique, nous pouvons également estimer l'effet sur l'interaction de l'émission spontanée amplifiée (ASE) émise avant l'impulsion principale. Un niveau d'ASE élevé interdit une interaction directe du faisceau avec le solide dès lors que sa durée est trop importante. Ainsi un piédestal de 10¹² W.cm⁻² et de durée 5 ps induit une expansion telle que l'impulsion principale ne dépose pas directement son énergie dans la partie la plus dense de la cible.



Figure 2 : Domaines d'interaction pour différentes intensités et durées d'impulsions en considérant deux états d'ionisation dans les équations d'échelle de Rozmus et Tikhonchuk. On distingue trois zones délimitées par des courbes : la zone d'interaction directe avec la partie solide de la cible, la zone d'interaction avec un plasma détendu et la zone d'interaction avec un solide confiné par la force pondéromotrice.

c) La zone de conduction de l'énergie

Dans la première partie de cette zone, la densité électronique est plus élevée que celle du solide. L'ionisation des atomes est en effet importante alors que cette zone ne s'est pourtant pas encore détendue. La densité redevient égale à celle du métal, c'est à dire 6.10^{23} cm⁻³ dans les zones plus profondes (ou nulle pour un diélectrique). Parallèlement, la température électronique et l'état d'ionisation décroissent rapidement vers l'intérieur de la cible sur une profondeur de l'ordre de 2000 Å. Dans la zone de conduction, le faisceau laser ne peut plus se propager, l'énergie est transportée vers les zones profondes par conduction électronique ou transport radiatif. Cependant, dans le cas de matériaux de *Z* faible, ce dernier est négligeable, aussi, par la suite, nous nous concentrons sur la conduction électronique.

2) Mécanismes d'absorption de l'énergie laser

Dans cette partie, nous détaillons les phénomènes d'absorption intervenant dans notre gamme d'intensités. Au sein de la zone sous-dense et dans l'épaisseur de peau, le phénomène mis en jeu est l'absorption collisionnelle que nous explicitons dans le premier paragraphe. L'absorption résonante et l'effet Brunel trouvent naissance à la densité critique et interviennent pour la génération d'électrons suprathermiques qui déposent leur énergie dans les profondeurs de la cible. Ces deux phénomènes d'absorption sont présentés dans les deux paragraphes suivants. Plusieurs mécanismes ne sont pas détaillés car ils n'interviennent pas aux intensités laser auxquelles nous avons accès. Parmi ces mécanismes, on trouve le *chauffage par la force pondéromotrice* [6] qui permet d'accélérer les électrons mais n'induit une absorption que de 1,5% pour $I\lambda^2=10^{17}$ W.µm².cm⁻², de même, l'*effet de peau anormal* [5] n'intervient qu'à de telles intensités. L'*effet de gaine* [7], quant à lui, est théoriquement considéré comme un effet permettant une importante absorption de l'énergie mais n'a jamais été expérimentalement observé.

a) L'absorption collisionnelle

L'absorption collisionnelle appelée également Bremsstrahlung inverse [8] est un processus libre-libre à trois corps. Elle intervient lors d'une collision entre un photon et un électron dans le champ d'un ion et permet le transfert de l'énergie du photon à l'électron. Comme un photon intervient dans ce phénomène, il se produit forcément dans la zone d'expansion ou dans l'épaisseur de peau, ce processus s'écrit :

$$N(hv) + e^{-} + (A+) -> e^{-*} + (A+)$$
(9)

où $h\nu$ représente l'énergie du photon, N le nombre de photons mis en jeu, (A+) l'ion, e^- l'électron et e^{-*} l'électron ayant absorbé l'énergie des photons. La présence de l'ion est nécessaire pour assurer la conservation de l'impulsion.

Le coefficient d'absorption A dans une couche de plasma où la fréquence de collision est v_{ei} est donné en incidence normale pour deux cas limites [4], [9] :

$$A \begin{cases} \frac{2v_{ei}}{\omega_{pe}} = 1,03.10^{-10} \frac{Zn_{e}^{1/2}}{T_{e}^{3/2}} \ln\Gamma \quad \text{pour } v_{ei} << \omega \\ \frac{2\omega}{\omega_{pe}} \left(\frac{v_{ei}}{\omega_{pe}}\right)^{1/2} = 4,34.10^{-10} \frac{Z\omega n_{e}^{1/4}}{T_{e}^{3/2}} \ln\Gamma \quad \text{pour } v_{ei} > \omega \end{cases}$$
(10)

Quelque soit la valeur de v_{ei} l'absorption est d'autant plus importante que la densité est élevée et la température faible. La région du plasma où cette absorption est maximale est donc celle de la densité critique. De plus, lorsque $v_{ei} > \omega$, on remarque que l'absorption est favorisée par des ondes de pulsations ω élevées c'est-à-dire par des longueurs d'onde courtes. L'absorption totale s'obtient en intégrant (10) sur la longueur de la zone d'expansion et d'épaisseur de peau ; elle peut atteindre en régime nanoseconde des valeurs proches de 100% pour une longueur d'onde de 260 nm et un gradient de 5 µm [10]. Le régime femtoseconde pour lequel la zone d'expansion est plus faible ne favorise pas ce processus.

La nature collisionnelle de ce phénomène permet une thermalisation de la population des électrons chauds qui peuvent atteindre plusieurs milliers d'eV [10]. En raison de cette nature, la distribution de ces électrons est maxwellienne.

b) L'absorption résonnante

b-1) Description du phénomène

L'absorption résonnante [11], [12], [13] trouve naissance à la densité critique où l'onde laser se couple avec les oscillations plasmas électroniques. Elle met en jeu une composante non nulle du champ électrique le long du gradient de densité, aussi ce phénomène n'existe-til que pour une incidence oblique et en polarisation P (cf. figure 3). En raison de l'inhomogénéité du plasma, l'onde est réfractée, le point de rebroussement se situant à la densité électronique $n_e=n_c\cos^2(\theta)$. La partie polarisée P peut pénétrer de façon évanescente vers l'intérieur de la cible jusqu'à la densité critique n_c . A cette densité, les fréquences du laser et des oscillations plasmas sont égales, l'interaction entre l'onde laser et ces oscillations est donc résonante. L'amplitude des oscillations électroniques deviendrait infinie sans phénomènes dissipatifs.



Figure 3 : Structure du champ électromagnétique d'une onde en incidence oblique le long du gradient de densité électronique. La partie du champ polarisée P excite des ondes plasmas de forte amplitude ce qui accélère les électrons vers l'intérieur de la cible.

Pour étudier ce phénomène, on utilise le *modèle capacitif*. Dans ce modèle, les oscillations du plasma sont modélisées par un oscillateur harmonique pompé par le champ E_d de la densité critique [13]. Au voisinage de cette densité, on considère ce champ constant. Lorsque $L/\lambda > 1$, les calculs analytiques donnent pour un gradient de densité linéaire de longueur *L* tel que une absorption *A* égale à :

$$A \cong \frac{\Phi^{2}(\tau)}{2} \quad \text{avec } \tau = \left(2\pi \frac{L}{\lambda}\right)^{\frac{1}{3}} \sin\theta \tag{11}$$

Dans cette expression, Φ représente la fonction de Ginsburg définie par : $\Phi(\tau) \approx 2.3 \tau e^{-\frac{2}{3}\tau^3}$.

L'absorption résonnante ne dépend donc que de la longueur de gradient et de l'angle d'incidence de l'onde. L'angle optimal pour un gradient donné est déterminé par un compromis entre la longueur de plasma à traverser et la possibilité pour le champ d'avoir une composante P le plus orienté vers l'intérieur de la cible avant la réflexion. Pour des gradients supérieure à environ 0,2, elle est maximale pour τ =0,5^{1/3} soit environ 0,8 et vaut alors environ 85%. L'angle optimal est donc d'autant plus grand que le gradient est raide.

b-2) Amortissement du phénomène

Ce phénomène de résonance est amorti par différents processus :

- les collisions électrons-ions intervenant à la densité critique,
- la convection thermique,
- le déferlement électronique que nous détaillons ici.

A chacun de ces phénomènes est associée une fréquence effective v_{eff} traduisant son efficacité dans l'amortissement du champ E_{max} de l'onde plasma créée à la résonance :

$$E_{max} = \frac{\omega}{v_{eff}} E_d \tag{12}$$

Cette fréquence permet notamment de déterminer les contributions relatives des trois phénomènes dans l'amortissement de l'onde.

b.2.1) Phénomènes d'amortissement

✓ Les collisions électrons-ions

Ces collisions ont été évoquées précédemment. La fréquence effective est alors vei.

✓ La convection thermique

La vitesse thermique des électrons dans la zone de résonance transforme l'onde de plasma locale en une onde propagative qui évacue ainsi une partie de l'énergie de cette zone du plasma. La fréquence effective v_c de ce phénomène est caractérisée par [14] :

$$\frac{\nu_{\rm c}}{\omega} = 3.7.10^{-2} \,{\rm T_e^{1/3} \, [keV]} \left(\frac{\lambda [\mu m]}{\rm L}\right)^{2/3}$$
(13)

Ce phénomène peut accélérer des électrons possédant une vitesse approximativement identique à celle de l'onde. Les électrons subissent alors le champ de l'onde propagative qu'ils ressentent constant dans leur référentiel. Cela a pour effet de les accélérer.

✓ Le déferlement électronique

Le déferlement électronique correspond à une rupture de la réponse collective du

milieu à l'excitation du laser. Lorsque la densité d'énergie à la densité critique est suffisante, l'amplitude des oscillations augmente et devient supérieur à la longueur d'onde, les électrons échappent alors au champ collectif. Ces derniers sont éjectés aussi bien vers l'intérieur de la cible que vers le vide. Ils emportent ainsi une partie de l'énergie accumulée à la résonance et acquièrent des énergies de plusieurs dizaines de keV. Ces électrons sont appelés *électrons suprathermiques*. L'importance de ce phénomène est décrit par la fréquence v_d telle que [15], [16] :

$$\frac{V_{d}}{\omega} = 3,91.10^{-6} (I\lambda^{2} [W.cm^{-2}.\mu m^{2}])^{1/4} \Phi^{1/2} (\tau) \left(\frac{\lambda}{L}\right)^{3/4} F$$

$$F = [(1+2,25a^{2})^{1/2} - 1,5a]^{-1}$$

$$a = 1,27.10^{3} \frac{T_{e}^{1/2}}{(I\lambda^{2} [W.cm^{-2}.\mu m^{2}])^{1/4} \phi^{1/2} (\tau)} \left(\frac{\lambda}{L}\right)^{1/4}$$
(14)

Sur la figure 4, on peut observer les trajectoires électroniques en fonction du temps et de la position. Ces trajectoires ont été simulées par un code PIC monodimensionnel pour une incidence de 30° avec un gradient de L/λ égal à 1 et $l\lambda^2=10^{16}$ W.cm⁻².µm². Le temps est mesuré en ω_0^{-1} soit en $T/2\pi$ où T est la durée d'un cycle laser et de la position indiquée en c/ω soit en $\lambda/2\pi$. La position de la densité critique est également indiquée sur le schéma. On peut observer le déroulement du phénomène qui commence par l'oscillation des électrons, cette oscillation augmente très fortement à la densité critique jusqu'à ce que l'énergie accumulée soit suffisante pour déclencher le déferlement à $t=85\omega_0^{-1}$.



Figure 4 : Trajectoires électroniques induites grâce à l'amortissement par déferlement électronique.

b.2.2) Comparaison des contributions des phénomènes d'amortissement

Les différents phénomènes d'amortissement évoqués n'ont pas le même poids dans l'évacuation de l'énergie de la résonance. Pour évaluer leur influence en fonction des conditions du plasma, on considère les rapports des différents paramètres v_{eff} donnés précédemment.

Des comparaisons précises entre ces différents effets ont été menées au sein de [1] et [17], nous nous contentons ici de rappeler les principaux résultats. L'amortissement par collisions n'est prépondérant qu'à de faibles températures, inférieures à celle atteintes dans nos conditions expérimentales, ou bien en gradient long. A nos températures, sa contribution à l'évacuation de l'énergie de la résonance est 100 fois moins forte que celle des deux autres phénomènes.

Le rapport des contributions de la convection thermique et du déferlement électronique en fonction de l'intensité laser est représenté sur la figure 5. Sur ce graphique est représenté le rapport des fréquences effectives du déferlement et de la convection en fonction de l'intensité du laser pour différents gradients de densité. Pour les trois gradients envisagés, l'amortissement par déferlement est généralement le phénomène prépondérant, la seule configuration où la convection domine correspond au cas $L/\lambda=1$ pour un flux inférieur à 3.10^{16} W.cm⁻². Dans la majeure partie de nos mesures, l'amortissement par déferlement est donc celui qui participe le plus à l'amortissement. Cependant, on ne peut négliger l'effet de la convection, on remarque en effet sur le graphique que le rapport entre les deux contributions ne dépasse jamais 5,2.



Figure 5 : Rapport de la contribution du déferlement électronique et de la convection thermique à l'amortissement de l'onde résonante pour trois longueurs de gradient.
c) Effet Brunel

Cet effet [18], [19] aussi appelé *vacuum heating* se produit en un cycle laser. Il voit le jour lorsque le gradient de densité est inférieur à l'épaisseur de peau; comme dans le cas de l'absorption résonante, le laser possède une incidence oblique. Lors de la première demipériode, les électrons sont accélérés vers l'extérieur de la cible. Les ions étant moins mobiles que les électrons, leur déplacement est négligeable et il apparaît une charge d'espace produisant un champ statique. En raison de la dimension réduite du gradient, les électrons peuvent être sensibles à ce champ. A la demi-période suivante, le champ statique s'additionne au champ laser dirigé vers l'intérieur de la cible. Les électrons sont alors violemment accélérés dans cette direction (cf. figure 6).



Figure 6 : Trajectoires des électrons soumis à l'effet Brunel

L'énergie atteinte par les électrons accélérés par ce processus est de l'ordre de l'énergie d'oscillation dans le champ de la composante normale à la surface de la cible :

$$E_{os} = \frac{e^2 E}{4m_e \omega^2} (1 + \alpha^2) \text{ soit en unités pratiques } E_{os} = 9,3(1 + \alpha^2) I_{14} \lambda^2 [\text{W.cm}^2.\mu\text{m}^2]$$
(15)

où α est égal à 1 en polarisation linéaire et à 0 en polarisation circulaire.

Le coefficient d'absorption A peut quant à lui s'écrire [20] :

$$A \begin{cases} 3f(\theta)\frac{V_{os}}{c} & \text{lorsque A} <<1\\ \frac{3}{8}f(\theta)\frac{V_{os}}{c} & \text{lorsque A} <1\\ \text{où } f(\theta) = \frac{\sin^3\theta}{\cos\theta}. \end{cases}$$
(16)

Ainsi, à 10¹⁷ W.cm⁻² et pour une incidence de 30°, l'effet Brunel permet aux électrons d'atteindre une énergie d'environ 6 keV et induit une absorption de 6,5 % de l'énergie de l'impulsion d'après (16).

d) Absorption et longueur de gradient

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 2, au cours de l'interaction, le solide se détend vers le vide et crée un gradient de densité qui suit la loi (1). La présence de ce gradient influence l'absorption de l'énergie laser qu'elle soit de type collisionnelle ou non. Des codes [3] permettent de calculer les coefficients d'absorption et de réflectivité à partir des conditions de continuité des champs électriques et magnétiques. Avec un tel code, il est possible d'estimer l'influence de la longueur de gradient sur l'absorption en polarisation P et S.

d-1) Polarisation S

Sur la figure 7, nous présentons pour différents gradients le pourcentage d'énergie du laser absorbé en polarisation S durant l'interaction pour un rapport v_{ei}/ω de 4. Dans cette polarisation, seule l'absorption collisionnelle intervient. Quel que soit le gradient, l'absorption est maximale à incidence normale et décroît jusqu'à des valeurs proches de zéro en incidence rasante. Lorsque l'angle d'incidence augmente, le point de rebroussement de l'onde situé à $n_c \cos^2 \theta$ se trouve à des densités plus faibles et l'énergie déposée avant ce point l'est donc à une densité plus faible.

La dépendance de l'absorption collisionnelle en fonction de la longueur de gradient pour un angle de 0° est présentée sur la figure 8. L'absorption atteint au maximum 40% pour le gradient de L/λ égal à 1 c'est-à-dire le gradient le plus long. Dans notre cas, l'absorption est favorisée par les gradients longs. Le laser dépose alors son énergie sur une plus grande distance jusqu'à la densité critique. Pour des valeurs plus faibles du rapport v_{ei}/ω , on noterait clairement la présence d'un minimum, car en gradient très court, le laser atteint aisément de façon évanescente les zones très denses favorisant les collisions. Le minimum correspond à la longueur juste trop importante pour que le laser puisse se coupler à la partie solide.



Figure 7 : Absorption de l'énergie laser en polarisation S en fonction de l'angle d'incidence pour différents gradients.



Figure 8 : Absorption de l'énergie laser en polarisation S en fonction de la longueur de gradient pour une incidence nulle.

d-2) Polarisation P

En polarisation P, l'absorption résonante intervient dès que l'on s'éloigne de l'incidence normale. Ainsi que nous l'avons évoqué au paragraphe 3.b.1), les courbes d'absorption présentent un angle optimal qui diminue lorsque la longueur de gradient augmente. Pour les gradients étudiés, l'absorption peut atteindre 70% (cf. figure 9). La contribution réelle de l'absorption résonnante s'obtient en soustrayant la contribution collisionnelle. On s'aperçoit alors que l'absorption résonnante seule intervient à hauteur de 40%. Pour une valeur plus

faible du rapport v_{ei}/ω et donc un plasma favorisant moins l'absorption collisionnelle, nous aurions obtenu de plus fortes absorptions pour les faibles gradients.



Figure 9 : Absorption de l'énergie laser en polarisation P en fonction de l'angle d'incidence pour différents gradients.

Sur la figure 10, nous présentons la dépendance de l'absorption en fonction de la longueur de gradient pour une incidence de 35°. Il existe une longueur de gradient optimale comprise entre 0,1 et 0,3. La présence de cet optimum a la même origine que l'optimum angulaire : il s'agit d'un compromis entre la longueur de gradient à traverser et une orientation de la composante P vers l'intérieur de la cible la plus importante possible.



Figure 10 : Absorption de l'énergie laser en polarisation P en fonction de la longueur de gradient pour une incidence de 35°.

Dans les expériences que nous menons, le laser interagit avec une sphère. Tous les angles d'incidence interviennent dans des proportions déterminées par la forme sphérique de la cible. L'absorption ne dépend donc que de la longueur de gradient. Nous effectuerons une évaluation de l'absorption de l'énergie par une sphère au chapitre 4.

3) Conduction de l'énergie par les électrons

a) Conduction par les électrons thermiques

La méthode de calcul des flux électroniques dépend du rapport entre le libre parcours moyen des électrons λ_{ei} et la longueur du gradient de température. Ces deux grandeurs sont respectivement données par :

$$\lambda_{ei}[cm] = 1,5.10^{15} \frac{T_e^2 [eV]}{\overline{Z}n_e[cm^{-3}] \ln \Gamma}$$
(17) et : $L_{th} = [(1/T_e)^* (\partial T_e/\partial x)]^1$ (18)

La conduction électronique a d'abord été étudiée dans le cas où le libre parcours moyen des électrons est inférieur à la longueur de gradient. Lorsque le cas opposé a été envisagé, les chercheurs ont pris appui sur les résultats déjà obtenus et les ont adaptés aux observations expérimentales.

a-1) Libre parcours moyen des électrons inférieur à la longueur de gradient

Si on considère un plasma totalement ionisé avec une population d'électrons maxwellienne et dont le libre parcours moyen λ_e est petit devant la longueur de gradient L_{th} , la théorie de Spitzer et Härm [21] s'applique correctement, le flux de chaleur q dans cette zone s'écrit alors :

$$\vec{q} = -K\vec{\nabla}T_e \tag{19}$$

avec:
$$K[J.K^{-1}s^{-1}cm^{-1}] = K_0 T_e^{\frac{5}{2}} = \frac{1,96.10^{-11}T_e^{\frac{5}{2}}[eV]}{Z * \ln \Lambda}$$
 (20)

Il est montré dans la théorie de Spitzer que le flux est dominé par les électrons possédant une vitesse égale à 2,5 fois la vitesse thermique moyenne [22]. Dans l'équation (20), le paramètre K est un paramètre local puisqu'il fait intervenir la température électronique du plasma qui est une grandeur locale. Lorsque le libre parcours moyen des électrons devient trop important par rapport au gradient thermique, (ie lorsque $\frac{\lambda_{ei}}{L_{th}} > 2.10^{-3}$ [23]), la

conduction ne se fait plus localement et la théorie de Spitzer n'est plus valable. Ainsi, des simulations effectuées avec FILM montrent que pour des impulsions de 60 fs et de 10 ps, les

longueurs de gradients sont respectivement de l'ordre de 0,04 μ m et de 1 μ m au maximum de l'impulsion ce qui implique que les libres parcours moyens doivent être inférieurs respectivement à 7,5.10⁻⁵ et 2.10⁻³ μ m pour appliquer la théorie de Spitzer. Sur la figure 11, nous avons reporté les libres parcours moyens des électrons thermiques en fonction de leur température ainsi que les limites d'application de la théorie de Spitzer. On peut voir que, pour une impulsion de 10 ps, les électrons d'énergie supérieure à 660 eV ne sont plus correctement traités ; pour une impulsion de 60 fs, cette limite concerne les électrons dès 130 eV.



Figure 11 : Libre parcours moyen des électrons en fonction de leur température et limite d'application de la théorie de Spitzer.

a-2) Libre parcours moyen des électrons supérieur à la longueur de gradient

Dans la configuration où le libre parcours moyen des électrons devient supérieur à la longueur de gradient, les flux prédits par la théorie de Spitzer et Härm sont surestimés au point qu'ils deviennent non physiques, c'est-à-dire qu'ils prennent des valeurs supérieures au cas où tous les électrons se déplacent dans le même sens. Le flux q_{fl} correspondant à ce cas est appelé *flux libre* et s'écrit :

$$q_{fl} = n_e v_{th}^3 m_e \tag{21}$$

où v_{th} est la vitesse thermique des ions.

Les expériences ont montré que le flux est limité à une fraction f maximale du flux libre comprise entre 0,03 et 0,1. Ce *flux de saturation* q_s s'écrit donc [24], [25] :

$$q_s = f q_{fl} = f m_e n_e v_{th}^3 \tag{22}$$

Dans de nombreux codes hydrodynamiques, on choisit comme valeur de flux :

$$q = \min(q_{spitzer}; q_s) \tag{23}$$

ou bien une moyenne harmonique ce qui permet une transition moins abrupte entre l'utilisation du flux de Spitzer et du flux de saturation :

$$\frac{1}{q} = \frac{1}{q_{spitzer}} + \frac{1}{q_s}$$
(24)

On peut également utiliser le calcul de flux délocalisé [26]. En ce cas, on calcule le flux de Spitzer en une position donnée mais en prenant en considération non la température en ce point mais son profil sur une zone longue de $2\lambda_{ei}$. Bien que cette méthode nécessite encore l'utilisation de la théorie de Spitzer, les résultats analytiques obtenus sont proches de ceux de la théorie de Fokker-Plank [27] qui résout numériquement l'équation cinétique des électrons.

b) Dépôt d'énergie par les électrons suprathermiques

Des électrons d'énergie largement supérieure à l'énergie thermique sont générés grâce à l'absorption résonnante et à l'effet Brunel. Ces électrons sont responsables de la création en couche interne de lacunes produisant l'émission de rayonnement X. Dans cette partie, nous nous attachons à donner quelques précisions concernant ces électrons, particulièrement sur les énergies qu'ils peuvent atteindre et sur la profondeur jusqu'à laquelle ils déposent leur énergie.

b-1) Energie des électrons suprathermiques

L'énergie des électrons suprathermiques détermine en partie la distance sur laquelle l'énergie est déposée dans la cible. Au niveau théorique, des lois ont été obtenues dans le but de d'estimer en fonction de $l\lambda^2$ l'énergie des électrons suprathermiques. Gibbon et Bell ont ainsi déterminé une loi analytique qui s'applique en gradient de densité non nul, pour des impulsions laser subpicosecondes et qui tient compte à la fois de l'absorption résonnante et de l'effet Brunel [28]. D'après cette loi, l'énergie moyenne T_h des électrons suprathermiques s'écrit :

$$T_h = 8 \left(\frac{I}{10^{16}} \lambda^2 \right)^{\frac{1}{3}}$$
 [keV] (25)

où $l\lambda^2$ est donné en W.cm⁻².µm².

Ce modèle est comparé sur le graphique suivant aux données expérimentales obtenues par différents laboratoires. L'écart maximal entre la loi et les résultats expérimentaux correspond à un facteur 2, cette loi permet donc une bonne estimation de l'énergie des électrons suprathermiques.



Figure 12 : Température des électrons suprathermiques. La courbe représente la loi théorique (25) et les points, les résultats expérimentaux obtenus par divers laboratoires. Les noms des laboratoires et les angles d'incidence sont reportés sur le graphique. Ces valeurs expérimentales sont issues de [29] pour le LLE, de [30] (7°) et [34] (60°) pour le LULI, [31] pour Jena, [32] pour le MBI et [33] pour l'INRS.

b-2) Diffusion des électrons dans la matière

Une étude exhaustive de la trajectoire des électrons suprathermiques est présentée dans [1] et [17], mais nous nous contentons ici de rappeler les principaux résultats. En se propageant dans la matière, les électrons subissent deux sortes de collisions :

- les collisions électrons-noyaux qui sont élastiques en raison de la grande différence de masse entre les électrons et les noyaux atomiques,
- les collisions électrons-électrons qui sont inélastiques.

De façon simplifiée, les collisions électrons-noyaux induisent dans les trajectoires électroniques des déviations majoritairement inférieures à 15°. Les électrons subissant un grand nombre de collisions élastiques peuvent donc être rétrodiffusés. Les collisions électrons-électrons induisent, quant à elles, les pertes d'énergie des électrons suprathermiques. Nous ne détaillons ici que les conséquences de ce dernier phénomène. Nous distinguons trois cas : le cas d'un solide froid, d'un solide faiblement ionisé et d'un plasma thermique.

a.1.1) Solide froid

La perte d'énergie d'un électron traversant un matériau est caractérisée par le pouvoir d'arrêt, c'est à dire par la perte d'énergie par unité de longueur. Comme un électron perd son énergie en excitant ou ionisant des atomes, le pouvoir d'arrêt fait intervenir les différentes sections efficaces d'excitation au sein d'un atome. Il s'écrit [35] :

$$\frac{dE}{dz} = \int_{fi} \sigma_{fi}(E_{fi}) E_{fi} \eta(E_{fi}) dE_{fi}$$
(26)

où *z* est la variable d'espace, E_{fi} l'énergie de transition entre l'état initial *i* et l'état final *f*, σ la section efficace collisionnelle d'excitation et η la densité d'états par unité de volume et d'énergie.

La formule analytique déduite de [35] est calculée par Bethe [36], nous donnons ici une formule simplifiée valable pour les électrons non-relativistes ce qui correspond à nos conditions expérimentales. Le pouvoir d'arrêt s'écrit alors [37] :

$$\frac{1}{\rho}\frac{dE}{dz}[eV.g^{-1}.cm^{2}] = 7,8.10^{10}\frac{Z}{A}\frac{1}{E}ln\left(1,166\frac{E}{l}\right)$$
(27)

où *E* est en eV, ρ est la densité du milieu, *I* est le potentiel d'ionisation moyen. Celui-ci est donné par :

$$\ln\left(\frac{I}{Ry}\right) = Z^{-1} \sum_{i,f} f_{if} \ln\left(\frac{E_{if}}{Ry}\right)$$
(28)

où Ry=13,6 eV, Z est le numéro atomique de l'élément considéré et f_{if} représente la force d'oscillateur de la transition entre les niveaux i et f. En raison de la dépendance de (28) avec ces forces d'oscillateurs, cette formule est difficile à évaluer. Cependant, des lois semiempiriques permettent d'obtenir la valeur du potentiel d'ionisation moyen. Pour $Z \ge 13$, cette loi s'écrit [38] :

$$I[eV] = 9,76Z + 58,8Z^{-0,19} \qquad [eV]$$
(29)

Ces différentes formules permettent d'estimer, en intégrant dz que l'on déduit de (27), la distance parcourue par l'électron pour perdre la totalité de son énergie. Nous représentons cette distance pour des électrons de différentes énergies sur la figure 13.

a.1.2) Solide faiblement ionisé

Dans le cas d'un solide ionisé, le ralentissement des électrons est différent en raison de la présence des électrons libres et du changement des potentiels d'ionisations. Le modèle de Thomas-Fermi permet de prendre en considération ces deux phénomènes. Dans ce modèle, une densité d'électrons incluant à la fois les électrons libres et liés et dépendant de la distance au noyau est introduite. Le potentiel moyen d'ionisation s'écrit alors [39] :

$$I(Z, Z^*) = aZ \frac{exp[1,29\left(\frac{Z^*}{Z}\right)^{\left(0,72-0,18\frac{Z^*}{Z}\right)}]}{\left(1-\frac{Z^*}{Z}\right)^{1/2}}$$
(30)

Dans cette expression, a=10 eV. En extrayant dz de (27) et en l'intégrant de l'énergie initiale des électrons à une énergie nulle, on obtient maintenant la distance parcourue par un électron dans un solide faiblement ionisé. La courbe correspondant à une ionisation moyenne de 5 est reportée sur la figure 13.



Figure 13 : Distance parcourue dans le silicium par les électrons en fonction de leur énergie pour deux états d'ionisation.

b.2.3) Plasma thermique

Dans le cas d'un plasma fortement ionisé, on peut se contenter d'évaluer les libres parcours moyens des électrons lors d'une collision électron-électron. Le libre parcours moyen λ_{ee} est donné par l'expression :

$$\lambda_{ee} = \overline{Z} \lambda_{ei} \tag{31}$$

où λ_{ei} est le libre parcours moyen lors d'une collision électron-ion et est donné par (17). Pour un électron de 10 keV, le libre parcours moyen est ainsi de 30 µm dans un plasma de densité n_e=10²³ cm⁻³ avec \overline{Z} =12. Pour une impulsion femtoseconde, le plasma thermique est de dimension largement inférieure ; au maximum de l'impulsion, l'expansion n'est que de l'ordre de 10 nm. On peut donc considérer que les électrons suprathermiques traversent le plasma thermique sans subir de ralentissement.

L'ensemble de ces considérations concernant la déviation des électrons ainsi que la

distance parcourue avant la perte totale de leur énergie permet de calculer leur trajectoire. Sur le schéma suivant, on peut voir représentées ces trajectoires calculées pour un code Monté-Carlo [17]. Elles sont accompagnées de quelques ordres de grandeurs de la zone dans laquelle les électrons sont diffusés. Les électrons possèdent une énergie initiale de 100 keV ce qui correspondrait, pour des intensités laser de l'ordre de 10¹⁷-10¹⁸ W.cm⁻², à la fin de queue de la distribution électronique.



Figure 14 : Trajectoire des électrons à l'intérieur d'un solide ionisé.

4) Le rayonnement X

L'énergie du laser est transférée au matériau principalement par absorption collisionnelle dans la zone sous-dense et par absorption résonante puis transport par les électrons suprathermiques dans la zone sur-dense. La présence de cette énergie dans le matériau induit différents processus d'excitation et d'ionisation. Dans la liste suivante, nous détaillons ces processus. Ils font intervenir des ions notés $N_{Z,i}$ de charge Z dans un niveau quantique i, la présence d'un astérisque en exposant indiquant que l'état considéré est excité. Nous présentons également les processus inverses permettant aux espèces considérées un retour vers un état plus stable :

- I. Processus d'ionisation et de recombinaison :
 - I.1. Ionisation collisionnelle et recombinaison à trois corps :
 - N_{Z,j} + e⁻_{coll} ↔ N_{Z+1,i} + e⁻_{coll} + e⁻, où e⁻_{coll} est l'électron entrant en collision avec l'ion

I.2. Photoionisation et recombinaison radiative :

• $N_{Z,j} + hv_{ji} \leftrightarrow N_{Z+1,i} + e^{-1}$

I.3. Recombinaison diélectronique et autoionisation (ou effet Auger) :

• $N_{Z+1,i} + e^- \leftrightarrow N^{**}_{Z,j}$

- II. Processus d'excitation et de désexcitation des ions :
 - II.1. Excitation et désexcitation collisionnelle :

• $N_{Z,i}$ + e_{coll} \leftrightarrow $N_{Z,j}^{*}$ + e_{coll}

II.2. Excitation et désexcitation radiative (ou émission spontanée) :

• $N_{Z,i} + hv_{ji} \leftrightarrow N_{Z,j}^{*}$

La désexcitation et la recombinaison radiative (I.3 et II.2) sont les phénomènes induisant l'émission d'un photon dans le domaine X. Selon la zone de plasma considérée, l'émission provient d'éléments plus ou moins ionisés. Dans les zones chaudes du plasma, le rayonnement provient d'états de charges important et est appelé *rayonnement thermique*. Dans les zones plus froides et plus profondes de la cible, l'émission est produite par des ions peu ionisés et correspond à un *rayonnement de type K* α . Bien que la propriété autoionisante ne soit explicitée que dans le processus I.3, les autres mécanismes peuvent faire intervenir ce type d'états.

Ce paragraphe décrit le rayonnement X émis dans les plasmas créés par interaction laser-matière. Les mécanismes d'émission ainsi que les caractéristiques du rayonnement sont détaillés.

a) Génération de rayonnement X

L'émission de rayonnement X est un processus permettant à un ion excité de retrouver un état de plus grande stabilité. La génération de ce rayonnement dans nos expériences se décompose en plusieurs étapes :

- l'ionisation en couche externe qui permet la création des différentes espèces ioniques,
- l'ionisation en couche interne qui induit la génération d'une lacune électronique,
- l'émission de rayonnement X proprement dite.

a-1) Création des différents états ioniques : ionisation en couche externe

La création d'espèces ioniques nécessite qu'une certaine quantité d'énergie soit transférée à l'élément dans son état fondamental. Nous présentons sur la figure 15 les différents niveaux d'ionisation du silicium. On peut observer que les énergies d'ionisation des premiers états de charge sont faibles et resserrées (8 à 33 eV). Les états d'ionisation

supérieurs nécessitent des énergies bien plus importantes. Pour passer de l'état ionique Si^{11+} à l'état Si^{12+} , il faut apporter une énergie de 524 eV au système. Sur cette figure sont aussi reportées les énergies de transition de la raie n=2 -> n=1 de l'ion Si^{13+} (transition Ly α) et des raies n=4, n=3 et n=2 vers n=1 de l'ion Si^{12+} (transitions He γ , He β , He α).



Figure 15 : Energie d'ionisation des différents états ioniques du silicium. Quelques transitions sont également représentées sur ce graphique. Données tirées de [40].

a.1.1) Photoionisation

Dans un diélectrique parfait, la bande de conduction est vide, de sorte qu'aucun électron libre n'est présent avant l'arrivée du laser. Celui-ci crée les premières charges libres par multiphotoionisation. L'énergie d'un photon du laser n'est en effet que de 1,55 eV alors qu'une première ionisation du silicium neutre demande une énergie de 8 eV. Cependant, l'éfficacité des processus multiphotoniques décroît rapidement avec le nombre de photons

concernés. Seuls les premiers états de charge peuvent être générés par ce mécanisme.¹



a.1.2) Ionisation collisionnelle :

*Figure 16 : Section efficace collisionnelle en fonction de l'énergie des électrons pour l'atome de silicium neutre (à gauche) et pour l'ion Si*¹¹⁺.

Une fois les premiers électrons libérés, ils participent à l'ionisation du matériau par ionisation collisionnelle des états de charge d'énergie d'ionisation inférieure à l'énergie cinétique de l'électron (processus I.1 de la liste précédente). La section efficace d'ionisation collisionnelle est donnée par [41] :

$$\sigma_{\text{lon.Coll}} = \frac{\pi a_0^2}{(E_l/E_H)^2} r_{nl} Q_{nl}^{\text{HR}} \left(\frac{E}{E_l}\right)$$
(32)

Dans cette équation, a_0 représente le rayon de Bohr et vaut 0,529 Å, E_H est l'énergie d'ionisation de l'atome d'hydrogène et vaut 13,6 eV, r_{nl} est le nombre d'électrons dans la configuration (nl) de départ, E_I est l'énergie d'ionisation de l'ion considéré et Q_{nl}^{HR} est la section efficace pour un ion hydrogénoïde, elle est calculée à partir de l'équation obtenue par un ajustement avec des données expérimentales [41] de la formule suivante :

$$Q_{nl}^{HR}(u) = \frac{1}{u} \left[\left(C_1 + \frac{C_2 + C_3 l}{n} \right) \ln u + \left(C_4 + \frac{C_5 + C_6 l}{n} \right) \left(1 - \frac{1}{u} \right) + \left(C_7 + \frac{C_8 + C_9 l}{n} \right) \left(1 - \frac{1}{u} \right)^2 \right]$$

Pour du silicium, l'ajustement est optimal pour C₁=1,5369, C₂=0,99656, C₃=-0,61916, C₄=2,4463, C₅=-2,4773, C₆=3,2151, C₇=-1,4512, C₈=1,7230, C₉=-0,47075.

Nous avons reporté sur la figure 16 les sections efficaces d'ionisation collisionnelle de l'atome Si et de l'ion Si¹¹⁺ en fonction de l'énergie cinétique des électrons. On observe que

¹ Dans le cas d'un métal, les premières ionisations peuvent être engendrées grâce aux collisions mettant en jeu les électrons libres initialement présents.

dans le cas des atomes neutres, l'énergie optimale permettant l'ionisation est de l'ordre de 18 eV, tandis que celle concernant l'ionisation d'un ion Si¹¹⁺ est de 1,5 keV. Ces valeurs indiquent bien que ces ions ne sont pas présents dans les mêmes zones du plasma et qu'il y a une distribution des états ioniques dominants en fonction de la température électronique. C'est ce que précise la figure 17 où l'on présente la fraction ionique des différents états d'ionisation en fonction de la température électronique de l'environnement. Chaque espèce ionique est tour à tour prédominante lorsque la température augmente. L'ion Si⁵⁺ est ainsi majoritaire pour une température de 50 eV tandis que l'ion Si¹²⁺ l'est vers 360 eV. Cette différence avec l'énergie optimale d'ionisation déduite de la figure 15 provient du fait que les électrons très énergétiques de la fin de la distribution de la population électronique entrent en jeu. En intégrant la section efficace d'ionisation collisionnelle pondérée par la distribution maxwellienne des températures électroniques, on montre qu'une température électronique égale à une fraction de l'énergie d'ionisation est en fait optimale pour voir l'apparition d'une espèce ionique [10]. Cette fraction est comprise entre 0,3 et 1 selon l'état de charge considéré.





Figure 17 : Fraction ionique des ions Si⁺ à Si¹³⁺ en fonction de la température électronique.

a.1.3) Autoionisation

Ce phénomène est décrit par l'équation I.3, l'état initial est un état suffisamment excité pour être au dessus de la limite d'ionisation de l'ion supérieur, il peut être créé par la plupart des processus présentés en introduction. La désexcitation peut se produire grâce à un électron qui, en se désexcitant vers un niveau plus stable, transfère une partie de son énergie à un autre électron. Ce dernier peut alors s'échapper du champ de l'ion.

a-2) Création d'une lacune en couche K

Plusieurs processus peuvent permettre la création d'une lacune en couche K (n=1) : l'ionisation et l'excitation collisionnelle ainsi que la photoionisation et la photoexcitation par rayonnement X.

a.2.1) Ionisation et excitation collisionnelle

Dans la zone froide, les seuls électrons capables de créer une lacune sont les électrons suprathermiques. Pour illustrer cela, nous considérons la section efficace d'ionisation collisionnelle en couche interne. Elle peut s'écrire [42] :

$$\sigma_{\kappa} = \frac{\pi e^4 z_k b_k}{(4\pi\varepsilon_0)^2 E E_{\kappa}} \ln\left(\frac{E}{E_{\kappa}}\right)$$
(33)

où E_K est l'énergie d'ionisation de la couche K exprimée en keV, z_K le nombre d'électrons dans la couche K c'est à dire 2 et b_k est un paramètre déterminé empiriquement et égal à 0,35. En unités pratiques, on obtient :

$$\sigma_{\kappa}[nm^{2}] = 4,5610^{-6} \frac{1}{EE_{\kappa}} \ln\left(\frac{E}{E_{\kappa}}\right)$$
(34)

Sur la figure 18, nous représentons cette section efficace d'ionisation collisionnelle en couche K pour le silicium, le potentiel d'ionisation correspondant étant de 1839 eV. L'ionisation est maximale pour des électrons de 5 keV, c'est à dire des électrons suprathermiques produits par absorption résonante ou par effet Brunel et dont l'énergie est trois fois supérieure au seuil d'ionisation.

