Etudes théorique et expérimentale des plasmas produits par laser en vue de leur application à l'analyse chimique des matériaux en environnement complexe.

Guillaume Clair

▶ **To cite this version:**

Guillaume Clair. Etudes théorique et expérimentale des plasmas produits par laser en vue de leur application à l'analyse chimique des matériaux en environnement complexe.. Modélisation et simulation. Université de la Méditerranée - Aix-Marseille II, 2011. Français. NNT : . tel-00925927

HAL Id: tel-00925927

https://theses.hal.science/tel-00925927

Submitted on 9 Jan 2014

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.

Université d'Aix-Marseille II - Campus de Luminy
Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives

Thèse

présentée en vue d'obtenir le grade de Docteur, spécialité « Physique, Chimie, Sciences de la matière et nanosciences »

par

Guillaume CLAIR

Etudes théorique et expérimentale des plasmas produits par laser en vue de leur application à l'analyse chimique des matériaux en environnement complexe.

Thèse soutenue le 4 Avril 2011 devant le jury composé de :

M.Bruno Després	Professeur, Laboratoire Jacques-Louis Lions	(Rapporteur)
M.Guillaume Petite	Vice-Président du département de physique, Ecole Polytechnique	(Rapporteur)
M.Jörg Hermann	Directeur de Recherches, LP3 Marseille	(Directeur de thèse)
M.Daniel L'Hermite	Ingénieur de Recherches, CEA Saclay	(Examinateur)
M.Ludovic Hallo	Ingénieur de Recherches CEA, Université Bordeaux 1	(Examinateur)
M$^{me.}$ Tatiana Itina	Directrice de Recherches, Laboratoire Hubert Curien	(Examinatrice)
M$^{me.}$ Annemie Bogaerts	Directrice de Recherches, Groupe de Recherche PLASMANT, Université d'Anvers	(Invitée)

. . .

Remerciements

La date de soutenance est enfin fixée. Les premières corrections arrivent déjà. Et me voilà (presque) à la fin de ma thèse, à régler les derniers petits détails. Mais il me reste une chose importante à faire : remercier toutes les personnes qui m'ont épaulé et sur qui j'ai pu compter tout au long de mon projet de recherche.

Mes premiers remerciements sont adressés à Laurent Salmon, notre ancien directeur de Laboratoire, et maintenant Nadège Caron, pour m'avoir accueilli au sein du Laboratoire de Réactivité des Surfaces et Interfaces au CEA Saclay. J'aimerais également remercier Patrick Mauchien de m'avoir accueilli au sein du Service Chimie-Physique. J'aimerais également adresser tous mes remerciements à Marc Sentis, directeur du LP3 à Marseille, qui m'a également souvent accueilli comme membre à part entière de son laboratoire.

Je souhaite remercier les rapporteurs de cette thèse M. Bruno Després et M. Guillaume Petite pour leur relecture approfondie, leurs corrections et l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. J'adresse également mes remerciements à Mme Tatiana Itina, à M. Ludovic Hallo d'avoir accepté d'examiner ma thèse. Un remerciement spécial est adressé à Mme Anemie Bogaerts, du centre de recherches PLASMANT à l'université d'Anvers, pour avoir assisté à ma soutenance et participé à mon jury.

Je tiens à remercier chaleureusement M. Jörg Hermann, directeur de ma thèse, pour sa disponibilité et toutes ses remarques constructives sur mon travail. Nos discussions ont toujours été fructueuses, bien qu'elles ont été maintes fois mouvementées !!! Mais si j'ai réussi à rédiger ce manuscrit et à soutenir brillamment ma thèse, c'est en partie grâce à lui.

Je n'oublierai pas de remercier M. Daniel L'Hermite, qui a encadré ce travail. Ah mon cher Daniel, je dois te remercier pour m'avoir supporté pendant toutes ces années. Etre en première ligne, je me rends bien compte que ça ne devait pas être évident tous les jours. Les couloirs doivent sembler bien calmes, maintenant que je ne suis plus là. Mais je suis tout de même ravi d'avoir laissé mon empreinte, et maintenant, c'est Cécile qui va prendre...