Dans la zone chaude, la création de la lacune peut être induite soit par ionisation collisionnelle comme dans la zone froide, soit par excitation collisionnelle, l'électron incident amenant un électron de la couche K vers un niveau plus élevé.



Figure 18 : Section efficace d'ionisation collisionnelle en couche K.

a.2.2) Photoionisation et photoexcitation par rayonnement X

Le seuil d'ionisation d'un électron de couche interne se situant dans le domaine du keV, la photoionisation et photoexcitation ne sont possibles qu'avec des photons X produits lors de l'interaction. Les photons créés dans la zone chaude peuvent ainsi générer des lacunes en couche interne des ions de la zone froide et participer à la génération de rayonnement K α . Nous verrons dans le paragraphe suivant l'importance de ce phénomène.

a-3) Désexcitation

La désexcitation peut se faire de deux façons :

- par autoionisation (ou effet Auger),
- par désexcitation radiative.

Dans l'effet Auger, un électron de la couche L décroît vers la couche K pour combler la lacune et transfère son énergie à un autre électron qui quitte alors l'atome. Le processus d'émission spontanée donne, quant à lui, naissance au rayonnement X qui est donc par nature incohérent.

On peut déterminer l'importance relative de ces deux phénomènes grâce au *rendement de fluorescence* W_{K} qui donne la probabilité de désexcitation radiative de l'ion une fois la lacune créée. Ce rendement s'écrit [43] :

$$\left(\frac{W_{\kappa}}{1-W_{\kappa}}\right)^{1/4} = A + BZ + CZ^3$$
(35)

où : A=-0,007, B=0,0342, C=-1,14.10⁻⁶.

Dans le cas du silicium, l'effet Auger intervient pour combler la lacune créée en couche interne dans 95% des cas. Les lacunes créées en couche interne ne donnent donc naissance à l'émission d'un photon X que dans 5% des cas.

Grâce à cette information, on peut maintenant déterminer le poids de l'émission de rayonnement X K α généré grâce à des lacunes induites par photoionisation X (cf. § précédent). Ces dernières ne peuvent être créées que par les photons émis par la zone chaude. Dans nos expériences, le nombre de photons He α est en moyenne deux fois plus élevé que dans la raie K α . Si la totalité de ces photons induit une lacune en couche interne d'un atome neutre, seul 5% de ces lacunes sont comblées par une désexcitation radiative. Comme la raie He α contient deux fois plus de photons que la raie K α , cela signifie que seul 10% des raies K α émises induirait l'émission de photon X. Ce phénomène est donc négligé.

b) Caractéristiques de l'émission de rayonnement X

Le spectre de la figure 19, correspond à l'émission des différents ions dans un plasma créé par une impulsion de 120 fs et d'intensité sur cible de 2.10¹⁶ W.cm⁻². Ce spectre présente les raies typiques observées dans un spectre de silicium. Nous pouvons caractériser ce spectre par :

- la position des raies émises qui donnent l'information sur les espèces présentes dans le plasma,
- le rapport relatif des raies,

- leur largeur,
- leur durée d'émission.

Dans ce paragraphe, nous présentons ces différentes caractéristiques pour un plasma de silicium.



Figure 19 : Spectre expérimental émis par un plasma de silicium avec une impulsion de 120 fs et d'intensité sur cible de 2.10¹⁶ W.cm⁻². Tiré de [1].

b-1) Position des raies

Le spectre de raies des émissions correspondant à des transitions d'un électron de la couche L vers la couche K se situe entre 6,18 Å et 7,15 Å (soit entre 2008 eV et 1713 eV) Les raies d'émission des différents ions sont caractéristiques de leur état de charge. Lorsque l'état de charge augmente, les transitions sont de plus en plus énergétiques (dans le cas d'un ion hydrogénoïde, les énergies de transition ont une dépendance en Z^2). Cet effet est assez faible lorsque l'on retire des électrons de la couche 3 mais s'accentue dès que le premier électron de la couche 2 est enlevé puis lorsque l'on considère l'ion hydrogénoïde. Ce phénomène est illustré sur le graphique suivant où l'on peut observer les deux discontinuités que nous venons d'expliquer.



Figure 20 : Longueur d'émission et énergie moyenne des différents ions présents dans un plasma de silicium. Valeurs tirées de [44].

b-2) Largeur des raies

En raison de la durée de vie limitée des atomes ou ions excités, les raies d'émission possèdent une largeur naturelle. Pour des transitions vers le niveau fondamental, cette largeur à mi-hauteur est donnée par la formule :

$$\Delta E_{nat} = h \frac{\gamma}{2\pi}$$
(36)

où $\gamma = \frac{1}{\tau_i}$ avec $\frac{1}{\tau_i} = \sum_{n < i} A_{in}$

avec τ_{ι} représentant la durée de vie de l'atome excité et A_{in} la probabilité d'émission spontanée. Pour une transition L->K au sein d'un ion héliumoïde de silicium, cette probabilité est de l'ordre de 10^{13} s⁻¹. Ce qui correspond à une largeur à mi-hauteur 6,6.10⁻³ eV. Dans la pratique, cette largeur est augmentée par l'élargissement Doppler qui domine jusqu'à une densité de 10^{20} cm⁻³ à nos températures, par l'effet Stark qui est prépondérant après cette valeur et par les effets d'absorption et réémission du plasma traversé. Nous présentons ici ces trois phénomènes.

b.2.1) Elargissement Doppler

L'agitation thermique des ions induit des décalages de fréquences aussi bien vers le bleu que vers le rouge. Ces décalages impliquent un profil de raie inhomogène. Si l'on considère une distribution maxwellienne des vitesses des ions, ce profil est de type gaussien

et l'élargissement
$$\frac{\Delta E_D}{E_{if}}$$
 à mi-hauteur peut s'écrire :

$$\frac{\Delta E_{D}}{E_{if}} = \frac{v}{c} = \left(\frac{2k_{B}T_{i}}{m_{i}c^{2}}\right)^{1/2} \text{ en unités SI}$$
(37)

où *v* est la composante de la vitesse des ions dans la direction du détecteur, *c* la vitesse de la lumière, T_i la température ionique, m_i la masse des ions, ΔE_D est l'élargissement de la transition, E_{if} l'énergie de la transition considérée et k_B la constante de Boltzmann. En unités pratiques, on obtient :

$$\frac{\Delta E_D}{E_{if}} = 4,616.10^{-5} \left(\frac{T_i}{A}\right)^{1/2}$$
(38)

où T_i est en eV et A est le nombre de masse de l'espèce ionique considérée. Pour un ion donné, seule la température influe sur cet élargissement.

Dans nos expériences, le nombre de masse est de 28 ; si l'on considère que la température ionique est égale à la température électronique et qu'elle est de 500 eV, l'élargissement pour la transition He α (2p->1s) d'énergie E_{if} = 1865 eV est de 0,36 eV. Cet élargissement est largement supérieur à la largeur naturelle de la raie.

b.2.2) Elargissement Stark



Figure 21 : a) Effet de l'élargissement Stark ionique : le champ induit par les ions perturbateurs déplace une partie des raies d'émission. b) Effet de l'élargissement Stark électronique : les collisions avec les électrons diminuent la durée de vie des atomes excités et élargissent chacune des composantes Stark ioniques. Le profil de raie final est indiqué en noir.

Cet élargissement est la conséquence des actions du champ des ions et électrons environnants sur l'ion émetteur de la radiation considérée. Ces deux contributions, ioniques et électroniques n'interviennent pas de la même façon sur l'élargissement du profil.



Figure 22 : Levée de dégénérescence des niveaux en présence d'un champ électrique.

Le champ créé par les ions est considéré comme statique car leur mouvement est lent par rapport à la durée d'émission du rayonnement. Cette approximation est appelée *approximation quasi-statique*. Le champ des ions environnants, appelés *perturbateurs*, provoque une levée de dégénérescence : les niveaux entre lesquels se produisent les transitions se divisent et l'émission se fait alors à une énergie différente (cf. figure 21.a et figure 22). Sur un grand nombre d'ions et pour des champs subis différents, on assiste à un élargissement des raies émises par le plasma. L'élargissement Stark ionique pour un ion héliumoïde peut se calculer à partir de [45] :

$$\Delta E = 13,6 * 6n(n-1) \frac{E}{Z^* - 1} \text{ (eV) avec } E = 4,18\overline{Z}^{1/3} \left(\frac{n_e}{6,749.10^{24}}\right)^{2/3}$$
(39)

où *E* est le champ le plus probablement subi par un ion du plasma, *n* est le niveau supérieur de la transition, *Z** la charge de l'ion considéré et \overline{Z} la charge moyenne du plasma environnant. Si on considère un ion de charge *Z**=12 dans un plasma de densité électronique *n*_e égale à 10²² cm⁻³ tel que \overline{Z} =12,6, on obtient un élargissement par effet Stark ionique de 5,6 eV pour la raie He β . On remarque donc qu'avec une densité de 10²² cm⁻³, l'effet Stark conduit à un élargissement bien plus important que l'effet Doppler.

L'interaction entre un électron et l'ion émetteur est, quant à elle, de très courte durée en raison de la vitesse des électrons. On se place dans l'hypothèse de *l'approximation d'impact* qui considère que l'interaction est trop brève pour que la position des niveaux électroniques de l'ion émetteur soit perturbée. L'élargissement provient alors uniquement des nombreuses collisions des électrons avec l'ion qui ont pour conséquence de diminuer la durée de vie de l'atome dans son état excité. Chacune des raies séparées par l'effet Stark est alors élargie selon l'équation donnée par [10] modifiée par la constante d'écran dans le cas d'un héliumoïde :

$$\Delta v_{e}(eV) \cong 1,3.10^{-21} \frac{n^{4}}{(Z-\alpha)^{2}} \frac{n_{e}[cm^{-3}]}{T_{e}^{1/2}[eV]}$$
(40)

où α est la constante d'écran et *n* le niveau de départ de l'électron.

Pour une transition He β , la constante d'écran est de 0,85 ; dans le cas d'un plasma de densité électronique de 10²² cm⁻³ et de température T_e égale à 500 eV, on obtient un élargissement de 0,27 eV, ce qui est bien plus faible que l'élargissement Stark ionique.

Ces deux effets sont d'autant plus importants que l'on considère des transitions mettant en jeu des électrons de couche externes. Ces derniers sont en effet plus sensibles à l'action d'un champ extérieur puisqu'ils sont plus proches. Cela explique pourquoi l'élargissement est plus important pour les raies β que pour les raies α . L'élargissement Stark ionique dans le cas d'une raie He α n'est en effet que de 1,87 eV d'après (39). Cette dépendance de l'effet Stark avec la densité électronique en fait un très bon outil pour déterminer cette dernière en comparant la largeur des raies expérimentales avec la largeur de raies synthétiques calculées pour une densité donnée.

b.2.3) Transfert de rayonnement

Les raies émises par les différentes espèces ioniques sont détectées après avoir traversé le plasma. Le profil d'absorption étant similaire au profil d'émission, l'absorption est plus efficace pour les longueurs d'onde centrales. Après la traversée du plasma, la différence d'intensité entre le centre et les ailes de la raie est donc moins importante et pour cette raison, la largeur à mi-hauteur de la raie est augmentée (cf. figure 23). Le comportement du milieu face à une sollicitation radiative est décrit par son opacité et communément appelé pour cette raison phénomène d'*opacité*.



Figure 23 : Elargissement d'une raie lors de la traversée d'une section isolée de plasma.

Le flux d'énergie I(v,D) sortant du plasma s'obtient en effectuant le bilan énergétique sur une tranche de plasma dx. Si on considère une raie correspondant à la transition entre les niveaux i et j (i>j) et traversant une tranche de plasma homogène de longueur D, on obtient :

$$I(v, D) = S(v)[1 - \exp(-\chi(v)D)]$$
(41)

où S(v) est le terme source défini par S(v) = $\epsilon(v)/\chi(v)$ avec les coefficients d'émission et d'absorption du rayonnement $\epsilon(v)$ et $\chi(v)$ tels que $\epsilon(v) \propto A_{ij} \Phi_e(v)$ et $\chi(v) \propto B_{ij} \Phi_r(v)$. Dans ces deux relations A_{ij} et B_{ij} sont les coefficients d'Einstein d'émission et d'absorption, Φ_e et Φ_r sont les profils d'émission et d'absorption de la transition considérée.

Si $\chi(v)D$ <<1, le flux d'énergie s'écrit : l(v,D)= $\varepsilon(v)D$, l'absorption n'intervient pas et la raie conserve son profil d'émission. Le plasma est considéré comme optiquement mince.

Si $\chi(v)D>>1$, le flux d'énergie s'écrit : $I(v,D)=S(v)=\varepsilon(v)/\chi(v)$. Lorsque $\Phi_e=\Phi_r$, la distribution en fréquence de I(v,D) est celle du corps noir. Sur la largeur d'une raie, la variation de cette distribution est faible et on obtient un profil plat.

Raie	A (s ⁻¹)
Ηεα	3.8.10 ¹³
Ηeβ	10 ¹³
Ηeγ	4,3.10 ¹²

Tableau 1 : Coefficients d'émission pour les raies $He\alpha$, $He\beta$, $He\gamma$.

Les raies correspondant à des transitions entre un niveau élevé et le niveau fondamental sont moins sensibles au phénomène d'opacité car les valeurs du coefficient d'émission et donc d'absorption décroissent lorsque le niveau supérieur de la transition augmente (cf. tableau 1). Les raies He β et He γ sont donc moins élargies que la raie He α . Sur la figure 24 sont représentées les largeurs des raies He α , He β et He γ normalisées à la largeur obtenue pour une longueur de plasma de 1 µm. On observe bien un plus faible élargissement pour les transitions de niveau supérieur élevé. Ainsi, le phénomène d'opacité est une seconde raison pour choisir la raie He β ou He γ plutôt que la raie He α pour déterminer la densité électronique.



Figure 24 : Largeurs des raies He α , He β et He γ en fonction de la longueur de plasma traversée. Les largeurs sont normalisées à la largeur obtenue pour une longueur de plasma de 1 μ m.

b-3) Rapport des raies

Les raies du spectre de la figure 19 n'ont pas la même intensité, ceci est dû au fait que les éléments d'un état ionique donné sont plus ou moins prédominants suivant la température de la zone du plasma dans laquelle ils se trouvent. C'est ce que l'on peut

observer sur la figure 25 où, lorsque la température augmente, on observe la disparition progressive des états de charge les plus faibles et l'apparition simultanée des états de charge importants. En utilisant ces rapports entre l'intensité des raies pour une densité donnée, on peut déterminer la température électronique grâce au rapport de ces raies. Sur figure 25, nous avons représenté le rapport entre la raie Ly α et les raies satellites héliumoïdes situées entre 6,243 et 6,264 Å pour différentes densités électroniques. Nous pouvons ainsi observer la dépendance du rapport de ces raies en fonction de la température.



Figure 25 : Rapport des aires des raies $Ly\alpha$ et héliumoïdes (émises par l'ion Si¹²⁺) en fonction de la température pour différentes densités.

b-4) Durée d'émission

La durée d'émission des raies dépend de leur zone de provenance. Ainsi dans la zone de plasma thermique, l'émission d'une raie donnée est possible tant que la température est suffisante pour que l'espèce ionique émettant la raie considérée existe et soit excitée. La durée d'émission dans cette zone dépend donc de la durée de refroidissement du milieu qui se fait par l'intermédiaire de l'expansion du plasma et de la conduction thermique vers l'intérieur de la cible.

Ci-dessous, nous présentons un spectre d'aluminium résolu en temps réalisé avec une impulsion à 1,053 μ m d'une durée de 400 fs et permettant d'atteindre une intensité de 2.10¹⁶ W.cm⁻² [46]. Pour résoudre temporellement ce spectre, une caméra à balayage de fente (cf. chapitre 5) de résolution 2 ps a été utilisée. On observe que la durée de l'émission à mi-hauteur est de 8 ps pour la raie He α et est sensiblement plus courte pour la raie Li-like (5 ps).



Figure 26 : Spectre résolu en temps des raies He α , Li-like et Be-like de l'aluminium.

Dans les zones plus froides, la création des lacunes est engendrée par les électrons suprathermiques. La durée d'émission des raies K α dépend donc de la durée durant laquelle ces électrons sont produits, mais également du temps que mettent les électrons à perdre toute leur énergie grâce aux collisions. Les électrons suprathermiques sont produits grâce à l'absorption résonnante et à l'effet Brunel, donc uniquement pendant la durée de l'impulsion qui est de 60 fs dans notre cas. C'est donc le temps d'arrêt des électrons suprathermiques qui est le facteur limitant la durée d'émission.



Figure 27 : Durée d'émission de la raie $K\alpha$.

Sur la figure 27 [47], on peut observer la durée de décroissance des rayons X diffractés par un cristal au cours d'une expérience de fusion non-thermique. Les différents point de la courbe ont été obtenus lors d'une expérience pompe-sonde durant laquelle on faisait varier le délai entre la pompe optique et la sonde de rayonnements X. On peut ainsi retracer point par point l'évolution du phénomène. La durée du phénomène convoluée à la durée de la sonde X est de 350 fs. On en déduit que la durée d'émission est inférieure à 350 fs. C'est de là que vient tout l'intérêt porté au rayonnement X généré par interaction laser ultracourt-matière.

c) Optimisation du rayonnement X

Diverses méthodes ont été mises en œuvre pour optimiser le flux de photons X générés. Deux solutions ont été principalement étudiées :

- la modification de l'état de surface de la cible avec une pré-impulsion,
- l'utilisation de matériaux présentant une importante porosité ou une structure de surface périodique.

Dans ce travail, nous nous sommes intéressés aux matériaux poreux [48], [49], [50]. Les matériaux poreux présentent une faible densité moyenne mais une forte densité locale. Leur structure peut être assimilée à des réseaux d'agrégats de matière dense. Les expériences ont montré que l'augmentation de l'absorption était imputable à un piégeage de la lumière dans le matériau. En raison de la porosité, la lumière pénètre plus loin dans le matériau et les diffusions sont alors piégées par la présence des agrégats de matière dense qui à chaque diffusion absorbe une partie de l'énergie lumineuse. Ainsi, une plus grande pénétration du laser a été observée, avec une impulsion de 130 fs et de 10¹⁴ W.cm⁻²: la pénétration atteint 25-30 µm [48]. Les mesures de réflectivité prouvent par ailleurs que la lumière réfléchie par le matériau est moins importante. Grâce à ce mécanisme le chauffage est volumique et non surfacique comme dans le cas d'une cible plane. D'autre part, des effets locaux induits par la petite taille des structures vis-à-vis de la longueur d'onde du laser sont possibles. Ainsi, en est–il des effets de pointe augmentant localement le champ électrique.

5) Les codes de simulation

Un certain nombre de codes ont été créés en vue d'une part de déterminer les conditions de l'interaction et d'autre part de reproduire les spectres expérimentaux. Dans ce but, nous avons respectivement utilisé le code hydrodynamique FILM et le code TRANSPEC. Ces deux codes sont présentés ci-dessous. Quelques simulations sont ensuite

effectuées pour des impulsions femtoseconde et picoseconde.

a) Simulations hydrodynamiques : FILM

a-1) Description du code

Ce code [51] permet de déterminer l'évolution de la température et de la densité ionique ou électronique, de l'état d'ionisation et de la vitesse des particules en fonction du temps et de la position dans le plasma. Pour cela, il résout l'équation d'onde de façon à déterminer l'absorption de l'impulsion. Il utilise ensuite les équations d'hydrodynamique, c'est-à-dire les équations de conservation de la matière, de conservation de la quantité de mouvement et d'évolution des températures électronique et ionique. La conduction électronique peut être traitée par le flux délocalisé, l'utilisation de (23) ou de la moyenne harmonique (24). Par la suite, nous avons choisi d'utiliser le flux délocalisé. Seules sont considérées les absorptions collisionnelle et résonante, l'absorption par effet Brunel n'est pas prise en considération mais ainsi que nous l'avons montré, cette absorption est faible dans notre cas. Comme ce modèle ne tient pas compte de la photoionisation qui permet à un diélectrique de libérer les premiers électrons, il n'est normalement pas destiné à traiter notre cas mais celui des métaux. Il décrit donc mal le début de l'interaction de notre cible diélectrique avec un laser mais demeure valide après l'initiation des premières ionisations.

a-2) Profils créés par des impulsions de 60 fs et 1 ps

Les profils de densité et température présentés ici concernent des impulsions sans piédestal, de durées 60 fs et 1 ps et d'intensités respectives 10¹⁷ W.cm⁻² et 6.10¹⁵ W.cm⁻². en polarisation P, à 45°. Ces profils sont représentés sur la figure 28.

Le cas d'une impulsion de 60 fs a été détaillé au paragraphe 1, nous ne rappelons ici que les résultats principaux. Pour une telle impulsion, l'expansion est telle que la densité critique se trouve à une distance de 250 Å du maximum de densité. Cette distance étant petite devant la longueur d'onde, l'interaction se fait directement avec la partie dense de la cible par l'intermédiaire de l'onde évanescente. La température atteint des valeurs importantes à des densités élevées : on relève ainsi sur le profil une température électronique de 600 eV à une densité électronique de 10²³ cm⁻³.



Figure 28 : Profils de densité et de température au maximum d'une impulsion sans ASE pour des durées de 60 fs et 1 ps et des intensités respectivement égales à 10¹⁷ W.cm⁻² et 6.10¹⁶ W.cm⁻² (même énergie pour les deux impulsions).

Les profils obtenus pour une impulsion de 1 ps présentent une expansion plus importante. La densité critique se trouve maintenant à 3100 Å du maximum de densité électronique ce qui empêche l'interaction directe du faisceau avec la partie dense comme l'explicite également la figure 2. La température de 500 eV est ainsi atteinte à une densité qui n'est que de 4,4.10²¹ cm⁻³.

b) Simulation des spectres : TRANSPEC

b-1) Description du code

Le code utilisé pour reproduire les spectres expérimentaux est un code collisionnelradiatif instationnaire et inhomogène portant le nom de TRANSPEC [52], [53]. Il résout les équations de population pour chaque niveau ionique en tenant compte des différents processus peuplant et dépeuplant un niveau d'ionisation *i*. Les processus intervenant dans ce modèle sont ceux cités dans l'introduction de la partie 4. Pour des ions d'état de charge *i* et d'excitation *j*, il faut résoudre le système suivant :

$$\frac{dn_{i}}{dt} = \begin{cases} Taux \ des \ processus \ qui \\ peuplent \ le \ niveau \ i \end{cases} - \begin{cases} Taux \ des \ processus \ qui \\ dépeuplent \ le \ niveau \ i \end{cases}$$

A ce système s'ajoute l'équation de conservation de la charge qui ferme le système :

$$\sum_{i=0}^{Z} Z_i n_i = n_e$$

où Z_i est l'état de charge associé à l'état d'ionisation n_i.

Dans le cas de TRANSPEC, les états ioniques pris en compte sont les états 5 à 14. Ce code inclut dans son calcul des profils de raies les différentes sources d'élargissement du paragraphe b.2.2) de ce chapitre et traite également la réabsorption de l'émission. Il a surtout la particularité de traiter simultanément les niveaux atomiques proches en les regroupant en *superconfiguration* pouvant comprendre plusieurs milliers de niveaux (cf. figure 29). Cela permet de prendre en considération un très grand nombre de niveaux tout en limitant la complexité du calcul. Un des grands intérêts est de pouvoir déterminer simplement les niveaux d'énergies des états de charge comportant une lacune en couche interne. Comme TRANSPEC peut en outre tenir compte d'une population d'électrons suprathermiques d'une énergie donnée, il peut produire des spectres synthétiques de rayonnement provenant de ces états de charge.



Figure 29 : Principe du traitement des échanges entre populations pour le code TRANSPEC. Les niveaux proches sont regroupés en superconfigurations notées S1, S2 ...

b-2) Spectre émis par une impulsion de 60 fs

Pour illustrer l'utilisation du code comme postprocesseur de FILM, il est intéressant de générer les spectres synthétiques induits par l'impulsion de 60 fs du paragraphe a-2). La zone choisie pour cette simulation est constituée d'une seule cellule spatiale utilisée par FILM dans ses calculs. Elle présente au maximum de l'impulsion une densité et une température électronique respectivement égales à 10²³ cm⁻³ et 640 eV ce qui induit un état d'ionisation moyen de 12.



Figure 30 : Spectre émis entre 6,12 et 7 Å pour une impulsion de 10¹⁷ W.cm⁻² et 60 fs – a) 10 fs après le maximum de l'impulsion b) 300 fs après le maximum de l'impulsion.

Les spectres obtenus 10 fs et 300 fs après le maximum de l'impulsion sont présentés sur la figure 30. Les raies He α et Ly α ainsi que leur satellites sont émises. L'intensité de l'émission des raies He α et Ly α est maximale 10 fs après le maximum de l'impulsion (cf. figure 31) puis décroît rapidement d'un ordre de grandeur en 100 fs. L'instantanéité et la brièveté de l'émission s'expliquent par le fait qu'une seule cellule spatiale est prise en

compte dans la simulation ainsi que par la forte densité du milieu à l'arrivée de l'impulsion (cf. figure 32). Cela permet en effet un chauffage immédiat mais également un refroidissement très rapide en raison de la bonne conduction et de la rapide expansion générée par la forte densité d'énergie dans la matière. On peut remarquer que ces durées d'émission sont plus courtes que les résultats expérimentaux présentés précédemment. Ceci peut être attribué au fait que dans les expériences, l'impulsion laser est précédée de l'émission spontanée amplifiée qui détend prématurément la cible. Nous présentons plus en détail les profils réels des impulsions par la suite.



Figure 31 : Evolution temporelle de l'intensité des raies He α et Ly α .



Figure 32 : Evolution temporelle de la densité électronique.

Conclusion

Conclusion

Ce chapitre a permis de présenter les mécanismes menant à l'émission de rayonnement X en régime femtoseconde. L'absorption collisionnelle durant l'impulsion induit un chauffage important dans une zone dense tandis que les absorptions résonante et Brunel permettent la création des électrons suprathermiques. La création de lacunes en couche interne, principalement par excitation collisionnelle dans la zone sous-dense et ionisation collisionnelle dans la zone dense du plasma donnent respectivement naissance au rayonnement thermique et K α . Ce rayonnement peut être étudié en fonction des conditions de plasma et plus précisément de la densité et température électronique. Ce type d'étude sera conduit pour l'interprétation de nos expériences. Des simulations ont permis de présenter les plasmas générés par des impulsions ne présentant aucun défaut ainsi que les spectres émis par ces plasmas. Elles ont confirmé une émission provenant de zones très denses et fournissent une référence pour le travail effectué par la suite.

Références du chapitre 1

- [1] Serena Bastiani, Etude et optimisation de l'émission X d'un plasma créé par une impulsion laser ultra-courte, Thèse de Doctorat de l'Ecole Polytechnique, soutenue le11 juin 1998.
- [2] W. L. Kruer, The physics of laser plasma interactions, Addison-Wesley publishing company, 1988.
- [3] Florence Falliès, Etude numérique et expérimentale de l'interaction d'une impulsion laser subpicoseconde avec une cible solide, Thèse de doctorat, Université de Paris VI (1994)
- [4] E.G. Gamaly, Ultrashort powerful laser matter interaction : Physical problems, models, and computations, Laser Part. Beams, Vol. 12, pp185-208, 1994.
- [5] W. Rozmus and V. T. Tikhonchuk. Skin effect and interaction of short laser pulses with dense plasmas, Phys. Rev. A, vol. 42, issue 12, pp 7401–7412 (1990)
- [6] W. L. Kruer and Kent Estabrook, J×B heating by very intense laser light, Phys of Fluids, Volume 28, Issue 1, pp. 5-438 (1985).
- [7] P. J. Catto and Richard M. More, Sheath inverse bremsstrahlung in laser produced plasmas, Phys. of Fluids, Volume 20, Issue 4, pp. 704-705, (1977).
- [8] T. P. Hughes, « An introduction to the absorption of laser light in plasmas", in Laser-Plasma Interactions – Proceedings of the twentieth Scottish Universities Summer School in Physics, édité par R. A. Cairns et J. J. Sanderson, p. 1-90, St. Andrews, Scotland, (1980).
- [9] RM More, Z. Zinamon, KH Warren, R. Falcone, M. Murnane, "Heating of Solids with short Laser Pulses," Jour. de Physique 49 (colloque C7) 43, 1988.
- [10] Philippe Alaterre, Spectroscopie X des plasmas créés par laser; application à la détermination des gradients de densité et de température, thèse de doctorat de l'Université Paris VI, 1984.
- [11] Ginzburg, V.L., The properties of electromagnetic waves in plasma, Pergamon, New York, 1964.
- [12] Denisov, N.G., On a singularity of the field of an electromagnetic wave propagated in an inhomogeneous plasma, Sov. Phys., JETP Vol.4, pp 544, 1957.
- [13] W. L. Kruer, Theory and simulation of laser plasma coupling; in Laser plasma interactions, (R.A Cairns and J. J. Sanderson, eds.), SUSSP Publications, Edinburgh, 1980.
- [14] K. G. Estabrook, E. J. Valeo, and W. L. Kruer, Two-dimensional relativistic simulations of resonance absorption, Phys. Fluids, vol. 18, pp 1151-1159, 1975.
- [15] K. Estabrook, E. J. and W. L. Kruer, Properties of Resonantly Heated Electron Distributions, Phys. Rev. Lett. Vol. 40, pp 42-45, 1978.
- [16] W. L. Kruer, Phys. Fluids, Wavebreaking amplitudes in warm, inhomogeneous plasmas, vol. 22, pp 1111-1114, 1979.
- [17] Antoine Rousse, Génération d'électrons rapides et émission dans l'interaction d'une impulsion laser sub-picoseconde et intense avec une cible solide, Thèse de doctorat de l'Ecole Polytechnique, soutenue le 12 octobre1994.
- [18] F. Brunel, Not-so-resonant, resonant absorption, Phys. Rev. Lett, vol. 59, pp 52-55, 1987
- [19] F. Brunel, Anomalous absorption of high intensity subpicosecond laser pulses, vol. 31, pp. 2714-2719, 1988.
- [20] Bonnaud,-G.; Gibbon,-P.; Kindel,-J.; Williams,-E. Laser interaction with a sharp-edged overdense plasma, Laser Part. Beams, vol. 9, issue 2, pp 339-54, 1991.
- [21] L. Spitzer, Physics of fully ionized gases Interscience Publishers, New York, 1962.
- [22] Lyman Spitzer, Jr. and Richard Härm, Transport Phenomena in a Completely Ionized Gas, Phys. Rev. Vol. 89, Issue 5, pp 977–981, 1953.
- [23] Caroline Quoix, Etude des propriétés optiques et de l'hydrodynamique de plasmas produits par impulsion laser subpicoseconde sur cible. Thèse de doctorat de l'université Paris VI soutenue le 22 juin 1998.
- [24] Delettrez J., Thermal electron transport in direct-drive laser fusion, Can. J. Phys., Vol 64, pp 932, 1986.
- [25] Mora P., Luciani J.F., Non local electron transport in laser created plasmas, Laser and particle beams, Vol. 12, n°3, pp 387, 1994.
- [26] J. F. Luciani and P. Mora, J. Virmont, Nonlocal Heat Transport Due to Steep Temperature Gradients, Phys. Rev. Lett. 51, 1664–1667 (1983).
- [27] J. P. Matte, J. Virmont, Electron Heat Transport down Steep Temperature Gradients, Phys. Rev. Lett. 49, 1936–1939 (1982).

- [28] P. Gibbon, A. R. Bell, Collisionless absorption in sharp-edged plasmas, Phys. Rev. Lett, vol. 68, issue 10, pp 1535–1538, (1992).
- [29] H. Chen, B. Soom, B. Yaakobi, S. Uchida, and D. D. Meyerhofer, Hot-electron characterization from K alpha measurements in high-contrast, p-polarized, picosecond laser-plasma interactions, Phys. Rev. Lett, vol. 70, pp 3431–3434 (1993).
- [30] A. Rousse, P. Audebert, J. P. Geindre, F. Falliès, and J. C. Gauthier, Efficient K alpha xray source from femtosecond laser-produced plasmas, Phys. Rev. E, vol. 50, 2200– 2207 (1994).
- [31] U. Teubner, I. Uschmann, P. Gibbon, D. Altenbernd, and E. Förster, Absorption and hot electron production by high intensity femtosecond UV-laser pulses in solid targets, Phys. Rev. E, vol. 54, 4167–4177 (1996).
- [32] M. Schnürer, M. P. Kalashnikov, P. V. Nickles, Th. Schlegel, W. Sandner, N. Demchenko, R. Nolte and P. Ambrosi, Hard x-ray emission from intense short pulse laser plasmas, Phys. Plasmas, Volume 2, Issue 8, pp. 3106-3110, (1995).
- [33] Z. Jiang, J. C. Kieffer, J. P. Matte, M. Chaker, O. Peyrusse, D. Gilles, G. Korn, A. Maksimchuk, S. Coe, and G. Mourou, X-ray spectroscopy of hot solid density plasmas produced by subpicosecond high contrast laser pulses at 10¹⁸–10¹⁹ W/cm², Physics of Plasmas, Volume 2, Issue 5, pp. 1702-1711 (1995).
- [34] S. Bastiani, A. Rousse, J. P. Geindre, P. Audebert, C. Quoix, G. Hamoniaux, A. Antonetti, and J. -C. Gauthier, Experimental study of the interaction of subpicosecond laser pulses with solid targets of varying initial scale lengths, Phys. Rev. E 56, 7179–7185 (1997).
- [35] Mitio Inokuti, Inelastic Collisions of Fast Charged Particles with Atoms and Molecules— The Bethe Theory Revisited, Rev. Mod. Phys. 43, 297–347 (1971).
- [36] H. A. Bethe, in Handbuch der Physik, (Springer, Berlin, 1933), vol. 24, pp 273.
- [37] L. Reimer, Scanning electron microscopy, Spinger series in optical sciences (Springer– Verlag, Berlin, 1985), Vol. 45.
- [38] W. Leo, Techniques for nuclear and particle experiments, (Springer-Verlag, Berlin 1994).
- [39] R. More dans « Atomic et molecular physics og controlled thermonuclear fusion » ed. C. Joachin D. Post, Plenum Publishing Corp. (1983), p 399.
- [40] Raymond L. Kelly, Atomic and ionic spectrum lines below 2000 angstroms Part 3, Finding list hydrogen through krypton, Journal of physical and chemical reference data. (vol.16, suppl.1), American Institute of Physics New York (lieu d'edition) 1987.

- [41] R. E. H. Clark, J. Abdallah, JR. and J. B. Mann, Integral and differential cross sections for electron impact ionization, The Astr. J., 381:597-600 (1991).
- [42] J. Philibert, R. Tixier : Some problem with quantitative electron probe microanalysis, In quantitative Electron Probe Miccroanalysis, ed. By K. F. J. Heinrich, Nat. Bur. Stand. Spec. Publ. 298, Washington 1968, p 13.
- [43] T. Tabata, R. Ito et S. Osake, Nucl. Instr. And Meth., 94, 509-513 (1971).
- [44] Lewis L. House, Theoritical wavelengths for Kα-Type X-ray lines in the spectra of ionized atoms (carbon to copper), The Astr. J. Supp. Ser. N°155, Vol.18, pp 21-45 (1969).
- [45] R. D. Cowan, The theory of atomic structure and spectra. University of California Press, Verkeley, 1981.
- [46] J. C. Kieffer, M. Chaker, J. P. Matte, H. Pépin, C. Y. Côté, Y. Beaudoin, T. W. Johnston, C. Y. Chien, S. Coe, G. Mourou and O. Peyrusse, Ultrafast x-ray sources, Phys. Fluids B, 5, p 2676-2681 (1993).
- [47] A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Förster, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier & D. Hulin, Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution, Nature, 410, 65 (2001).
- [48] Tadashi Nishikawa, Hidetoshi Nakano, Hyeyoung Ahn, Naoshi Uesugi, and Tadashi Serikawa, X-ray generation enhancement from a laser-produced plasma with a porous silicon target, Appl. Phys. Lett. 70, 1653 (1997)
- [49] T. Nishikawa, H. Nakano, N. Uesugi, et al., Porous layer effects on soft X-ray radiation emitted from a plasma generated by 130-fs laser pulses irradiating a porous silicon target, Applied Physics B: Lasers and Optics, 66, 567-57 (1998).
- [50] Bugrov A.E., Burdonsky I.N., Gavrilov V.V., Goltsov A.Yu., Guskov S.Yu., Kovalsky N.G., Kondrashov V.N., Pergament M.I., Rozanov V.B., Zhuzhukalo E.V, Investigation of Light Absorption, Energy Transfer, and Plasma Dynamic Processes in Laser-Irradiated Targets of Low Average Density, Laser and Particle Beams, 17, 415-426, (1999).
- [51] J -C Gauthier, J -P Geindre, N Grandjouan and J Virmont, Implicit coupling of ionisation dynamics and electron energy balance in laser target simulations, J of Phys D: Applied Physics. Volume 16, Number 3, pp321, 14 March 1983.
- [52] O. Peyrusse, Phys. Fluids B, 4, 2007-20017 (1992).
- [53] D. Gilles, O. Peyrusse, J. Quant. SPectrosc. Radiat. Transfer 53, 647-661 (1995).

Chapitre 2

Le dispositif d'écoulement de poudre

Introduction	65
1) Notions théoriques sur les écoulements de poudre	66
a) Propriétés statiques des milieux granulaires	67
a-1) Compacité	67
a-2) Transmission des contraintes	68
b) Ecoulement en espace libre : avalanche	70
b-1) Description d'une avalanche : angle d'avalanche et angle de repos	70
b-2) Interprétation	71
b.2.1) Interprétation macroscopique : frottements de Coulomb	71
b.2.2) Explication microscopique : puits de potentiel [10]	72
c) Ecoulement dans un sablier	74
c-1) Description interne de l'écoulement	75
c.1.1) Ecoulement en masse et en cheminée	75
c.1.2) Profil de vitesse	78
c.1.3) Blocage d'un écoulement	78
c-2) Débit	81
c.2.1) Constance du débit	81
c.2.2) Loi de Beverloo	81
2) Dispositif expérimental de distribution de poudre	82
a) Le choix des poudres	83
a-1) La poudre de microbilles	83
a-2) La poudre de microbilles creuses	85
a-3) La poudre d'aérogel	87
b) Présentation du système	
b-1) Détermination de l'angle de l'entonnoir d'adaptation	90
b.1.1) Principe de la mesure	90
b.1.2) Observations et résultats	91
b-2) Détermination du diamètre de sortie de l'entonnoir	92
c) Caractéristiques de l'écoulement	93
c-1) Mesure du flux de poudre	93
c-2) Rafraîchissement de la cible	94

c.2.1) Calcul de la vitesse d'écoulement	94
c.2.2) Estimation directe de la vitesse d'écoulement	95
c-3) Ecart entre les grains	97
c-4) Variation de la position de la source d'émission de rayonnement	100
Conclusion	101
Références du chapitre 2	103

Chapitre 2

Le dispositif d'écoulement de poudre

Introduction

La cible utilisée pour l'étude présentée dans ce manuscrit possède un caractère original : il s'agit d'un écoulement de poudre dans un sablier, dispositif d'une grande simplicité technique qui fonctionne grâce à la gravité et permet un rafraîchissement naturel de la cible. Cependant, si le fonctionnement du système est simple, la mise en œuvre n'en demande pas moins une étude approfondie et fait appel à un domaine de la physique en plein essor : la physique des poudres. D'un point de vue fondamental, la variété des poudres disponibles invite à l'étude de l'influence de leurs propriétés sur la génération de rayonnement X et plus généralement sur l'interaction laser-matière.

Ce chapitre expose l'élaboration de notre dispositif d'écoulement. Il doit permettre de présenter une cible dans le champ du laser à chaque tir. Pour cela l'écoulement doit être suffisamment dense et ne pas s'interrompre. La première partie de ce chapitre présente les éléments théoriques permettant la réalisation d'un tel écoulement. Un certain nombre de caractéristiques statiques des poudres interviennent. Ainsi, un écoulement est d'autant plus dense que la poudre utilisée est compacte et, par ailleurs, les blocages d'écoulement trouvent leur origine dans la capacité de la poudre à former des voûtes. La réalisation d'un écoulement en milieu contraint comme dans un sablier est possible en reproduisant les conditions naturelles d'écoulement, c'est-à-dire les conditions d'avalanche. Pour cette raison, nous abordons la problématique de l'avalanche avant de présenter une description d'un écoulement au sein d'un sablier. La seconde partie retrace l'élaboration du dispositif. L'accent est mis sur le choix de poudres présentant un intérêt pour l'étude de la physique de l'interaction ainsi que sur la réalisation d'un système permettant les meilleures conditions d'écoulement pour chacune des poudres. Enfin, dans un dernier paragraphe, nous décrivons les caractéristiques d'écoulement obtenues avec notre système : débit, vitesse et écart des grains ainsi que stabilité spatiale de l'écoulement sont examinés. Ces grandeurs interviennent par la suite dans la caractérisation de l'interaction.

1) Notions théoriques sur les écoulements de poudre

Les matériaux granulaires sont des systèmes constitués de particules de matière solide plus ou moins fines. Les matériaux granulaires regroupent des matériaux présentant des différences très importantes. Ainsi la farine dont les grains possèdent un diamètre typique de 10 µm et les avalanches de pierres dont les éléments peuvent avoir des dimensions caractéristiques de l'ordre de quelques dizaines de centimètres font toutes deux appel à la physique des poudres. Cependant, la curiosité de ce type de milieu ne réside pas tant dans sa structure que dans son comportement. Les poudres se conduisent en effet parfois comme un solide, parfois comme un liquide et parfois comme un gaz (cf. figure 1). Ainsi, un tas de sable possède un aspect solide comme celui que peut prendre une sculpture sur sable ou plus proche de la nature, une dune. Cependant, cette dune ou tout autre poudre aura la faculté de s'écouler tel un liquide dès que l'inclinaison de sa surface par rapport au sol sera suffisante. Enfin, si l'on agite un bocal en partie empli de poudre, on peut observer des collisions binaires semblables à celles se produisant dans un gaz moléculaire. Ces trois domaines de la physique, physique des solides, physique des fluides et physique des gaz ont été tour à tour utilisés pour tenter d'expliquer les phénomènes se produisant dans les poudres.



Figure 1 : Les trois comportements d'une poudre : a) le sable d'une sculpture de sable se comporte comme un solide – b) le sucre que l'on fait s'écouler se comporte comme un liquide – c) Poudres agitées par des secousses successives [1] : les grains, comme les molécules d'un gaz, subissent de multiples collisions.

Les poudres interviennent dans des domaines tels que les industries pharmaceutiques (fabrication de comprimés) ou agroalimentaires (céréales) [2]. La principale difficulté de leur utilisation concerne leur transport qui s'effectue fréquemment par écoulement grâce à la gravité. Une conséquence de cette difficulté est bien visible sur les silos : leurs parois portent les traces des coups reçus pour débloquer les quelques grains empêchant les tonnes de

céréales de se déverser. Malgré cela, les milieux granulaires ne sont étudiés de façon intensive que depuis quelques dizaines d'années.

a) Propriétés statiques des milieux granulaires

a-1) Compacité

La probabilité que le laser interagisse avec un grain à chaque tir est d'autant plus grande que la densité de matière dans l'écoulement est importante. Cette densité est intimement liée à la compacité C de la poudre au repos, c'est-à-dire au rapport entre le volume réellement occupé par les grains et le volume apparent de la poudre. Comme dans les cristaux, elle se définit par :

$$C = \frac{\text{Volume des grains}}{\text{Volume apparent de la poudre}}$$
(1)

Dans le cas d'une distribution *monodisperse* en taille de billes sphériques, c'est-à-dire d'une distribution où toutes les billes ont le même diamètre, l'arrangement de plus grande compacité correspond à un réseau cubique face centrée ou à un réseau hexagonal et atteint alors 74%. Cet arrangement est un arrangement organisé et n'est habituellement pas réalisé dans les poudres dont l'empilement est aléatoire. La compacité d'une poudre est donc plus faible : il a été démontré [3], [4] qu'un tel empilement possède généralement une compacité de 0,635±0,005 appelée *Random Close Packing*. Les physiciens se sont aussi intéressés à la compacité minimale d'un empilement demeurant mécaniquement stable et ont découvert qu'il ne peut être inférieur à 0,55 [5]. Cela fournit une borne inférieure à la compacité d'une poudre.

Les poudres que nous avons utilisées ne sont pas monodisperses mais polydisperses. Par rapport à leur diamètre moyen, leur distribution s'étend sur un assez large intervalle. Si cela représente une difficulté pour leur modélisation, cette polydispersité peut être un avantage puisque les grains de petite taille peuvent combler les interstices situés entre les grains de plus grand diamètre et donc augmenter la compacité et la probabilité d'interaction avec le laser. Pour donner un exemple, une poudre bidisperse dont la distribution est optimisée en vue d'accroître le volume occupé par les grains, peut atteindre une compacité de 0,85. Nos compacités ne sont cependant pas optimisées et restent donc inférieures à cette valeur.

a-2) Transmission des contraintes

Contrairement à un milieu continu tel que les solides ou les liquides, la répartition des contraintes à l'intérieur d'un matériau granulaire ne se fait pas de façon homogène. Il se forme en effet des voûtes semblables à celles utilisées pour les constructions architecturales comme les ponts, les églises ou même pour des constructions traditionnelles de pierres sèches telles celle présentée sur la figure 2. Comme dans ce type de construction, les voûtes formées par les poudres sont capables de soutenir des poids très importants.



Figure 2 : Voûte d'une construction en pierre sèche (aucun mortier ne fixe les pierres entre elles) – photo tirée du site <u>http://www.pierreseche.com</u> de Christian Lassure.

Au sein des poudres, ces voûtes ont pu être directement observées en utilisant des billes photoélastiques (cf. figure 3). Ces billes sont éclairées par un faisceau lumineux polarisé. Soumises à des contraintes, elles deviennent biréfringentes, ce qui a pour conséquence de faire tourner le plan de polarisation de la lumière diffusée. En observant cette lumière après un polariseur, on met en évidence les billes comprimées qui apparaissent alors plus claires. Les contraintes sont très hétérogènes, quelques réseaux de billes supportent l'ensemble de la masse selon des *chaînes de force* qui défléchissent les contraintes vers les parois du contenant. Parallèlement les grains situés hors de ces chaînes sont peu comprimés. Ces chaînes sont sensibles à la moindre perturbation. Un grain changeant de place ou un léger changement de température suffit à transformer irréversiblement la structure interne des champs de forces sans que cela soit perceptible au niveau macroscopique.



Figure 3 : A gauche : billes photoélastiques en lumière non polarisée – à droite : les mêmes billes en lumière polarisée ; les contraintes apparaissent en clair et mettent en évidence les chaînes de forces. Images extraites de [6].

Une conséquence saisissante de l'existence de ces voûtes peut être observée en effectuant l'expérience suivante. Dans cette expérience (cf. figure 4), on pèse la poudre contenue dans un réservoir en fonction de la hauteur de poudre. On s'aperçoit que, contrairement à un liquide, le poids mesuré cesse d'augmenter à partir d'une hauteur sensiblement égale au diamètre du réservoir : le poids exercé par la poudre sur la balance n'est plus celui correspondant à sa masse. Cet effet, appelé *effet Jansen* [7], trouve son origine dans le défléchissement par les voûtes du poids des grains vers les parois du réservoir. Cela nous indique notamment que pour débloquer un écoulement qui se serait arrêté, il est inutile d'exercer une pression supplémentaire sur la poudre, puisque cette pression, tel le poids des grains de poudre, est défléchie vers les parois.





b) Ecoulement en espace libre : avalanche

Le renouvellement de notre cible impose la mise en mouvement du milieu granulaire. En espace libre, cette mise en mouvement se déroule sous forme d'avalanche. La compréhension de ce phénomène permet de reproduire dans des systèmes tels que les sabliers les conditions naturelles d'un écoulement. En particulier, le déclenchement et l'arrêt d'une avalanche sont caractérisés par deux angles différents d'inclinaison de la pente [8] qui interviennent dans l'élaboration du système d'écoulement.

b-1) Description d'une avalanche : angle d'avalanche et angle de repos

Lorsque l'on incline une planche sur laquelle repose une masse de poudre, celle-ci ne s'écoule pas immédiatement comme le fait un liquide. Il faut atteindre un angle minimal appelé *angle d'avalanche* (cf. figure 5). Une couche de poudre de 5 à 10 grains d'épaisseur s'écoule alors jusqu'à ce que soit rétabli un angle d'inclinaison inférieur de quelques degrés à l'angle d'avalanche. Cet angle est appelé *angle de repos*. En général, les angles d'avalanche sont de l'ordre de 35° pour des poudres de granulométrie supérieure à 100 µm. Ils peuvent être supérieurs pour des granulométries plus faibles ou lorsque la poudre a été tassée.

Lorsque l'empilement se trouve à une inclinaison comprise entre ces deux angles sans pourtant s'écouler, il est en équilibre instable. Une petite perturbation suffit à déclencher un écoulement. Ce phénomène est utilisé par la larve du fourmilion pour la chasse. Cette larve se place au creux d'un trou creusé dans du sable et dont les parois forment un angle tel que la pente est instable. Les fourmis s'y aventurant déclenchent une avalanche et tombent vers la larve qui une fois son repas fini jette des grains vers le haut de la pente pour en augmenter l'angle et reformer son piège.



Figure 5 : Ecoulement de graines de moutarde - a) angle critique du tas de moutarde- b) avalanche de l'empilement des graines de moutarde. Photos extraites de [9].

b-2) Interprétation

b.2.1) Interprétation macroscopique : frottements de Coulomb

Angle d'avalanche : coefficient de frottement statique

Le phénomène d'angle de seuil que nous venons de décrire est également observable lorsque l'on fait glisser un solide sur un plan incliné [8]. Considérons un solide placé sur un plan incliné d'un angle α (cf. figure 6). Ce solide est soumis à son propre poids *P*, à une force de frottement f_s et à la réaction du plan notée *R*. Le poids se décompose en deux composantes tangentielle et normale à la pente notées respectivement *T* et *N*. Ces deux composantes s'écrivent :

$$N = mg * \cos \alpha$$

$$T = mg * \sin \alpha$$
(2)

où *m* représente la masse du solide et g la gravité en m.s⁻².

D'après les lois de frottements macroscopiques étudiées par Amontons en 1699 et Coulomb en 1785, le frottement est proportionnel au module de la force normale appliquée au solide et donc d'après (2) :

$$f_s = \mu_s N = \mu_s m g \cos \alpha \tag{3}$$

où μ_s est appelé coefficient de frottement statique.



Figure 6: Solide en équilibre sur un plan incliné.

En régime statique, la réaction du plan et la force de frottement compensent respectivement la composante normale et tangentielle du poids. Pour que le solide se mette en mouvement, la composante T doit être de module supérieur à celui de la force de frottement statique. En égalisant f_s et T, on obtient l'angle minimal d'inclinaison de la pente α_m pour déclencher le mouvement :

$$\tan \alpha_m = \mu_s \tag{4}$$

Le mouvement se déclenche donc toujours pour le même angle α_m déterminé par μ_s qui dépend des caractéristiques des deux solides en contact. Pour la plupart des solides, ce coefficient est compris entre 0,4 et 1 ce qui correspond à des angles de seuil compris entre 20° et 45°. Ces valeurs sont compatibles avec les angles de déclenchement des avalanches cités au paragraphe précédent.

Angle de repos : coefficient de frottement dynamique

Une fois le glissement du solide sur le plan incliné déclenché, le solide subit une force de frottement dynamique inférieure au frottement statique. Ce frottement dynamique f_d est défini par :

$$\mathbf{f}_{d} = \boldsymbol{\mu}_{d} \mathbf{N} \tag{5}$$

où μ_d est le coefficient de frottement dynamique et est tel que $\mu_d < \mu_s$

L'angle d'inclinaison de la pente peut donc être inférieur à l'angle de déclenchement α_m . Le solide s'arrête lorsque *T* ne compense plus le frottement dynamique, c'est-à-dire pour un angle α_r tel que tan $\alpha_r = \mu_d$.

Ainsi, on retrouve pour un système relativement simple (deux solides en contact) le même phénomène que pour l'écoulement d'une poudre.

b.2.2) Explication microscopique : puits de potentiel [10]



Figure 7 : a) Empilement stable de billes : la bille se trouve dans un puits de potentiel dont les barrières sont formées par les réactions C_1 et C_2 des grains sur lesquels la bille repose. – b) En inclinant l'empilement, on abat une des deux barrières de potentiel, la bille peut alors se mouvoir. Dans ce cas particulier d'empilement, l'angle de déclenchement d'avalanche est de 30° ce qui est bien compris entre 20° et 45°.

Les frottements entre deux solides proviennent de l'état des surfaces en contact. Plus les surfaces sont rugueuses, plus les frottements sont importants. Dans le cas d'une couche de poudre, les rugosités existent à deux échelles : à l'échelle du matériau lui-même si l'on considère la surface de chaque grain de poudre mais également à l'échelle de l'ensemble des grains qui forment les couches de poudre se déplaçant comme illustré sur la figure 5. On peut donc donner une explication microscopique du phénomène expliqué ci-dessus.

Considérons un grain à la surface d'un empilement stable de poudre, ce grain est piégé par ses voisins qui forment un puits de potentiel (cf. figure 7.a) par l'intermédiaire des forces de contact C_1 et C_2 . A l'échelle macroscopique, l'ensemble de ces forces de contact correspond à la somme de la réaction du plan et de la force de frottement due aux rugosités introduites par les grains de la couche de poudre. Pour que le grain considéré ici se mette en mouvement, il doit sortir du puits de potentiel. Incliner le plan sur lequel repose la poudre revient à abaisser la barrière de potentiel. Lorsque l'angle d'inclinaison est tel que le poids et la réaction de la bille située en dessous du grain considéré sont alignés, l'avalanche se déclenche. Cet angle est l'angle d'avalanche défini précédemment et détermine le coefficient de frottement statique. Tant que la pente reste supérieure à l'angle de repos, l'énergie cinétique du grain est suffisante pour qu'il ne tombe pas dans les puits de potentiel formés par les autres billes. Si cet angle est atteint, le grain tombe dans un puits et l'avalanche s'arrête.



Dilatation du volume des grains

Figure 8 : Dilatance de Reynolds.

A l'échelle de plusieurs grains se mettant en mouvement, ce phénomène implique une augmentation de volume appelée *dilatance de Reynolds* [11]. La poudre a alors une compacité plus faible qui donne aux grains l'espace nécessaire pour se mouvoir. Sur la figure 8, nous mettons en valeur l'augmentation de volume de la couche de grain se mettant en mouvement. Si on appelle *d* le diamètre des grains et *e* l'épaisseur de la nappe se déplaçant, le volume au repos des grains grisés est $3\sqrt{3}$ d²e et en mouvement de $6d^2e$. Le volume a donc augmenté d'un facteur $2/\sqrt{3}$. Cette augmentation de volume prélude à tout

écoulement de poudre. Dans un système d'écoulement tel un sablier, cette dilatation s'opère automatiquement dès lors que rien n'obstrue la sortie de l'entonnoir.

c) Ecoulement dans un sablier

Les premières mentions écrites sur les sabliers datent du XIV^{ème} siècle [12] mais on suppose que son invention date du XI^{ème} ou XII^{ème} siècle. L'histoire du sablier est donc relativement courte. Il a longtemps été un instrument de mesure du temps largement utilisé puisqu'il était employé aussi bien sur les navires pour délimiter les quarts que dans les églises pour déterminer la fin des sermons ou les universités pour connaître la fin d'un cours. Leur usage s'est aujourd'hui largement restreint notamment avec l'apparition des montres mécaniques puis électroniques.

La structure du sablier a peu évolué depuis son apparition. Un réservoir cylindrique se terminant par une partie conique percée d'un trou contient originellement la poudre (cf. figure 9). On appellera cette partie *réservoir de distribution*. La poudre s'écoule dans un contenant identique mais inversé et appelé *réservoir de récupération*. La structure d'un sablier est donc symétrique, ce qui permet un emploi aisé, puisqu'une fois un écoulement terminé, il suffit de retourner le système pour une nouvelle utilisation. L'écoulement des grains au sein du dispositif est principalement déterminé par l'angle α de la partie conique avec l'horizontale et le diamètre *D* du trou de sortie.



Figure 9 : Structure d'un sablier.

Depuis quelques décennies, la physique des matériaux granulaires connaît un nouvel essor. Le regain d'intérêt pour cette partie de la physique a été amplifié par les communautés industrielles utilisant des écoulements au sein de silos. Ces derniers ont en effet une structure identique à celle du réservoir de distribution d'un sablier. Ils connaissent, comme nous l'avons évoqué en introduction, des blocages d'écoulement qui engendrent plus ou moins fréquemment et plus ou moins longtemps l'arrêt d'une chaîne de production. Pour débloquer un silo, il est en effet parfois nécessaire de percer à la pioche la poudre

agglomérée en sortie et empêchant l'écoulement. Ces arrêts entraînent des pertes économiques et expliquent l'intérêt des industriels pour ces études.

Cette partie présente les propriétés des écoulements au sein d'un sablier ainsi que les difficultés inhérentes à ce système. Nous présentons tout d'abord une description de la physique de ce type d'écoulement. Le but est de mieux comprendre la dynamique interne de l'écoulement pour d'une part mieux caractériser notre dispositif mais également déterminer les facteurs entraînant les blocages d'écoulement. Nous nous focalisons ensuite sur la mesure de débit de poudre dans un tel système. Le débit d'un sablier présente en effet la propriété particulière d'être constant jusqu'à la proche fin de l'écoulement, ce qui n'est pas le cas pour un écoulement de liquide. Les caractéristiques de l'écoulement telle que, par exemple, la vitesse des grains dont dépend le taux de rafraîchissement sont ainsi constantes et aisément déterminées.

c-1) Description interne de l'écoulement

Dans ce paragraphe, nous nous attardons sur les deux types d'écoulements existant dans un sablier. Nous nous intéressons ensuite au profil de vitesse au sein des sabliers avant d'aborder le plus gros problème de ces systèmes : les blocages d'écoulement par formation de voûtes.

c.1.1) Ecoulement en masse et en cheminée

Les écoulements de poudre dans les sabliers ou silos peuvent être de deux types : les écoulements en masse et les écoulements en cheminée [13].



Figure 10 : Ecoulement en masse.

Dans un écoulement en masse (cf. figure 10), tous les grains de poudre d'une section s'écoulent de façon identique jusqu'au niveau du cône. La surface de la poudre se creuse alors. Ce type de géométrie d'écoulement s'apparente à celle d'un écoulement liquide. Elle

existe dans le cas de sablier aux parois peu rugueuses et de cône pour lequel α est important.



Figure 11 : Ecoulement en cheminée.

Pour un écoulement en cheminée (cf. figure 11), on peut observer un creusement de la surface dès le début de l'écoulement. Ce type d'écoulement présente une interface de cisaillement séparant une zone de poudre stagnante au niveau des parois de l'entonnoir et une zone d'écoulement appelée *cheminée*. Cette géométrie existe pour des parois rugueuses des cônes pour lequel α est faible.

Ci-dessous, nous présentons les diverses étapes d'un écoulement de poudre en cheminée [12]. Pour pouvoir visualiser ces étapes, des couches de grains teints en noirs ont été déposées alternativement avec des couches de grains blancs. On peut observer sur ces images le creusement caractéristique d'un écoulement en cheminée. On remarque également que les grains les plus proches de l'orifice de sortie sont loin d'être les premiers à être évacués : la zone centrale est celle qui s'écoule en premier, les grains les plus près de la surface étant entraînés vers le fond de l'entonnoir et recouverts par les couches originellement situées en dessous de ces grains.



Figure 12 : Dynamique d'un écoulement en cheminée.

c.1.2) Profil de vitesse

Pour un écoulement de masse, on peut distinguer trois zones distinctes du profil de vitesse au sein de la partie conique (cf. figure 13) [14] :

- dans la zone (a), l'écoulement se fait de façon uniforme et à faible vitesse, la densité de la poudre restant importante. Cette zone est appelée zone d'écoulement en masse,
- dans la zone (b), les vecteurs vitesses changent de direction selon l'inclinaison de la paroi. On nomme cette partie du profil la zone d'alimentation de la zone de chute libre,
- ✓ dans la zone (c), l'écoulement devient rapide et peu dense. On appelle cette zone, la zone de chute libre.

Ces trois zones ont des interfaces de cisaillement très marquées qui sont composées d'une dizaine de grains. Dans le cas d'un écoulement de cheminée, il faut ajouter une zone stagnante le long de la paroi. Cette zone stagnante disparaît en fin d'écoulement si l'angle α est supérieur à l'angle d'arrêt d'avalanche.



Figure 13 : Profil de vitesse au niveau du cône.

c.1.3) Blocage d'un écoulement

Comme nous l'avons évoqué, la principale difficulté des écoulements de poudre provient de leur tendance à s'arrêter de façon inattendue. Ce phénomène s'explique par la formation de voûtes prenant appui sur les parois de l'entonnoir et empêchant l'écoulement de la poudre (cf. figure 14).



Figure 14: Voûte bloquant l'écoulement de poudre.

Les voûtes se forment de façon aléatoire dans un écoulement. Cependant, certaines caractéristiques propres aux grains influencent la formation de ces voûtes. Il s'agit du diamètre des grains, de leur forme et état de surface ainsi que de la teneur en eau de la poudre. L'ensemble de ces propriétés détermine la cohésion entre grains (forces électrostatiques, capillaires et de Van der Waals) qui peut contribuer à la formation de voûtes de grande stabilité.

Diamètre des grains :

Lorsque le diamètre des grains constituant une poudre est inférieur à une dizaine de micron, une compétition naît lors de l'écoulement entre le poids et les forces de contact. Le poids tend à faire tomber les grains tandis que les forces de contact permettent aux poudres de s'agglomérer et de fabriquer des voûtes plus solides sur de plus grandes distances. Une expérience simple à réaliser permet de mettre ce phénomène en évidence [15]. Pour cela, il suffit d'étaler une fine couche de poudre de granulométrie de quelques dizaines de microns sur une plaque puis de tapoter la plaque quelques dizaines de fois (cf. figure 15). Les grains se rassemblent alors en petits agglomérats sous l'effet des forces de contact. Ce phénomène explique pourquoi l'on n'a aucun mal à verser du sucre en poudre dont les grains sont macroscopiques alors qu'il est très difficile de faire s'écouler du sucre glace ou de la farine.



Figure 15 : Agglomération de grains de 30 µm de diamètre. Photo tirée de [15].

Forme et état de surface des grains :

La forme des grains peut également favoriser la formation de voûtes stables. En effet, une forme sphérique minimise la possibilité de contact entre les grains tandis qu'une forme quelconque dont la surface est rugueuse favorise la prise d'appui des grains les uns sur les autres et donc la formation de voûtes.

Taux d'humidité

Lorsque le taux d'humidité devient important, des ponts capillaires se forment entre les grains (cf. figure 16). Ces ponts favorisent une fois encore les forces de contact au détriment du poids et aident à la formation de voûtes stables. Il est donc nécessaire de conserver la poudre dans un endroit sec. On peut noter que même séchée, une poudre agglomérée ne se désagglomère pas spontanément, c'est pourquoi les constructions de sable sur les plages, bien que moins solides, conservent leur forme une fois sèches.



Figure 16 : Influence de la présence d'humidité. a) poudre sèche – b) Poudre humide :

Ainsi pour réaliser un écoulement de poudre de qualité avec le moins d'interruptions possibles, il est nécessaire de faire attention aux paramètres que nous venons d'évoquer.

c-2) Débit

Les écoulements de poudre au sein d'un sablier présentent la particularité de posséder un débit constant [16]. Dans ce paragraphe, nous décrivons et expliquons ce phénomène de façon qualitative avant de donner une loi de débit.

c.2.1) Constance du débit



Figure 17 : Sur cette image est représenté un entassement de billes sous contrainte. Les chemins de contraintes sont formés par les billes claires, on remarque que la zone la plus basse ne subit pas de contraintes. Photo extraite de [17].

Contrairement à un écoulement de liquide pour lequel le débit suit une loi en $h^{\frac{1}{2}}$ où *h* est la hauteur de liquide, le débit d'un écoulement de poudre ne dépend pas de sa hauteur. On trouve l'explication de ce phénomène en se souvenant du fait que le poids à partir d'une hauteur de l'ordre de grandeur du diamètre de sortie est écranté par la présence de voûtes. Ainsi, la pression réellement exercée sur la partie de poudre qui s'écoule est la même quelle que soit la hauteur de poudre et cela jusqu'à une hauteur de l'ordre du diamètre de sortie. Ici encore, le phénomène de constance du débit trouve son explication dans la formation de voûtes (cf. figure 17), ces voûtes sont cependant moins stables que celles entraînant un blocage d'écoulement, on les nomme *voûtes dynamiques*.

c.2.2) Loi de Beverloo

En effectuant une analyse dimensionnelle du problème, il est possible de déterminer une loi de débit pour les écoulements. Les paramètres intervenant dans la loi sont :

- la gravité g qui intervient dans toute chute,
- la densité apparente ρ : sous vide, la chute ne dépend pas de la masse, pour deux écoulements de densité différente, le même

nombre de particules s'écoule pour une durée donnée. On en déduit que le débit massique est plus important pour l'écoulement le plus dense,

- le coefficient de frottement µ_d qui influence la coulabilité de la poudre,
- le diamètre du trou de sortie D, plus le diamètre est grand, plus le débit augmente,
- l'angle α du cône.

Comme μ_d et α sont sans dimension, on regroupe leur influence dans un terme unique $C(\mu, \alpha)$. Le débit massique $F_{k\alpha/s}$ s'écrit alors :

$$F_{kg/s} = \mathbf{C}(\boldsymbol{\mu}_{d}, \boldsymbol{\alpha}) \boldsymbol{\rho}^{a} \mathbf{g}^{b} \boldsymbol{D}^{c}$$
(6)

où a, b et c sont des nombres sans dimension.

Par analyse dimensionnelle, on obtient la loi :

$$F_{kg/s} = C(\mu_d, \alpha)\rho g^{\frac{1}{2}} D^{\frac{5}{2}}$$
 (7)

En 1961, Beverloo a souhaité intégrer dans cette équation l'influence du diamètre *d* des grains. Ce diamètre intervient en effet lorsqu'il n'est pas négligeable devant le diamètre de sortie du sablier [18]. Pour cela, il a adapté l'équation (7) et a proposé la loi suivante :

$$F_{kg/s} = C(\mu_d, \alpha)\rho g^{\frac{1}{2}} (D - kd)^{\frac{5}{2}}$$
 (8)

où k est une constante sans dimension et vaut approximativement 1,5 pour des particules sphériques. Pour des particules quelconques, k est supérieur à 1,5. Le facteur C est ici une constante empirique de l'ordre de 0,58 qui ne dépasse pas 0,64 dans le cas extrême de frottements très faibles.

2) Dispositif expérimental de distribution de poudre

Dans cette partie, nous décrivons l'élaboration du système d'écoulement de la poudre. Au paragraphe précédent, les difficultés d'écoulement des milieux granulaires et les caractéristiques facilitant cet écoulement ont été présentées. La première étape a donc été de choisir les poudres que nous allions utiliser dans nos expériences, elle fera l'objet du premier paragraphe. Dans un second paragraphe, nous décrivons le système d'écoulement choisi.

a) Le choix des poudres

En raison des nombreuses études portant sur l'émission de rayonnement X par du silicium, nous nous sommes intéressés à cet élément. Il s'est avéré que les poudres de silice offraient une grande variété de structures pouvant changer le type d'interaction, aussi, avons nous choisi ce matériau. Nous souhaitions utiliser des poudres présentant des dimensions caractéristiques différentes de façon à étudier l'interaction du laser dans différentes configurations. Cependant, comme évoqué au paragraphe 2.c-1.3) de ce chapitre, les poudres de diamètre trop faible ou d'état de surface rugueux ont tendance à former des voûtes plus facilement et bloquer ainsi l'écoulement. Nous avons donc recherché des poudres dont la granulométrie et l'état de surface des grains autorisent l'écoulement mais qui possèdent une structure permettant une interaction avec de petites dimensions spatiales.

Dans cette partie, nous présentons les différentes poudres sélectionnées : une poudre de microbilles pleines, une poudre de microbilles creuses ainsi qu'une poudre d'aérogels. Les caractéristiques de chacune de ces poudres sont précisées : la taille moyenne des grains, leur distribution¹, leur densité et compacité, la composition chimique des grains qui fournit la proportion réelle de silice au sein du grain ainsi que leur porosité² qui intervient dans l'efficacité d'absorption de l'énergie du laser [19].

a-1) La poudre de microbilles

Cette poudre est constituée de microbilles³ (cf. figure 18) qui possèdent un diamètre moyen de 35 μ m. La forme sphérique des grains leur permet de conserver un bon écoulement malgré leur diamètre assez petit en évitant la formation de voûtes stables. Certaines poudres de granulométrie similaire mais dont les grains sont de forme quelconque ont en effet montré, lors de nos essais, une faible capacité d'écoulement.

La distribution en taille de cette poudre est donnée sur la figure 19. Cette mesure est obtenue par diffraction et diffusion de la lumière. Dans cette technique, un laser Hélium Néon éclaire les particules de poudre en suspension dans un courant d'air. Les particules dévient la lumière de façon plus ou moins importante suivant leur taille. La quantité de lumière déviée ainsi que l'angle de déviation permettent de déterminer la taille de chaque particule et de connaître ainsi la granulométrie de la poudre.

¹ Cette caractéristique a été déterminée par Odile Duplessis du DTEN au CEA (Département des Technologies pour l'Energie et les Nanomatériaux).

² Cette caractéristique a été déterminée par Olivier Spalla par la technique SAXS (Small Angle X-ray Scattering) du laboratoire LIONS du CEA (Laboratoire Interdisciplinaire sur l'Organisation Nanométrique et Supramoléculaire).

³ Cette poudre est utilisée comme abrasif mais sert aussi à réfléchir les phares des voitures sur les panneaux routiers pour permettre aux conducteurs une bonne visualisation de la signalisation [20].



Figure 18 : Microbilles de silice – Photo prise au travers d'un microscope optique.

Cette distribution présente deux maxima : à 32 µm et à 8 µm. Ce dernier peut dénoter la présence d'un second maximum de la distribution, mais il peut également être un artéfact de mesure provoqué par des billes de taille supérieure qui se seraient brisées sous la violence de la projection contre les parois de l'appareil de diagnostic. Cette distribution couvre une large gamme de diamètres et ne peut être considérée comme monodisperse. Cela peut cependant être un avantage puisque, comme évoqué au paragraphe 2-a.2) de ce chapitre, les billes de faible diamètre ont la possibilité de combler les interstices entre les billes de grand diamètre et augmenter la compacité de l'écoulement dans la zone d'interaction. Le rapport de la densité de la poudre sur la densité du matériau qui sont respectivement de 1,6 et de 2,47 indique d'ailleurs une compacité de 0,648 légèrement supérieure aux compacités des billes monodisperses, ce qui laisse présager un écoulement dense, caractéristique importante pour pouvoir interagir à chaque tir avec le faisceau laser.



Figure 19 : Distribution du diamètre des microbilles de silice.

La composition chimique de ces microbilles est la suivante :

- SiO₂: 72 à 73 %,
- Na₂O :13,3 à 14,3 %,
- K₂O: 0,2 à 0,6 %,
- CaO : 7,2 à 9,2 %,
- MgO : 3,5 à 4 %,
- Fe₂O₃: 0,08 à 0,11 %,
- Al₂O₂: 0,8 à 2 %,
- SO₃ : 0,2 à 0.3 %.

Durant les expériences, nous nous sommes concentrés sur l'émission du silicium qui ne représente que 24 % du matériau. Il faut donc tenir compte de cette proportion dans nos comparaisons avec d'autres cibles.

En ce qui concerne la porosité, des mesures ont permis de déterminer qu'il ne pouvait y avoir de pores de plus de 1 nm et que la surface spécifique de ces poudres est de l'ordre de 7,15. 10^{-2} m².g⁻¹.

a-2) La poudre de microbilles creuses

La poudre de microbilles creuses est constituée de sphères creuses (cf. figure 20) de diamètre extérieur moyen égal à 75 µm. Sa structure permet d'interagir avec une épaisseur de matière plus faible que pour les microbilles pleines tout en conservant un diamètre important des billes ce qui favorise un bon écoulement. Connaissant la *densité tapée*¹ $d_{tapée}$ des poudres qui est de 0,11, la compacité C ainsi que la densité réelle du matériau d_{matériau} qui est égale à 2,5, nous pouvons estimer l'épaisseur e de la paroi avec laquelle le laser interagit (9) :

$$e = R_{ext} \left(1 - \sqrt[3]{1 - \frac{d_{tapée}}{d_{matériau}} * C} \right)$$
(9)

où R_{ext} est le rayon extérieur moyen des billes. Ce calcul a été évalué pour une compacité de 0,635 qui correspond à la valeur de compacité d'un empilement aléatoire explicitée au paragraphe 2.a-2) de ce chapitre. On trouve une épaisseur de paroi de 0,89 µm. Les mesures effectuées par SAXS ont permis d'effectuer une mesure de l'épaisseur de la paroi

¹ La densité tapée est la densité obtenue après avoir taper une masse de poudre plusieurs centaines de fois.

des microbilles, la valeur trouvée est de 0,46 μ m, ce qui est du même ordre de grandeur que la valeur calculée par (9).



Figure 20 : Microbilles creuses de silice. Photo prise au travers d'un microscope optique.

La distribution en taille de cette poudre est représentée sur la figure 21. Comme pour les microbilles pleines, cette distribution est large.



Figure 21 : Distribution de taille des microbilles creuses de silice.

La paroi de ces microbilles est constituée de verre de borosilicate dont la composition est la suivante :

- SiO₂: 75 à 85 %,
- B₂O₃ : 15 à 25 %.

Cette paroi présente une certaine porosité dont on a pu déceler l'existence à la mise sous vide de ces poudres. L'air mettait plusieurs dizaines de minutes à s'évacuer. Vu le diamètre des grains, cela n'aurait dû prendre que quelques minutes s'il s'était s'agi d'air pris entre les billes. Cependant, les mesures effectuées par SAXS n'ont pu déterminer la présence de pores de diamètre supérieur à 1 nm.

a-3) La poudre d'aérogel

Un aérogel est un matériau dont la porosité est très importante puisqu'elle constitue entre 84 et 99,5 % du volume du matériau. Ce matériau est issu du séchage d'un gel et est donc constitué uniquement du squelette solide du gel initial. Ce séchage a lieu à une température supérieure à la température critique (température au-delà de laquelle il n'existe plus de phase liquide) de façon à éviter une transition de phase de premier ordre qui, par une dilatation brutale, briserait le squelette. Celui-ci peut être représenté comme un enchevêtrement fractal de filaments (cf. figure 22) ou dans notre cas de bandes constituées d'agrégats de silice. Deux grandeurs le caractérisent, χ_{aero} qui correspond à la longueur de corrélation du régime fractal (en dessous de cette longueur, la structure ne peut plus être considérée comme fractale) et χ_a la taille des agrégats de silice.



Figure 22 : Structure d'un aérogel.

La poudre d'aérogels que nous avons choisie (cf. figure 23) est constituée de grains de forme quelconque dont la densité est de 0,1. La taille de ces grains varie de 1 à 500 µm pour une valeur moyenne de 200 µm, mais l'intérêt de la poudre provient ici de la particularité du matériau qui confère une très grande surface spécifique à ce produit et donc une grande surface d'absorption de l'énergie laser, cette surface a été déterminé par SAXS et est de 784 m².g⁻¹. Par cette méthode, nous avons également précisé les dimensions caractéristiques des bandes enchevêtrées formant l'aérogel : ces bandes ont une épaisseur de l'ordre de 1 nm et une largeur comprise entre 5 et 50 nm. Sa structure permet donc une interaction à l'échelle nanométrique.

La composition chimique des aérogels est :

- SiO₂: 84-90 %,
- Triméthylsilane (CH₃)₃SiH :10-15 %,
- H₂O < 1 %.

La majeure partie de cette poudre est constituée de silice.



Figure 23 : Poudre d'aérogels de silice.

b) Présentation du système

Sur les conseils des chercheurs du Service de Physique de l'Etat Condensé du Département des Sciences de la Matière du CEA, nous avons choisi le système d'écoulement le plus simple : le sablier. Dans ce système, l'écoulement s'effectue uniquement grâce à la gravité terrestre et peut aisément être placé sous vide.



Figure 24 : Schéma du système d'écoulement des poudres.

Ce sablier est constitué de deux réservoirs en aluminium de 1 L représentés figure 24. Le réservoir supérieur est supporté par le réservoir inférieur grâce à trois tiges métalliques démontables et la partie conique de ces réservoirs forme un angle de 45° avec l'horizon. Le rôle du réservoir supérieur est d'amener la poudre dans la zone d'interaction. Le réservoir inférieur a pour fonction de recueillir cette poudre après l'interaction. Ces deux réservoirs sont interchangeables si bien qu'une fois le réservoir supérieur vide, il suffit de l'inverser avec le réservoir inférieur pour commencer une nouvelle expérience. Dans le souci de ne pas laisser s'écouler la poudre lorsqu'on ne souhaite pas générer de rayonnement, ce sablier est équipé d'une vanne d'arrêt située en bas du réservoir de distribution.

Sous le réservoir supérieur est fixé un entonnoir adapté à la poudre utilisée. Cet entonnoir représenté sur la figure 25 est caractérisé par son angle α avec l'horizon ainsi que par le diamètre \emptyset de son trou de sortie. Ces deux grandeurs doivent donc être déterminées pour chaque poudre utilisée. La méthode pour déterminer ces grandeurs est présentée dans le paragraphe suivant.



Figure 25 : Schéma des entonnoirs d'adaptation.

b-1) Détermination de l'angle de l'entonnoir d'adaptation

b.1.1) Principe de la mesure

Nous déterminons lors de la même mesure les poudres possédant un bon écoulement et l'angle de l'entonnoir d'adaptation. Pour cette détermination, il est nécessaire de connaître l'angle d'avalanche et l'angle de repos présenté au paragraphe 1.b.1) de ce chapitre. L'angle α par rapport à l'horizontal doit en effet être compris entre ces deux angles de façon à placer la poudre à une inclinaison où elle coule naturellement. Nous choisissons de ne pas dépasser l'angle d'avalanche car l'écoulement est possible avec un angle plus faible pour peu qu'il soit déclenché par un léger choc ou vibration (l'ouverture de la vanne par exemple) et qu'un angle trop important favorise l'apparition de voûtes par le rapprochement des parois de l'entonnoir sur lesquelles elles prennent alors plus facilement appui.

A la difficulté de trouver des poudres qui coulent à l'air libre, s'ajoute celle de distinguer les poudres capables de couler sous vide. A l'air libre, l'air joue en effet le rôle de fluidifiant entre les particules ; sous vide, ce fluidifiant n'existe plus, ce qui peut rendre l'écoulement plus difficile. On considère qu'une poudre ne coule pas lorsque son angle d'avalanche est supérieur à 90°. Toutes les poudres ayant une granulométrie inférieure à 15 µm se sont montrées incapables de couler. Les poudres présentées précédemment ont été sélectionnées par cette méthode.

Pour déterminer de façon expérimentale la coulabilité d'une poudre ainsi que l'angle de l'entonnoir, nous avons mis au point un système fonctionnant à la fois à l'air et sous vide. Ce système, représenté sur la figure 26, est constitué d'un tambour, en rotation autour d'un axe horizontal. Les poudres sont placées au sein du tambour en dévissant la plaque frontale. Un joint est placé entre cette plaque et le tambour permettant ainsi la mise sous vide du système qui se fait par l'intermédiaire d'une conduite dont l'ouverture est contrôlée par un robinet. Enfin, ce montage peut également être équipé d'un filtre que l'on place sur la conduite pour protéger les pompes de la poudre.



Figure 26 : Système permettant de mesurer les angles critique et sous-critique à l'air et sous vide. a) Image 3D réalisée sous CATIA – b) Photo du système contenant la poudre de microbilles.

Pour déterminer l'angle d'avalanche, on tourne le tambour jusqu'à l'angle précédant l'écoulement de la poudre puis on évalue cet angle à l'aide d'un rapporteur. Pour déterminer l'angle de repos, on attend simplement que la poudre cesse de s'écouler puis on évalue l'angle formé par la poudre avec l'horizontale.

b.1.2) Observations et résultats

Diverses observations ont été faites lors de la mise sous vide et de la remise à l'air. Un gonflement de la poudre se produit lors de l'échappement de l'air. Il semble que les grains

soient légèrement soulevés par l'air et qu'ils ne retrouvent pas leur position initiale. Pour les poudres de granulométrie faible, pour lesquelles les forces de contact sont importantes, l'air crée des cheminées d'échappement tel les cheminées volcaniques. L'interprétation de ce phénomène est que le gaz, tel le magma, suit un chemin de moindre résistance et crée un réseau stable de cheminées. A la remise à l'air, un tassement de la poudre par l'air est observé, ce phénomène est le pendant du phénomène de gonflement observé à la mise sous vide.