Je tiens à remercier tout particulièrement toutes avec qui j'ai pu travailler (et avoir d'innombrables discussions) au cours de ces trois années et spécialement M. Jean-Marc Weulersse, M. Alex Chenière, Mme Nadine Coulon, M. Jean-Louis Flèche, ainsi que Mme Catherine Gallou. Je remercie également cette dernière pour la relecture de mon manuscrit et les corrections qu'elle m'a proposées. Plus généralement, je tiens à remercier l'ensemble des personnes des laboratoires LRSI et LILM.

Je n'oublierai jamais tous les amis que j'ai pu rencontrer lors de ma thèse. Ah ma Cécile, une grande amitié indéfectible est née entre nous. Tu m'as épaulé dans des moments très difficiles, tu m'as vu changer du tout au tout, mais tu es restée mon amie, et pour cela, je te suis redevable à vie. Merci Romain, de ne pas avoir craqué pendant notre période de cohabitation. Avec du recul, je me demande comment tu as pu rester aussi flegmatique et aussi calme à la fin de ta thèse. Merci Grand Guigui, de ne pas m'avoir fait craqué à la fin de ma thèse, mais je suppose que notre période de cohabitation était la punition que je méritais pour avoir embêté Romain. Mais sérieusement, tu m'as également soutenu à tout moment, et je t'en suis reconnaissant. José, c'est maintenant bientôt ton tour de soutenir ta thèse. J'espère pouvoir être présent mais, dans tous les cas, je ne doute pas de ta réussite. Merci JB ("Quatre bonnes balles font un jeu blanc"), Pascale ("Je crois que je vais soutenir dans 4 mois... ou pas"), Céline ("J'ai mangé une pomme, qui avait le goût d'une poire"), Yacine, Carole, Christelle, tous les stagiaires, thésards ou Post-Doc que je n'ai pas cités, mais qui ont contribué à ma bonne intégration dans le laboratoire.

Aurélie, Papa, Maman, Manu, vous méritez plus que des remerciements. Vous m'avez soutenu, vous m'avez supporté, vous m'avez redonné l'espoir et l'envie d'avancer. Vous m'avez remonté le moral dans les moments les plus difficiles et vous seuls savez combien cela a été dur parfois. Ma réussite vous est dédiée.

Table des matières

Table des matières **vii**

Liste des figures **ix**

Préface **1**

Liste des Références de l'introduction. **5**

1 Physique de l'interaction laser-matière en régime nanoseconde **7**
1.1 Chauffage d'un matériau sous irradiation laser nanoseconde . . . 9
1.1.1 Modélisation de l'absorption d'une impulsion laser par un métal . . 9
1.1.2 Evaporation de la cible et condensation de la matière ablatée. . . . 10
1.2 Expansion du Plasma . . . 13
1.2.1 Caractérisation de la vapeur : équations de conservation . . . 15
1.2.2 Choix de la loi d'état . . . 16
1.2.3 Diffusion de masse - Viscosité - conduction thermique du plasma . 18
1.2.4 Propagation d'une onde de choc. Théorie de Sedov . . . 19
1.3 Formation du plasma . . . 21
1.3.1 Mécanismes de gain en énergie dans la vapeur . . . 21
a) L'émission thermoélectronique . . . 21
b) L'ionisation multiphotonique . . . 22
c) La photoionisation . . . 23
1.3.2 Claquage par avalanche d'ionisation . . . 24
1.3.3 Phénomènes induisant des pertes énergétiques . . . 26
1.3.4 Processus émissifs dans un plasma . . . 26
a) Transitions libre-libre . . . 26
b) Transitions libre-lié . . . 27
c) Transitions lié-lié . . . 28
1.3.5 Composition du terme source - Equation de Beer-Lambert . . . 29
1.4 Calcul du taux d'ionisation du plasma. . . . 29