Malgré ces phénomènes, les mesures d'angles à l'air et sous vide ne présentent pas de différences. Il est possible qu'elles existent mais que nos mesures n'aient pas été assez précises pour les détecter. La barre d'erreur bien que tout à fait acceptable pour la réalisation des entonnoirs d'adaptation est en effet de plusieurs degrés. Les résultats obtenus pour les différentes poudres sont regroupés dans le tableau suivant. Nous reportons aussi l'angle choisi pour les entonnoirs d'adaptation.

	Microbilles pleines de silice	Microbilles creuses de silice	Poudre d'aérogels
Angle d'avalanche (°)	42,5±1,5	57±7	40,5±0,5
Angle de repos (°)	36,5±1,5	33±2	34±1
Angle α (°)	40±1	40±1	38±1

Tableau 1 : Angles d'avalanche et de repos et angles des entonnoirs d'adaptation des différentes poudres.

b-2) Détermination du diamètre de sortie de l'entonnoir

Une fois ces angles connus, nous devons déterminer le diamètre de sortie de l'entonnoir permettant de limiter le débit de façon à avoir un écoulement de la plus grande durée possible mais qui permettent tout de même un bon écoulement et limitent donc la formation de voûtes stables. Différents diamètres de sortie variant de 0,4 mm à 2,5 mm ont été testés. Les diamètres choisis pour les différentes poudres sont présentés dans le tableau suivant.

	Microbilles	Microbilles	Poudre
	pleines de silice	creuses de silice	d'aérogels
Diamètre \varnothing de l'entonnoir (mm)	1	1	2,5

Tableau 2 : Diamètre des trous de sortie des entonnoirs pour les différentes poudres.

c) Caractéristiques de l'écoulement

Le système d'écoulement choisi ci-dessus et principalement le choix d'angles plus petits que l'angle d'avalanche pour les entonnoirs d'adaptation influe sur le type d'écoulement mis en jeu (cf. paragraphe c.1.1) de la partie 2 de ce chapitre). Dans notre cas, l'écoulement correspond quel que soit la poudre utilisée à un écoulement en cheminée et s'effectue donc selon la chronologie présentée sur la figure 12 de ce chapitre.

Les caractéristiques de l'écoulement influent sur les caractéristiques de la source de rayonnement. Aussi, de façon à pouvoir prédire le comportement et l'intérêt de notre source, il est nécessaire de caractériser l'écoulement et plus précisément :

- le flux de poudre permettant d'estimer le temps d'écoulement dont nous disposons pour faire une expérience,
- la vitesse d'écoulement qui permet de déterminer le taux de rafraîchissement de la cible,
- l'écart entre les grains de poudres qui permet de calculer la probabilité d'interaction du laser avec un grain,
- la variation du diamètre de l'écoulement qui permet d'estimer la fluctuation tir à tir de la position de la source.

La majeure partie de ces caractérisations n'est cependant effectuée que pour la poudre de microbilles pleines car au moment de ces expériences, nous ne possédions pas les autres poudres. Lorsque cela est possible, des estimations des grandeurs ci-dessus sont cependant fournies.

c-1) Mesure du flux de poudre

Le fait que le flux volumique de poudre au sein d'un entonnoir soit constant (cf. paragraphe c-2.1 de la partie 2 de ce chapitre) permet de prédire la durée de l'écoulement et donc la durée pendant laquelle la source de rayonnement peut être utilisée sans intervention sur le système. La valeur $F_{cm^2/s}$ de ce flux est mesurée à l'air avec le système d'écoulement utilisé dans les expériences. Pour ce faire, nous mesurons simplement le temps nécessaire à l'écoulement de 20 cm³ de poudre. Nous estimons ainsi que le flux de poudre de microbilles pleines de silice est égal à $0,07\pm0,01$ cm³.s⁻¹ ce qui est une valeur proche de celle que l'on peut déduire de la formule (8) soit 0,05 cm³.s⁻¹. Pour les microbilles creuses, les mesures sont faites sous vide, elles donnent un débit égal à 0,33 cm³.s⁻¹ et pour la poudre d'aérogels, un débit de 0,2 cm³.s⁻¹. De ces mesures, nous déduisons que nous disposons d'un temps d'expérience d'environ 4h pour les microbilles pleines, d'environ 1 h pour les
microbilles creuses et de 40 mn environ pour les aérogels. Pour ces deux dernières poudres, les durées données ne correspondent pas à un volume de 1 litre car nous ne pouvons emplir entièrement le réservoir. En raison de leur faible densité moyenne, des geysers de poudres se forment en effet lorsque l'air s'échappe de la poudre au cours de la mise sous vide. On peut noter qu'en utilisant des réservoirs plus importants, la durée d'expérience peut facilement être augmentée.

c-2) Rafraîchissement de la cible

A chaque tir, le laser doit interagir avec un nouveau grain. Pour connaître le taux de rafraîchissement de la cible, il est nécessaire de savoir à quelle vitesse un grain en remplace un autre dans la zone d'interaction et donc de déterminer leur vitesse. Nous nous proposons de le faire dans ce paragraphe. La vitesse est tout d'abord estimée par le calcul avec pour soutien les mesures de flux présentées ci-dessus, nous la mesurons ensuite expérimentalement et de façon directe.

c.2.1) Calcul de la vitesse d'écoulement

Pour estimer la vitesse des grains en fonction de la distance à l'entonnoir, nous utilisons les hypothèses suivantes. Nous considérons un écoulement de forme cylindrique placé sous vide, une granulométrie monodisperse de la poudre, et nous négligeons les collisions entre grains. L'axe vertical des ordonnées z est orienté vers le bas et son origine est placée à la sortie de l'entonnoir. Ces conventions sont représentées sur la figure 27.



Figure 27 : Modélisation de l'écoulement.

La vitesse de chute libre d'un grain de l'écoulement s'écrit :

$$v(z) = \sqrt{v_0^2 + 2gz} \tag{10}$$

où : z est la position du grain sur l'axe vertical défini précédemment

 v_0 et v(z) représentent respectivement la vitesse d'un grain à la sortie de l'entonnoir et à la côte z,

g est la gravité et est prise égale à 9.81 m.s⁻².

Une valeur expérimentale de v₀ est obtenue grâce à la mesure du flux de volume de particules par seconde $F_{cm^3/s}$. En effet, ces deux grandeurs so nt liées par la relation :

$$V_{0} = \frac{F_{0,cm^{3}/s}}{S}$$
(11)

où S est la surface de la section de l'écoulement.

D'après la valeur de flux trouvée au paragraphe précédent, la vitesse v_0 à la sortie de l'entonnoir est 8,9 ± 1,3 cm.s⁻¹ et donc v(z) devrait suivre la loi :

$$v(z) = \sqrt{79, 2 + 2gz}$$
(12)

Cette loi ne dépend pas de la masse du grain en chute et est donc valable pour tous les types de poudre.

c.2.2) Estimation directe de la vitesse d'écoulement

Après cette première estimation théorique de la loi de vitesse, nous avons souhaité mesurer expérimentalement cette loi. Pour cela, les abscisses z_1 et z_2 d'un grain à deux instants différents sont repérées puis la formule de définition de la vitesse est appliquée :

$$v = \frac{z_2 - z_1}{\Delta t}$$
(13)

où Δt est le temps mis par le grain pour parcourir la distance $z_2 - z_1$.



Figure 28 : Dispositif de mesure directe de la vitesse d'écoulement.

Les mesures de z_2 et z_1 sont effectuées à l'air pour des raisons de simplicité de dispositif. Pour cela, deux caméras analogiques sont placées derrière un objectif de microscope de grandissement 1 faisant l'image de l'écoulement sur le capteur de la caméra (cf. figure 28). L'acquisition est synchronisée par un signal externe. L'instant de déclenchement d'une des caméras est décalé de 1 ms par rapport à l'autre caméra grâce à un générateur de retard ce qui permet d'obtenir les deux prises de vues nécessaires. Les images sont ensuite transmises à un ordinateur et digitalisées par une carte d'acquisition vidéo.

Pour résoudre deux grains de poudre, il est nécessaire que les pixels soient suffisamment petits et le temps d'obturation suffisamment court. Dans notre cas, pour des grains de 35 µm imagés par le système de grandissement 1, nous obtenons de bonnes prises de vues avec des pixels de 9,9*9,9 µm² et un temps d'obturation de 100 µs. Cette durée correspond à un déplacement des grains à la sortie de l'entonnoir de 9 µm durant l'ouverture du shutter de la caméra. Pour connaître la distance parcourue par l'écoulement, il suffit de reconnaître sur les deux photos prises à deux instants différents une même structure de grains. Afin de faciliter cette reconnaissance, l'angle entre les deux caméras doit être le plus faible possible. En raison du volume de nos deux caméras, leur lignes de visée ne peuvent être approchées à moins de 14° l'une de l'autre. Cela s'avère cependant suffisant pour repérer les structures de grains.



Figure 29 : Ecoulement de microbilles de silice à deux instants différents. En noir et en marron sont repérées deux configurations de grains identifiables sur chacune des photos.

Sur la figure 29 sont présentées deux images d'un écoulement de microbilles de silice pleines à deux instants décalés de 1 ms. Nous repérons en noir une structure de la photo de gauche identifiable sur la seconde. Le trait horizontal souligne le déplacement effectué par cette structure durant la milliseconde qui sépare les deux photos. Une seconde structure a été repérée sur les deux photos en marron. On s'aperçoit que son déplacement est plus important que celui de la structure en noir. Ceci est simplement dû au fait que cette structure est située à une ordonnée plus importante et possède donc une vitesse plus grande.

Les vitesses déduites de ces mesures en fonction de la distance à l'entonnoir sont représentées sur la figure 30. Ces mesures sont ajustées en utilisant la loi (10), le meilleur ajustement est obtenu pour une vitesse à l'origine de 6 cm.s⁻¹ ce qui est de l'ordre de grandeur de 8,9 cm.s⁻¹ obtenu par la précédente méthode. On peut remarquer l'écart grandissant entre la courbe de tendance et les mesures lorsque l'on s'éloigne de la sortie de l'entonnoir. Ceci peut s'expliquer par l'influence des frottements que l'on néglige dans (10) et dont l'influence est de plus en plus importante à mesure que l'on s'éloigne de l'origine. A 2 mm de la sortie de l'entonnoir où nous souhaitons effectuer les tirs, la vitesse expérimentale est de 17 cm.s⁻¹. Cela signifie qu'il faut 0,6 ms pour amener un nouveau grain au foyer du laser si l'on considère que 100 µm doivent séparer deux tirs interagissant avec l'écoulement, le taux de rafraîchissement est alors de 1700 Hz. La question du taux de répétition maximal est discutée au chapitre 4.



Figure 30 : Vitesse de l'écoulement en fonction de la distance à l'entonnoir.

c-3) Ecart entre les grains

De l'écart entre les grains dépend la proportion de tirs interagissant avec la poudre et donc l'émissivité globale de la source. Si les grains sont très écartés, le faisceau peut passer

au travers de l'écoulement sans avoir rencontré une seule particule. Nous estimons ici cet écart dans la zone d'interaction. Pour ce calcul, les hypothèses sont les mêmes qu'au paragraphe c-2.1) et la nomenclature utilisée est présentée sur figure 31.



Figure 31 : Schéma de nomenclature.

En considérant la conservation du flux de poudre entre la sortie de l'entonnoir et une abscisse z, on peut écrire que :

$$\rho(z) = \frac{\rho_0 V_0}{v(z)} \tag{14}$$

où : ρ_0 et $\rho(z)$ représentent respectivement le nombre de particules par cm³ à la sortie de l'entonnoir et à l'abscisse *z*.

En remplaçant v(z) par son expression (10), on obtient :

$$\rho(z) = \frac{\rho_0 v_0}{\sqrt{v_0^2 + 2gz}}$$
(15)

Pour trouver une particule dans un cube d'arête L³, il faut vérifier la condition : $\rho(z)^*L^3 = 1$.

D'où :
$$L = \frac{1}{\sqrt[3]{\rho(z)}}$$
 (16)

L'espace libre e entre deux particules de diamètre d est donc :

$$e = L - d \tag{17}$$



Figure 32 : A gauche : photo de l'écoulement de microbilles, l'écoulement apparaît très dense. A droite : écoulement de poudre d'alumine : l'écoulement est bien moins dense, le laser peut potentiellement le traverser sans interagir.

Dans le cas des microbilles de silice, on trouve un espacement de 9 μ m. En raison de la vitesse des particules, de la taille des pixels (9,9 μ m) et du grandissement utilisé, on ne peut malheureusement pas vérifier ce calcul sur les photos présentées précédemment. On doit noter que cette valeur est surestimée étant donné que le calcul est effectué pour une granulométrie monodisperse alors que dans le cas d'une polydispersité, les petits grains peuvent se placer entre les gros.

En remplaçant ρ par son expression (14), on s'aperçoit que l'espacement entre les grains dépend de la taille de ceux-ci. Cela est illustré sur les photos présentées ci-dessus. Deux écoulements de poudres différentes y sont présentés : à gauche, on observe un écoulement de microbilles de silice tandis qu'à droite on voit un écoulement de poudre d'alumine dont les grains sont de forme quelconque et de taille moyenne égale à 90 µm. Sur la photo de gauche, l'écoulement est très dense, tandis que sur la photo de droite, l'écoulement est assez lâche, et des zones où le laser peut traverser totalement l'écoulement sans interagir sont visibles. L'écoulement représenté à droite est donc moins intéressant au niveau de la proportion de tirs laser interagissant avec la poudre.

En ce qui concerne les poudres d'aérogel et de microbilles creuses, ces calculs ont permis d'estimer que les interstices sont respectivement de 60 et 4 μ m.



c-4) Variation de la position de la source d'émission de rayonnement

Figure 33 : Sur ces photos d'écoulement, on voit clairement les changements de forme de l'écoulement de microbilles.

Dans nos calculs, nous considérons que l'écoulement peut être modélisé par un cylindre de rayon constant. On remarque cependant sur les différentes photographies présentées ci-dessus que non seulement, l'écoulement ne possède pas cette forme mais également que la taille d'une section donnée varie au cours du temps et que les bords de cet écoulement possèdent une rugosité importante. De ces deux facteurs naît une variation de la position de la source de rayonnement explicitée sur le schéma de la figure 34.



Figure 34 : Variation de la position du point d'interaction entre deux mesures en raison de la variation de la position du bord de l'écoulement.

Nous mesurons la variation de la position de la source de rayonnement en évaluant la variation de position du grain intercepté par le laser. Ces mesures sont faites sur environ 70 photos différentes. Les résultats de ces mesures sont synthétisés sur la figure 35. La variation de position du grain est de l'ordre de 300 µm. Il faut noter que ces mesures sont faites sur des photographies c'est-à-dire sur des projections d'une image 3D sur un plan. Certains grains dont nous mesurons la position sont donc potentiellement décalés par

rapport à l'axe du laser. Cela peut induire une légère sous-estimation de la variation de position du premier grain rencontré par le laser.



Figure 35 : Courbe statistique des positions du grain intercepté par le laser.

Conclusion

Ce chapitre a présenté l'élaboration du système de sablier permettant d'amener la poudre dans la zone d'interaction. Constitué de deux réservoirs identiques, il permet une utilisation simple par l'interversion des deux réservoirs entre les expériences. Dans le souci de disposer d'un système adaptable à différentes poudres, un entonnoir amovible est fixé au réservoir supérieur. Les principes physiques intervenant dans les écoulements de poudre nous ont guidé pour définir les caractéristiques de ces entonnoirs mais également pour choisir les poudres. Ainsi, les caractéristiques des entonnoirs sont choisies pour limiter la formation de voûtes : le trou de sortie est suffisamment grand et les angles sont choisis pour reproduire les conditions naturelles d'une avalanche. Ces deux points permettent un éloignement des parois sur lesquelles les grains pourraient prendre appui. Les poudres sélectionnées possèdent, quant à elles, une granulométrie suffisante pour s'écouler en limitant la formation de voûtes. Cela n'interdit pas la possibilité d'étudier l'interaction lasermatière avec des structures originales. Ainsi, les poudres choisies sont constituées de sphères pleines de 30 µm qui permettent l'étude de l'interaction avec un solide classique, de sphères creuses dont la paroi est de 0,6 µm ou même d'aérogels. Les caractéristiques de

l'écoulement ont également été étudiées. Grâce à la constance du débit qui induit la constance d'un certain nombre de caractéristiques, les grandeurs mesurées sont valables pour l'intégralité de l'écoulement. Ainsi, le débit permet de calculer la durée des expériences avec les réservoirs d'1 L dont nous disposons, elle peut atteindre plusieurs heures sans nécessiter d'intervention sur le système d'écoulement. Nous avons pu déterminer que la vitesse d'écoulement de l'ordre de 20 cm.s⁻¹ permet un rafraîchissement suffisant pour atteindre des taux de répétition de l'ordre du kHz. Ce point est cependant largement remis en question par les mesures effectuées lors des expériences d'interaction. Enfin, la fluctuation de la géométrie de l'écoulement laisse envisager une fluctuation de position du point source. Tous ces points vont être examinés en détail dans le chapitre 4.

Références du chapitre 2

- [1] Goldhirsch and G. Zanetti. Phys. Rev. Letter. 70, 1619, 1993.
- [2] I. J. Duran. Sables, poudres et grains. Introduction à la physique des milieux granulaires. Eyrolles Sciences. 1997.
- [3] J. G. Berryman. Random close packings of hard spheres and disks. Phys. Rev. A, 27:1053-1051,1983.
- [4] G.D Scott and D. M. Kilgour. The density of random close packings of spheres. Br. J. Appl. Phys. (J. Phys D), 2:863-866,1969.
- [5] G. Y. Onoda and E. G. Liniger. Random loose packing of uniform spheres and the dilatancy onset. Phys. Rev. Letter. 64 (22) : 2727-2730, 1990.
- [6] R. R Hartley and al. Force chains in granular piston. Bulletin of the APS, 45, 2000.
- [7] H. A. Janssen. Versuche über Getreidedruck in Silozellen. Z. Vereins Dtsch. Ing., 39:1045-1049,1895.
- [8] C. A. Coulomb. Sur une application des règles de maximis et de minimis à quelques problèmes de statiques relatifs à l'architecture. Mémoire de l'académie royale des sciences, pages 343-382,1776.
- [9] Heinrich M. Jaeger and al.Granular, solids, liquids, and gases. Rev. of Mod. Phys., Vol. 68, N°4, 1259-1273. October 1996
- [10] L. Quartier and al. Dynamics of a grain on a sandpilemodel. Phys. Rev. E, 62(6): 8299-8307, 2000.
- [11] O. Reynolds. On the dilatancy of media composed of rigid particles in contact. Phil. Mag. Ser., 5,50:469, 481, 1885.
- [12] A. A. Mills, S. Day and S Parkes. Mechanics of the sandglass. Eur. J. Phys. Vol. 17, 97-109, 1996.
- [13] Sous la direction de Jack Lanier. Mécanique des milieux granulaires. Hermes Science. 2001.

- [14] Jannan L. An experimental study of the kinematics of flow through hoppers. Trans. Soc. Rheol., 18, p. 247-269. 1974.
- [15] J. Duran. The physics of fine powders : plugging and surface instabilities.
- [16] Hagen G., Druck und Bewegung des trockenden Sandes, Berl. Monatst. Akad. D. Wiss S35, 1852.
- [17] T. Travers and al. Uniaxial compression effects on 2D mixtures of "hard" and "soft" cylinders. J. Phys. A, 19, L1033, 1986.
- [18] Beverloo W.A. and all, The flow of granular solid through orifices, Chen. Engng. Sci., 15, 260, 1961.
- [19] Tadashi Nishikawa, Hidetoshi Nakano, Hyeyoung Ahn, and Naoshi Uesugi, Tadashi Serikawa. X-ray generation enhancement from a laser-produced plasma with a porous silicon target, Applied Physics Letters -- March 31, 1997 -- Volume 70, Issue 13, pp. 1653-1655.
- [20] http://www.fsg.ulaval.ca.

Chapitre 3

Dispositif expérimental

Introduction	107
1) Conditions de l'interaction	
a) Le laser	
a-1) Principe	108
a-2) Caractérisation des impulsions laser	109
a.2.1) Caractérisation de la durée d'impulsion laser	109
a.2.2) Caractérisation du contraste de l'impulsion laser	111
b) Focalisation du faisceau sur l'écoulement	114
b-1) Dimension de la tache focale et intensité	114
b-2) Paramètre confocal	116
2) Diagnostics	116
a) Mesure du profil de la zone d'émission	117
b) Mesure du profil de l'écoulement	119
c) Caractérisation spectrale de la source	119
c-1) Les cristaux de Bragg sphériques	119
c.1.1) Principe	119
c.1.2) Caractéristiques des cristaux utilisés	
c-2) L'enregistrement des spectres	125
d) Emissivité de la raie K $lpha$	
d-1) Principe	128
d-2) Bruits et signaux parasites	129
d-3) Comptage des photons	131
Conclusion	132
Références du chapitre 3	

Chapitre 3

Dispositif expérimental

Introduction

Dans ce travail, le système d'écoulement est destiné à étudier l'interaction entre un laser intense et un écoulement de poudre et plus particulièrement la génération de rayonnement X. La conduite de cette étude nécessite la mise en place d'une expérience et de diagnostics permettant de comprendre les processus se déroulant lors de l'interaction. L'expérience s'est déroulée sur le serveur LUCA du CEA Saclay délivrant des impulsions femtoseconde de l'ordre de 10¹⁷ W.cm⁻². Ce serveur offre la possibilité d'adapter certaines caractéristiques de l'impulsion telles que son énergie, sa durée ou son contraste. Les expériences conduites ont ainsi pu s'étendre à l'étude de différents régimes d'interaction. Notre étude s'est concentrée sur l'obtention de spectres d'émission, du nombre de photons émis par la raie K α ainsi que du profil spatial de la source. Le spectre d'émission apporte en effet des informations sur les états émetteurs présents dans le plasma. Cela permet de déterminer l'état du plasma et de déduire quelques informations sur les zones de dépôt de l'énergie de l'impulsion. La mesure du nombre de photons de la raie K α offre la possibilité de comparer l'émissivité de notre écoulement à celle des systèmes plus classiques de cibles planes et de déterminer le rendement de la source. Enfin, les mesures de profil d'émission apportent une information sur la géométrie de l'interaction. Toutes les mesures effectuées lors de cette expérience sont intégrées sur un grand nombre de tirs (de 1200 à plusieurs dizaines de milliers de tirs). Les résultats estimés pour un tir d'après ces expériences sont donc des résultats moyennés.

Le schéma général du dispositif expérimental est représenté sur la figure 1. Le système d'écoulement de la poudre est placé sous un vide primaire de quelques 10⁻¹ à 10⁻² mbar selon la poudre utilisée. Les différents diagnostics sont disposés autour du système d'écoulement. Sur ce schéma sont représentés, outre ce système :

- le laser focalisé,
- le système de pompage,
- les différents diagnostics : spectromètres, sténopé et photodiode.

Dans une première partie, nous présentons le laser utilisé ainsi que la géométrie des faisceaux focalisés. La seconde partie est destinée à la description des systèmes permettant

d'évaluer la taille de la source. Les systèmes de caractérisation spectrale de la source dans le domaine de longueurs d'onde compris entre 5,3 et 7,2 Å sont présentés dans la partie 3. Enfin, une dernière section de ce chapitre présente la technique de mesure du nombre de photons émis dans la raie K α .



Figure 1 : Dispositif expérimental.

1) Conditions de l'interaction

a) Le laser

a-1) Principe

Le faisceau laser est une voie issue de la ligne femto2 du serveur LUCA du SPAM. Le système (cf. figure 2) est constitué d'un oscillateur permettant de générer des impulsions laser de 5 nJ et de 25 fs à 800 nm. Ce faisceau est ensuite amplifié grâce à la technologie d'amplification à dérive de fréquence (CPA – Chirp pulse amplification - [1]) dans des cristaux de Titane-Saphir. On peut ainsi obtenir des impulsions brèves et intenses sans endommager les systèmes optiques. Dans un premier temps, le faisceau est étiré temporellement de 25 fs à 300 ps par un étireur de façon à diminuer sa puissance instantanée qui, une fois amplifiée, risquerait d'endommager les composants avals de la chaîne laser. La chaîne d'amplification est constituée d'un amplificateur régénératif [2] placé

après l'étireur et d'un amplificateur multipassage [3]. L'amplificateur régénératif est un oscillateur au sein duquel on piège une impulsion grâce à une cellule de Pockels. L'impulsion y est amplifiée lors des allers-retours qu'elle effectue dans l'amplificateur. Le gain est de 10⁶, élevant l'énergie de l'impulsion à 5 mJ. Cette impulsion est encore amplifiée grâce à un amplificateur multipassage. L'angle de collection de l'émission spontanée de cet amplificateur est faible ce qui permet d'éliminer spatialement une partie de cette émission. Ce système accroît donc majoritairement l'énergie de l'impulsion principale. En sortie, l'énergie est de 200 mJ. La dernière étape consiste à réduire à 40 fs la durée de l'impulsion grâce à un compresseur optique. L'énergie de l'impulsion comprimée atteint 100 mJ en crête et 45 mJ en routine et est délivrée à une cadence de 20 Hz.



Figure 2 : Schéma de principe du laser LUCA.

a-2) Caractérisation des impulsions laser

Les caractéristiques des impulsions peuvent être adaptées aux besoins de l'utilisateur. Ainsi, l'énergie par impulsion et la polarisation peuvent être simplement ajustées par un jeu de polariseurs. Il n'en est pas de même de la durée et du contraste de l'impulsion dont nous présentons ci-dessous les techniques de contrôle et de mesure.

a.2.1) Caractérisation de la durée d'impulsion laser

La durée d'impulsion peut être modifiée de 40 fs à 2 ps en adaptant la géométrie du compresseur optique. Pour ce faire, il suffit de recompresser moins violement l'impulsion après son amplification. La mesure de durée d'impulsion est assurée par un autocorrélateur 2 ω . Le principe de cet autocorrélateur (cf. figure 3) est de mélanger dans un cristal doubleur

deux bras issus du même faisceau initial mais décalés d'un délai variable τ par une ligne de retard [4]. La durée est déduite de la mesure de variation du signal détecté par un photomultiplicateur en fonction du délai.



Wintell Babique mobile

Figure 3 : Schéma de principe de l'autocorrélateur 2*w*

Ce système possède une résolution temporelle d'environ 10 fs et une dynamique de 10³. Ci-dessous, nous présentons une mesure de la durée d'une impulsion de 60 fs à mihauteur. La figure 4 présente cette mesure effectuée par le système que nous venons de décrire ainsi que l'ajustement de l'impulsion par une gaussienne.



Figure 4 : Trace d'autocorrélation de la ligne femto 2 de LUCA.

a.2.2) Caractérisation du contraste de l'impulsion laser

Le profil de l'impulsion d'un laser intense n'est pas simplement constitué d'une impulsion ultrabrève de quelques dizaines de femtosecondes. Celle-ci est précédée (et suivie) d'un fond lumineux. Pour caractériser l'impulsion, on doit donc connaître l'importance relative du pic principal et de cette émission. Pour cela, on définit le contraste à $-t_0$ par :



Figure 5 : Schéma d'une impulsion délivrée par un laser intense.

Le profil de d'impulsion intense peut être décomposé en trois zones temporelles distinctes :

- le pic principal qui a été précédemment présenté,
- les défauts de recompression qui interviennent sur une durée de 50 ps autour de l'impulsion principale,
- l'émission spontanée amplifiée (acronyme anglais : ASE) qui commence 1 à 2 ns avant l'impulsion principale. Cette émission est générée et amplifiée dans l'oscillateur délivrant l'impulsion initiale ainsi que dans l'amplificateur régénératif.

Ces trois zones sont reportées sur le profil temporel présenté sur la figure 5.

Mesure du contraste :

Pour mesurer le contraste de l'impulsion, nous utilisons un crosscorrélateur. Le principe théorique de cette mesure est de corréler le faisceau laser avec un pic de Dirac [5].

En pratique, le faisceau est divisé en deux voies dont l'une, après être passée au travers d'une ligne à retard variable τ , est doublée en fréquence au sein d'un cristal de KDP (cf. figure 6). Ce signal joue le rôle de pic de Dirac car le doublage induit une augmentation du contraste du signal, le pic principal étant doublé plus efficacement que les parties peu intenses de l'ASE. Les deux voies sont ensuite dirigées sur un cristal KDP où elles sont mélangées pour générer un faisceau à 3 ω . Le signal est alors filtré de façon à supprimer la composante ω puis recueilli par un détecteur. Ce signal est proportionnel à $\int_{-\infty}^{+\infty} I^2(t-\tau) * I(t)dt$. Le faisceau doublé étant assimilé à un Dirac, on a $I^2(t-\tau)=I_0 *\delta(t-\tau)$ avec $I_0=I^2(0)$. L'intégrale est

donc proportionnelle à l(τ). Le crosscorrélateur permet une mesure sur une plage d'environ 600 ps et possède une dynamique de 10¹⁰ bien supérieure à celle de l'autocorrélateur 2 ω .



Figure 6 : Schéma de principe d'un crosscorrélateur.

Contrôle du contraste :

On peut ajuster la valeur du contraste en biaisant l'utilisation originelle d'un composant : le dazzler. Le dazzler est un filtre acousto-optique programmable dont le rôle initial sur LUCA est de lutter contre le rétrécissement du spectre du faisceau laser et donc de diminuer la durée d'impulsion [6]. Le rétrécissement intervient lors de l'amplification du faisceau laser dont l'efficacité dépend de la fréquence et qui favorise les longueurs d'ondes du centre du spectre. Le dazzler, en filtrant partiellement ces longueurs d'ondes centrales, permet de compenser l'influence de l'amplificateur sur le spectre et de conserver un spectre large (cf. figure 7).



Figure 7 : a) Sans dazzler, le spectre de l'impulsion après l'amplification est moins large. – b) Avec dazzler, en filtrant les composantes du centre du spectre avant l'amplification, on peut conserver un spectre important et donc une durée d'impulsion faible après compression.

Sur le serveur LUCA, le dazzler est situé entre l'étireur et les amplificateurs. Pour ajuster le contraste, nous pouvons grâce au filtre programmable du dazzler injecter le faisceau de façon plus ou moins efficace dans l'amplificateur régénératif. Nous faisons ainsi varier le rapport « faisceau injecté dans les amplificateurs/ASE produite dans les amplificateurs » et donc le contraste de l'impulsion après les amplificateurs.

Le meilleur contraste est obtenu lorsque l'on enlève le dazzler. Cela correspond à l'injection de faisceau la plus efficace dans l'amplificateur régénératif : le rapport entre le pic injecté et l'ASE créée dans l'amplificateur régénératif est la plus grande. Le contraste mesuré à -200 ps (instant choisi arbitrairement dans la zone d'émission de l'ASE) est alors de 3.10⁶. Dans ce cas, l'impulsion est légèrement plus longue et atteint, dans le cas d'une recompression optimale, une durée à mi-hauteur de 50 fs. Le plus bas contraste est obtenu en introduisant un filtrage en amplitude de l'impulsion initiale car l'on diminue ainsi le rapport entre cette impulsion et l'ASE. Enfin, on peut obtenir un contraste intermédiaire en appliquant une fonction de transfert à la phase de l'impulsion.



Figure 8 : Profils des impulsions du laser dans différentes configurations du dazzler.

b) Focalisation du faisceau sur l'écoulement

Les paramètres qui caractérisent un faisceau laser focalisé sont généralement les suivants :

- le diamètre de sa tache focale qui, avec l'énergie et la durée d'impulsion, permet d'estimer l'éclairement dans la zone d'interaction,
- le paramètre confocal qui correspond à la longueur de la zone sur laquelle l'éclairement demeure supérieur à la moitié de l'éclairement maximal localisé au meilleur foyer.

b-1) Dimension de la tache focale et intensité

Pour focaliser le laser sur l'écoulement, une lentille placée hors de l'enceinte est utilisée de façon à éviter qu'elle ne soit endommagée par la poudre abrasive. La focale *f* de cette lentille est de 500 mm ; le diamètre D du faisceau avant la lentille étant de 40 mm, cela permet d'obtenir un système de focalisation d'ouverture à f/12 qui limite ainsi les aberrations. Le faisceau traverse ensuite un hublot en MgF₂ possèdant un faible indice non-linéaire pour éviter l'apparition de surintensités spatiales consécutives à la filamentation du faisceau.

Le faisceau du serveur LUCA possède un profil spatial hypergaussien d'ordre 3,6 que l'on approxime par une fonction circulaire circ(2r/D) avant la lentille où *r* est la coordonnée

radiale par rapport à l'axe central du faisceau. Au foyer de la lentille, on obtient donc une tache d'Airy dont le diamètre $d_{1/2}$ à mi-hauteur est donné par la formule :

$$d_{1/2} = 2 * w_{1/2} = \frac{2 * 1,61634}{\pi} \frac{\lambda f}{D}$$
(2)

où λ représente la longueur d'onde et $w_{1/2}$ le rayon à mi-hauteur. Dans nos conditions, le diamètre attendu est de 10 µm.



Figure 9 : Tache focale du laser et profils transverses de la tache

Une prise de vue de la tache focale peut être réalisée grâce à une CCD de dynamique 8 bits placée derrière un objectif de microscope qui image le plan de la tache sur le capteur de la caméra. Le faisceau est atténué de façon à ne pas endommager la caméra. Une image de la tache focale prise lors de ces mesures est présentée sur la figure 9. On peut y voir reportés les deux diamètres transverses d₁ et d₂ à mi-hauteur qui sont égaux à 14,7 µm et 15,4 µm. Ces deux diamètres confirment l'impression visuelle d'une tache focale relativement circulaire. Ils sont également assez proches de la valeur théorique donnée par (2), l'écart étant dû aux aberrations qui sont toujours présentes malgré les soins apportés au choix du système ainsi qu'au fait que l'on effectue une approximation de la fonction hypergaussienne. A des distances importantes de la tache focale subsiste un léger signal. Le bruit de fond moyen étant de 4 comptes CCD, on ne peut savoir si ce signal correspond au bruit de la CCD ou à de l'énergie provenant du faisceau. Pour cette raison, on ne peut connaître de façon précise la quantité d'énergie contenue dans la tache focale. En se plaçant dans la situation où l'intégralité du signal hors de la tache proviendrait du laser, on

estime que plus de 50% de l'énergie totale se trouve au sein de la tache. Ceci nous permet de donner un encadrement de l'éclairement crête I_0 en utilisant un ajustement gaussien du profil de la tache :

$$\frac{(E/2)\ln 2}{(\pi w_{1/2}^{2})\tau_{p}} \le I_{0} \le \frac{E * \ln 2}{(\pi . w_{1/2}^{2})\tau_{p}}$$
(3)

où *E* représente l'énergie par impulsion, τ_p la durée d'impulsion. Dans les conditions d'énergie et de durée d'impulsion dont nous disposons, l'éclairement crête maximal atteint est de l'ordre de (4±1,3).10¹⁷ W.cm⁻²

Lors des expériences, il est nécessaire de pouvoir contrôler la position et la forme de la tache focale pour assurer des conditions expérimentales identiques et optimisées. Ceci est réalisé grâce à un système d'imagerie constitué d'une lentille placée hors de l'enceinte dans l'alignement du laser et d'une caméra protégée par des densités optiques.

b-2) Paramètre confocal

Le paramètre confocal 2z_R est donné par :

$$2z_{R} = \frac{2\pi W_{0}^{2}}{\lambda}$$
(4)

où w_o est le waist du faisceau. Sa valeur est estimée à 1225 µm. Sur cette distance, l'intensité pour une optimisation des différents paramètres est comprise entre $(2\pm0,7).10^{17}$ W.cm⁻² et $(4\pm1,3).10^{17}$ W.cm⁻².

2) Diagnostics

Les diagnostics déployés lors de cette expérience sont destinés à déterminer les caractéristiques suivantes :

- le profil spatial de la source : un système sténopé est positionné dans l'enceinte,
- le profil spatial de l'écoulement : nous utilisons un détecteur à photodiode sensible aux rayonnements énergétiques,
- le profil spectral intégré en temps : des cristaux de Bragg sont utilisés pour diffracter le rayonnement X, les spectres sont alors enregistrés sur des films et accumulés durant un grand nombre de tirs,
- le nombre de photons par tir dans 2π sr dans la raie Kα qui est la plus intéressante pour des applications ainsi que nous l'expliquons dans le premier chapitre : nous utilisons également des cristaux de

Bragg pour la diffraction, mais les spectres sont enregistrés sur une CCD qui est plus précise pour la détermination d'un nombre de photons.

Outre ces diagnostics, un système d'imagerie permet de surveiller la qualité et la continuité de l'écoulement de poudre.

a) Mesure du profil de la zone d'émission

La mesure est effectuée grâce à un système sténopé. Ce système est constitué d'une plaque percée d'un trou par lequel est faite l'image de la source. Derrière la plaque est placé un film sensible aux rayons X qui recueille cette image (cf. figure 10). La distance I_1 entre la source et la plaque percée est de 70 mm tandis que la distance I_2 entre la plaque et le film est de 35 mm de la plaque. Le grandissement du système donné par le rapport I_2/I_1 est donc de 0,5. En raison de la taille du trou dont le diamètre est de 15 µm, le système n'est pas de résolution infinie. Cette résolution notée *r* est donnée par la relation :

$$r = \frac{d}{2}\left(1 + \frac{1}{G}\right) \tag{5}$$

La fonction d'appareil *F* s'écrit quant à elle : F = d(1+G) (6)

où *d* est le diamètre du trou et *G* est le grandissement du système.



Figure 10 : Principe du système sténopé utilisé pour la mesure du profil d'émission.

Avec les valeurs correspondant à notre configuration, on obtient une résolution et une largeur à mi-hauteur de la fonction d'appareil de 22,5 µm.

Ce système est protégé du rayonnement laser par 20 μ m de béryllium dont la transmission aux longueurs d'ondes qui nous intéressent est donnée sur la figure 11. D'autre part, les électrons d'énergie de plusieurs dizaines de keV sont défléchis par un aimant placé entre la source et le détecteur. Le rayon de déflection *R* est donné par :

$$R = \frac{T}{\text{ecB}} \tag{7}$$

où *T* est l'énergie cinétique d'un électron, *B* est le champ magnétique, e est la charge électrique et c la célérité de la lumière. De cette façon, pour le champ utilisé de 0,2 T, les électrons sont déviés hors de l'angle de détection. D'après cette équation, les électrons d'énergie inférieure à 7,5 MeV sont déviés selon un rayon inférieur à 5 cm. Comme les électrons générés à nos intensités laser ont une énergie maximale de l'ordre de quelques dizaines de keV (cf. chap. 1, § 4), et que la longueur de l'aimant est de 5 cm, les électrons chauds arrivant directement de la source sont totalement déviés par l'aimant et ne faussent pas les acquisitions. D'autre part, ces électrons énergétiques peuvent en entrant en collision avec la paroi générer des électrons secondaires ainsi que du rayonnements X. Pour protéger le système sténopé de l'émission secondaire, nous le recouvrons avec des feuilles de plomb de 1 mm d'épaisseur.



Figure 11 : Transmission des filtres de 7 et 20 µm de béryllium.

Après l'expérience, le film est digitalisé par un scanner dont les pixels possèdent une surface de 12,5*12,5 µm². En convoluant les fonctions d'appareil du système sténopé et du scanner, on trouve une résolution totale de 26 µm.

b) Mesure du profil de l'écoulement

Cette mesure est effectuée par une photodiode sensible au rayonnement énergétique. Cette photodiode est constituée d'une jonction PN en silicium. L'énergie nécessaire à la création d'une paire électron-trou étant de 1,2 eV, cette photodiode est donc sensible au rayonnement infrarouge du laser. Nous la protégeons de ce rayonnement grâce à un filtre de 7 µm de béryllium (cf. figure 11). Ce détecteur n'est pas préservé des électrons chauds comme l'est le système sténopé ; aussi, le signal enregistré comprend, outre le signal de rayonnement X, le signal engendré par les électrons chauds. Cela ne change cependant pas l'interprétation géométrique des mesures effectuées. En déplaçant latéralement la lentille par rapport à la poudre, on détermine le profil intégré de l'écoulement et en particulier celui de ses bords.

c) Caractérisation spectrale de la source

Les techniques spectroscopiques sont largement utilisées en physique des plasmas pour déterminer les paramètres d'état. La caractérisation spectrale requiert d'une part un dispositif dispersif et d'autre part des moyens de détection. Nous présentons donc dans ce paragraphe les cristaux utilisés pour la diffraction qui sont des cristaux de Bragg sphériques ainsi que les films sensibles au rayonnement X.

c-1) Les cristaux de Bragg sphériques

La longueur d'onde associée au rayonnement X est du même ordre de grandeur que la distance interréticulaire des cristaux. La diffraction par les plans cristallins peut donc disperser le rayonnement X et permettre la caractérisation spectrale de la source.

c.1.1) Principe

Dans nos expériences, nous avons utilisé des cristaux sphériques [7]. Cette forme de cristal possède l'avantage de focaliser les rayons X diffractés de la même façon qu'un miroir sphérique en optique. Cela permet d'obtenir une densité de signal et un rapport signal sur bruit plus importants et donne accès à une image géométrique de la source sans avoir recours à l'utilisation d'une fente.