Liste des Références du chapitre 1. **33**

2 Description du montage expérimental **37**
2.1 Présentation des contraintes relatives à la conception du montage expérimental . . . 39
2.2 Caractéristiques de la source laser . . . 40
2.2.1 Description de la chambre d'ablation. . . . 42
2.2.2 Montage optique - Mise en forme et transport du faisceau . . . 43

2.2.3 Montage d'imagerie . . . 45
a) Calibration du système optique d'imagerie . . . 46
b) Mesure de la longueur du plasma . . . 46
2.2.4 Montage d'ombroscopie . . . 48
2.2.5 Mesure de la profondeur des cratères par profilométrie . . . 49
2.2.6 Mesure de la transmittivité du plasma. . . . 51
2.3 Caractérisation de nos cibles de cuivre. . . . 53
2.3.1 Composition de l'échantillon. . . . 53
2.3.2 Définition des propriétés thermophysiques de nos cibles de cuivre. . . 54

Liste des Références du chapitre 2. **59**

3 Description du code **61**
3.1 Schéma de volumes finis. . . . 63
3.2 Résolution de l'équation de la chaleur. . . . 64
3.2.1 Discrétisation de l'équation de la chaleur . . . 64
3.2.2 Construction du maillage de résolution . . . 66
3.2.3 Méthode de résolution . . . 66
3.2.4 Conditions initiales - Conditions aux limites . . . 67
3.3 Résolution des équations d'Euler. . . . 68
a) Construction du schéma numérique. . . . 68
b) Choix du maillage. . . . 71
c) Conditions aux limites. . . . 71
3.4 Gestion de l'évaporation et de la condensation . . . 73
3.4.1 Cas d'une ablation . . . 73
a) Phase de projection . . . 73
b) Coupure de mailles à l'interface . . . 74
3.4.2 Cas d'une condensation. . . . 75
3.4.3 Présentation des résultats . . . 76
3.5 Résolution des équations de Saha . . . 78

Liste des Références du chapitre 3. **81**

4 Présentation des résultats **83**
4.1 Etude de la dynamique de la phase gazeuse . . . 85
4.1.1 Imagerie du plasma . . . 85
4.1.2 Ombroscopie - Etude de la dynamique de l'onde de choc . . . 88
a) Modélisation de l'onde de choc . . . 89
b) Comparaison entre les résultats d'imagerie et d'ombroscopie . . . 91
4.1.3 Comparaison avec les résultats du modèle . . . 93
4.2 Etude des cratères d'ablation . . . 97
4.2.1 Forme des cratères . . . 97
4.2.2 Profondeur ablatée par impulsion . . . 98
4.2.3 Etude de la condensation . . . 101
4.2.4 Seuil d'ablation . . . 104
a) Régime de structuration de surface et ablation - 1.5 $\lesssim$ F $\lesssim$ 7.5 J.cm^{-2} . . . 105
b) Régime d'ablation - F $>$ 7.5 J.cm^{-2} . . . 108
c) Comparaison avec les résultats numériques . . . 109
4.3 Etude du seuil d'observation du plasma - Ecrantage plasma 113

4.3.1 Détermination du seuil d'observation du plasma 113
4.3.2 Etude de l'écrantage plasma 115
a) Mise en évidence pour F = 10.5 J.cm^{-2} 116
b) Etude spatiale de l'écrantage plasma 119
c) Etude du seuil d'écrantage plasma 124
4.3.3 Résumé des résultats 127

Liste des Références du chapitre 4. **129**

5 Un exemple d'application. Etude de l'influence du gaz ambiant. **131**
5.1 Equivalence masse - pression du gaz ambiant 133
5.2 Influence du gaz pendant l'impulsion laser 137
5.2.1 Influence du gaz ambiant sur l'écrantage du faisceau laser 138
5.2.2 Influence sur les seuils d'apparition des phénomènes 141
a) Effet du gaz ambiant sur le seuil d'ablation 141
b) Effet du gaz ambiant sur le seuil d'apparition du plasma 142
c) Effet du gaz ambiant sur le seuil d'écrantage 144
5.3 Influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'ablation 146
5.4 Effet de freinage induit par le gaz ambiant 147
5.4.1 Effet de freinage sur la propagation de l'onde de choc 148
5.4.2 Effet du gaz ambiant sur l'expansion du plasma 150
5.4.3 Effet du gaz ambiant sur la propagation de la vapeur 151

Conclusion générale **153**

Liste des références de la conclusion. **157**

Liste des figures

1.1 Modélisation de l'évaporation dans le cas d'une impulsion de largeur τ = 150 ps et d'une fluence de 61 J.cm^{-2}. Résultats obtenus à t = 150 ps et t = 225 ps après le début de l'impulsion (résultat extrait de [4]) 10
1.2 Schéma monodimensionnel simplifié de la couche de Knudsen et représentation des fonctions de distribution de vitesse des particules dans cette couche. 11
1.3 Représentation des fonctions y et Υ et fonction du terme $\ln(T_K/T_s)$. 14
1.4 Comparaison entre les équations d'état du gaz parfait (en points) et du gaz réel (en traits pleins) pour différentes températures. 17
1.5 Section efficace de transfert de quantité de mouvement lors d'une collision électron-atome de cuivre. L'image est tirée de [47]. 25

2.1 Formes temporelles mesurée et modélisée de l'impulsion laser 40
2.2 Profil spatial d'éclairement du faisceau laser mesuré dans un plan d'onde. 41

2.3 Principe de travail en monotir. 42
2.4 Photographie de la chambre d'ablation. 43
2.5 Schéma du montage expérimental. 44
2.6 Conditions de focalisation du faisceau : (a) sans système afocal, (b) avec système afocal. 44
2.7 Rôle du système afocal dans le montage optique. 44
2.8 Schéma du montage d'imagerie. 45
2.9 Repérage de la surface de la cible par ombroscopie. (a) mesure par un hublot latéral. (b) schéma avec une vue de dessus. 46
2.10 Méthode de calcul du front de plasma. 47
2.11 Montage d'ombroscopie. 48
2.12 Procédure de calcul de la position de l'onde de choc. Image acquise à t = 200 ns (Δt = 10 ns). 49
2.13 Schéma de principe de la mesure par profilométrie mécanique. 50
2.14 Mesure d'un profil de cratère. 600 tirs laser ont été appliqués sur la cible. 50
2.15 Erreur de mesure induite par la géométrie de la pointe 51
2.16 Mesure de l'atténuation du faisceau. 52
2.17 Influence du diamètre du trou sur la mesure de transmittivité. (a) grand diamètre (b) petit diamètre. 53
2.18 Variation du coefficient de réflexion de plusieurs matériaux en fonction de l'énergie laser incidente ; (I) Teflon, (II) Aluminium, (III) étain, (IV) cuivre, (V) ebonite, (VI) carbone. (image extraite de [7]) 56
2.19 Schéma du montage de mesure de la réflectivité à 10°. 56
2.20 Mesure de la réflectivité diffuse par sphère intégrante. 57

3.1 Profils de température dans la cible calculées à différents temps pour une énergie d'impulsion 150 mJ, et l'argon à 1 bar comme gaz ambiant. 67
3.2 Procédure itérative pour le calcul de la température de surface et des propriétés de l'écoulement en sortie de couche de Knudsen. Les expressions en rouge revoient aux labels des formules de ce manuscrit. ϵ est la précision du calcul (dans tous nos cas, $\epsilon = 10^{-3}$) 72
3.3 Illustration de la phase de projection au cours d'un pas de temps dans la phase d'évaporation. Les numéros entiers représentent les numéros de cellules, les demi-entiers les interfaces. 73
3.4 Résultats numériques obtenus pour l'énergie, la vitesse, la masse volumique et la pression. 77
3.5 Oscillations sur la valeur calculée du nombre de Mach résultant de la procédure de coupure de maille. 77
3.6 Résultats numériques obtenus pour les fractions d'atomes, d'ions une fois et deux fois ionisés à différents temps. 79
3.7 Résultats obtenus pour la température du plasma à différents temps. 80