Il existe deux plans d'intérêt pour ces cristaux :

le plan de dispersion (cf. figure 12) défini par la source, le sommet du cristal et l'image de la source, dans ce plan les rayons X sont diffractés selon la loi de Bragg :

$$2d\sin\theta = n\lambda_n \tag{8}$$

où ρ est l'angle entre le rayon incident et les plans atomiques considérés, *n* est l'ordre de diffraction, λ_{ν} est la longueur d'onde diffractée à l'angle θ à l'ordre n,

d est la distance interréticulaire.



Figure 12 : Plan de dispersion du cristal sphérique.

le plan sagittal perpendiculaire au plan de dispersion (cf. figure 13), où l'on peut observer l'image géométrique de la dimension transverse de la source. La relation entre les distances source-sommet du cristal *a* et sommet du cristal-image *b* se déduit de la relation de conjugaison pour des miroirs sphériques, cette relation est :

$$\frac{1}{a} + \frac{1}{b} = \frac{2\sin\theta}{R} \tag{9}$$

où R est le rayon de courbure du cristal.

Le grandissement M_s dans ce plan est donné par : $M_s = \cos 2\theta$ (10)



Figure 13 : Plan sagittal du cristal sphérique.

Ces cristaux peuvent être positionnés selon deux configurations :

- la configuration 1D qui donne accès au spectre diffracté de la source ainsi qu'à son image géométrique dans <u>une</u> dimension,
- la configuration 2D qui donne accès aux mêmes informations que précédemment ainsi qu'à l'image géométrique de la source dans le plan de dispersion, convoluée par la largeur de la raie.

Ces deux configurations se différencient par la position de l'image et de la source par rapport au cercle de Rowland. Ce cercle de rayon R/2 est un cercle sur lequel les rayons diffractés se focalisent. Les configurations n'ont d'incidence que sur l'observation effectuée dans le plan de dispersion et n'affectent pas le grandissement de la source dans le plan sagittal. Par la suite, la possibilité d'imager la source est utilisée pour obtenir une autre évaluation de la taille de la zone d'émission.

Configuration 1D :

La source est placée à l'extérieur du cercle de Rowland tandis qu'on observe le spectre sur ce cercle (cf. figure 14). Dans cette configuration, les distances source-cristal a et cristal-image b sont données par :

$$a = R \frac{\sin\theta}{\cos 2\theta}$$

b = Rsinθ (11)



Figure 14 : Principe d'un cristal sphérique en configuration 1D.

L'image se faisant sur le cercle de Rowland, les différentes longueurs d'ondes diffractées sont focalisées, la résolution du spectre ne dépend pas de la taille de la source et est limitée uniquement par la largeur de la courbe appelée Rocking Curve définissant la réponse du cristal à un rayonnement monochromatique. Plus cette courbe est large et plus la résolution du cristal est faible. En pratique, dans cette configuration, on peut atteindre des valeurs de $\frac{\lambda}{\Lambda\lambda}$ de l'ordre de 10000.

Configuration 2D :

La source et l'image sont maintenant toutes deux hors du cercle de Rowland (cf. figure 15). Dans cette configuration, pour que les distances source-cristal a et cristal-image b obéissent à la relation (9), elles doivent être égales à :

$$a = \frac{Rb}{(2b\sin\theta - R)}$$

$$b = \frac{R^*(1 + \cos 2\theta)}{2\sin\theta}$$
(12)

On observe toujours l'image de la source dans le plan sagittal et le grandissement dans ce plan est toujours donné par M_s . Cependant, en raison de l'observation de l'image hors du cercle de focalisation, les rayons diffractés ne sont plus focalisés et la largeur des raies observées dépend maintenant de la taille de la source. On peut ainsi observer une image de la dimension de la source dans le plan de dispersion. Dans ce plan, le grandissement M_d est donné par :

$$M_{d} = \frac{R[a - \cos\theta(2a\cos\theta - R)]}{(R\cos\theta - a)(2a - \cos\theta - R)}$$
(13)

De plus, la résolution spectrale est maintenant dépendante de la largeur géométrique de la source. On peut estimer sa valeur maximale par la formule suivante [8]:

$$\left(\frac{\lambda}{\Delta\lambda}\right)_{\max} = \frac{R}{s} \left| B(a,\theta,R) \right|^{-1}$$
(14)

avec :
$$B(a, \theta, R) = \frac{2 \sin \alpha \cot \theta}{(a / R - \sin \theta)(\tan \theta \tan \gamma + 1) + a / R}$$
 (15)

où α est l'angle entre le rayon incident sur le cristal et la droite reliant la source et son image,

 γ est l'angle entre le rayon réfléchi sur le cristal et cette même droite,

s est la taille de la source dans le plan de dispersion.

La possibilité d'observer une deuxième dimension de la source a donc pour conséquence d'affaiblir la résolution spectrale.



Figure 15 : Principe d'un cristal sphérique en configuration 2D.

c.1.2) Caractéristiques des cristaux utilisés

Nous utilisons trois cristaux différents, qui permettent d'étudier les domaines spectraux suivants en utilisant dans les trois cas la diffraction à l'ordre 1 :

- 5,35 à 5,85 Å, domaine comprenant les raies He β et He γ ,
- 6,1 à 6,4 Å, domaine où l'on trouve la raie Lyα,
- 6,61-7,16 Å, domaine comprenant les raies comprises entre la raie
 Kα et Heα.

Afin d'éviter que la poudre ne les abîme, tous ces cristaux sont protégés par un film de C_3H_6 épais de 6 µm (cf. figure 16).



Figure 16 :Transmission des filtres de 6 et 1 μ m de C₃H₆ et de 0,2 μ m d'aluminium.

<u>Cristal servant à observer les raies Hey à He β :</u>

Ce cristal est un cristal de mica de rayon de courbure 100 mm et de surface 10*30 mm². Les rayons incidents voient des plans réticulaires distants de 6,6 Å. Ce cristal est placé à 30° ou à 80° du laser en configuration 1D (*a*=208,5 mm; *b*=83,7 mm). Dans cette position, le champ dans le plan de dispersion nécessite une zone d'observation minimale de 5 mm. Cette position permet également d'atteindre une très importante résolution de $\frac{\lambda}{\Delta\lambda} = 10000$. On peut ainsi distinguer des raies séparées de 0,5 mÅ.

Cristal servant à observer la raie Lyα :

Ce cristal est un cristal de quartz de rayon de courbure 150 mm et de surface $15*50 \text{ mm}^2$ dont les plans réticulaires sont distants de 6,6 Å dans la direction des rayons incidents. Ce cristal est placé à 40° du laser en configuration 2D, mais le détecteur demeure très proche du cercle de Rowland (*a*=215 mm; *b*=127,7 mm soit à une distance de 13 mm du cercle). Le spectre obtenu s'étale sur une zone de 8 mm. La résolution maximale qui dépend dans cette configuration de la taille de la source, est estimée d'après (14) et (15) égale à 6100 pour une source de 200 µm. En pratique, elle a été mesurée égale à 5200.

<u>Cristal servant à observer les raies He α à K α :</u>

Ce cristal est un cristal de quartz de rayon de courbure 100 mm et de surface 10*30 mm². Les rayons incidents rencontrent des plans réticulaires espacés de 8,5 Å. Ce

cristal est placé à des angles variant de 30° du laser suivant les expériences. Il est en configuration 2D mais, comme dans le cas du cristal Ly α , reste proche du cercle de Rowland. Le spectre obtenu couvre une zone large de 10,5 mm. La résolution maximale estimée par (14) et (15) est de 15000. En pratique, elle n'est que de 6000.

Dans un souci de clarté, nous synthétisons les caractéristiques des différents cristaux dans le tableau suivant.

Gamme spectrale	Ηeγ-Heβ	Lyα	Ηεα-Κα
Matériau	mica	quartz	quartz
2d (Å)	6,6	6,6	8,5
Rayon (mm)	100	150	100
Ordre de diffraction	1	1	1
Position par rapport au laser (°)	30 puis 80°	40	30
Configuration	1D	2D	2D
Résolution pour une source de 200 μm	10000	5200	6000
Taille du spectre (mm)	11	8	10,5
Dimensions (mm²)	15*50	10*30	10*30

Tableau 1 : Caractéristiques des cristaux utilisés lors de l'expérience.

c-2) L'enregistrement des spectres

Pour la caractérisation spectrale de la source, les spectres ont été enregistrés sur des films. Le dispositif expérimental en présence des films est présenté sur la figure 17.

Ce type de support présente plusieurs avantages :

- en raison de la petite taille des grains du film (1 à 2 μm), nous pouvons résoudre des raies écartées de 5.10⁻⁵ Å autour de la raie Heα et de 2.10⁻⁵ Å autour de la raie Lyα. Ainsi, la résolution fournie par les cristaux n'est pas diminuée par le support d'enregistrement,
- la taille du détecteur doit être supérieure à celle du champ dans le

plan de dispersion soit environ 1 cm (cf. paragraphe précédent), condition aisément remplie par les films que l'on peut dimensionner,

 enfin, le coût modeste des films par rapport à d'autres supports permet d'enregistrer simultanément les émissions des différents domaines spectraux.

Pour toutes ces raisons, les films constituent une bonne solution.



Figure 17 : Dispositif expérimental en présence des films.

Les films sont placés sur un support et protégés de la lumière visible par un filtre constitué de 1 µm de polypropylène et de 0,2 µm d'aluminium (cf. figure 16). Ils sont également préservés des électrons chauds grâce à des aimants possédant un champ magnétique de l'ordre de 0,2 T situés en amont des cristaux ainsi que par des feuilles de plomb disposés sur le support et épaisses de 1 mm. L'action de ces dispositifs de protection contre les électrons chauds à déjà été détaillée au paragraphe 3.a.

Une fois le film développé, le spectre enregistré n'est pas directement exploitable. Diverses opérations sont nécessaires pour pouvoir exploiter la mesure :

- numérisation du film par un scanner dont les pixels ont une surface de 12,5*12,5 μm²,
- conversion des pixels en millimètres grâce à la taille des pixels donnée précédemment,

- conversion de la position sur le film exprimée en millimètres en longueur d'onde grâce à un logiciel tenant compte des positions relatives de la source de rayonnement, du cristal et du film. Cette relation s'exprime sous la forme d'un polynôme,
- correction du spectre par la sensibilité du film à une longueur d'onde donnée,
- redressement du spectre : le spectre est généralement scanné avec un léger angle, si l'on effectue dans ces conditions une intégration spatiale du spectre, on prend en compte une partie plus importante du fond. On redresse donc le spectre pour ne pas intégrer ce bruit.

d) Emissivité de la raie K α

L'émissivité détermine le nombre d'accumulations nécessaires dans une expérience d'application telle qu'une expérience pompe-sonde. Plus l'émissivité est grande et plus ce nombre d'accumulations peut être réduit, une trop faible émissivité est donc rédhibitoire. Nous nous concentrons sur l'émissivité de la raie K α de la source de rayonnement car cette raie est à priori la plus brève et donc la plus intéressante pour des expériences de type pompe-sonde. D'autre part, grâce à cette mesure quantitative, nous pouvons comparer notre source aux sources plus classiques telles que la cible plane et juger ainsi de son intérêt. Pour effectuer cette mesure, nous utilisons comme précédemment un cristal de Bragg sphérique placé cette fois à environ 80° par rapport à l'axe du laser. Par contre, nous avons choisi d'enregistrer le spectre sur une caméra CCD et non sur des films. La caméra CCD se révèle en effet plus précise que les films pour déterminer un nombre de photons. Le dispositif expérimental en présence de ce système est représenté sur la figure 18.


Figure 18 : Dispositif expérimental en présence de la caméra CCD.

d-1) Principe

Le capteur d'une caméra CCD [9] est formé d'une matrice de pixels. Ces pixels sont constitués par une capacité MOS (Métal – Oxyde - Semi-conducteur) dont le substrat semiconducteur est dopé p (cf. figure 19). En appliquant au condensateur une tension positive par rapport au substrat, on crée un puits de potentiel à l'interface entre l'oxyde et le semiconducteur. Les électrons créés par les photons dont l'énergie est supérieure au gap du silicium sont ainsi confinés dans ce puits. La lecture du signal se fait selon le principe des dispositifs à transfert de charges. Un signal d'horloge périodique est appliqué aux grilles, ce qui permet de créer un canal entre les pixels voisins. Les charges sont ainsi évacuées de proche en proche vers un amplificateur.

Il existe deux façons d'illuminer une CCD :

- en face avant, les photons doivent alors traverser la partie métallique du MOS ce qu'ils ne peuvent faire s'ils sont de faible énergie,
- en face arrière, après gravure du substrat de silicium pour que ces mêmes photons de faible énergie puissent illuminer le capteur.

Dans notre cas, l'énergie des photons est supérieure à 1 keV et donc suffisante pour traverser les structures métalliques de la face avant. C'est dans cette configuration que la caméra CCD est utilisée.



Figure 19 : Schéma de principe d'un capteur CCD. Lorsque l'on applique une tension V_G positive à la grille métallique du composant MOS, on crée un puits de potentiel dans lequel les photoélectrons s'accumulent.

La CCD dont nous disposons possède des pixels de $19*19 \ \mu\text{m}^2$ et un capteur de $512*512 \ \text{pixels}^2$ soit 9,7*9,7 mm². Avec une telle taille de capteur, nous ne pouvons, dans la position du cristal, observer le spectre K α -He α intégralement. D'après les calculs effectués précédemment, il faut en effet une largeur de capteur minimale de 10,5 mm. Comme nous nous intéressons plus particulièrement à la raie K α , nous avons placé la CCD de façon à observer cette raie. Cela est cependant réalisé au détriment de la raie He α qui n'a été enregistrée que partiellement.

La largeur des capteurs étant de 19 μ m, on ne peut résoudre des raies distantes de plus de 1 mÅ, ce qui est cependant largement suffisant pour distinguer très clairement la raie K α de ses voisines.

d-2) Bruits et signaux parasites

Le bruit porté par le signal de la CCD provient de différentes origines dont les principales sont les suivantes :

 le bruit de fluctuations tir à tir : pour un même signal de photons, un nombre différent de photoélectrons peut être créé. La distribution de mesures de ce nombre de photoélectrons suit la loi de Poisson.
 Pour N_ρ photons enregistrés (N_ρ >> 1), le bruit de fluctuations tir à tir est caractérisé par :

$$\sigma_{p}=\sqrt{N_{p}}$$
 ,

Pour un signal de 1000 e⁻ par pixel, le bruit est d'environ 30 électrons,

- le bruit thermique : à température ambiante, des paires électrons trous sont générées et stockées dans le puits de potentiel de la même façon que les photoélectrons. Ces charges ne sont donc pas distinguables des charges utiles. Afin de diminuer ce bruit, la caméra est refroidie à -42°C. A chaque diminution de la température de 6°C, ce bruit est divisé par deux. A-42°C, il est alors égal à un électron par seconde et par pixel,
- le bruit de lecture σ_l provient de l'amplificateur de sortie et est égal à quelques électrons par pixel,
- le bruit de Fano σ_F correspond à la variation du nombre de paires électrons-trous créées pour des photons de même énergie incidente. Cela a pour conséquence de diminuer la résolution spectrale. Ce bruit est de l'ordre de 7,5 électrons pour la raie K α du silicium et est donc peu gênant pour la plupart de nos accumulations. De plus, nous avons principalement utilisé les spectres enregistrés par les films pour l'étude spectrale de la source.

Le bruit global est donné par l'expression suivante :

$$\sigma = \sqrt{\sigma_p^2 + \sigma_t^2 + \sigma_f^2 + \sigma_F^2}$$
(16)

Dans notre cas, le bruit total est de l'ordre de grandeur du bruit de photoélectrons qui apparaît comme étant le bruit dominant.

Outre ces bruits intrinsèques au fonctionnement de la CCD, les capteurs peuvent être sensibles à d'autres sources de signal que le rayonnement X. Comme dans le cas des films, ces signaux sont la diffusion du laser et les signaux d'électrons suprathermiques générés lors de l'interaction. Le capteur de la CCD est protégé des électrons par les mêmes aimants que précédemment placés devant le cristal, et du rayonnement infrarouge du laser par un filtre de béryllium de 20 μ m. Comme les cristaux, la CCD est protégée de la poudre par 6 μ m de C₃H₆.

d-3) Comptage des photons

La CCD dénombre pour un pixel donné le nombre de paires électron-trou créées par le rayonnement. Afin de déterminer le nombre de photons émis par la source en un tir et dans 2π sr, il est nécessaire de prendre en compte les paramètres suivants :

- source : l'énergie des photons de la raie considérée, plus l'énergie du photon est élevée, plus il crée de paires électron-trou,
- CCD : l'énergie de création d'une paire électron-trou, gain et efficacité quantique de la CCD,
- conditions expérimentales : le filtrage du rayonnement X par les filtres de protection, réflectivité du cristal, nombre d'accumulations,
- l'angle solide pour lequel on désire dénombrer le nombre de photons.

En tenant compte de ces différents paramètres, le nombre de photons N_{phot} contenu dans un angle solide ϕ est donné par la relation :

$$N_{phot} = \frac{3.64}{E_{phot}} N_{CCD} \left(Gq_{CCD} \rho_{cr} \tau_{fil} N_{aq} \right)^{-1} \frac{\Phi}{\Delta \Omega}$$
(17)

où : N_{CCD} est le nombre de coups CCD,

Ephot/3,64 est le nombre d'électrons créé par un photon d'énergie Ephot,

G est le gain de la CCD,

 q_{CCD} est l'efficacité quantique de la CCD,

 ρ_{cr} est la réflectivité du cristal de diffraction,

 τ_{fil} est la transmission du filtre à l'énergie du photon,

N_{aq} est le nombre d'acquisition réalisé,

 $\Delta \Omega$ est l'angle solide vu par le cristal,

 Φ est l'angle dans lequel le nombre de photons est estimé, dans notre cas, 2π sr.

Pour effectuer ce calcul, il est nécessaire de connaître le rendement quantique et le gain de la CCD. Ces deux caractéristiques ont été mesurées au cours d'une étude précédente [10]. Le rendement quantique correspond au pourcentage de photons incidents créant des paires électron-trou. Pour la raie K α dont l'énergie est de 1740 eV, le rendement est de 0,2. Le gain de la CCD n'est pas déterminé de façon directe. Cependant, la valeur d'un ADU (Analogic to Digital Unit), c'est-à-dire de l'énergie incidente nécessaire pour générer un coup CCD a été mesurée dans [10]. Dans l'équation précédente la valeur de l'ADU correspond au facteur 3,64/*G*. Pour un photon de 1740 eV, cette valeur est :

1 ADU =
$$\frac{3,64 \text{ eV}}{G}$$
 = 19,7 eV

Conclusion

Ce chapitre a permis de présenter les conditions d'interaction ainsi que les différentes caractéristiques étudiées du rayonnement. En résumé, les expériences sont conduites en utilisant un faisceau laser femtoseconde focalisé. Le diamètre à mi-hauteur de la tache focale est de 15 μ m. Cela permet d'atteindre des intensités de (4±1).10¹⁷ W.cm⁻². Les paramètres de contraste et de durée d'impulsion sont ajustables. Ainsi, le contraste peut être adapté entre 3.10⁶ et 5.10⁴. L'interaction de l'impulsion principale avec des préplasmas plus ou moins importants peut ainsi être analysée. La durée de l'impulsion a été variée entre 40 et 1000 fs dans ces différents régimes.

Pour observer et comprendre les phénomènes se produisant lors de l'interaction, nous déterminons différentes propriétés de l'interaction. Le profil de la zone d'émission est ainsi mesuré à l'aide d'une caméra sténopé mais également de l'image géométrique fournie par les cristaux diffractants. Un photodétecteur nous permet d'obtenir le profil de l'écoulement. L'étude spectroscopique menée à l'aide de ces mêmes cristaux permet d'enregistrer l'émission des raies Ly α , He α , He β , He γ , K α ainsi que des raies des états de charge 6 à 11 comprises entre la raie K α et He α . Ces spectres nous permettent d'obtenir des informations sur le chauffage du plasma sous-dense par absorption collisionnelle mais également sur les zones traversées par les électrons suprathermiques créés par absorption résonnante. Enfin, l'émissivité de la raie K α est mesurée en utilisant comme support pour les spectres une caméra CCD permettant un comptage précis des photons.

Références du chapitre 3

- [1] P. Maine, Strickland D., Bado P., Pessot M., Mourou G., Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification, IEEE J. Quantum Electron. 24, 398-403, 1988.
- [2] Murray J.E and Lowdermilk W.H., ND : YAG regenerative amplifier, J. Appl. Phys. 51, 3548, 1980.
- [3] Georges P., Frederick Estable, Francois Salin, Jean Phillipe Poizat, Philippe Grangier, Alain Brun, High-efficiency multipass Ti:sapphire amplifiers for a continuous-wave singlemode laser, Opt. Lett. 16, 144, 1991.
- [4] F. Salin, P. Georges, G. Roger, A. Brun, Single-shot measurement of a 52-fs pulse, Appl.Opt. 26, issue 21, 4528, 1987.
- [5] Albrecht,-G.; Antonetti,-A.; Mourou,-G, Temporal shape analysis of ND/sup 3+/:YAG active passive mode-locked pulses. Opt. Comm.; 40(1): 59-62, 1981.
- [6] Tournois P., Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems, Opt. Comm., 140(4-6): 245-9, 1997.
- [7] A. Ya Faenov, S.A Pikuz, A.I Erko et al., High-performance X-ray spectroscopic devices for plasma microsources investigations. Physica Scripta, vol.50; issue 4, 333, 1994.
- [8] B. K. F. Young, A. L. Osterheld, D. F. Price, R. Shepherd, R. E. Stewart, A. Ya. Faenov, A. I. Magunov, T. A. Pikuz, I. Yu. Skobelev, F. Flora, S. Bollanti, P. Di Lazzaro, T. Letardi, A. Grilli, L. Palladino, A. Reale, A. Scarfati and L. Reale. High-resolution x-ray spectrometer based on spherically bent crystals for investigations of femtosecond laser plasmas, Vol. 69, 12, 4049, 1998.
- [9] Sol M. Gruner, Mark W. Tate, Eric F. Eikenberry. Charge-coupled device area x-ray detectors. RSI, Vol. 73, 8, 2815, 2002.
- [10] A. Rousse, Génération d'électrons rapides et émission X dans l'interaction d'une impulsion laser sub-picoseconde et intense avec une cible solide. Thèse de doctorat, Paris XI, (1994).

Chapitre 4

Résultats et Discussion

Introduction	137
Partie A - Géométrie de l'interaction	138
1) Fluctuations spatiales de l'écoulement	138
a) Fluctuations tir à tir de l'intensité	138
b) Fluctuations spatiales de la source	139
2) Interstices entre les grains de l'écoulement	143
a) Fraction d'énergie du faisceau perçue par les grains d'une couche	144
b) Effet d'ombre des couches superficielles sur l'émission des couches profondes	148
3) Forme des grains	149
a) Intensité perçue par les grains	149
b) Absorption de la cible	150
4) Effet fusée : limitation du taux de répétition	153
Partie B - Physique de l'interaction	156
1) Le plasma thermique	157
a) Densité et température électronique de la zone d'émission	158
a.1) Densité électronique	158
a.2) Dépendance de la densité avec la fluence	160
a.3) Dépendance de la densité avec la durée de l'impulsion	161
a.4) Température électronique	163
b) Dynamique de l'interaction	165
b.1) Simulations hydrodynamiques	166
b.1.1) Profils de densité et température avant l'arrivée de l'impulsion principale	166
b.1.2) Profils de densité et température pour des impulsions présentant un piéde	stal.167
b.2) Simulation des spectres	170
b.2.1) Résultats	170
b.2.2) Discussion	175
2) Le plasma froid et dense	177
a) Profondeur de dépôt des électrons suprathermiques	178

Références du chapitre 4		
Conclusion	189	
3) Effet d'un préplasma important	186	
b.2) Effet du flux de l'impulsion	184	
b.1) Effet de la durée de l'impulsion	182	
b) Emission de rayonnement K α	182	

Chapitre 4

Résultats et discussion

Introduction

Le but de ce travail est d'une part de déterminer les spécificités de l'interaction d'un laser avec un écoulement de poudre et d'autre part, d'employer ce système de distribution de cibles pour analyser quelques aspects de la physique de l'interaction. Une poudre présente plusieurs spécificités vis-à-vis d'une cible plane. Elle est constituée d'une multitude d'éléments indépendants les uns des autres contrairement aux cibles planes qui sont constituées d'un seul bloc. Les grains peuvent par ailleurs présenter une grande variété de formes et la distribution de cibles sous forme d'écoulement distingue encore les poudres des cibles planes. On peut notamment observer l'existence d'interstices entre les grains ainsi que des fluctuations de la forme et du diamètre de l'écoulement. L'impact de tous ces paramètres : fluctuations de l'écoulement, interstices, forme et indépendance des grains est examiné dans la première partie de ce chapitre. Dans une seconde partie, nous nous attachons à étudier la physique de l'interaction avec le matériau constituant la poudre. L'étude porte aussi bien sur le plasma thermique que sur la partie plus dense et plus froide de la cible, les différences entre les poudres, lorsqu'elles existent, sont soulignées. Ainsi que nous l'avons évoqué au premier chapitre, l'interaction d'un laser intense avec la matière permet d'atteindre des températures élevées à haute densité. Ces deux paramètres, température et densité, sont déterminés grâce à la confrontation des spectres expérimentaux aux spectres synthétiques générés par TRANSPEC. De plus, utilisé comme postprocesseur de FILM, TRANSPEC permet de décrire la dynamique de l'interaction. Les résultats des simulations sont alors comparés aux données expérimentales. L'étude de la partie froide a pour objectif d'une part de mettre en relation l'énergie des électrons suprathermiques avec la profondeur de dépôt et d'autre part d'étudier l'émission du rayonnement K α . Enfin, un dernier paragraphe s'intéresse à l'impact de la présence de préplasmas importants au moment de l'arrivée de l'impulsion principale. Un préplasma influe aussi bien sur l'absorption collisionnelle de la partie thermique que sur la génération d'électrons suprathermiques. Pour cette raison, les deux aspects sont pris en considération.

Partie A - Géométrie de l'interaction

1) Fluctuations spatiales de l'écoulement

Au dernier paragraphe du chapitre 2, nous montrons que la position du grain avec lequel le laser interagit fluctue de $\pm 150 \ \mu m$ pour les microbilles pleines. Cette fluctuation a deux implications :

- la cible ne se trouve pas toujours au meilleur foyer du faisceau et l'intensité perçue varie tir à tir ce qui change les conditions d'interaction,
- la position de la source de rayonnement fluctue spatialement ce qui induit un jitter temporel entre les émissions des différents tirs.

a) Fluctuations tir à tir de l'intensité

L'influence des fluctuations spatiales de la cible sur l'intensité perçue dépend du rapport entre le paramètre confocal et l'excursion des grains : plus ce rapport est grand, plus l'influence est faible. Dans nos expériences, le paramètre confocal est de 1225 µm c'est à dire supérieur à l'excursion des microbilles. Le rapport entre l'intensité à une distance donnée du waist et l'intensité au waist pour ce paramètre est représenté sur la figure 1. Nous représentons également la probabilité de présence d'une bille en fonction de la position par rapport au meilleur foyer (cf. chap. 2, figure 35). L'intensité perçue est au minimum égale à 95 % de l'intensité maximale. En évaluant la moyenne du rapport pondérée par la probabilité de présence d'une bille perçoit statistiquement une intensité égale à 99 % de l'intensité maximale, les fluctuations spatiales de l'écoulement ont donc une répercussion peu importante sur l'intensité perçue par la cible.



Figure 1 : Rapport de l'intensité reçue par la cible et de l'intensité au waist et probabilité de présence d'un grain à une distance donnée du waist. La poudre considérée est la poudre de microbilles pleines.

b) Fluctuations spatiales de la source

Les mesures de fluctuations de l'écoulement ont permis de prédire l'existence d'une fluctuation spatiale de la source. Cette dernière a pu être évaluée grâce aux diagnostics de mesure de profils intégrés en temps de la source, c'est-à-dire grâce au système sténopé donnant accès aux profils transverse et longitudinal et au spectromètre permettant la mesure des raies He β et He γ . Les spectromètres sphériques imagent en effet la dimension transverse au plan de dispersion, cela correspond dans nos expériences à la dimension longitudinale du profil. Nous nous concentrons uniquement sur les raies He β et He γ car les spectromètres qui les recueillent se trouvent à 80° de l'incidence du laser ce qui limite l'influence de la dimension transverse du profil de la source. Le système de mesure du profil de l'écoulement (photodiode sensible aux rayonnements énergétiques) a également permis d'obtenir une évaluation de la largeur à mi-hauteur des fluctuations de la source. En effet, la dimension spatiale sur laquelle le signal décroît au niveau des bords de l'écoulement correspond à l'amplitude des fluctuations de la source.

Sur la figure 2 est représentée une trace obtenue grâce au système sténopé ainsi que les profils longitudinal et transverse de la source. Les largeurs à mi-hauteur des profils sont respectivement égales à 230 et 62 μ m sur cet exemple. La moyenne effectuée sur l'ensemble des profils obtenus fournit des valeurs de 255 et 62 μ m avec des déviations standards de 32 et 28 μ m. L'incertitude importante sur la largeur transverse vient la largeur de la fonction d'appareil qui est de 26 μ m. Les deux autres méthodes de mesure confirment la valeur de la largeur du profil longitudinal. En évaluant d'après la figure 3 la zone sur

laquelle le signal de la photodiode décroît de moitié (cf. § 3.a.2, chap. 3), on obtient une largeur à mi-hauteur de 235 μ m. D'autre part l'évaluation effectuée grâce à la raie He β donne également un même ordre de grandeur avec une taille de 215 μ m, seule la raie He γ donne une valeur plus importante de 380 μ m sans que la raison de cette différence ait été comprise.



Figure 2 : a) Image de la source issue des mesures effectuées à l'aide du système sténopé - b) Profil transverse. L'écoulement est un écoulement de microbilles pleines – c) Profil longitudinal déduit de cette image.

Pour les microbilles creuses, seule une estimation au moyen du système sténopé est réalisée, une largeur moyenne de 230 µm et de 80 µm est respectivement établie pour le profil longitudinal et le profil transverse. Ces valeurs sont proches de celles obtenues pour les microbilles pleines.



Figure 3 : Signal reçu par la photodiode sensible aux rayonnements énergétiques en fonction de la position latérale du faisceau par rapport au centre de l'écoulement.

En ce qui concerne les poudres d'aérogels, le système sténopé indique des largeurs des profils longitudinal et transverse de 1300 µm et 93 µm. Les spectres réalisés à l'aide des cristaux sphériques nous permettent d'avoir une seconde estimation de 800 µm pour la largeur du profil longitudinal. Cette largeur est beaucoup plus importante que celles présentées ci-dessus en raison de la granulométrie plus importante de cette poudre (200 µm en moyenne) et du plus grand diamètre de l'entonnoir d'adaptation. L'ensemble des valeurs données dans ce paragraphe est regroupé dans le tableau 1.

Largeur Iongitudinale (µm)	Microbilles pleines	Microbilles creuses	Aérogels
Sténopé	255	230	1300
Photodiode	235	×	×
Ηeβ	215	×	800
Ηεγ	380	×	1050
Largeur transverse (μm)	Microbilles pleines	Microbilles creuses	Aérogels

Tableau 1 : Largeur à mi-hauteur des profils longitudinal et transverse pour les différentes méthodes de mesure et pour les trois types de poudre. Les croix indiquent que la mesure n'est pas effectuée.

80

62

Sténopé

93

En raison de la fluctuation spatiale de la source, le chemin optique entre le point d'émission et un détecteur donné varie entre les tirs. Cela induit un jitter temporel potentiellement gênant pour des applications exigeant une importante résolution temporelle. Pour une variation ε de la position de la source (cf. figure 4) le long de l'axe du faisceau, la différence de chemin optique entre les photons émis au tir a) et b) est :

$$\delta = \varepsilon + \sqrt{R^2 + 2R\varepsilon\cos\theta + \varepsilon^2} - R \tag{1}$$

où R est la distance source-détecteur et θ l'angle de l'axe source-détecteur avec le faisceau.



Figure 4 : Différence de chemin optique entre les tirs. La source dans le cas b) se trouve à une distance ε de la source du cas a). Cela induit une différence de chemin optique entre a) et b) et donc un jitter temporel entre les tirs.

D'après (1), la différence de chemin optique est plus ou moins grande selon la position angulaire du détecteur. Sa valeur est maximale pour un angle θ de 0° et est alors de 2 ϵ . Elle est nulle pour un angle de 180° mais, dans cette configuration, le rayonnement est réabsorbé par les grains situés entre la cible et le détecteur. Dans la suite, nous considérons la situation où le détecteur se trouve à un angle θ de 90° ce qui correspond à la position dans laquelle les mesures d'émissivité de la raie K α sont réalisées. La différence de chemin optique est alors de l'ordre de ϵ . Pour la poudre de microbilles dont l'extension de la source est de 250 µm, le jitter induit est de 800 fs.

Cette valeur de jitter peut être améliorée en positionnant le cristal de diffraction sélectionnant la raie K α à une courte distance du cercle de Rowland. Dans ce cas, l'acceptance angulaire du cristal est faible, de l'ordre de quelques centièmes de degrés, et il ne collecte que les photons provenant d'une fenêtre spatiale restreinte. L'influence des fluctuations spatiales sur le jitter est donc diminuée, la contrepartie est une perte du nombre de photons collectés. Nous évaluons la fraction de l'émission collectée en fonction de la taille de la fenêtre spatiale d'où proviennent les photons à l'aide des profils enregistrés par le système sténopé pour les trois types de poudre. Les résultats sont reportés sur la figure 5, nous présentons également le jitter calculé à partir des formules précédentes. Pour une

fenêtre de 30 µm qui correspond à un jitter de 100 fs, on recueille 20% de l'émission totale dans le cas des microbilles pleines et creuses. Dans le cas des aérogels, on ne recueille qu'environ 5% de l'émission totale. Ces résultats sont à mettre en regard de l'émission totale qui est plus importante pour les aérogels comme nous le verrons ultérieurement.



Figure 5 : Fraction de l'émission totale et gigue en fonction de la taille de la zone de collection. L'échelle des abscisses n'est pas la même sur les trois graphiques en raison des différentes extensions de la source selon les poudres.

2) Interstices entre les grains de l'écoulement

La présence d'interstices entre les grains de poudre implique qu'une partie du faisceau peut pénétrer et interagir avec un grain des couches profondes de l'écoulement. L'émission de rayonnement X provient alors de l'intérieur de l'écoulement et peut être réabsorbée par un grain se trouvant entre la zone d'émission et le récepteur (cf. figure 6). Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à la fraction d'énergie du faisceau interagissant avec les

différentes couches de l'écoulement ainsi qu'à la collection des photons issus de ces couches.



Figure 6 : Conséquences de la présence d'interstices : le laser peut pénétrer à l'intérieur de l'écoulement ; selon la position des détecteurs, le rayonnement X peut alors ne pas être recueilli. a) Vue de profil. b) Vue de dessus : le détecteur 1 peut recevoir les rayons X (trait plein), le détecteur 2 ne peut percevoir le rayonnement car celui-ci est réabsorbé par les billes situées entre lui et la zone d'émission (trait pointillé).

a) Fraction d'énergie du faisceau perçue par les grains d'une couche

Pour déterminer la géométrie de l'interaction d'un tir avec la première couche de grains, le modèle à deux dimensions suivant est utilisé :

- les grains d'une poudre donnée ont le même diamètre d égal au diamètre moyen indiqué au paragraphe 3.a) du chapitre 2 (les aérogels sont assimilés à des sphères),
- les interstices verticaux entre les grains sont identiques et prennent la valeur e calculée au paragraphe 2.c-3) du chapitre 2.



Figure 7 : Géométrie de l'interaction entre le faisceau laser et l'écoulement de poudres. Les grains ont tous le même diamètre égal à d et sont séparés par des interstices tous égaux à e. Le faisceau est focalisé sur un grain et n'est pas obligatoirement centré sur ce grain.

Dans la suite de ce paragraphe, la hauteur de l'axe du faisceau est prise comme origine de l'axe vertical et on attribue aux billes un indice indiquant leur position par rapport à la bille la plus proche de cet axe. Cette dernière reçoit l'indice 0, la n^{ième} bille située au dessus reçoit l'indice *n* et la n^{ième} située en dessous l'indice *-n* (cf. figure 7). Les estimations présentées ci-dessous concernent le cas d'une interaction ayant lieu à 2 mm de l'entonnoir, ce qui correspond à la situation expérimentale. Dans ces conditions, l'énergie $E_{bille,n}$ reçue par la n^{ième} bille s'écrit :

$$E_{bille,n}(x_1) = E_0 \int_{x_1 + n(d+e)}^{x_1 + n(d+e) + d} \exp(-2\frac{x^2}{W_{1/e^2}^2}) dx$$
(2)

où x_1 représente l'ordonnée basse de la bille considérée, $E_0 \exp(-2\frac{x^2}{w_{1/e^2}^2})$ est le profil spatial du faisceau avec E_0 son énergie et w_{1/e^2} son diamètre à $1/e^2$,

On obtient :

$$E_{bille,n}(x_{1}) = \frac{1}{2}E_{0}\sqrt{\frac{\pi w_{1/e^{2}}^{2}}{2}} \left(\operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{2}{w_{1/e^{2}}^{2}}}(x_{1} + d + (d + e)n)\right) - \operatorname{erf}\left(\sqrt{\frac{2}{w_{1/e^{2}}^{2}}}(x_{1} + n(d + e))\right) \right)$$
où : erf(x) =
$$\frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_{0}^{x} e^{-t^{2}} dt .$$
(3)

Pour prendre en compte le fait que le faisceau interagit avec plusieurs grains, il est nécessaire d'effectuer une sommation sur les grains de poudre de n=- ∞ à n=+ ∞ , l'énergie totale E_{billes} interagissant avec de la matière de la première couche de grains s'écrit alors :

$$E_{billes} = \frac{1}{2} E_0 \sqrt{\frac{\pi W_{1/e^2}^2}{2}} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left(\text{erf}\left(\sqrt{\frac{2}{W_{1/e^2}^2}} (x_1 + ne + (n+1)d)\right) - \text{erf}\left(\sqrt{\frac{2}{W_{1/e^2}^2}} (x_1 + n(d+e))\right) \right)$$
(4)

Le rapport entre l'énergie interagissant avec la matière de la première couche de grains et l'énergie totale du faisceau est donc :

$$\frac{E_{\text{bille}}}{E_0} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{\pi W_{1/e^2}^2}{2}} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left(\text{erf}\left(\sqrt{\frac{2}{W_{1/e^2}^2}} (x_1 + ne + (n+1)d) \right) - \text{erf}\left(\sqrt{\frac{2}{W_{1/e^2}^2}} (x_1 + n(d+e)) \right) \right)$$
(5)

En pratique, une sommation entre n=-1 et n=1 est suffisante quelle que soit la poudre considérée, les termes suivants devenant négligeables en raison du rapport entre le diamètre des grains et du faisceau.

Les microbilles de silice pleines ont un diamètre moyen de 30 µm, c'est à dire du même ordre de grandeur que le diamètre à 1/e² de la tache focale soit 24 µm. L'écart e entre les grains étant de 10 µm, le faisceau laser interagit à chaque tir avec au moins une partie de grain. En utilisant (5), on obtient la figure 8.a) qui représente le rapport de l'énergie de l'impulsion interagissant avec la première couche de grains et de l'énergie totale de l'impulsion, cela en fonction de l'écart entre le centre du grain et le centre du faisceau. Quel que soit cet écart, au moins 40% de l'énergie totale atteint le matériau dans la première couche de poudre. Ceci est dû au relativement faible interstice entre les microbilles de silice. Lorsque l'écart entre le centre du faisceau et le centre de la bille considérée est trop important, le faisceau interagit avec une partie d'une autre microbille. En calculant la moyenne de la fonction (5), on évalue qu'environ 75% de l'énergie émise intercepte le matériau dans la première couche de grains. On peut noter que cette moyenne s'évalue également de façon plus simple en calculant le rapport du diamètre de la bille et de la somme de la valeur de l'interstice et du diamètre.