4.1 Images du plasma réalisés dans l'argon à 1 bar à différents temps (t $\leqslant$ 100 ns). La porte d'acquisition est 10 ns et la densité optique est 2 pour toutes les images 86
4.2 Evolution du diamètre moyen du plasma en fonction du temps. . . . 87
4.3 Evolution de la longueur du plasma en fonction du temps. 87
4.4 Intensité moyenne du plasma en fonction de la distance à la cible . . 88

4.5 Images de la matière dense réalisés dans l'argon à 1 bar à différents temps (t ⩽ 100 ns). La porte d'acquisition est 10 ns, la densité optique utilisée est 1,6. 89
4.6 Modélisation de la dynamique de l'onde de choc. Les cercles blancs représentent les mesures expérimentales. 90
4.7 Comparaison entre la longueur du plasma et la position de l'onde de choc au cours du temps 91
4.8 Comparaison entre la longueur du plasma et la position de l'onde de choc au cours du temps 92
4.9 Structure du plasma jusqu'à t = 275 ns 92
4.10 Détermination de la longueur du plasma à partir de la densité électronique. Résultat de calcul à t = 1.5 ns 94
4.11 Comparaison expériences-modélisation entre l'imagerie de plasma et l'ombroscopie dans l'argon à 1 bar 94
4.12 Répartition spatiale de l'émissivite du plasma à t = 100 ns 95
4.13 Comparaison entre l'évolution de la position de l'onde de choc donnée par le modèle numérique et celle donnée par le modèle de Sedov . . . 96
4.14 Image d'un cratère réalisé avec 1000 tirs (Fluence de l'impulsion 11.4 J.cm^{-2}) dans l'argon à 1 bar 97
4.15 Profil du cratère présenté en figure 4.14 - Schéma d'un cratère 'réel' . 98
4.16 Evolution de la profondeur ablatée en fonction du nombre d'impulsions appliquées. 99
4.17 Evolution de la profondeur ablatée en fonction de la fluence laser (Laser Nd :YAG, 532 nm, 6 ns FWHM). Image extraite de [1]. 100
4.18 Evolution de la profondeur du cratère en fonction du temps pour une impulsion. 100
4.19 Cliché MEB d'un cratère avec présence du dépôt (grand cercle blanc) 101
4.20 Etat de surface de l'échantillon (a) et dans la zone de dépôt (b) . . . 102
4.21 Analyse XPS du dépôt. 102
4.22 Variation de la profondeur mesurée du cratère en fonction de la fluence laser. 105
4.23 Structuration de la surface pour une valeur de la fluence laser égale à : (a) 3 J.cm^{-2}, (b) 5.3 J.cm^{-2}. 106
4.24 Cratères observés par MEB pour une valeur de la fluence laser égale à 5.3 J.cm^{-2} à différents grandissements : (a) ×60 (tilté 28 °), (b) ×100, (c) ×120 (tilté 28°), (d) ×220, (e) ×700 et (g) ×4000. 107
4.25 Mécanisme de formation des microstructures en surface. 108
4.26 Calcul du seuil d'ablation à partir des données expérimentales du régime d'ablation. 109
4.27 Evolution, donnée par le modèle, de la profondeur du cratère en fonction du temps pour différentes fluences laser. 110
4.28 Variation de la profondeur ablatée en fonction de la fluence laser. Comparaison expériences-modélisation. 111
4.29 Variation de la température de surface, donnée par le modèle, pour différentes valeurs de la fluence laser. 112
4.30 Mesure du signal de trois raies atomiques de cuivre en fonction de la fluence laser. 114
4.31 Calcul du signal des raies atomiques de cuivre à 510.5, 515.3 et 521.8 nm en fonction de la fluence laser. 114