Dans le cas des microbilles creuses, le rapport entre l'interstice entre deux grains et leur diamètre moyen est plus faible (cf. chap. 2) que pour les microbilles pleines. Le laser a une plus grande probabilité d'interagir avec de la matière (cf. figure 8.b) et dans la pire configuration, plus de 75% de l'énergie de l'impulsion est intercepté par un grain de poudre. Sur un grand nombre de tirs, environ 95% de l'énergie interagit avec les microbilles creuses.

En ce qui concerne les aérogels, la figure 8.c) montre que certains tirs n'interagissent pas du tout avec des grains de première couche. Lors des expériences, nous avons remarqué, grâce à une caméra filmant l'interaction, une fréquence plus importante d'évènements où une partie du faisceau passait au travers de l'écoulement. Parallèlement à l'absence d'interaction avec un grain de la première couche pour certains cas, dans de nombreuses configurations, la totalité de l'énergie laser interagit avec un grain. En moyenne, 77% de l'énergie de l'ensemble des tirs interagit avec les grains de la première couche.



Figure 8 : Rapport, pour un tir, entre l'énergie reçue par la première couche de grains et celle que percevrait un solide massif en fonction de l'écart entre le centre d'un grain et le centre du faisceau. En tirets sont reportés les moyennes de la fraction d'énergie reçue par la première couche pour un grand nombre de tirs. L'échelle des abscisses n'est pas la même sur les trois graphiques en raison des différents diamètres et interstices des poudres.

Le modèle utilisé est extrêmement simplifié : seule l'interaction du laser avec la première couche est considérée alors qu'en pratique, il existe plusieurs couches de grains. Ainsi, vu les diamètres relatifs des grains et des interstices de chaque poudre, une fraction de laser n'ayant pas interagi avec la première couche de grains a, pour des microbilles, 75 % de chances de rencontrer un grain dans la seconde couche, ce pourcentage est de 77 % pour les aérogels et monte à 86 % dans le cas des microbilles creuses. En tenant compte de la deuxième et troisième couche, les pourcentages sont respectivement de 94 %, 95 % et 98 %. Cependant, l'émission de ces couches de grains est plus difficilement collectée comme nous l'expliquons au paragraphe suivant.

b) Effet d'ombre des couches superficielles sur l'émission des couches profondes

Selon la position des détecteurs, le rayonnement émis par un grain de couche profonde peut ne pas être détecté en raison de l'effet d'ombre des grains voisins. Pour déterminer l'importance de cet effet, nous calculons l'angle maximal θ auquel un rayon X peut être détecté en fonction de la position du détecteur et pour les différentes couches. Si on considère un rayon X émis par un grain de la n^{ième} couche (cf. figure 9), l'angle d'émission maximal θ_{max} auquel doit être placé un détecteur pour collecter une partie des photons issus de ce grain est pour n≥2 :

$$\theta_{max} = \arctan\left(\frac{1}{n-1}\right)$$
(6)

Pour un rayonnement émis par un grain de seconde couche, le récepteur doit donc se trouver dans un angle de 45° pour intercepter les photons émis. Dans le cas d'une émission de la troisième couche de grains, le détecteur doit se trouver dans un angle de 27°.



Figure 9 : Géométrie de l'émission de rayonnement X par un grain de la seconde couche de poudre.

Vu les emplacements des spectromètres, on en déduit que celui enregistrant les spectres He γ -He β perçoit du rayonnement issu de la première, seconde et troisième couche de grains lorsqu'il est placé à 30° du faisceau laser et uniquement de la première couche lorsqu'il est situé à 80°. De la même façon le spectromètre concernant le domaine He α -K α situé à 30° et celui permettant de visualiser la raie Ly α et se trouvant à 40° ne perçoivent de rayonnement que des deux premières couches. Enfin, lorsque la caméra CCD est utilisée

pour mesurer l'émissivité de la raie K α , le cristal est situé à environ 80° et le seul rayonnement recueilli est celui émis par la première couche de grains.

3) Forme des grains

a) Intensité perçue par les grains

Au paragraphe 1.b-1) du chapitre 3, le calcul d'intensité du laser focalisé a été effectué dans le cas traditionnel où l'interaction se fait avec une cible plane. Dans notre cas, les cibles sont de forme sphérique ou quelconque et la surface avec laquelle le laser interagit est donc plus grande qu'avec une cible plane, l'intensité est par conséquent plus faible (cf. figure 10).

Tous les points d'impact du laser sur la bille étant équiprobables, sur un grand nombre de tirs, le laser a statistiquement interagi avec toutes les parties d'une bille donnée. Pour connaître l'influence de la forme de la cible sur l'intensité, il suffit de comparer la surface d'une demi-sphère représentant le grain de poudre avec celle d'un disque de même rayon que la sphère. La surface d'une demi-sphère s'écrit S_{demi-sphère}= $2\pi R^2$ tandis que celle d'un disque de rayon R s'écrit S_{disque}= πR^2 . L'intensité perçue par le matériau est donc deux fois plus faible pour une bille que pour une cible plane.

La forme des aérogels est très différente selon les grains considérés et trop complexe pour être assimilée à celle d'une sphère, une évaluation précise de l'intensité perçue par la matériau est donc impossible. Cependant, la structure de grain, quel que soit sa forme, présente toujours une surface supérieure à celle d'un plan. L'intensité est donc ici aussi plus faible que pour une cible plane.



Figure 10 : a) Interaction entre un faisceau laser et une cible plane. b) Interaction entre un faisceau laser et une cible sphérique. – La surface sur laquelle se répartit l'énergie du laser est plus grande dans le cas de la sphère que de la cible plane. L'intensité effective est donc plus faible.

Par la suite, quelle que soit la poudre considérée, les valeurs d'intensités données sont évaluées en considérant une cible plane puisque l'intensité réellement perçue par les aérogels demeure inaccessible et qu'il est préférable d'évaluer l'intensité de la même manière pour toutes les cibles.

b) Absorption de la cible

L'angle d'incidence du faisceau sur une cible détermine en partie l'efficacité de l'absorption (cf. chapitre 1). Dans le cas de l'interaction avec une cible plane, cet angle est bien défini et facilement contrôlable en inclinant plus ou moins la cible. Dans notre configuration, chaque partie du faisceau interagit avec la cible à un angle différent. Cet angle dépend du point d'impact sur la bille. Dans ce paragraphe, nous nous intéressons à l'influence de la forme des grains sur l'angle d'incidence.



Figure 11 : Angle d'incidence d'un rayon lumineux avec une sphère.

Pour les poudres possédant une forme sphérique c'est-à-dire les microbilles pleines et creuses, l'angle d'incidence *i* est tel que :

$$i = \arcsin\left(\frac{h}{R}\right) \tag{7}$$

où *h* est la hauteur du rayon incident par rapport à l'axe z et R est le rayon d'une microbille (cf. figure 12).

On observe que les angles sont d'autant plus grands que l'on s'éloigne de l'axe z et que la variation de l'angle en fonction de la hauteur n'est pas linéaire. La probabilité qu'un rayon lumineux interagisse à un angle donné n'est donc pas équiprobable.



Figure 12 : Angle d'incidence sur la bille d'un rayon lumineux en fonction de la distance à l'axe h de ce rayon.

La densité de probabilité de l'incidence du faisceau est calculée en considérant la projection de la section du faisceau sur une bille. Elle est égale à sin(2i)di et permet d'évaluer la probabilité qu'un rayon lumineux interagisse dans un intervalle d'angles d'incidence donné. Sur la figure 13, nous représentons cette probabilité. Il apparaît que l'intervalle d'incidence le plus fréquent est l'intervalle 40°-50° et qu'il reçoit environ 18% du faisceau. La couronne de faisceau correspondant à ces angles a en effet la surface la plus importante relativement aux couronnes correspondant aux autres intervalles. Pour des raisons inverses, les intervalles les moins probables sont les intervalles d'angles d'incidence extrêmes : 0 à 10° et 80 à 90°.



Figure 13 : Probabilité que le faisceau interagisse avec la cible dans un intervalle d'angles d'incidence donné.



Figure 14 : Absorption d'un faisceau laser par une cible sphérique en polarisation P et S pour différentes longueurs de gradient.

Pour un grand nombre de tirs, la probabilité que nous venons de calculer représente la proportion du faisceau interagissant dans un intervalle d'angle d'incidence donné. En tenant compte de l'efficacité d'absorption en polarisation P et S (chap. 1, § 3.d), nous pouvons estimer l'absorption par une sphère en fonction de la longueur de gradient dans les deux polarisations. Nous présentons cette estimation sur la figure 14. En polarisation S, l'absorption varie de 6 à 13%, le minimum étant atteint pour un gradient de 0,1. En polarisation P, l'absorption varie de 28 à 42% et atteint son maximum pour un gradient d'environ 0,1. Ces deux extrema correspondent aux extrema décrits dans le chapitre 1. Ainsi, d'après nos estimations, une importante fraction de l'énergie laser est absorbée par la cible. On peut noter que la polarisation du faisceau au niveau de la bille dépend de la zone considérée. Au sommet de la sphère, la polarisation est purement S, tandis que sur la circonférence polaire dont le plan est normal au faisceau, la polarisation est purement P. Ailleurs, la polarisation du faisceau est hybride.

Les aérogels n'ayant pas de forme définie, les estimations qui précèdent ne s'appliquent pas. Comme pour les sphères, tous les angles d'incidence sont possibles, mais on ne peut estimer la probabilité de chacun. Cependant, la surface avec laquelle le laser interagit a une probabilité très faible d'être normale au faisceau car rien ne favorise cette configuration par rapport à l'ensemble des autres. La polarisation la plus représentée correspond donc à une polarisation P comme pour les autres poudres. De plus, la structure du matériau composant les aérogels est différente de celle des microbilles qui est assimilable à un solide. Cela change la fraction d'énergie absorbée (cf. chap. 1) et les

valeurs d'absorption utilisées dans ce paragraphe pour l'estimation de l'absorption par une cible sphérique ne sont plus valables.

4) Effet fusée : limitation du taux de répétition

Les expériences présentées ici ont été réalisées au CELIA (CEntre Lasers Intenses et Applications). Sur la figure 15 est présenté le comportement de l'écoulement pour une fluence de 2±0,4 kJ.cm⁻² (soit une intensité de (5±1).10¹⁶ W.cm⁻² à 40 fs) à des cadences de tirs de 20, 50, 100, 200 et 1000 Hz. Il apparaît sur ces photos que l'écoulement se dégrade avec le taux de répétition. A 20 Hz, il est de qualité identique au-dessus et en dessous de la zone d'interaction, l'interaction ne l'a pas perturbé. A 50 Hz, cet écoulement demeure correct, mais à partir de 100 Hz, il apparaît moins visible sous la zone d'interaction. A 1000 Hz, il est totalement perturbé.

Lorsque le laser interagit avec un grain, il ablate une partie de la matière qui constitue ce grain. Cette matière est éjectée à une très grande vitesse, la conservation de la quantité de mouvement induit alors un « effet fusée » qui accélère l'autre partie du grain dans la direction opposée à celle de la matière ablatée. En considérant une ablation de l'ordre de 0,5 µm s'effectuant à 10⁴ m.s⁻¹ [1], on trouve une vitesse de la partie restante du grain d'environ 60 m.s⁻¹. D'après les vitesses d'écoulement mesurées au chapitre 2, le rapport entre l'énergie cinétique fournie au grain par la pesanteur et par le laser est de l'ordre de 10⁻⁵. L'énergie de pesanteur est donc négligeable face à l'énergie cinétique fournie par « effet fusée » et c'est ce dernier qui fixe la trajectoire du grain. Sur son parcours, le grain entre en collision avec d'autres grains et les éjecte à leur tour. A 20 Hz, ce phénomène se produit de façon suffisamment peu fréquente pour que l'écoulement retrouve son équilibre avant l'arrivée d'un autre tir laser, mais lorsque la fréquence augmente, le temps entre deux tirs n'est plus suffisant pour que l'écoulement retrouve sa stabilité. Dans le cas d'une cible solide classique, cet effet n'est pas ressenti car la cible est maintenue par un support fixe.

Nous avons également mené des expériences où le taux de répétition du laser demeurait égal à 1 kHz et où l'on abaissait la fluence en diminuant l'énergie de l'impulsion. Il apparaît que, dans ces conditions, l'écoulement n'est plus détruit. Ainsi, pour 0,25 kJ.cm⁻² soit (6±1).10¹⁵ W.cm⁻², l'écoulement demeure de bonne qualité même à 1 kHz. Le chauffage de la matière est en effet plus faible : des simulations réalisées sous FILM ont montré dans ce cas une température ionique trois fois plus petite qu'à forte fluence. De plus, l'énergie déposée étant plus faible, le laser ablate une plus petite masse de matière. Pour ces raisons, l'éffet fusée diminue et l'écoulement retrouve son équilibre malgré la haute cadence de tirs.



Partie A -4) Effet fusée : limitation du taux de répétition

Figure 15 : Ecoulement de microbilles de silice à diverses cadences de tirs du laser pour une intensité de $(5\pm1).10^{16}$ W.cm⁻² : l'écoulement est de plus en plus perturbé lorsque la cadence augmente.

D'après ces expériences, il est possible d'utiliser la source à un taux de répétition de l'ordre du kilohertz mais les contreparties sont importantes. Si l'on souhaite une forte émissivité, la fluence doit être élevée mais l'écoulement est alors détruit. On peut cependant préserver un profil spatial proche de celui obtenu à une fréquence de 20 Hz, en effectuant les expériences à plus faible fluence mais le rayonnement X est alors moins important.

Conclusion de la partie A :

Dans cette partie ont été exposées les différences entre l'interaction laser-solide et laser/écoulement de poudre induites par les différences de géométrie. Ainsi, l'impact des fluctuations spatiales de l'écoulement, de la présence d'interstices entre les grains, de leur forme et de l'effet fusée a été étudié.

Grâce à l'important paramètre confocal en regard des fluctuations, l'intensité perçue est égale à 99% et l'effet de ces fluctuations est donc négligeable dans nos conditions. Ces fluctuations induisent également un élargissement de la zone d'émission ce qui induit l'apparition d'un jitter temporel entre les tirs. Ce jitter peut cependant être diminué en utilisant l'émission provenant d'une fenêtre spatiale réduite. Le nombre de photons utiles est alors plus faible. Les interstices entre les grains impliquent que l'interaction du faisceau peut avoir lieu avec les couches internes de l'écoulement. En raison de l'effet d'ombre des grains des couches superficielles, l'émission de ces grains ne peut alors plus être perçue. La forme des grains a, elle, un très fort impact sur l'intensité perçue par la matière des grains sphériques. L'intensité sur cible sphérique est en effet deux fois plus faible que sur cible plane. Enfin, les grains sont soumis à chaque tir à l'effet fusée ; si la fréquence de tirs et la fluence sont toutes deux trop élevées, cela induit un écoulement de mauvaise qualité.

Partie B - Physique de l'interaction

La physique de l'interaction est déterminée par les processus d'absorption, de conduction et dépôt de l'énergie de l'impulsion. Parmi les mécanismes d'absorption, l'absorption collisionnelle permet de chauffer localement le matériau tandis que l'absorption résonnante et les non-linéarités dans le plasma sous-dense créent les électrons suprathermiques. Les facteurs intervenant sur l'absorption sont principalement la longueur du gradient de densité, l'intensité et la polarisation du laser. Comme démontré précédemment, cette dernière est déterminée par la géométrie des grains, cependant, les deux autres facteurs sont expérimentalement modifiables. La longueur de gradient intervient notamment sur la zone de dépôt de l'énergie : lorsque le gradient est abrupt, les zones de forte densité sont proches de la densité critique et le chauffage du matériau a lieu à une densité importante. Une intensité élevée génère, quant à elle, des électrons très énergétiques qui déposent leur énergie jusqu'aux zones profondes et denses de la cible.



Figure 16: Spectre d'émission de microbilles de silice pour une impulsion de $(1,5\pm0,5).10^{17}$ W.cm⁻² (31 mJ et 60 fs) avec un contraste de 3.10^{6} et pour une accumulation de 4800 tirs. Chaque domaine spectral est normalisé à la raie la plus intense du domaine.

L'analyse spectroscopique permet de déterminer l'état du plasma au moment de l'émission et d'en déduire des informations sur l'interaction. En examinant les raies émises par la zone chauffée par le laser (zone thermique), il est ainsi possible de déterminer la densité et la température électronique au sein de cette zone. Outre cette information, cela nous renseigne sur l'efficacité du chauffage et fournit une indication sur la raideur du gradient au moment du dépôt de l'énergie. D'autre part, dans la zone de conduction, les

électrons suprathermiques sont responsables de la création de lacunes en couche interne donnant lieu à l'émission de raies caractéristiques des états d'ionisation. La comparaison du signal des « raies intermédiaires » (entre les états ioniques Si⁶⁺ et Si¹⁰⁺) et K α permet de connaître l'état d'ionisation du milieu traversé par les électrons suprathermiques qui déposent leur énergie au cours de leur trajet : plus la raie K α est intense par rapport aux raies intermédiaires et plus la fraction d'énergie déposée dans les zones profondes de la cible est importante.

La simple observation du spectre donne déjà quelques informations. Sur la figure 16 est présenté un spectre obtenu pour la poudre de microbilles pleines. Ce spectre est réalisé pour une impulsion de 60 fs à $(1,5\pm0,5).10^{17}$ W.cm⁻² et possédant un piédestal de 5.10^{10} W.cm⁻². La présence de la raie Ly α à 6,18 Å donne immédiatement une indication sur la température électronique. Cette raie apparaît en effet à partir d'au moins 300 eV (cf. chap. 1) ce qui fournit une borne inférieure de la température atteinte par le plasma. D'autre part, la présence de la raie K α est garante de la production d'électrons suprathermiques puisqu'eux seuls ont une énergie suffisante pour créer la lacune en couche K. La présence de raies intermédiaires indique que les états ioniques correspondants existent et qu'une partie de l'énergie des électrons suprathermiques est déposée sur ces ions.

Le but de l'étude menée ici est de comprendre l'interaction du laser avec les grains de poudre. La première partie de cette étude concerne le plasma thermique. Les raies émises par cette zone sont analysées pour déterminer les conditions de densité et de température. Le code TRANSPEC et le code FILM sont alors utilisés pour simuler les conditions induites par l'impulsion laser et reproduire les spectres. Il est ainsi possible de comparer les résultats expérimentaux aux simulations, de déterminer la validité de ces dernières et de discuter les conditions de dépôt de l'énergie. La seconde partie s'intéresse à la partie froide du plasma. Les rapports d'intensité des raies intermédiaires et K α sont utilisés pour déterminer les zones de dépôt en fonction de l'énergie des électrons. L'influence des facteurs expérimentaux sur la génération de l'émission X sont ensuite étudiés. Enfin, le dernier paragraphe est consacré à l'analyse de l'effet d'un préplasma important sur l'interaction.

1) Le plasma thermique

Trois états ioniques majoritaires participent à l'émission de la zone thermique : les états hydrogénoïde, héliumoïde et lithiumoïde. La raie lithiumoïde peut également être en partie émise par la partie froide. De façon plus précise, l'ion hydrogénoïde émet, dans la gamme spectrale considérée, la raie Ly α à la longueur d'onde 6,18 Å , les ions héliumoïdes émettent les raies He α , He β , He γ aux longueurs d'ondes 6,648, 5,681 et 5,405 Å et des raies

correspondant aux transitions 2s2p ³P-1s2s ³S, 2p² ³P-1s2p ³P et 2p² ¹D₂-1s2p ¹P₁ à 6,243, 6,255 et 6,264 Å respectivement. La raie émise par l'ion lithiumoïde est, quant à elle, constituée des composantes appelées qr, ad, k et j selon la notation de Gabriel [2].

a) Densité et température électronique de la zone d'émission

La détermination des densité et température électroniques s'effectue en utilisant les spectres acquis durant les expériences effectuées sur LUCA. Ces spectres sont intégrés temporellement et spatialement. Pour cette raison, les valeurs de température et densité électronique qu'ils permettent de déterminer correspondent à des valeurs moyennées sur la durée et la zone de l'émission. Par la suite, les spectres considérés correspondent pour les poudres de microbilles pleines et d'aérogel à une impulsion laser de 60 fs, d'intensité (1,5±0,5).10¹⁷ W.cm⁻² et possédant un piédestal de 5.10¹⁰ W.cm⁻². Pour les microbilles creuses, ils concernent une impulsion de 60 fs et (2±0,6).10¹⁷ W.cm⁻² avec un piédestal de 6.10¹⁰ W.cm⁻².

a.1) Densité électronique

La largeur d'une raie dépend de la densité électronique par l'intermédiaire de l'élargissement Stark. Le code TRANSPEC permet de produire des spectres synthétiques pour différentes densités. En ajustant les raies expérimentales par les spectres obtenus avec ce code, il est possible de déterminer la densité électronique correspondant au spectre expérimental (cf. chap. 1, § 4.b). Cependant, la densité n'est pas le seul paramètre intervenant dans l'élargissement d'une raie. La température ionique intervient par l'intermédiaire de l'élargissement Doppler et la longueur de gradient par le phénomène d'opacité (cf. chap. 1, § 4.b.2.3).

Par la suite les températures électronique et ionique sont considérées comme égales. L'impulsion étant une impulsion courte, les électrons n'ont en réalité pas le temps de thermaliser les ions par collisions. L'effet Doppler est donc surestimé dans les simulations. Malgré cela, pour une température de 500 eV qui correspond aux températures couramment atteintes dans un plasma (cf. chap. 1), l'élargissement Doppler est de 0,001 Å d'après la formule (37) du chapitre 1. La largeur typique d'une raie Heβ étant dans nos expériences de 0,007 Å, nous pouvons estimer que la contribution de l'élargissement Doppler est négligeable.



Figure 17 : Longueur de plasma traversé par le rayonnement. - a) Expansion e du plasma supérieure à 1,3 µm : la longueur traversée est de l'ordre de la demi-largeur transverse du plasma soit du rayon de la tache focale. b) Expansion e du plasma inférieure à 1,3 µm : la longueur traversée est très inférieure au rayon de la tache focale.

Pour limiter l'effet d'opacité sur les raies utilisées comme diagnostic de densité, il est préférable de considérer des raies peu sensibles à ce phénomène. Ce type de raies correspond aux transitions mettant en jeu des électrons des couches supérieures car la réabsorption est alors plus faible (cf. chap. 1, § 4.b.2.3). Les raies choisies sont les raies He β et He γ qui concernent respectivement des transitions de la couche 3 et 4 vers la couche 1. Malgré cette précaution, il est tout de même plus rigoureux d'estimer la longueur de plasma traversé par le rayonnement. Nous faisons ici l'hypothèse d'une cible plane. Le spectromètre diffractant la raie He β étant placé à 80° de la direction du faisceau, la longueur du plasma selon l'axe cible-spectromètre est de l'ordre de grandeur de la tache focale soit 7,5 µm pour une expansion supérieure à 1,3 µm. Dans le cas contraire, elle peut être beaucoup plus faible (cf. figure 17). Les simulations ont été effectuées pour une longueur de 7,5 µm et pour une longueur dix fois plus faible de façon à estimer l'influence de ce paramètre sur notre diagnostic.

Les raies He β et He γ émises par les différentes poudres dans les conditions précédemment citées sont reproduites. Pour une longueur de plasma de 7,5 µm, l'ajustement des raies expérimentales est satisfaisant pour une densité de 10^{22} cm⁻³ dans le cas des aérogels (cf. figure 18) et des microbilles creuses et de 7.10^{21} cm⁻³ pour les microbilles pleines. Pour une longueur de 0,75 µm, les densités trouvées sont respectivement de 1,5.10²² cm⁻³ et 9.10²¹ cm⁻³.Cela démontre la faible influence de l'opacité dans ce diagnostic.

Pour une impulsion sans piédestal, ne créant donc pas de préplasma, la densité à laquelle s'effectue l'émission de ces raies est de l'ordre de 10²³ cm⁻³ (cf. chap. 1, § 5.b.2). Le

dépôt s'est ici effectué à une densité plus faible ce qui indique la présence d'un préplasma au moment de l'interaction.



Figure 18 : Ajustement des raies He β et He γ pour la poudre d'aérogel lors d'une interaction avec une impulsion de 60 fs, à (1,5±0,5).10¹⁷ W.cm⁻² et pour un contraste de 3.10⁶.

a.2) Dépendance de la densité avec la fluence

Dans nos expériences, l'augmentation de la fluence reçue par la matière se fait en augmentant l'énergie de l'impulsion, sans intervenir sur le système de focalisation. En changeant cette énergie, on modifie l'énergie déposée dans le plasma, mais également l'intensité de l'ASE. Ainsi, l'ASE correspondant aux impulsions d'environ 1,5 kJ.cm⁻² (à 60 fs : $(2\pm0,6).10^{16}$ W.cm⁻²) est de l'ordre de 0,5 mJ.cm⁻² (6.10⁹ W.cm⁻²) ce qui ne déclenche pas forcément la génération d'un préplasma comme c'est le cas pour une ASE de 5.10¹⁰ W.cm⁻² d'après les résultats précédents. En modifiant la longueur du préplasma formé, on change les conditions dans lesquelles l'impulsion principale interagit avec le milieu.

La faible sensibilité de la raie Heß aux effets d'opacité du plasma et l'utilisation de l'élargissement de cette raie pour déterminer la densité de la zone d'émission est d'autant plus intéressante dans ces conditions . Cette raie est représentée sur la figure 19 pour des fluences variant de 1,5 à 13,5 kJ.cm⁻² (pour une durée de 60 fs : de 2.10¹⁶ W.cm⁻² à 1,5.10¹⁷ W.cm⁻²) dans le cas de la poudre d'aérogel. D'après cette figure, la largeur est identique quelque soit la fluence. Dans la gamme de fluences considérées, la densité de la zone d'émission est peu sensible à la fluence de l'impulsion et demeure approximativement constante. Dans le cas des microbilles, le nombre de spectres exploitables n'est pas suffisant dans le domaine de longueurs d'onde considéré pour mener une étude rigoureuse.



Figure 19 : Raie He β des aérogels pour différentes fluences d'impulsions.

Si l'on analyse maintenant le profil de la raie Ly α , on peut remarquer que sa largeur varie peu (cf. figure 20). La densité étant approximativement constante, cela est attribuable à une faible variation de la longueur de plasma séparant les ions émetteurs du spectromètre avec la fluence.



Figure 20 : Raie Ly α pour la poudre d'aérogels pour différentes fluences.

a.3) Dépendance de la densité avec la durée de l'impulsion

Nous nous intéressons ici à l'influence de la durée d'impulsion pour une fluence constante et égale à environ 13,5 kJ.cm⁻². L'intensité de l'ASE reste la même et l'interaction
avec l'impulsion principale se fait dans les mêmes conditions de longueur de gradient quelle que soit sa durée.

Sur la figure 21 est présentée l'évolution de la raie He β pour les durées d'impulsions 60, 110 et 500 fs. La largeur à mi-hauteur de la raie ne varie pas. Par contre, on observe un très léger élargissement lorsque la durée de l'impulsion diminue ainsi qu'une légère augmentation des satellites de l'aile à environ 5,7 Å. Cette dernière observation peut être attribuée à une augmentation de densité ou de température. L'observation des raies Ly α nous donne une indication supplémentaire.



Figure 21 : Raie He β pour les aérogels pour différentes durées d'impulsions.

La figure 22 présente l'évolution du doublet de structure fine de la raie Ly α , ce doublet est d'autant plus visible que la durée d'impulsion est longue. Comme la longueur de préplasma ne change pas, on peut interpréter cela comme une conséquence d'un léger changement de densité. Le doublet, pour une même longueur de plasma montre en effet une sensibilité relativement importante avec la densité (cf. figure 23). L'effet de la température a par ailleurs été testé et a montré une très faible influence sur ce doublet.



Figure 22 : Raie Ly α pour différentes durées d'impulsions.



Figure 23 : Doublet de la Ly α en fonction de la densité électronique pour une température de 625 eV, une longueur de plasma de 2 μ m (simulations).

a.4) Température électronique

L'abondance des différents états de charge ionique est une fonction de la température électronique. Une forte température favorise ainsi l'émissivité des états d'ionisation élevés. L'intensité des raies permet de déterminer quels états ioniques dominent ; en utilisant leur rapport on en déduit la température de la zone d'émission (cf. chap.1, § 4.b.3). Pour cela, des spectres synthétiques sont générés par le code TRANSPEC à différentes températures. Pour chaque température, le rapport du signal de deux raies émises par des états ioniques

voisins est calculé. Ce rapport est alors comparé à la valeur obtenue à partir du spectre expérimental. Nous choisissons de reproduire le rapport entre la raie Ly α et les raies héliumoïdes situées entre 6,243 et 6,264 Å. Cette façon de procéder suppose que les raies considérées sont émises dans des zones proches et à des instants voisins. Pour cette raison, les états ioniques comparés ont une différence de charge de seulement 1. Malgré cela, la température déduite n'est qu'une valeur indicative car même proches, les états ioniques ne proviennent pas exactement de la même région du plasma.

La détermination se passe en trois temps. En premier lieu, il est nécessaire d'estimer la longueur de plasma que doit traverser le rayonnement car la raie Ly α est très sensible au phénomène d'opacité. Le rapport des aires de la raie Ly α avec les raies héliumoïdes est ensuite calculé pour différentes températures à partir de spectres synthétiques. Enfin, la confrontation de ce résultat à celui donné par les spectres expérimentaux permet de déduire la température électronique.

La raie Ly α étant sensible au phénomène d'opacité, la longueur de plasma traversé doit être estimée. Dans le cas des microbilles, nous avons choisi d'effectuer les ajustements sous deux conditions de longueurs de plasma. La première est déduite de simulations hydrodynamiques des profils de densité que nous présentons ultérieurement. Comme TRANSPEC est utilisé pour le cas d'un plasma homogène, on estime la longueur de plasma équivalente à la longueur du profil de densité pour les densités calculées précédemment. L'angle spectromètre-source qui est de 30° est également pris en considération. Ainsi, pour les microbilles, la longueur de plasma obtenue est de 3,5 µm pour la densité de 7.10²¹ cm⁻³. La seconde longueur de plasma correspond au cas idéal d'une interaction sans préplasma, c'est-à-dire pour une épaisseur de l'ordre de 0,1 µm. Dans le cas des aérogels, comme l'impulsion chauffe de façon volumique la cible, nous ajustons simplement l'opacité de façon à reproduire la largeur de la raie Ly α . Nous obtenons un bon ajustement pour une longueur de 2 µm.

L'effet Stark n'étant pas intégré aux raies satellites héliumoïdes, leur profil n'est pas reproductible. Il est cependant possible de comparer les rapports des aires des raies. Cette comparaison fournit pour les aérogels une température de 750 eV. Pour les microbilles, la température trouvée est de 900 eV pour le plasma de 3,5 μ m et de 850 eV pour le plasma de 0,1 μ m. En ce qui concerne les microbilles creuses, les spectres obtenus n'ont pu être exploités pour la Ly α car ils étaient trop bruités.

164



Figure 24 : Ajustement des raies $Ly\alpha$ et des satellites héliumoïdes pour la poudre d'aérogels lors d'une interaction avec une impulsion de 60 fs, à $(1,5\pm0,5).10^{17}$ W.cm⁻² et pour un contraste de 3.10^{6} .

Les valeurs de température obtenues permettent de dire qu'une partie non négligeable de l'énergie de l'impulsion est convertie en électrons thermiques. Nous présentons ultérieurement des expériences où cela n'est pas le cas.

b) Dynamique de l'interaction

Le code FILM permet de déterminer pour une impulsion laser donnée les profils de densité et température électronique aux différents instants de la simulation. Utilisé comme postprocesseur des profils obtenus, TRANSPEC peut alors calculer les spectres émis. Ainsi, ces deux codes associés permettent à partir du profil de l'impulsion de produire un spectre synthétique. Cela permet de comparer les résultats expérimentaux aux simulations et de déterminer si les phénomènes pris en considération par les codes suffisent à reproduire les expériences.

Dans nos conditions expérimentales, l'impulsion est constituée du piédestal et de l'impulsion principale. Le piédestal dure typiquement 1 ns tandis que la durée de l'impulsion est choisie entre 60 fs et 1 ps. L'interaction de l'énergie précédant l'impulsion principale avec la cible a pour conséquence de détendre la matière et peut empêcher l'interaction directe du faisceau avec le solide. L'objet du premier paragraphe est de présenter l'état de la cible avant l'arrivée de l'impulsion principale et de déterminer les conditions de densité et température créées par le piédestal. Le second paragraphe présente les spectres obtenus par TRANSPEC à partir de ces profils. Une discussion mettant en regard les résultats expérimentaux et les simulations est alors menée.

b.1) Simulations hydrodynamiques

Les simulations sont effectuées avec des impulsions correspondant à nos conditions expérimentales. Ainsi, on considère une impulsions de 60 fs à 10¹⁷ W.cm⁻² et une impulsion de 1 ps possédant la même énergie, ce qui correspond à une intensité de 6.10¹⁶ W.cm⁻². Toutes deux présentent un piédestal de 3.10¹⁰ W.cm⁻². L'angle d'incidence choisi correspond à l'incidence moyenne évaluée précédemment pour une interaction avec des sphères, c'està-dire 45° et la polarisation est P car l'interaction se fait majoritairement avec cette polarisation. Les profils présentés correspondent au maximum de l'impulsion.

Il est nécessaire de rappeler que FILM ne tient pas compte de l'ionisation multiphotonique qui pour un diélectrique parfait est le phénomène permettant de libérer les premiers électrons. FILM n'est donc à priori pas adapté à la description de l'interaction aux premiers instants. Cependant, nos poudres ne sont pas des diélectriques parfaits. Les microbilles ont ainsi une composition chimique contenant beaucoup d'autres éléments que du silicium, cela peut induire une densité d'électrons libre suffisante pour déclencher les mécanismes d'absorption collisionnelle. Ceci n'a cependant pas pu être vérifié. Le taux d'impuretés dans les autres poudres est plus faible, mais il ne s'agit pas non plus de diélectriques parfaits.

b.1.1) Profils de densité et température avant l'arrivée de l'impulsion principale

Pour simuler l'état de la cible au moment de l'arrivée de l'impulsion principale, seul le piédestal est pris en compte. Les simulations sont donc réalisées pour une impulsion de 1 ns possédant une intensité de 3.10¹⁰ W.cm⁻². Les résultats de la simulation sont présentés sur la figure 25. La densité critique se trouve à 0,4 µm du front de densité ce qui empêche une interaction directe du faisceau avec l'impulsion laser. La simulation montre également la présence d'un plasma de plusieurs microns et de densité inférieure à la densité critique. Le long de ce plasma se dépose une partie de l'énergie de l'impulsion principale. La température est quant à elle assez faible puisqu'elle n'atteint que 17 eV. Cette température ne peut induire la création d'un état ionique moyen supérieur à 4 (cf. chap.1 § 4.a.1.2). L'ASE n'induit donc pas une importante ionisation de la cible.



Figure 25 : Profil de densité et température pour une ASE de 3.10¹⁰ W.cm⁻² et de durée 1 ns juste avant l'arrivée de l'impulsion principale.

b.1.2) Profils de densité et température pour des impulsions présentant un piédestal

Les impulsions considérées correspondent maintenant aux impulsions utilisées au cours des expériences et sont donc constituées de l'impulsion principale et de l'ASE. Les deux cas présentés en introduction sont considérés. La figure 26 présente les profils de densité et de température électronique obtenus. De façon à souligner l'effet de l'impulsion principale sur le profil initial, le profil de densité correspondant au cas où seule l'ASE est considérée est joint au graphique. Ces profils indiquent que l'impulsion principale a pour effet d'augmenter la densité électronique dans la zone détendue qu'elle soit de 60 fs ou 1 ps. Ceci est à mettre directement en relation avec l'importante température électronique atteignant environ 3000 eV. Une telle température permet en effet d'ioniser très fortement et même totalement les atomes et d'augmenter ainsi la densité électronique qui dans ce code est telle que $n_e = \overline{Z}n_i$.



Figure 26: Profil de densité et température pour une impulsion de 60 fs à 10¹⁷ W.cm⁻²et une impulsion de 1 ps à 6.10¹⁵ W.cm⁻² avec une ASE de 3.10¹⁰ W.cm⁻² au maximum de l'impulsion.

Les profils présentent plusieurs différences importantes avec le cas où l'impulsion ne possède pas de piédestal et qui a été présenté au chapitre 1. Ainsi, les profils de densité sont maintenant similaires pour les deux impulsions : l'impulsion de 1 ps n'induit plus une expansion supérieure à celle engendrée par l'impulsion de 60 fs. Le rôle de l'impulsion n'est plus de détendre le plasma mais seulement de le chauffer et de l'ioniser. L'expansion est majoritairement déterminée par le piédestal. Pour cette raison, le gradient de densité est beaucoup plus long, la densité critique se trouve maintenant à 0,5 µm du front de densité. D'autre part, les températures électroniques maximales atteintes sont beaucoup plus grande efficacité de l'absorption collisionnelle en gradient long (cf. chap. 1).

Les graphiques ci-dessous présentent une comparaison précise de l'état de la cible pour une impulsion de 60 fs et de 1 ps avec et sans piédestal dans la zone proche du front d'ablation. Quelque soit la durée d'impulsion, on note l'absence de zone de densité supérieure à la densité électronique du solide dans le cas d'une impulsion possédant un piedestal. Pour les impulsions sans piédestal, cette zone est déjà ionisée par la forte température mais ne s'est pas détendue au maximum de l'impulsion, cela induit une très forte densité électronique. Pour l'impulsion possédant de l'ASE, l'énergie déposée loin des zones de forte densité n'a pas atteint la zone à la densité du solide. La température n'y est alors que de quelques eV au maximum de l'impulsion ce qui est insuffisant pour induire une ionisation. Dans le cas de l'impulsion de 1 ps, on remarque aussi que le front de densité est

plus raide lorsqu'il y a de l'ASE, ceci est aussi une conséquence du fait que l'énergie de l'impulsion n'a pas atteint cette zone et n'a donc pas participé à la détente.



Figure 27 : Profil de densité et de température au maximum de l'impulsion. a) Impulsion de 60 fs avec et sans piédestal. b) Impulsion de 1 ps avec et sans piédestal.

b.2) Simulation des spectres

b.2.1) Résultats



Figure 28 : Repérage des zones de simulations à partir des profils de densité et température au maximum de l'impulsion. L'impulsion en question a une intensité de 10¹⁷ W.cm⁻² de 60 fs pour une ASE de 3.10¹⁰ W.cm⁻².

Les simulations des spectres à partir des profils générés par FILM sont effectuées dans différentes zones du plasma repérées sur la figure 28 par des points numérotés. Par la suite, les instants sont repérés à partir du maximum de l'impulsion.

Sur les deux pages suivantes nous présentons les résultats de ces simulations. Les spectres choisis concernent la zone 4 située à environ 8 µm du front de densité au maximum de l'impulsion mais l'évolution de ces spectres est qualitativement la même pour tous. Les domaines spectraux des figures correspondent à ceux de la raie Ly α , He α et des raies intermédiaires. Deux picosecondes après le maximum de l'impulsion, la raie Ly α est totalement absente tandis que la raie He α est déjà visible ce qui n'était pas le cas dans les simulations où l'impulsion ne présentait pas de piédestal (cf. chap. 1, § 5). Malgré le fait que la simulation ne prenne pas en compte les électrons suprathermiques, les états ioniques intermédiaires émettent un signal important. Cela s'explique par la forte température électronique donnée par FILM qui atteint 3 keV et qui peut alors créer des lacunes en couche K ainsi que par un retard à l'ionisation que nous explicitons au paragraphe suivant. Aux instants suivants, la raie Ly α apparaît (5 ps) et la raie He α , le signal commence ensuite à décroître comme le montre les graphiques des instants 20 ps et 35 ps.





Figure 29 : Evolution temporelle des spectres émis dans la zone 4 entre 6,12 et 7 Å.

Les résultats obtenus pour les diverses zones du plasma sont synthétisés sur les figures suivantes. La figure 30 présente l'instant du maximum d'émission pour les raies He α et Ly α en fonction de la position dans le plasma. Cet instant dépend de la zone de plasma considérée. En ce qui concerne la simulation présentée sur les pages précédentes, il intervient pour les raies He α et Ly α respectivement à 11 et 12,5 ps. Cependant, plus la zone considérée est proche de la zone dense, plus le maximum intervient tôt. Ainsi, la zone 1 située à 4 µm présente une émission héliumoïde maximale à 6,6 ps après l'impulsion principale tandis que la zone 4 émet le plus fortement à 24 ps. Sur ce graphique, on remarque également que l'émission maximale de la raie Ly α intervient toujours après le maximum d'émission de la raie He α .