4.32 Profils temporels de l'impulsion laser avant (en noir) et après absorption (en rouge) dans le plasma. 116
4.33 Profils temporels *calculés* de l'impulsion laser avant (en noir) et après absorption (en rouge) dans le plasma. 116
4.34 Evolution du coefficient d'absorption et de la densité électronique dans le plasma pendant l'impulsion laser. 118
4.35 Eclairement absorbé, donné par le modèle, en fonction de la position dans le plasma pour t = -1 ns et t = 1.5 ns. 119
4.36 Evolution du coefficient d'absorption en fonction de la position dans le plasma à t = -1 ns et t = 1.5 ns. 120
4.37 Composition du plasma calculée dans la vapeur (a-c) et le gaz ambiant (b-d) à t = -1 ns (a-b) et t = 1.5 ns (c-d) 121
4.38 Comparaison entre le profil temporel de l'impulsion laser, le profil écranté après avoir traversé le gaz choqué (en vert) et le profil écranté après avoir traversé le gaz choqué et la vapeur 122
4.39 Evolution temporelle des positions de l'onde de choc et de l'interface vapeur-gaz ambiant pendant la durée d'impulsion. 123
4.40 Evolution temporelle des densités électroniques moyenne et maximales dans la vapeur pendant la durée d'impulsion. 124
4.41 Distribution temporelle du faisceau pour différentes valeurs de la fluence laser. 125
4.42 Distribution temporelle du faisceau pour différentes valeurs de la fluence laser, donnée par le modèle 125
4.43 Comparaison de la transmittivité mesurée à la transmittivité donnée par le modèle 126

5.1 Comparaison de l'écrantage et des positions des discontinuités dans le plasma. 133
5.2 Comparaison des propriétés du plasma calculées à t = 100 ns 134
5.3 Comparaison de la composition du plasma (atomes, ions une fois ionisés, ions deux fois ionisés et électrons) calculée à t = 100 ns pour les deux cas 136
5.4 Evolution du profil d'éclairement dans les zones choquées pour les conditions expérimentales suivantes : Ar à 1 bar et He à 10 bars. . . 137
5.5 Comparaison des profils écrantés de l'impulsion laser mesurés dans le cas des trois gaz 138
5.6 Comparaison des propriétés du plasma calculées à t = 2.5 ns dans le cas des trois gaz. 139
5.7 Composition du plasma produit sous les trois gaz à t = 2.5 ns pour une fluence laser égale à 9 J.cm^{-2}. Les flèches situent dans chaque cas la position de l'interface vapeur-gaz ambiant. 140
5.8 (a) Répartition spatiale de l'éclairement absorbé à t = 2.5 ns. (b) Profils d'éclairement calculés après l'interaction laser-gaz ambiant choqué. 141
5.9 Evolution de la profondeur ablatée par impulsion en fonction de la fluence laser dans le cas de l'hélium, l'argon et le xénon 142
5.10 Evolution de l'intensité des raies du cuivre et de la densité électronique moyenne du plasma dans le cas de l'hélium 143
5.11 Evolution de l'intensité des raies du cuivre et de la densité électronique moyenne du plasma dans le cas de l'argon 143

5.12 Evolution de l'intensité des raies du cuivre et de la densité électronique moyenne du plasma dans le cas du xénon 144
5.13 Evolution de la transmittivité du plasma en fonction de la fluence laser pour l'hélium, l'argon et le xénon 145
5.14 Evolution, donnée par le modèle, de la transmittivité du plasma en fonction la fluence laser pour l'hélium, l'argon et le xénon 145
5.15 Evolution de la profondeur du cratère donnée par le modèle en fonction du temps pour l'hélium, l'argon et le xénon 146
5.16 Evolution de la profondeur ablatée sous les trois gaz étudiés en fonction du nombre d'impulsions appliquées 147
5.17 Images de l'onde de choc, obtenues par ombroscopie pour un délai de t = 160 ns, pour une ablation réalisée dans (a) l'argon et (b) le xénon 148
5.18 Position de l'onde de choc au cours du temps pour les trois gaz ambiants. Les traits pleins représentent les résultats issus du modèle, et les symboles les mesures par ombroscopie 149
5.19 Images du plasma à deux temps différents pour l'hélium, l'argon et le xénon 150
5.20 Evolution en fonction du temps de la longueur du plasma pour les trois gaz 151
5.21 Evolution de la position de l'interface vapeur-gaz ambiant en fonction du temps pour les trois gaz 152

Introduction

Les premières applications fondées sur l'interaction laser-matière sont apparues en même temps que la conception du premier laser dans les années 1960 [1]. Il a fallu cependant attendre l'avènement de sources laser plus stables, tels que les lasers Nd :YAG dans les années 1970, pour que ces applications connaissent un formidable essor : ces applications concernent aujourd'hui de nombreux domaines, tels que la synthèse de couches minces assisté par laser (PLD) [2, 3], les applications médicales telles que la microchirurgie [4–7], l'usinage [8, 9] et l'analyse physico-chimique des matériaux [10–12]. C'est dans le cadre de cette dernière application que s'inscrit cette étude.

La technique LIBS (acronyme de *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*, ou en français *Spectrométrie d'Emission Optique du Plasma Produit par Laser*) consiste à déterminer la composition chimique d'une cible en focalisant un faisceau laser impulsionnel sur celle-ci, de sorte que la valeur de l'éclairement au niveau du point de focalisation (en général quelques $GW.cm^{-2}$) soit suffisamment élevée pour vaporiser cette cible. Pour une impulsion de l'ordre de la nanoseconde (cas des lasers Nd :YAG), la vapeur formée interagit avec l'impulsion incidente pour créer un plasma, qui émet un rayonnement caractéristique de sa composition. Ce rayonnement est donc analysé par spectrométrie optique afin de déterminer la composition de la cible.

Cette technique possède de nombreux avantages : les matériaux analysés peuvent être de toute nature (matériaux organiques, métaux, isolants) et sous toutes les phases (solide, liquide, gazeux, aérosol). Elle ne nécessite pas de préparation de l'échantillon cible et peut être mise en oeuvre à distance (aucun contact entre cette cible et l'analyseur). Elle est quasi non-destructive, la matière évaporée ne représentant que quelques μm^3. Enfin elle peut être utilisée dans tout type de conditions environnementales, dans le vide ou dans un gaz ambiant à différentes pressions.

L'optimisation du signal servant à l'analyse chimique de la cible dépend de la connaissance de certaines propriétés du plasma, telles que la densité électronique, la température et la quantité de matière ablatée. Ces propriétés sont cependant difficiles à mesurer expérimentalement. De plus, la possibilité d'appliquer la LIBS dans diverses conditions expérimentales implique qu'il existe un grand nombre de paramètres influençant les propriétés du plasma. Divers résultats publiés dans la littérature ont notamment mis en évidence l'influence, sur les propriétés du plasma, de la longueur d'onde [13], de la durée d'impulsion [14], de la composition de la cible [15] et de la nature et de la pression du gaz ambiant [16–18]. L'optimisation du signal LIBS, et ce quelles que soient les conditions expérimentales, nécessite donc d'une part de mieux comprendre les phénomènes physiques régissant l'interaction

laser matière, et d'autre part de connaître et maîtriser l'influence de ces paramètres.

L'une des solutions les plus séduisantes pour atteindre ces deux objectifs est une étude fondée sur le couplage de la modélisation numérique avec les mesures expérimentales. La modélisation donne accès à *toutes* les propriétés du plasma, à différentes positions et différents temps d'expansion. Elle permet ainsi de déterminer le lien entre ces propriétés et le signal émis, et même, pour des schémas numériques plus évolués, de décrire le spectre lumineux émis par le plasma [19]. De plus, l'utilisation d'un modèle présente l'avantage de mettre en évidence les paramètres clés influençant les propriétés du plasma plus facilement que les mesures expérimentales. Par exemple, la modélisation rend l'étude de l'effet de la durée d'impulsion laser sur les propriétés du plasma plus pratique et facile (la modification d'une seule variable suffit), alors que cela nécessite expérimentalement de changer la source d'ablation, ce qui est souvent impossible. Il est ainsi possible de déterminer, **préalablement aux mesures**, dans une application donnée, les conditions expérimentales optimales qui maximisent l'amplitude du signal LIBS. La modélisation éviterait donc de recourir à de nombreuses expériences menées en ce sens.