Figure 30 : Instant du maximum d'émission après le maximum de l'impulsion pour les raies Ly α et He α .

Les simulations ont également permis d'évaluer la durée pendant laquelle une zone émet. La figure 30 présente ainsi la durée à mi-hauteur de l'émission en fonction de la position dans le plasma. Cette durée est d'autant plus grande qu'elle concerne une zone éloignée. Ainsi, elle n'est que de 7 ps à 4 μ m du front de densité mais atteint 25 ps à 13,5 μ m. Dans le cas particulier des spectres présentés, elle est de l'ordre de 11 ps. On peut d'autre part remarquer que l'émission de la raie He α est légèrement plus longue que pour la raie Ly α .



Figure 31 : Durée d'émission des raies $He\alpha$ et $Ly\alpha$ en fonction de la position par rapport au front de densité au maximum de l'impulsion.

Enfin, il est possible de déterminer quelle zone du plasma induit la plus forte émission. Pour cela, on intègre pour chaque zone le signal émis pendant la durée de l'émission. Les résultats sont présentés sur la figure 32, il apparaît ainsi que la zone la plus émissive est la zone située à environ 8 μ m (notée 4) de la zone haute densité pour les deux raies considérées. La raie He α est plus émissive de plusieurs ordres de grandeurs : l'intensité est de l'ordre de près de 10⁷ erg.cm⁻³.eV⁻¹.sr⁻¹ pour la raie He α alors qu'elle n'est que de 10⁴ à 10⁵ erg.cm⁻³.eV⁻¹.sr⁻¹ pour la raie Ly α .



Figure 32 : Intensité de l'émission en fonction de la position par rapport au front de densité au maximum de l'impulsion pour les raies He α et Ly α .

b.2.2) Discussion

L'objet de cette discussion est double, il est en effet nécessaire d'expliquer les différents résultats obtenus ci-dessus en prenant appui sur les profils de température et densité électronique de FILM. D'autre part, ces simulations étant faites dans le but de comprendre les spectres expérimentaux, il est impératif d'effectuer une comparaison des expériences et des simulations.

Instants d'émission maximale et durée d'émission :

Les simulations ont montré que l'instant où l'émission est maximale est d'autant plus grand que la zone considérée est loin de la cible. L'analyse de l'évolution temporelle de l'ionisation et de la température permet de comprendre ce phénomène. La courbe représentant l'évolution de la température montre une augmentation brutale au moment du passage de l'impulsion (cf. figure 33). Cependant, l'ionisation moyenne est très basse (cf. figure 34). En effet, un phénomène de retard à l'ionisation peut se produire lors d'un apport très brutal d'énergie tel que celui d'une impulsion femtoseconde. Pendant une durée de l'ordre de quelques centaines de femtosecondes à quelques ps, l'état d'ionisation du milieu ne correspond pas à la température électronique atteinte. Il est également possible que le milieu n'atteignent jamais cet état d'ionisation lorsque le refroidissement est trop rapide. Ce phénomène est amplifié par la faible densité de la zone ce qui limite la probabilité de collisions. Ceci explique également la raison pour laquelle la raie Ly α est émise après la raie He α ainsi que la présence de raies intermédiaires sur les spectres.



Figure 33 : Température électronique en fonction du temps. L'origine temporelle est prise au maximum de l'impulsion. La durée pendant laquelle l'émission demeure supérieure à la moitié de l'émission maximale est symbolisée par un trait épais sur les courbes.

La diminution de la densité explique également les longues durées d'émission dans les zones éloignées du front de densité. En effet, à faible densité, la conduction électronique est plus faible et le refroidissement plus lent. Pour cette raison, les états ioniques émetteurs ont une durée de vie plus longue.



Figure 34 : Ionisation moyenne du plasma en fonction du temps pour la zone 4.

Comparaisons avec l'expérience :

D'après les simulations effectuées, l'émission provient de zones très peu denses comme le montre la figure 35. Au moment de l'émission, les zones analysées ont toutes une densité électronique comprise entre 10^{20} et 10^{21} cm⁻³. Or, l'estimation de la densité électronique par l'ajustement de la raie Heß a montré que la densité au cours de l'émission était de l'ordre de 7.10²¹ cm⁻³. Il existe donc une différence d'un ordre de grandeur entre les résultats expérimentaux et les résultats obtenus à partir des simulations. Etant donné la faible influence des autres phénomènes d'élargissement, une erreur d'estimation, par exemple de l'opacité, n'aurait que peu d'influence. Les résultats expérimentaux concernant cette grandeur semblent donc assez robustes. Pour expliquer ce phénomène, il est nécessaire de considérer les mécanismes pris en compte par le code FILM et de rappeler ces limites.

Ce code, ainsi que nous l'avons expliqué, est potentiellement mal adapté au traitement d'un diélectrique. La présence de défauts peut laisser présager que l'ionisation s'effectue grâce à un faible densité d'électrons libres, mais ce n'est pas une certitude. Il est donc possible que l'expansion de la cible durant l'émission de l'ASE ait été surestimée. En ce cas, cela expliquerait la faible densité d'émission obtenue à partir des simulations. De plus, indépendamment de la structure de diélectrique, le traitement de la vaporisation n'est pas traité de façon précise dans le code, ce qui induit une mauvaise évaluation de la quantité de matière évaporée.

Enfin, le code FILM est un code 1D, cela signifie qu'il ne prend pas en compte le profil transverse du faisceau laser. Hors de la zone centrale de la tache focale, l'intensité est plus faible et notamment l'intensité du piédestal. L'expansion du préplasma est alors moins importante et une émission de la raie He α provenant d'une zone dense est possible. Les outils dont nous disposons ne permettent malheureusement pas de trancher. Des mesures expérimentales supplémentaires de mesure d'expansion du plasma seraient nécessaires ; cependant, ces mesures seraient très difficiles à interpréter en raison de la géométrie de la cible.



Figure 35 : Evolution temporelle de la densité électronique. L'origine temporelle est prise au maximum de l'impulsion. La durée à mi-hauteur de l'émission est symbolisée par des traits épais sur les courbes de densité.

2) Le plasma froid et dense

Cette partie présente l'influence de différents facteurs sur le dépôt de l'énergie dans les parties les plus denses et les plus froides de la cible et sur l'émission de rayonnement K α . Par la suite, tous les spectres sont normalisés à l'intensité maximale de la raie K α . Comme elle est générée par les mêmes processus que les raies intermédiaires, cela permet de déterminer dans quels états ioniques les électrons suprathermiques déposent préférentiellement leur énergie.

a) Profondeur de dépôt des électrons suprathermiques

Les électrons suprathermiques pénètrent d'autant plus profondément dans la cible que leur énergie est importante. Ils déposent cette énergie tout au long de leur trajectoire et les plus énergétiques excitent donc les espèces les moins ionisées, présentes dans les zones profondes de la cible. Ce paragraphe est dédié à l'étude de l'influence de l'énergie des électrons suprathermiques sur la profondeur de dépôt. Expérimentalement, l'énergie des électrons suprathermiques est modifiée en changeant l'intensité de l'impulsion (cf. chap.1, fig. 12). Pour cela, changer la durée plutôt que l'énergie de l'impulsion présente l'avantage de modifier l'intensité sans influer sur les conditions d'ASE et donc de préplasma. L'étude est menée pour les microbilles pleines et les aérogels. Il est à noter que les spectres présentés ci-dessous sont volontairement saturés de façon à amplifier les raies intermédiaires. Cependant, les acquisitions ont été faites pour la même durée et sont donc comparables.

Pour les microbilles pleines, la fluence de l'impulsion est de l'ordre de 12 ± 0.8 kJ.cm⁻² ((1.5 ± 0.5). 10^{17} Wcm⁻² pour 60 fs) et sa durée varie de 55 fs à 1 ps. L'intensité du piédestal est de 4 mJ.cm⁻² (5.10^{10} W.cm⁻²). Les spectres obtenus sont présentés sur la figure 36. Ils présentent une croissance sensible des raies intermédiaires avec la durée d'impulsion. Sur la figure 37, nous représentons le rapport des aires des raies intermédiaires et de la raie K α en fonction de cette durée, le rapport croît de 1,6 à 3,2.



Figure 36 : Evolution des raies de la partie froide en fonction de la durée d'impulsion.-a) Microbilles : la fluence de l'impulsion principale et du piédestal sont respectivement de l'ordre de 12 kJ.cm⁻² et 4 mJ.cm⁻². b) Aérogels : la fluence de l'impulsion principale et du piédestal sont respectivement de l'ordre de 13,5 kJ.cm⁻² et 4,5 mJ.cm⁻²

Pour les poudres d'aérogels, la fluence de l'impulsion est de $13,5\pm2$ kJ.cm⁻². Les spectres obtenus lors de ces expériences sont présentés sur la figure 36. Il n'apparaît pas de variation visible du rapport des raies intermédiaires avec la raie K α . Cela est confirmé par les valeurs de ce rapport reportées sur la figure 37 et comprises entre 1,4 et 1,9.



Figure 37 : Rapport des raies intermédiaires avec la raie $K\alpha$ en fonction de la durée de l'impulsion.

Ce comportement est interprété grâce à des simulations réalisées à l'aide du code TRANSPEC. Ces simulations sont effectuées en régime stationnaire mais dans un plasma inhomogène. TRANSPEC est ici utilisé en tant que postprocesseur des profils issus de FILM et concernant les impulsions de 60 fs et 1 ps d'intensités respectives de 10¹⁷ W.cm⁻² et 6.10¹⁵ W.cm⁻².

Pour effectuer ce calcul, nous avons dû estimer l'énergie et le nombre des électrons suprathermiques générés. L'énergie est évaluée à l'aide de la figure 12 du chapitre 1. D'après ce graphique, l'énergie moyenne est de l'ordre de 17 keV pour une impulsion de 10^{17} W.cm⁻² et de 8 keV pour une impulsion de 6.10^{15} W.cm⁻². Le calcul du nombre des électrons suprathermiques aurait demandé des simulations effectuées par un code PIC, nous nous contentons ici d'utiliser des lois d'échelles et des données issues de FILM. Le nombre d'électrons suprathermiques est évalué en tenant compte de :

- la fraction de l'énergie laser absorbée qui est de l'ordre de 10% pour l'impulsion de 10¹⁷ W.cm⁻² et de 20% pour l'impulsion de 6.10¹⁵ W.cm⁻²
 [3],
- la fraction de cette énergie absorbée de façon résonnante : les données que nous avons concernent une impulsion de 100 fs, approximativement la moitié de l'énergie totale absorbée l'est sous forme résonnante [4],
- la fraction de cette énergie transformée en électrons suprathermiques : d'après le paragraphe 3.b.2) du chapitre 1, l'énergie absorbée de façon résonnante est évacuée par collisions électrons-ions, convection

thermique et déferlement électronique. Les collisions électrons-ions sont négligeables d'après ce paragraphe à nos intensités et les contributions relatives de la convection thermique et du déferlement varient d'un facteur 1,3 à 2 selon l'intensité considérée. Cependant, comme la convection induit au final la création d'électrons suprathermiques, nous considérons que la totalité de l'énergie résonante est transformée en électrons suprathermiques.

Pour l'impulsion de 10¹⁷ W.cm⁻², le nombre d'électrons obtenu dans ces conditions est de 2.10¹¹, pour l'impulsion de 6.10¹⁵ W.cm⁻², il est de 10¹². Ces électrons pénètrent respectivement de 6 µm et 1,5 µm et ne déposent donc pas leur énergie sur la même distance. Sur le graphique suivant sont présentés les résultats de ces simulations. D'après ces simulations, on peut comme dans les expériences observer que l'émission relative des raies intermédiaires est plus intense pour l'impulsion longue que pour l'impulsion courte.



Figure 38 : Simulation des raies intermédiaires et de la raie $K\alpha$ pour une impulsion de 60 fs et 1 ps. La raie $K\alpha$ ne peut être reproduite de façon correcte car seule la composante de l'ion Si⁵⁺ est présente dans le code.

L'explication de ce phénomène tient à ce que les électrons suprathermiques de faible énergie créés par l'impulsion la plus longue pénètrent moins profondément dans la cible. Ils déposent donc une plus grande fraction de leur énergie dans la partie du gradient thermique où se situent les états intermédiaires et participent préférentiellement à l'émission des raies intermédiaires.

Dans le cas des aérogels, le matériau est poreux et l'impulsion pénètre sur une longueur largement supérieure à l'épaisseur de peau (cf chap. 1, § 4.c). Chaque agrégat

absorbe individuellement l'énergie du laser et s'expand. Une multitude de microplasmas et donc de fronts de conduction de la chaleur est créé, chacun autour d'un agrégat. Les électrons suprathermiques ne diffusent alors plus dans une zone où l'état d'ionisation varie de façon monotone, mais dans une zone où se succèdent des régions ionisées et non ionisées. Si l'énergie des électrons est suffisante pour traverser plusieurs agrégats successifs, la proportion d'énergie déposée dans les différents états ne change pas lorsque l'on modifie l'énergie des électrons suprathermiques. Nous n'observons donc pas de différences entre les spectres de la figure 36.

b) Emission de rayonnement Kα

Ce paragraphe se propose d'étudier l'influence de la durée et de la fluence de l'impulsion sur la génération de rayonnement K α . Nous avons en effet vu que la pénétration des électrons suprathermiques dans les profondeurs de la cible permettait de favoriser l'émission de K α par rapport à l'émission des raies intermédiaires. Il est intéressant de savoir si cela est visible sur l'émissivité absolue de la raie K α . Par ailleurs, déposer une plus grande énergie dans le plasma induit à la fois une augmentation de l'énergie individuelle des électrons et de l'énergie totale du faisceau. Nous souhaitons déterminer comment cela agit sur l'émissivité.

b.1) Effet de la durée de l'impulsion

Les expériences sont effectuées pour des impulsions de fluences 4, 8, 12 et 15,5 kJ.cm⁻² présentant un contraste de 3.10⁶ pour une durée de 60 fs. Pour chaque fluence, on étudie la variation du signal de rayonnement K α en fonction de la durée de l'impulsion, chaque courbe est normalisée au nombre maximum de photons émis. La figure 39 a) et b) présente les résultats de ces expériences. Pour les courbes concernant les microbilles, le signal est approximativement constant pour toutes les fluences jusqu'à 500 fs. Le signal décroît alors. Dans le cas de la fluence la plus élevée, on note la présence d'un maximum plus important. Cependant, une seule mesure ayant été effectuée en ce point, nous ne pouvons conclure avec certitude à l'existence d'un maximum aussi marqué. Ainsi, jusqu'à 500 fs, l'énergie déposée par les électrons suprathermiques est approximativement constante à ±10 %. Cela peut s'expliquer par le fait que l'allongement de la durée d'irradiation s'accompagne d'une augmentation de l'absorption résonante. Les électrons ont alors une énergie plus faible et pénètrent moins profondément. Cependant, l'ensemble des électrons possède également une énergie plus importante en raison de l'augmentation de l'absorption. Ces deux effets peuvent ainsi se compenser et expliquer la constance du signal. A partir d'environ 500 fs, la diminution de la longueur de pénétration est trop

importante pour être compensée, les électrons perdant une trop grande fraction de leur énergie dans la zone intermédiaire : on observe une chute du signal.

En ce qui concerne les aérogels, on ne peut parler que de fluctuations du signal, aucune tendance, même légère ne se dégage de ces courbes. Cela nous incite à considérer que le signal de rayonnement K α est approximativement indépendant de la durée.



Figure 39 : Dépendance de l'émissivité de la raie $K\alpha$ en fonction de la durée de l'impulsion. a) Microbilles. b) Aérogels. ,- : 15,5 kJ.cm⁻², /: 12 kJ.cm⁻², 7: 8 kJ.cm⁻², B: 4 kJ.cm⁻². Les mesures correspondant aux symboles pleins (,, /, 7, B) ont été conduites à une durée donnée en faisant varier l'énergie de l'impulsion. Les symboles – correspondent à une série de mesures effectuée en modifiant la durée de l'impulsion.

b.2) Effet du flux de l'impulsion

En augmentant le flux de l'impulsion, on augmente à la fois l'énergie déposée dans le plasma par absorption résonnante et l'énergie individuelle des électrons suprathermiques. Les mesures effectuées portent sur les trois poudres, pour les durées d'impulsion variant de 60 à 1200 fs. Cependant, comme les résultats concernant les microbilles creuses se superposent approximativement à ceux des microbilles pleines, ils ne sont pas reportés sur le graphique suivant dans un souci de clarté. Ces résultats sont rapportées à un tir et à 2π sr.

Les microbilles pleines présentent une émission de $6,5.10^7$ photons par tir dans 2π sr pour une fluence de 14 kJ.cm⁻². Cette émissivité est assez proche de celle des microbilles creuses puisqu'elles atteignent 10^8 photons. Les aérogels sont quant à eux les plus émissifs avec 4.10^8 photons par tir dans 2π sr. Nous avons également effectué ces mesures pour une cible solide plane. Cette cible était translatée dans deux directions de façon à présenter une partie toujours intacte à chaque tir. L'émissivité moyenne obtenue pour une incidence de 45° en polarisation P est reportée sur le graphique et atteint 2.10^8 photons par tir toujours à 14 kJ.cm^{-2} . Cette mesure montre que les poudres permettent d'obtenir un flux de photons du même ordre de grandeur que les cibles solides.



Figure 40 : Emissivité de la source en fonction de la fluence pour les aérogels et les microbilles. Les différentes durées d'impulsions sont repérées par des symboles de forme et couleur différente.

Les mesures d'émissivité ont également permis d'évaluer le rendement de la source dans nos conditions. A 14 kJ.cm⁻², ce rendement est de $5,2.10^{-7}$ pour les microbilles pleines et 8.10^{-7} pour les microbilles creuses, de $3,2.10^{-6}$ pour les aérogels, et $1,6.10^{-6}$ pour la cible plane. Les valeurs couramment données sont de l'ordre de quelques 10^{-5} , la faiblesse de nos rendements peut être attribuée au fait que nous n'avons pas tenté d'optimiser l'émission de rayonnement K α en utilisant par exemple une préimpulsion contrôlée.

Les ajustements réalisés sur les mesures montrent que l'émissivité suit une loi en puissance 1,5 avec la fluence pour les microbilles pleines et les aérogels quelle que soit la durée de l'impulsion et en puissance 1,7 pour les microbilles creuses (cf. figure 40). Ces lois montrent bien dans nos expériences l'influence importante de la fluence et donc de la quantité d'énergie transmise au faisceau d'électrons suprathermiques. Pour expliquer cette loi, des simulations mettant en jeu des codes PIC seraient nécessaires mais n'ont pas été réalisées au cours de cette thèse. Nous avons tout de même comparé ces variations à celles obtenues dans d'autres travaux et plus précisément ceux de Serena Bastiani [5] effectués également avec du silicium. Nous avons remarqué une dépendance en puissance 0,5 pour des impulsions de 1,5 ps et en puissance 1 pour des impulsions de 60 fs. Il y a deux différences avec nos résultats. Tout d'abord, la variation est différente selon la durée d'impulsion ce qui n'est pas le cas dans nos expériences. D'autre part, les valeurs des puissances permettant de reproduire les courbes sont de 0.5 et 1 tandis que nous trouvons une loi en puissance 1,5. L'explication de ces différences ne semble pas provenir de la différence de matériau car les lois que nous avons établis sont similaires pour les trois poudres dont la structure est très différente. La différence provient donc plus certainement des profils des impulsions et notamment de l'ASE qui crée le préplasma auquel l'absorption résonnante est très sensible.

La partie A de ce chapitre a montré que la géométrie de l'interaction laser/poudre est différente de la géométrie de l'interaction laser/solide. Pour les poudres de forme sphérique, la fluence est deux fois plus faible que pour une cible plane. Le rayonnement recueilli, en raison des interstices des poudres, est diminué de 20%. Nous devons également tenir compte du fait que dans le cas des microbilles pleines, la silice ne représente que 70% du matériau (cf. chap. 2). En considérant tous ces facteurs, nous avons retracé le graphique précédent en fonction de la fluence réellement perçue par le matériau. Les résultats de ce calcul sont reportés sur la figure 41. La mesure effectuée pour la cible solide se trouve maintenant approximativement sur la droite en puissance 1,5. Les calculs effectués dans la partie A semblent rendre compte convenablement des différences entre l'interaction laser/cible plane et laser/écoulement de microbilles sphériques. Les différences ne seraient donc que géométriques.



Figure 41 : Emissivité de la poudre de microbilles de silice en fonction de la fluence réellement perçue par le matériau. La mesure concernant le solide se situe maintenant sur la même droite que les poudres.

3) Effet d'un préplasma important

La présence d'ASE induit la création d'un préplasma dont la longueur et la densité influent sur l'efficacité de l'absorption collisionnelle et résonnante (cf. chap. 1, § 3.d) et par conséquent sur le chauffage et la génération d'électrons suprathermiques. Jusqu'à présent, seul le cas d'un préplasma créé par un piédestal d'environ 5.10^{10} W.cm⁻² a été envisagé. Dans ce paragraphe est présentée l'influence de préplasmas plus importants sur le chauffage du matériau et sur la génération d'électrons suprathermiques. Pour connaître cette influence, nous avons effectué des expériences avec les poudres de microbilles pleines et d'aérogels en faisant varier l'intensité du piédestal selon la méthode expliquée au chapitre 3. L'intensité de l'impulsion pour ces expériences est de l'ordre $(1,5\pm0,6).10^{17}$ W.cm⁻² avec une durée de 60 fs et les contrastes auxquels nous avons accès sont de 3.10^6 , 5.10^5 et 5.10^4 ; ce qui correspond respectivement à des piédestaux de 5.10^{10} , 3.10^{11} et 3.10^{12} W.cm⁻². Pour les aérogels, nous ne testons que les deux contrastes extrêmes.



Figure 42 : Effet du contraste sur les raies intermédiaires. a) Microbilles - b) Aérogels. Les indications de bon contraste, contraste intermédiaire et mauvais contraste correspondent aux valeurs 3.10^6 , 5.10^5 et 5.10^4 . La normalisation du spectre concernant le mauvais contraste pour les aérogels est faite avec une raie K α saturée (exposition trop longue). Cette saturation favorise l'observation des raies d'intensité faibles telles que les raies intermédiaires, aussi comme ces raies sont absentes de ce spectre, la normalisation à cette raie n'induit pas de mauvaise interprétation, malgré sa saturation.

Sur les figure 42 a) et b), nous présentons les spectres obtenus lors de ces expériences. Pour les microbilles, nous ne constatons pas de changement de rapport entre la raie K α et les raies intermédiaires lorsque le contraste varie. Pour la poudre d'aérogels, les raies intermédiaires disparaissent totalement à faible contraste alors qu'elles sont tout à fait visibles avec un fort contraste. De plus, la raie K α pour cette poudre est plus étroite dans le cas du faible contraste. Nous précisons ce point sur la figure 43. La largeur de la raie K α

est déterminée par les cinq composantes générées par les ions Si¹⁺ à Si⁵⁺. Au vu de la disparition des raies intermédiaires en faible contraste, la diminution de la largeur de la raie K α s'interprète comme le fait qu'un certain nombre de ses composantes ne sont plus générées.



Figure 43 : Raie K α pour un fort et faible contraste du laser pour une impulsion de (2±0,6).10¹⁷W.cm⁻². Les indications de bon et mauvais contraste correspondent aux valeurs 3.10⁶ et 5.10⁴.

Pour expliquer cela, il est nécessaire de comprendre l'influence du préplasma dans l'interaction. Si l'on se réfère à la figure 2 du chapitre 1, on peut voir que la présence d'un piédestal de 3.10¹² W.cm⁻² empêche l'interaction avec la partie dense de la cible dès que sa durée est supérieure à 3 ps. Comme les cibles structurées ont une absorption plus efficace (cf. chap. 1) et que la durée de l'ASE est de l'ordre de 500 ps, nous pensons que la présence d'un tel piédestal induit une expansion prématurée très importante de la cible. Lorsque l'impulsion principale arrive sur le plasma détendu, l'interaction se produit avec un milieu très peu dense. Dans ce cas, une importante proportion de l'énergie laser génère une population d'électrons suprathermiques de très forte énergie [6]. Par conséquent, la fraction restante de l'énergie permettant le chauffage du milieu est plus faible et celui-ci peut alors être très peu ionisé. C'est ce que confirme l'absence de la raie He α sur les spectres correspondant aux plus faibles densités. D'autre part, des mesures radiologiques effectuées au cours des expériences semblent également confirmer une très forte production d'électrons suprathermiques en faible contraste. Ces électrons lors de collisions avec la paroi de l'enceinte induisent une émission de rayonnement X dur que l'on peut mesurer à l'aide d'un détecteur radiologique. Les mesures prises au travers d'un hublot montrent des débits de dose de 20 µG.h⁻¹ alors qu'avec un contraste important pour lesquelles les raies intermédiaires sont présentes, elles ne dépassent pas la valeur du bruit de fond. L'absence de raies intermédiaires est donc due à la trop forte énergie des électrons suprathermiques ce qui induit indirectement une faible ionisation du milieu.

Les microbilles ont, elles, une structure non poreuse et absorbent moins efficacement l'énergie du piédestal ce qui permet une interaction avec un milieu de plus haute densité et une absorption de l'énergie principale plus importante. Les états ioniques intermédiaires sont donc plus facilement créés et on peut observer les raies correspondantes.

On peut enfin faire la remarque qu'en faible contraste, les spectres d'aérogels montrent la même dépendance que les microbilles avec la durée de l'impulsion, c'est à dire une augmentation des raies intermédiaires lorsque la durée de l'impulsion augmente. On associe cela aux mêmes raisons que précédemment, c'est à dire à l'augmentation du nombre d'électrons suprathermiques due à la diminution de l'énergie des électrons suprathermiques. Les mesures effectuées avec le détecteur radiologique montrent d'ailleurs en impulsion longue des valeurs plus faibles, ainsi le débit de dose n'est plus que de 15 μ G.h⁻¹ pour une impulsion de 160 fs et de 4 μ G.h⁻¹ pour une impulsion de 950 fs.

Conclusion

Cette partie a permis, grâce aux diagnostics spectroscopiques de donner une image des processus se produisant durant l'interaction. Ainsi, les densités des zones émissives de l'ordre de 10²² cm⁻³ sont la signature d'une détente prématurée de la cible par le piédestal de l'impulsion. Sans piédestal, les simulations effectuées au premier chapitre en utilisant TRANSPEC comme postprocesseur de FILM montrent en effet que l'émission provient de zones de densités de l'ordre de 10²³ cm⁻³. Cependant, les mêmes codes utilisés avec les caractéristiques de l'impulsion réelle ne reproduisent pas nos conditions de densité lors de l'émission. Le code hydrodynamique semble surestimer l'effet du piédestal et fournit une densité de la zone d'émission trop faible d'un ordre de grandeur.

Les électrons créés par absorption résonnante pénètrent dans le solide d'autant plus profondément que leur énergie est grande. Cette propriété a permis de souligner la différence de structure des microbilles pleines assimilables à de petits solides massifs et des aérogels. Pour les microbilles pleines, la raie K α est d'autant plus intense (relativement aux raies intermédiaires) que l'énergie des électrons est importante. Ceci s'explique par le fait que les régions profondes où pénètrent les électrons très énergétiques sont peu, voire pas ionisées. Dans le cas des aérogels, l'intensité relative de la raie K α n'est pas plus élevée quelle que soit l'énergie des électrons suprathermiques. Cela s'explique par le chauffage volumique du milieu poreux qui se traduit par un état d'ionisation variant de façon non

monotone avec la profondeur. Les électrons traversent alors des zones plus ou moins ionisées tout au long de leur trajet.

L'étude de l'émission de rayonnement K α s'est concentrée sur la différence des effets de la durée de l'impulsion et de la fluence. Il est apparu une influence bien plus grande de la fluence pour laquelle l'émissivité présente une variation en puissance 3/2. L'émissivité des microbilles est inférieure d'un facteur 3 à celle d'une cible plane. Cela est expliqué par les facteurs géométriques présentés dans la partie A de ce chapitre, le facteur dominant étant la chute d'intensité perçue par les sphères en raison de leur forme. Les aérogels présentent l'émissivité la plus grande avec 4.10⁸ photons émis par tir dans 2π sr pour une fluence de 14 kJ.cm⁻².

Enfin, l'effet d'un préplasma important a été examiné. Il apparaît que cela interdit le chauffage du matériau et permet la génération d'électrons très énergétiques.

Références du chapitre 4

- [1] Béatrice Sallé. Thèse de doctorat. Etude de l'interaction laser matériau appliqué à l'analyse élémentaire des solides. Université d'Orléans (1999).
- [2] A. H. Gabriel, Dielectronic satellite spectra for highly-charged helium-like ion lines, Mon. Not. R. Astron. Soc. 160, 99 (1972).
- [3] D. F. Price, R. M. More, R. S. Walling, G. Guethlein, R. L. Shepherd, R. E. Stewart, and W. E. White. Absorption of Ultrashort Laser Pulses by Solid Targets Heated Rapidly to Temperatures 1–1000 eV. Phys. Rev. Lett. 75, 252–255 (1995).
- [4] P. Audebert, J.P. Geindre, S. Bastiani, J.C. Gauthier, G. Grillon, J.P. Chambaret, A. Mysyrowicz, A. Antonetti. Generation of X-ray by ultrashort pulse laser produced plasma.
- [5] Séréna Bastiani, Etude et optimisation de l'émission X d'un plasma créé par une impulsion laser ultra-courte, Thèse de Doctorat de l'Ecole Polytechnique, soutenue le11 juin 1998.
- [6] K. Nakajima et al. Proof of principle experiments of laser wakefield acceleration using a 1 ps 10 TW Nd : glass laser, Proc. AIP Conf. Advanced Accelerator Concepts, 145 (Amer. Inst. Phys., New York, 1995).

Conclusions et perspectives

Durant cette thèse, la génération de rayonnement X, en particulier K α , a été étudié à l'aide d'un nouveau système de distribution. Notre travail a eu, pour cela, trois objectifs : l'élaboration d'un nouveau type de source, sa caractérisation ainsi que la compréhension de l'interaction amenant à l'émission de rayonnement K α . L'ensemble de ce travail est synthétisé dans les pages suivantes.

Elaboration de la source

La première partie de l'étude a été dédiée à l'obtention d'une cible qui soit à la fois simple d'utilisation, peu coûteuse et qui présente un intérêt fondamental. Un écoulement de poudre délivré par un système de sablier répond à ces conditions. Le système obtenu est constitué de deux réservoirs intervertibles de 1 L : le réservoir supérieur permet de stocker la poudre avant qu'elle ne s'écoule tandis que le réservoir inférieur permet de la recueillir après l'interaction. Un entonnoir adapté à la structure de la poudre est fixé sous le réservoir supérieur. A la fin de l'expérience, il suffit d'inverser les deux réservoirs pour commencer une nouvelle expérience. Le rafraîchissement de la cible se fait naturellement grâce à la seule action de la gravité. L'étude de l'interaction d'un laser avec un écoulement n'ayant jamais été étudiée, elle présente, de plus, un intérêt fondamental.

Le choix des poudres utilisées a demandé une certaine attention. Elles devaient s'écouler aisément et présenter des structures suffisamment variées pour permettre d'étudier différentes conditions d'interaction. Trois poudres de silice ont été sélectionnées : une poudre de microbilles pleines permettant une interaction avec un solide épais, une poudre de microbilles creuses dont l'épaisseur des parois est inférieure à 1 µm, ainsi qu'une poudre d'aérogels permettant d'étudier l'interaction avec un solide poreux. Les caractéristiques des entonnoirs d'adaptation ont été choisies de façon à reproduire les conditions naturelles d'écoulement et de limiter le débit pour optimiser la durée de l'écoulement et donc la durée de vie de la source. Pour cela, l'angle des entonnoirs est pris entre l'angle d'avalanche et l'angle de repos et le diamètre de sortie est le plus petit possible. Pour chacune des poudres, la durée de vie est respectivement de 4 h, 40 et 60 mn. Ces durées peuvent être accrues en augmentant la taille des réservoirs. Outre les avantages de simplicité et de coût, ce système permet d'utiliser une large gamme de matériaux solides car tous peuvent être réduits sous forme de poudre ; ce système donne ainsi accès à une large gamme de longueur d'onde d'émission.

Etude de l'interaction

L'étude de l'interaction comporte trois volets portant sur le plasma thermique et le plasma froid et dense ainsi que sur l'influence d'un préplasma important sur ces deux zones. L'ajustement des données spectroscopiques par TRANSPEC a permis de déterminer que l'émission des raies thermiques se produisait à une densité de l'ordre de 10²² cm⁻³ pour les aérogels et de 7.10²¹ cm⁻³ pour les microbilles pleines et creuses. Ces densités plus faibles que celles obtenues lors de simulations correspondant à une impulsion sans piédestal impliquent la présence d'un préplasma. Cependant, en utilisant TRANSPEC comme postprocesseur des profils calculés par FILM pour nos conditions laser, la densité d'émission calculée est de quelques 10²⁰ cm⁻³. Nous pensons que cette différence provient d'une surestimation de l'effet de l'ASE par FILM. Plusieurs raisons peuvent expliquer cette surestimation. Tout d'abord, FILM considère qu'une densité d'électrons libres est initialement présente dans le matériau. Cependant, même si les diélectriques utilisés ne sont pas parfaits, et présentent une faible quantité d'électrons libres, celle-ci reste bien inférieure à celle présente dans un métal. D'autre part, FILM est un code 1D, les zones périphériques du faisceau où l'intensité est plus faible ne sont donc pas simulées. Dans ces zones le préplasma induit est plus faible et la densité où a lieu l'émission plus élevée.

L'étude du plasma froid et dense s'est intéressée à la pénétration des électrons suprathermiques dans le matériau ainsi qu'à l'émission de rayonnement X qu'ils génèrent. Les spectres enregistrés ont permis d'observer les zones de dépôt des électrons suprathermiques. Lorsque leur énergie diminue, elle est déposée préférentiellement dans les états d'ionisation intermédiaires situés moins profondément dans la cible. Le cas des aérogels est légèrement différent car ils sont chauffés de façon volumique par le laser. Un électron suprathermique traverse donc une succession de zones plus ou moins ionisées. En ce qui concerne l'émission de rayonnement X, l'effet de la durée et de la fluence de l'impulsion a été découplé. On a pu montrer la prédominance de la fluence dans l'augmentation de l'émissivité. Cette dernière suit une loi en puissance 3/2 avec la fluence.

Enfin, l'effet de préplasma important est étudié en changeant le contraste de l'impulsion. L'absence de la raie He α montre que la formation d'un milieu trop peu dense devant la cible interdit un chauffage efficace de la matière. Cet effet est particulièrement important pour les aérogels pour lesquels le matériau n'est absolument plus ionisé. Parallèlement, la présence d'électrons suprathermiques très énergétiques a pu être détectée par les mesures de débit de dose radiologiques.

Caractérisation de la source

La caractérisation de l'écoulement associée aux expériences effectuées sur le serveur LUCA et le serveur du CELIA ont permis de caractériser la source de rayonnement Ka. Cette source présente l'avantage de ne pas créer de débris. Un soin important doit cependant être accordé à l'isolement des poudres de façon à ne pas polluer l'enceinte.

Les mesures d'émissivité obtenues avec cette source sont de l'ordre de 10^8 photons par tir dans 2π sr pour les microbilles pleines et creuses. Les mesures effectuées sur cible massive sont légèrement supérieures puisqu'elles atteignent 2.10⁸ pour une fluence de 17 kJ.cm⁻². Cette différence semble due uniquement aux différences géométriques existant entre une cible plane et un écoulement de sphères. La principale contribution provient de la baisse d'un facteur 2 de l'intensité perçue par les sphères dont la surface d'interaction est le double de celle d'une cible plane. Cependant d'autres facteurs tels que l'effet d'ombre des grains empêchant la mesure de la totalité du rayonnement X émis interviennent. L'émissivité des aérogels est plus importante d'un facteur 7. Ceci est attribué à la structure poreuse du matériau qui permet de piéger l'énergie lumineuse et d'augmenter ainsi l'absorption.

La mesure de la taille de la zone d'émission associée aux mesures de fluctuations spatiales de l'écoulement a mis en évidence l'existence d'un jitter tir à tir. Ce jitter peut limiter la résolution temporelle autorisée par la source. Pour les microbilles pleines et creuses, il est de l'ordre de 800 fs et pour les aérogels de 3,3 ps. Il peut cependant être diminué en limitant spatialement la zone de collection de rayonnement X. Pour limiter le jitter à une valeur de 300 fs, correspondant à la valeur maximale de la durée K α dans les conditions de [1], il faut limiter la fenêtre spatiale de collection des photons à 100 µm. Le rayonnement recueilli est alors de 40% pour les microbilles et de 10% pour les aérogels. Cependant, les aérogels étant plus émissifs, le nombre de photons utile est de 6,8.10⁷ pour ces derniers, de 4.10⁷ pour les microbilles pleines et 6.10⁷ pour les microbilles creuses.

Le taux de rafraîchissement maximal est théoriquement évalué à 1700 Hz pour un espacement des impacts laser de 100 μ m. Cependant, expérimentalement, le taux de répétition des tirs à 2±0,4 kJ.cm⁻² (soit (5±1).10¹⁶ W.cm⁻² pour une durée d'impulsion de 40 fs) est limité à 80 Hz. A cette fluence, les grains subissent en effet un effet fusée important et entrent en collision avec d'autres grains lors de leur éjection. L'écoulement est alors détruit. Une solution est de baisser l'intensité du laser : le taux de répétition peut alors être plus élevé en contrepartie d'une baisse du nombre de photons émis par tir.

Perspectives

Le fonctionnement de la source à quelques dizaines de Hz est satisfaisant. Cependant, des améliorations peuvent être apportées de façon à améliorer le jitter sans pour autant diminuer le nombre de photons utile. Pour cela, il est nécessaire de diminuer les fluctuations spatiales de l'écoulement. La forme des entonnoirs d'adaptation a une influence sur les conditions initiales de l'écoulement (diamètre de sortie, vitesse des grains à la sortie de l'entonnoir). Une étude plus approfondie de leur forme et de leurs caractéristiques est nécessaire. Une fois une telle
optimisation réalisée, il serait intéressant de mesurer la durée de la raie K α en fonction de différents paramètres laser de façon à obtenir une durée d'émission la plus courte possible.

De façon à limiter la durée des expériences, il est intéressant de disposer d'une source fonctionnant à haut taux de répétition. Cependant, notre source ne peut fonctionner de façon convenable à un tel rythme lorsque la fluence de l'impulsion est trop importante. Ce problème est dû aux collisions entre grains provoquées initialement par l'effet fusée. Pour résoudre ce problème, une solution serait de délivrer la cible grain à grain. Les risques de ricochet entre grains seraient alors largement limités. Un écoulement grain à grain à partir du réservoir principal n'est pas possible car le rétrécissement de l'entonnoir de sortie entraînerait la formation de voûtes. Une solution a été envisagée mais n'a pas été testée au cours de la thèse. Il s'agirait de positionner une gouttière inclinée sous l'écoulement. Pour obtenir un écoulement grain à grain, il est nécessaire pour des raisons de conservation de débit de ne prélever qu'une partie de l'écoulement. Pour cela, il suffit de positionner la gouttière en bordure d'écoulement.

Enfin, à un niveau plus fondamental, les différences entrent les résultats expérimentaux et les simulations de l'émission du plasma thermique invitent à un approfondissement de façon à pouvoir en modifiant par exemple le code FILM reproduire les spectres obtenus. Il serait d'autre part intéressant de déterminer la provenance de la dépendance de l'émissivité en puissance 3/2 avec la fluence. Des simulations seraient alors nécessaires à l'aide d'un code pic. Pour mieux déterminer l'origine de cette loi ainsi que ses limites d'application, d'autres expériences seraient nécessaires à des fluences plus importantes ainsi qu'en présence d'un préplasma plus ou moins important.

En définitive, ce travail a démontré l'intérêt d'utiliser un écoulement de poudre comme système de distribution de cibles : un rayonnement X important a pu être mesuré dès les premières expériences, ce qui en fait un système prometteur. La poudre d'aérogels a notament permis d'atteindre une émissivité supérieure d'un facteur 2 à celle d'une cible solide classique. L'utilisation d'un écoulement de poudre donne accès à un type de cibles présentant une très grande variété de structures : la taille des grains, leur forme, leur rugosité sont autant de paramètres dont l'influence peut être étudiée. Enfin les méthodes de distribution d'une poudre sont nombreuses ; nous n'avons utilisé que la plus simple, mais des systèmes légèrement plus élaborés méritent d'être étudiés afin d'augmenter les performances actuelles.

Référence :

A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Förster, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier & D. Hulin, Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution, Nature, 410, 65 (2001).

Annexe

Instrumentation : caractérisation du jitter d'une caméra à balayage de fente

Introduction	199
1) Fonctionnement de la caméra à balayage de fente	200
a) Acquisition du signal	200
b) Synchronisation de la rampe	202
2) Expérience de caractérisation	205
a) Montage	205
b) Résultats expérimentaux	207
b-1) Détermination de la vitesse de balayage	207
b-2) Détermination du jitter	209
Conclusion	211
Références de l'annexe	213

Annexe

Instrumentation : caractérisation du jitter d'une caméra à balayage de fente

Introduction

La caractérisation complète d'une source de rayonnement X nécessite une détermination de la durée d'émission de son spectre. Pour effectuer une telle mesure, une solution consiste à utiliser une caméra à balayage de fente aussi appelée « caméra streak » associée à des cristaux diffractants. Ce type de caméra transforme un signal optique en signal électronique et applique au faisceau d'électrons une rampe de tension, les électrons sont ainsi déviés de façon différente selon leur instant de génération donc selon l'instant d'arrivée du photon sur la caméra. On peut ainsi résoudre temporellement l'émission du rayonnement.

Ces caméras à balayage de fente sont utilisées couramment en régime monocoup [1], [2], [3], [4] lorsque le nombre de photons en un seul tir est suffisant ; les plus performantes permettent alors une résolution temporelle de l'ordre de 700 fs. Cependant dans de nombreuses expériences, il est nécessaire d'effectuer un grand nombre d'accumulations en raison de la faiblesse du signal. Dans cette configuration, le phénomène de jitter induit par les systèmes électroniques, qui est classiquement de l'ordre de 10 ps, devient un handicap car il limite très sérieusement la résolution temporelle. Un système de balayage à faible jitter, fabriqué par FASTLITE, est une solution pour remédier à ce problème. Ce système permet en effet d'obtenir un jitter de seulement 1 ps lorsque le système laser possède une grande stabilité tir à tir. Cependant, les installations telles que le laser 100 TW du LULI sont des systèmes de forte puissance et possèdent des variations tir à tir d'intensité de l'impulsion ou de l'instant d'émission du piédestal assez importantes.

Le but est ici double. Il s'agit de tester le système de balayage de FASTLITE avec un tel laser pour déterminer si son utilisation apporte une amélioration du jitter. Le but est également, pour ma part, de prendre un premier contact avec le fonctionnement et l'utilisation des caméras streak en vue d'expériences de caractérisation temporelle de notre source. Ce type d'expériences n'a cependant pas pu être réalisé au cours de ce travail. Dans ce chapitre, nous décrivons dans un premier temps le système de caméra à balayage de fente avec plus de précisions, puis, dans un second temps, nous déterminons les

performances d'une caméra subpicoseconde à balayage de fente fabriquée par AXIS PHOTONICS utilisée avec le système de balayage sans jitter de FASTLITE.

1) Fonctionnement de la caméra à balayage de fente

Dans cette partie, nous présentons le fonctionnement de la caméra à balayage de fente. Le système complet de caractérisation temporelle de l'impulsion est constitué de la chaîne d'acquisition c'est-à-dire de la caméra à balayage de fente et d'une caméra CCD mais également d'un système de déclenchement nécessaire à la synchronisation des éléments de cette chaîne. Nous détaillons ici la partie acquisition du signal et la partie de déclenchement des éléments de la chaîne.

a) Acquisition du signal



Figure 1 : Schéma d'une caméra à balayage de fente.

Le principe de la caméra à balayage de fente est de transformer une variation temporelle de signal en une variation spatiale détectée par une caméra CCD (cf. figure 1). Le signal optique génère un signal d'électrons par effet photoélectrique. Une électrode permet alors d'extraire les électrons qui sont ensuite focalisés selon les deux axes transverses par des systèmes de lentilles électroniques. Pour l'un de ces axes, la focalisation spatiale s'effectue grâce à des lentilles quadripolaires et induit un grandissement de 1,7. Pour le second axe, la focalisation se fait grâce à des lentilles bilamellaires et permet un grandissement de 0,4. Il est à noter que ces optiques électroniques n'imagent selon l'axe temporel qu'une petite zone équivalente à une fente virtuelle de 100 µm. Les électrons

passent ensuite dans des plaques déflectrices sur lesquelles est appliquée une rampe de tension. Les premiers électrons arrivant entre ces plaques sont donc déviés par une tension différente des électrons suivants : ils sont plus ou moins défléchis selon leur instant d'arrivée ce qui permet de les différencier et d'obtenir la résolution temporelle. Deux tensions contrôlent la rampe : la tension V_{bias} permet de décaler le faisceau d'électrons de façon à ce qu'il voit la partie linéaire de la rampe quand il se trouve au niveau de l'écran CCD de détection ; la tension V_{sweep} permet de contrôler la vitesse de balayage par la pente de la rampe et donc l'étalement du faisceau. Le faisceau d'électrons rencontre alors un écran phosphorescent ce qui provoque l'émission de photons visibles qui sont détectés par une caméra CCD. Entre la caméra à balayage de fente et la CCD, il est parfois nécessaire d'introduire un intensificateur lorsque le signal est trop faible.

Au final, on obtient une image donnant l'information d'intensité en fonction du temps et de la position le long de la fente d'entrée. Sur la figure 2 est présentée une image enregistrée avec le dispositif décrit par la suite pour une impulsion de 350 mJ et 400 fs triplée en fréquence et des tensions de décalage et de balayage égales à 1 kV. La forme parabolique de la trace (partie droite) provient du fait qu'en raison de la focalisation, les électrons situés au bord du faisceau doivent parcourir un trajet plus grand que les électrons au centre et arrivent donc plus tard sur l'écran. La position de la trace dépend de la position moyenne du faisceau d'électrons et est donc contrôlée par la tension V_{bias}. L'étalement de la trace le long de l'axe temporel est contrôlé par la tension V_{sweep}.



Figure 2 : Trace d'un signal sur la CCD après la traversée de la caméra à balayage de fente. On attribue le fait que la partie gauche de la trace ne présente pas une forme parabolique au fait que la cathode est potentiellement gondolée.



b) Synchronisation de la rampe

Figure 3 : Synchronisation du déclenchement de la rampe avec l'arrivée du signal.

L'application des tensions de décalage et de balayage doit être synchronisée à l'arrivée du rayonnement sur la cathode. Dans le schéma utilisé en monocoup, on utilise un générateur électrique de rampe. Une partie du faisceau optique est prélevée après l'oscillateur (cf. figure 3-a)). Ce signal sert à déclencher un commutateur optoélectronique appelé commutateur d'Auston qui envoie un signal électrique à temps de montée rapide à travers un câble reliant la salle laser au lieu d'expérience. Le signal déclenche alors le générateur de rampe qui applique la tension aux plaques de déflections. Le jitter de ce

système est introduit par le processus d'avalanche qui permet aux semi-conducteurs des composants du générateur de rampe de générer un signal électrique. L'instant de déclenchement de ce phénomène est en effet aléatoire et peut varier de 10 ps. Utilisée en monocoup, cette configuration ne pose pas de problème. La seule difficulté est en effet que le signal ne sorte pas de l'écran entre deux tirs en raison de ce jitter. Cela est garantit par la largeur de l'écran qui correspond à un décalage de 100 à 150 ps selon la vitesse des électrons. Cependant, en mode d'accumulation, le jitter devient le paramètre limitant de la résolution temporelle.

Pour résoudre ce problème, une autre configuration de déclenchement a été utilisée (cf. figure 3-b)). Le commutateur qui est constitué d'un photoconducteur se situe maintenant entre un générateur de tension et la caméra à balayage de fente [5]. Dans ce schéma, une partie du faisceau laser est prélevée pour illuminer le photoconducteur et le rendre conducteur, les condensateurs du générateur préalablement chargés se déchargent alors sur les plaques déflectrices de la caméra, la rampe est créée par l'intermédiaire du circuit RC que constituent les capacités des plaques et l'impédance totale du système. Grâce au système de précharge, ce système supprime l'influence du jitter des composants électroniques sur le jitter du système de balayage.

Les seules sources de jitter proviennent maintenant des fluctuations tir à tir de l'impulsion principale et de l'ASE. Sur la figure 4.a), nous représentons la tension prélevée sur le commutateur durant son irradiation par un laser [6]. Les fluctuations tir à tir interviennent sur la partie haute du signal en induisant une variation de la conductivité du commutateur car celle-ci est proportionnelle à l'énergie laser absorbée. La tension perçue par les plaques de déflections fluctue alors tir à tir ce qui se répercute sur la tension maximale de la rampe (cf. figure 4.b)) et induit finalement un jitter proportionnel aux fluctuations relatives de l'intensité du laser. En saturant le semi-conducteur par une intensité lumineuse appropriée, on diminue sa résistivité dont les variations influent alors moins sur l'impédance totale du système et par conséquent sur la tension de la rampe. La présence d'ASE, quant à elle, rend prématurément conducteur le commutateur (cf. cercle de la figure 4.a)). Cela induit des fuites de tensions des condensateurs préchargés vers les plaques déflectrices dont la rampe se déclenche alors avant l'arrivée de l'impulsion principale. Les fluctuations de l'ASE induisent ainsi un jitter sur le déclenchement de la rampe (cf. figure 4.c)). Au final, la résolution temporelle τ s'écrit :

$$\tau = \sqrt{\tau_{\textit{monocoup}}^2 + \tau_{\textit{ASE}}^2 + \tau_{\textit{impulsion}}^2}$$

où $\tau_{monocoup}$ est la résolution temporelle de la caméra pour un seul tir, τ_{ASE} le jitter induit par l'ASE et $\tau_{impulsion}$ le jitter dû aux fluctuations de l'impulsion principale.



Figure 4 : a) Signal de sortie du commutateur : b) Jitter introduit par les fluctuations d'intensité de l'impulsion.- c) Jitter introduit par les fluctuations de l'ASE.

L'évolution du jitter en fonction de l'éclairement des photoconducteurs est non monotone comme on peut le voir sur la figure 5. On observe l'existence d'un minimum de jitter pour un éclairement donné des photoconducteurs, ce minimum est le résultat des influences opposées des fluctuations de l'impulsion principale et de l'ASE. L'augmentation de l'énergie de l'impulsion principale permet de saturer les photoconducteurs et donc de les rendre moins sensibles à ses fluctuations. Ceci explique la décroissance de la courbe lorsque l'on commence à augmenter l'énergie. Cependant, cette augmentation de l'ASE, les photoconducteurs deviennent alors de plus en plus sensibles aux fluctuations de cette dernière ce qui explique la partie croissante du jitter.



Figure 5 : Variation schématique du jitter en fonction de l'éclairement des photoconducteurs.

2) Expérience de caractérisation

a) Montage

Le laser utilisé est le laser 100 TW du LULI. Ce laser possède une voie appelée sonde délivrant des impulsions de 100 mJ de durée 300 fs à une longueur d'onde de 1057 nm. Ce laser repose sur les mêmes principes que le serveur LUCA que nous utilisons pour les expériences présentées précédemment.

Dans cette expérience, la caméra a été testée en régime ultraviolet et non en régime X en raison de la difficulté à produire un rayonnement X à haut taux de répétition et du fait que sa durée n'est pas maitrisée. La figure 6 représente le dispositif expérimental utilisé lors de cette expérience. Le faisceau est doublé en fréquence par un cristal d'efficacité 0,5 de façon à augmenter le contraste et diminuer l'importance de l'ASE qui comme nous l'avons évoqué induit un jitter. Le faisceau est alors divisé en deux voies par une lame séparatrice, une voie sert à déclencher la rampe de tension appliquée aux plaques déflectrices de la caméra et une seconde voie permet de générer le signal sur la caméra à balayage de fente.

La voie de déclenche passe dans une ligne à retard qui permet d'adapter l'instant de déclenche de la rampe au moment de l'arrivée du signal UV sur la caméra. Sur cette ligne sont également placés un filtre BG38 permettant d'éliminer le signal à la pulsation ω (la transmission de ce filtre est de 5% à ω et de 94% à 2 ω), une ou plusieurs densités optiques pour faire varier l'éclairement des photoconducteurs et un diffuseur placé juste avant ces photoconducteurs de façon à obtenir un faisceau de déclenche spatialement uniforme.



Figure 6 : Schéma expérimental.

La voie générant le signal sur la caméra streak est triplée en fréquence de façon à obtenir un signal de longueur d'onde égale à 350 nm. Sur cette voie est également placé un filtre UG11 permettant de filtrer les composantes autres que la composante à 3ω , ce filtre ne transmet en effet que 3% et moins de 1% des composantes ω et 2ω mais 97% de la composante 3ω . Une densité optique peut également être insérée sur cette voie pour diminuer l'intensité reçue par la caméra. Un intensificateur est placé derrière la caméra à balayage de fente de façon à amplifier le signal reçu par la caméra CCD visible. Cette caméra possède une dynamique de 12 bits et n'a pas besoin d'être refroidie car elle est déclenchée à chaque tir et n'accumule donc pas le bruit entre chaque expérience.

De façon à éviter que les hautes tensions appliquées aux différents éléments ne provoquent un claquage électrique qui endommagerait la cathode, le système est placé sous un vide de 1,3.10⁻⁵ mbar.

Pour tenir compte des temps de propagation des champs électriques et optiques et des temps d'inertie des appareils, les déclenchements des systèmes nécessitant un signal de déclenche : pulseur, intensificateur et caméra CCD sont décalés par l'intermédiaire d'un générateur de retard électronique. Sur le schéma ci-dessous sont reportés les instants de déclenchements des différents éléments.



Figure 7 : Déclenchement des systèmes.

b) Résultats expérimentaux

Comme expliqué dans l'introduction de ce chapitre, le but de l'expérience est de déterminer les performances de la caméra à balayage de fente lorsqu'elle est déclenchée par le commutateur FASTLITE dédié aux expériences d'accumulations et de comparer ces performances à celles obtenues avec la configuration utilisant le switch d'Auston et le générateur de rampe. Pour cela, nous déterminons dans un premier paragraphe la vitesse de balayage de la caméra en fonction des tensions appliquées aux plaques déflectrices ; ce paramètre intervient dans la résolution temporelle de la caméra. Plus cette vitesse est grande, plus la résolution est importante. Dans un second paragraphe, nous présentons les résultats concernant la mesure du jitter, qui est le paramètre que doit améliorer le système de déclenche étudié.

b-1) Détermination de la vitesse de balayage

La vitesse de balayage de la caméra est définie comme la vitesse de déviation spatiale du faisceau d'électrons. Plus cette vitesse est grande, plus la résolution temporelle sur la CCD est importante. Cette vitesse est dépendante de la tension totale appliquée au faisceau d'électrons donc à la somme de la tension de décalage V_{bias} et de la tension de balayage V_{sweep} : plus la tension appliquée est grande, plus les électrons subissent une déviation importante en un temps court. Dans ce paragraphe, nous étudions cette dépendance et déterminons la vitesse de balayage maximale.



Figure 8 : Trace du signal avec la lame de SiO₂.

Pour mesurer la vitesse de balayage, nous intercalons après le cristal de triplage de fréquence (cf. figure 6), une lame de SiO₂ de 2 cm d'épaisseur sur la moitié de la section du faisceau arrivant sur la caméra à balayage de fente. L'indice optique de la lame étant de 1,4765 à 350 nm, la partie du faisceau la traversant parcourt un chemin optique supplémentaire de 0,953 cm, ce qui provoque pour cette partie de faisceau un retard de 31,8 ps. Sur l'écran de visualisation de la CCD, ce décalage temporelle induit une discontinuité du signal que l'on peut observer sur la figure 8. En mesurant le décalage spatial au niveau de la discontinuité sur cette image, on peut déterminer la vitesse de balayage de la caméra.

Pour mesurer ce décalage spatial, il existe deux solutions : on peut soit redresser la trace à l'aide d'un polynôme d'ordre deux et comparer les positions moyennes des deux parties de la trace, soit ne prendre en considération que les positions des deux parties au niveau de la discontinuité. Cette méthode est un peu moins précise, mais il n'est alors pas nécessaire de redresser la trace. Dans notre cas, on peut remarquer sur la figure 8 une inversion de la courbure de la partie gauche par rapport à la partie droite : les deux parties accolées ne constituent pas une parabole comme c'est le cas normalement. Ceci est attribué ainsi que nous l'avons évoqué précédemment au gondolement de la cathode. En raison de ce défaut de courbure, les traces ne peuvent être redressées et nous ne prenons en considération pour l'évaluation du délai que les positions au niveau de la discontinuité.



Figure 9 : Vitesse de balayage de la caméra à balayage de fente.

Sur la figure 9 sont représentées les mesures faites pour différentes moyennes des tensions appliquées $(V_s+V_b)/2$. Nous donnons à la fois la vitesse en mm/ps et l'inverse de la vitesse en ps/mm car cette grandeur permet de connaître l'échelle temporelle sur l'écran de visualisation de la trace. On observe que, comme évoqué précédemment, la vitesse croît avec la tension et atteint pour une tension moyenne de 1,6 kV une valeur de 0,22±0,02 mm/ps soit 4,6±0,5 ps/mm. Cette valeur est de l'ordre de grandeur de la vitesse obtenue avec le système de synchronisation utilisé en monocoup c'est-à-dire 4,8 ps/mm.

b-2) Détermination du jitter

Pour déterminer le jitter, nous avons effectué plusieurs fois le même tir à des intervalles rapprochés d'une minute environ. Cette cadence assez lente est imposée par la faiblesse du signal 3^o sur la cathode de la streak lorsque l'on utilise une fréquence de tirs plus élevée. Cela implique en effet que l'on cesse d'utiliser un amplificateur de la chaîne laser fonctionnant à une fréquence d'une minute ce qui diminue l'énergie de l'impulsion. La variation de la position de la trace sur la caméra streak nous indique la variation de l'instant d'arrivée du signal et donc le jitter du système (cf. figure 10). Cette mesure a été effectuée pour différentes énergies comprises entre 60 et 480 µJ en insérant des densités avant les photoconducteurs.



Axe spatial

Figure 10 : Détermination du jitter. Les instants t_1 et t_2 indiquent les instants d'arrivée du signal.

Sur la figure 11 est présenté l'ensemble des instants d'arrivée en fonction de l'énergie incidente sur les photoconducteurs. Le nombre d'acquisitions effectuées pour une même énergie n'est pas suffisant pour effectuer des calculs statistiques rigoureux. On peut cependant déduire de ce graphique, qu'avec une fluctuation de 10 à 25 %, on obtient un jitter généralement légèrement inférieur à 4 ps avec un minimum de 3,6 ps à 60 µJ. Cela correspond à un gain important par rapport au schéma utilisant un générateur de rampe où comme nous l'avons évoqué, l'on obtenait un jitter de 10 ps. Ce jitter demeure cependant élevé en regard des valeurs obtenues sur des systèmes similaires à celui de notre laser. Une des causes provient de la durée s'écoulant entre les tirs. Les séries sont ainsi effectuées sur des intervalles de temps de plus de 15 mn. Les mesures de jitter se font habituellement à haute cadence sur quelques centaines de tirs. Ainsi à 10 Hz, une mesure sur 300 tirs s'effectue en fait sur une durée de 30 s. Il est à noter que le laser a été réoptimisé entre les séries de mesures effectuées à 150 et 250 µJ. Cela explique la discontinuité de mesures d'instants d'arrivée entre ces deux énergies.



Figure 11 : Instant d'arrivée du signal en fonction de E_{2a}.

Conclusion

Cette expérience nous a permis d'avoir une première approche de l'utilisation de la caméra streak. Nous avons également montré que la vitesse obtenue avec le système créé par FASTLITE est à peine plus grande qu'avec le schéma utilisant un switch d'Auston et un générateur de rampe. Nous avons d'autre part déterminé un jitter qui est meilleur avec le système FASTLITE puisqu'elle est de 3,6 à 4 ps au lieu de 10 ps. On peut donc dire que l'utilisation de ce système, pour des expériences d'accumulations, est intéressante lorsque la résolution temporelle exigée est importante.

Références de l'annexe

- [1] C. Y. Coté, J. C. Kieffer, and O. Peyrusse, Picosecond time-resolved spectroscopy of a controlled preformed plasma heated by an intense subpicosecond laser pulse, Phys. Rev. E 56, 992–1000 (1997).
- [2] C. Chenais-Popovics, P. Audebert, V. Nagels, J.-P. Geindre, J. –C. Gauthier, S. Gary, F. Girard, F. Dorchies, R. Shepherd, O. Peyrusse. Measurement of the time X-ray emission of different elements irradiated by a subpicosecond high power laser. SPIE 4-6 August 2003, San Diego, California USA.
- [3] T. Nishikawa, H. Nakano, N. Uesugi, M. Nakao, K. Nishio and H. Masuda. X-ray generation from femtoseconde-laser–produced plasma on nanostructure-array targets. J. Phys. IV France 11, 425-428 (2001)
- [4] J.-C. Kieffer, M. Chaker, J.-P. Matte, H. Pépin, C. Y. Côté, Y. Beaudoin, T. W. Johnston, C. Y. Chien, S. Coe, G. Mourou and O. Peyrusse, Ultrafast x-ray sources, Phys. Fluids B, 5, p 2676-2681 (1993).
- [5] G. Mourou and W. Knox. A picosecond jitter streak camera. Applied Physics Letters --April 15, 1980 - Volume 36, Issue 8, pp. 623-626.
- [6] A. Maksimchuk, M. Kim, J. Workman, G. Korn, J. Squier, D. Du, D. Umstadter, and G. Mourou, M. Bouvier. Signal averaging x-ray streak camera with picosecond jitter. Rev. of Scient. Instr. Vol. 67, Issue 3, pp. 697-699 .(1996)

Appendice : New target for high-intensity laser-matter interaction : Gravitational flow of micrometersized powders

New target for high-intensity laser-matter interaction: Gravitational flow of micrometer-sized powders

M. Servol, F. Quéré, M. Bougeard, P. Monot, and Ph. Martin

DSM-DRECAM-Service des Photons, Atomes et Molécules, CEA Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

A. Ya Faenov and T. A. Pikuz

Multicharged Ions Spectra Data Center of VNIIFTRI, Mendeleevo, Moscow Region 141570, Russia

P. Audebert

LULI (CNRS), Ecole Polytechnique, 91 128 Palaiseau cedex, France

M. Francucci and G. Petrocelli

Dipartimento di Scienze e Tecnologie Fisiche ed Energetiche, Universit di Roma "Tor Vergata," Via di Tor Vergata n. 110, I-00133 Rome, Italy

(Received 22 March 2005; accepted 6 June 2005; published online 21 July 2005)

The design of efficient targets for high-intensity laser-matter interaction is essential to fully exploit the advantages of laser-induced photons or particles sources. We present an advantageous kind of target, consisting in a free gravitational flow of micrometer-sized powder, and describe its main technical characteristics. We demonstrate a laser-induced keV x-ray source using this target, and show that the photon flux obtained for the $K\alpha$ line of Si by irradiating different silica powders is comparable to the one obtained with a bulk silica target. © 2005 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1988288]

I. INTRODUCTION

The interaction of intense laser pulses with matter leads to the generation of bunches of energetic particles and photons from the ultraviolet (uv) to the x-ray range. The intense research activity dedicated to these processes has a twofold motivation. First, the generation process generally involves a complex nonlinear dynamics of the target under the action of the intense field, and is thus of interest for fundamental physics. Second, due to their unique properties, e.g., in terms of compactness, or of temporal characteristics, these particle or photon beams have a great potential for a number of research or industrial applications. As an example, the ultrashort x-ray pulses generated by irradiating solid targets with intense femtosecond (fs) laser pulses have already allowed the first time-resolved x-ray diffraction experiments with fs temporal resolution,¹ and are also of great interest for high-contrast medical x-ray imaging.²

To exploit the potential of these laser-induced sources, an important technical issue is to design efficient targets, e.g., providing good conversion efficiencies, being simple, and working at high repetition rates (see, e.g., Refs. 3–5). We present the main characteristics of a promising new kind of target, consisting in a gravitational flow of a micrometersized powder. We show that it has a number of technical advantages for intense laser-matter interaction, and demonstrate its use as an x-ray source by measuring the x-ray emission in the keV range of different silica powders irradiated by intense femtosecond laser pulses.

II. TARGET DESIGN

The very simple target design is presented in Fig. 1, and is similar to a large hourglass. The powder is initially contained in the upper hopper. When the quarter-turn valve is opened, the powder flows down continuously by gravity, and reaches a conical funnel, where it escapes through an outlet hole located at the tip. A cylindrical flow of powder is thus obtained below the funnel, which can be stopped at any time by rotating the quarter-turn valve. This powder is then collected in a lower hopper, identical to and exchangeable with the upper one. All the powder that has not interacted with the laser beam can thus be used again. The whole setup is placed in a primary vacuum chamber, where the pressure typically is a few 10^{-2} mbar.

The powders we have used were dielectric powders of silica and alumina, with grain sizes typically ranging from 10 to a few 100 μ m [e.g., Figs. 1(a)–1(c)]. These powders are available commercially with a great variety of grain morphology: regular beads [Fig. 1(a)], hollow spheres [Fig. 1(b)] with walls of a few microns thickness, irregular grains [Fig. 1(c)]. We have also used different phases of these dielectric materials, such as silica aerogels.

The most critical parameters to get a stable flow are the angle α of the conical funnel [Fig. 1(d)], and the diameter of the outlet hole. As a rule, α should be between the angle of repose of the powder and its maximum angle of stability.⁶ For the dielectric powders that we used, we found that α should be between 30° and 45°, the exact optimal interval being specific to each powder. The diameter of the hole obviously greatly depends on the powder granulometry. It should be minimized to get the smallest possible mass flowing rate, and thus the largest lifetime of the target. More generally, the characteristics of the flow obtained with this setup depend to a large extent on the powder that is used. A general requirement is that the grain size should be larger



FIG. 1. (a)–(c) Different kinds of dielectric powders used as a target, (a) silica beads (average diameter $\phi \approx 35 \ \mu m$), (b) alumina hollow spheres ($\phi \approx 250 \ \mu m$), (c) alumina irregular grains ($\phi \approx 90 \ \mu m$). (d) Sketch of the experimental setup for the interaction of a laser beam with a gravitational flow of micrometer-sized powder.

than $\approx 10 \ \mu$ m. Below this critical size, it is extremely difficult to make the powder flow at all, as the funnel immediately gets clogged up. On the opposite, for larger grain sizes, powders giving stable flows can easily be found.

III. TARGET PROPERTIES

As an example, we will hereafter describe the case of a powder of silica beads of 35 μ m average diameter [Fig. 1(a)], which flow characteristics are particularly well suited to laser-matter interaction experiments. For this particular powder, we used an outlet hole of 0.9 mm, with an angle α of 40°. A picture of the flow obtained with this powder is shown in Fig. 2(a). It qualitatively shows that this flow has a regular cylindrical shape, with quite sharp edges, and presents a high density of grains. Besides, the divergence of the flow is weak. A slight convergence is even observed over a few centimeters below the outlet hole, that is probably induced by the conical shape of the funnel. We note that in our setup, the vacuum chamber had to be pumped for a few tens of minutes before this kind of flow could be obtained.



FIG. 2. (a) Picture of the flow obtained with a powder of silica beads of 35 μ m average diameter. (b) Average value and standard deviation of the hard radiation signal emitted under irradiation by an intense fs laser beam, as a function of the lateral position (i.e., \perp to the flow direction) of the beam focus.



FIG. 3. Speed of the flow as a function of the distance from the outlet hole. The solid curve shows the theoretical function for a free gravitational flow, $v(h) = \sqrt{v_0^2 + 2gh} (v_0 \approx 5 \text{ cm/s}).$

Before that, a strongly diverging flow is observed, due to the residual gas trapped into the powder stored in the upper hopper.

For a more quantitative determination of the flow properties, we have measured the hard-radiation signal obtained by irradiating this flow with intense ultrashort laser pulses (see Sec. IV) focused in a 15 μ m focal spot, 0.5 cm below the funnel outlet hole. This signal was measured using an x-ray diode (UDT XUV-100), placed behind a 7 μ m Be filter to eliminate photons below 500 eV. Figure 2(b) shows the average of this signal and its standard deviation over 300 laser shots, as a function of the lateral position of the laser beam. The average signal curve is a super-Gaussian function of order 5.5, with a diameter of about 0.9 mm, i.e., the diameter of the funnel outlet hole. This confirms that the flow has sharp edges, as well as a low divergence. The standard deviation curve is also almost top-hat, with a slightly larger diameter probably due to fluctuations in the flow diameter (see Sec. IV). It corresponds to about 65% of the average signal in the central part of the flow. These strong signal fluctuations are unavoidably associated to the granular structure of the target, and were observed on all powders that we used.

We have measured the flowing speed at different distances from the outlet hole by comparing the positions of individual grains in the flow on two images, taken with two triggered cameras delayed by a time $\tau=1$ ms, with an exposure time of 0.1 ms. The results are displayed on Fig. 3, and are in good agreement with the theoretical curve for a free gravitational flow, $v(h) = \sqrt{v_0^2 + 2gh}$, with g=981 cm/s² the acceleration of gravity and v_0 the initial speed at the outlet hole. The flowing speed was found to be of the order of few tens of cm/s within 1 cm from the outlet hole, independently of the powder used. Besides, this speed does not depend on the amount of powder remaining in the upper hopper, a wellknown property of powder flows, which used to be commonly exploited to measure time using hourglasses.⁶

The mass flowing rate for this particular powder was measured to be 375 g/h, which corresponds to a volume of powder in the upper tank of about 250 cm³/h. Knowing this rate, as well as the flowing speed, the flow diameter, and the average grain mass, the average distance *d* between the centers of the grains is found to be of the order of the particle diameter at a few mm from the outlet hole. This confirms the

Downloaded 14 Dec 2005 to 192.77.52.134. Redistribution subject to AIP license or copyright, see http://rsi.aip.org/rsi/copyright.jsp



FIG. 4. Typical x-ray spectra emitted by the Si ions when irradiating a flow of 35 μ m silica beads with 50 fs laser pulses of 8.5 kJ/cm² fluence in three spectral ranges. Note that the vertical scales of the three graphs are not related. Panel (c) shows the spectra obtained for two different temporal contrasts of the laser, all other conditions being kept identical. The spectra corresponding to the lower value of the contrast are not shown in (a) and (b), because in this case no line was observed in these spectral ranges.

high density of grains in the flow. As a result, we observed that when a high-intensity pulsed laser beam was focused and properly centered on the flow, a large majority of the laser shots were completely blocked by the powder.

IV. DEMONSTRATION OF A LASER-INDUCED X-RAY SOURCE USING A POWDER FLOW: SELECTED EXPERIMENTAL RESULTS

We now demonstrate a laser-induced x-ray source based on this target. Using the setup of Fig. 1, we have irradiated different powders with ultrashort pulses from a 20 Hz 800 nm Ti-Sa laser (LUCA laser, SLIC facility at CEA Saclay), and measured the spectrum of the emitted x rays in the range $\lambda = 5.3$ to 7.2 Å using three different highresolution spherically bent-crystal x-ray spectrometers.^{7,8} For detection, we used either x-ray sensitive films or a calibrated cooled CCD camera. The maximum laser energy was 40 mJ, and the duration could be varied from 50 fs to about 1.2 ps by varying the distance between the gratings in the compressor. The diameter of the laser beam focus was 15 μ m [fullwidth at half-maximum (FWHM) of intensity], so that the maximum peak intensity was $\approx 10^{17}$ W/cm². Besides, each laser pulse most likely interacts with one to two grains in the flow. The temporal contrast of the laser, measured with a high-dynamics third-order cross correlator, was 3×10^6 on the ns time scale, and went from $\approx 10^6$ to $\approx 10^4$ in the 10 ps preceding the main pulse. It could be decreased by changing the injection conditions in the first amplifier.

Typical x-ray spectra are shown in Fig. 4 for a 50 fs laser pulse at a fluence of 8.5 kJ/cm^2 . The line observed in Fig. 4(a) corresponds to the $1s3p \rightarrow 1s^2$ transition of He-like silicon ions (He β). The main line of Fig. 4(b) corresponds to the $2p \rightarrow 1s$ transition of H-like ions (Ly α), and the different lines in Fig. 4(c) to the same transition for the different ionic states of silicon, from Si¹²⁺ (He-like ion, $1s2p \rightarrow 1s^2$, He α) at short wavelength to Si⁺-Si⁺⁵ (the so-called cold $K\alpha$ line) at the longer wavelengths. Using the powder flow target, we were able to measure these spectra as a function of the main laser parameters, i.e., pulse duration, energy, and temporal contrast, for different kinds of powders. These spectral data are currently under analysis. Qualitatively, the most energetic lines, corresponding to the highest charge states (H-like to Li-like), will provide information on the warmer part of the plasma, where the laser energy has been directly deposited, while the less energetic lines carry information on the colder part of the target, heated by electronic heat conduction or excited by suprathermal electrons.⁹

In Fig. 4(c), the spectrum obtained with a worse temporal contrast is also shown. When the contrast is decreased by about one order of magnitude, all the spectral lines get drawn into the background, except for the cold $K\alpha$ line. The signal corresponding to this line is also strongly reduced compared to the higher contrast measurement, by a factor of 8.

One possible interpretation is the following. The lower the contrast, the longer the density gradient with which the main laser pulse interacts. As a result, for the worst contrast case, the warmer part of the plasma, where the ions of high and intermediate charges are located, has a weaker x-ray emission due to its lower average density. This explains why the lines corresponding to these ionic states disappear. Besides, the lower the contrast, the lower the *average* density at which the laser energy is deposited. A lower density leads to less suprathermal electrons, and thus a weaker cold $K\alpha$ emission.

Using the calibrated CCD camera, we have measured the evolution of the cold $K\alpha$ signal, expressed in photons/shot in 2π steradians (assuming an isotropic x-ray emission), with the energy and duration of the laser pulses. The results are displayed in Fig. 5 for the silica beads and silica aerogel powders. This signal was found to depend only on the pulse fluence *F* and to be almost independent of the pulse duration between 50 fs and 1.2 ps. Besides, it varies as $F^{1.5}$ over the fluence range that we considered. Further modeling will be required to understand these results, especially the remarkable independence on pulse duration.

For comparison, the same plot shows two points obtained in the same conditions on a bulk solid target of silica, for normal incidence and at a 45° incidence angle in *p* polarization. The number of $K\alpha$ photons obtained with the aerogel powder is comparable to the one obtained with the bulk target at 45° incidence. This new target thus competes with the most efficient targets demonstrated to date. We emphasize that in all cases (solid target as well as powders), the spectrometer was located at $\approx 80^{\circ}$ from the laser beam. For a more complete comparison of the two sources, geometrical



FIG. 5. (Color online) Dependence of the Si- $K\alpha$ signal in 2π steradians on the fluence and duration of the laser pulse for two silica powders. The signal obtained in the same conditions on a bulk silica target is shown for two incidence angles.

effects should be taken into account. This would require measuring the full angular distribution of the x-ray emission for both targets, which was not possible during this experiment.

Last, we have measured the spatial profile of the spectrally integrated x-ray emission, using a 15 μ m pinhole with a 0.5 magnification factor, placed at $\approx 90^{\circ}$ from the laser beam axis. A typical image obtained after 20 mn of accumulation with the silica beads powder is shown in Fig. 6. The FWHM of the signal is about 300 μ m in the direction of the laser beam, and 100 μ m in the transverse direction. Considering the high density of the flow and its rather sharp edges (see Sec. III), this quite large longitudinal dimension was unexpected. We attribute it to fluctuations of the flow diameter, which amplitude for this particular powder was measured to be of the order of 200 μ m by observing the temporal evolution of the flow with a CCD camera.

V. DISCUSSION

Considering all the characteristics presented in Secs. III and IV, such a powder flow appears as an advantageous target for the generation of energetic photons or particles through high-intensity laser-matter interaction. Being composed of solid microparticles, it has a high local density, which will favor an efficient absorption of the laser energy. The high grain densities obtained with some powders also contributes to an efficient overall coupling with the laser beam, and is an important advantage compared to other tar-



FIG. 6. (Color online) Image of the emission zone in the x-ray range obtained on a flow of silica beads, measured with a pinhole.

gets such as rare-gas clusters jets. This good coupling is confirmed by the x-ray photon flux obtained with this source, which is comparable to the one obtained on a bulk solid target. The absence of any gaseous atmosphere surrounding the flow also guarantees that the laser beam is not distorted before the interaction, and that no reabsorption of the emitted radiation-especially uv or x-ray photons-occurs. This target is also much more versatile than targets using liquids, gases or solid wires or tapes, since most chemical elements can be obtained in powder form. From a technical point of view, it relies on a very simple and robust setup, which, in particular, does not require any powerful pumping system. From a practical point of view, our experiment on x-ray generation showed that it is very convenient to use. We note however that two properties of this source can be prejudicial for some applications, the size of the hard-radiation emission zone, which is larger than 100 μ m in at least one direction (Sec. IV), as well as the quite large fluctuations of the signal (Sec. III).

This target also has advantages compared to bulk solid targets. Indeed, due to the limited mass flowing rate, it can easily be used without interruption for several tens of hours, whereas the lifetime of bulk solid targets is limited at high repetition rates. The maximum repetition rate achievable with the powder flow target partly depends on the flow speed v. For instance, if the laser focal spot is of the order of, or smaller than, the grain diameter ϕ , the repetition rate should not exceed $\approx v/\phi$ if the interaction is to take place with a different grain at each laser shot. This leads to repetition rates as high as ≈ 5 kHz for $\phi \approx 30 \ \mu$ m.

However, we have carried out experiments at variable repetition rates up to 1 kHz, which show that it is preferable to keep this rate below 100 Hz. Above this limit, the powder flow starts to be very significantly distorted by the laser beam for high laser intensities, thus leading to degraded spatial properties and reduced x-ray photon flux above this repetition rate. This might be due to the production of energetic fragments when a grain is exposed to a laser pulse. These fragments can then strike and expel from the flow a large number of the low-kinetic-energy $(1/2mv^2 \approx 1 \text{pJ})$ surrounding grains, thus leading to a cloud of powder around the interaction zone when the repetition rate gets too high, instead of a dense and regular cylindrical flow.

As a conclusion, we proposed a new kind of target for the generation of energetic photons or particles through highintensity laser-matter interaction, which consists of a gravitational flow of micrometer-sized powder. Beyond its technical interest, this device will allow to study the coupling of intense lasers with a large variety of new targets. Studies of laser-induced x-ray emission have demonstrated that the coupling mechanisms can be very different, whether the target consists of a bulk solid target,¹⁰ or of near-solid-density submicrometer clusters.^{11,12} Using micrometer-sized powders will allow to explore an intermediate size regime between these two targets. New physical effects, such as local amplification of the laser field due to the specific shape of the powder grains, can be expected.

Downloaded 14 Dec 2005 to 192.77.52.134. Redistribution subject to AIP license or copyright, see http://rsi.aip.org/rsi/copyright.jsp

ACKNOWLEDGMENTS

C.Bonté, F.Blasco, and F.Dorchies from CELIA (Bordeaux, France), are gratefully acknowledged for their contribution to the experiments at high repetition rates. The authors acknowledge the support of the European Community Access to Research Infrastructure action of the Improving Human Potential Programme (Contract No. HPRI-CT-2002-00191).

²A. Sjogren, M. Harbst, C. Wahlstrom, and S. Svanberg, Rev. Sci. Instrum. **74**, 2300 (2003).

- ³M. Berglund, L. Rymell, H. Hertz, and T. Wilhein, Rev. Sci. Instrum. **69**, 2361 (1998).
- ⁴T. Guo, Ch. Spielmann, B. Walker, and C. Barty, Rev. Sci. Instrum. 72, 41 (2001).
- ⁵J. Larsson and A. Sjogren, Rev. Sci. Instrum. **70**, 2253 (1999).
- ⁶H. Jaeger and S. Nagel, Science **225**, 1523 (1992).
- ⁷A. Ya. Faenov *et al.*, Phys. Scr. **50**, 333 (1994).
- ⁸ T. Pikuz et al., J. X-Ray Sci. Technol. 5, 323 (1995).
- ⁹A. Rousse *et al.*, Phys. Rev. E **50**, 2200 (1994).
- ¹⁰S. Bastiani et al., Phys. Rev. E 56, 7179 (1997).
- ¹¹T. Ditmire, T. Donnelly, R. Falcone, and M. D. Perry, Phys. Rev. Lett. **75**, 3122 (1995).
- ¹²T. Ditmire, T. Donnelly, A. Rubenchik, R. Falcone, and M. Perry, Phys. Rev. A **53**, 3379 (1996).

¹A. Rousse, Rev. Mod. Phys. **73**, 17 (2001).