Depuis ces vingt dernières années, de nombreux schémas numériques ont été développés pour modéliser l'interaction laser-matière. Un grand nombre de ces modèles ne sont cependant valides que dans des conditions expérimentales restreintes (basse pression [20], éclairement faible qui n'induit pas la formation d'un plasma [21–23]). S'ajoutent à cette restriction le fait que la plupart n'ont pas l'utilité de décrire l'intégralité du processus d'interaction laser-matière : dans le domaine de la découpe laser, il n'y a pas de formation du plasma et les modèles développés ne s'intéressent qu'au chauffage de la cible. Dans le domaine de la croissance de couches minces par laser (PLD), les modèles developpés permettent généralement de calculer la composition du plasma et l'interaction plasma-gaz ambiant afin de déterminer la composition des couches minces synthétisées dans des conditions expérimentales particulières. En général, un inconvénient inhérent à ces codes est l'utilisation de conditions initiales (quantité de matière, vitesse, densité, température, ...) définies de façon plus ou moins arbitraire sous la forme de paramètres ajustables. Plus récemment, plusieurs modèles prometteurs, incluant de nombreux phénomènes, ont été développés pour l'ablation laser en régime nanoseconde : l'un des modèles les plus complets a été développé par A. Bogaerts *et al.* [24]. A. Bogaerts a présenté une étude paramétrique très complète de l'interaction laser-matière, en mettant notamment en évidence l'influence, sur la dynamique du plasma, des propriétés de la cible [15], des caractéristiques de la source laser servant à l'ablation de matière [25], et du gaz ambiant utilisé [26]. Les résultats issus de son modèle constitue une solide référence dans le domaine de l'interaction laser-matière, particulièrement dans le domaine de la LIBS.

Dans ce contexte, l'objectif de cette thèse est d'étudier les plasmas produits par laser expérimentalement et à l'aide d'un modèle numérique 1D, que j'ai developpé spécialement pour l'étude de l'interaction laser-matière, en régime nanoseconde, pour des cibles métalliques. Les conditions expérimentales seront des conditions utilisées habituellement dans les applications LIBS. A la différence du modèle de A. Bogaerts, pour lequel la longueur d'onde du laser d'ablation est 266 nm, nous étudions l'interaction laser-matière à 532 nm. De plus, le schéma numérique utilisé pour modéliser l'expansion du plasma s'appuie, dans notre modèle, sur une for-

mulation *lagrangienne* des équations d'Euler (alors que Bogaerts a développé un schéma *eulérien* type Godunov), ce qui constitue en partie l'originalité de ce travail. Il existe en effet très peu de schémas s'appuyant sur cette formulation, alors qu'elle est adaptée pour suivre la position de l'interface entre la matière ablatée et le gaz ambiant au cours du temps. De plus, elle est naturellement *anti-diffusive*, c'est-à-dire qu'il ne peut y avoir de diffusion de masse artificielle (c'est-à-dire résultant de la discrétisation des équations) entre matière ablatée et gaz ambiant. Cette diffusion artificielle, caractéristique de nombreux schémas couramment utilisés en ablation laser, présente l'inconvénient de réduire la précision souhaitée sur le calcul des propriétés du plasma. Elle peut être réduite en diminuant drastiquement la résolution du maillage et le pas de temps, au prix d'un temps de calcul extrêmement long. L'approche lagrangienne permet de se défaire de tous ces inconvénients.
Le schéma developpé permet de modéliser le chauffage du matériau par laser, l'évaporation, l'expansion de cette vapeur et la formation d'un plasma résultant de l'absorption de l'énergie de l'impulsion laser incidente dans la vapeur. En parallèle, j'ai développé un banc expérimental afin d'observer la formation et l'expansion du plasma, la formation de l'onde de choc, l'écrantage du faisceau laser par le plasma et la profondeur ablatée au niveau de la cible. Les résultats expérimentaux obtenus permettent en premier lieu de vérifier la validité du modèle numérique, en s'assurant de la concordance des résultats numériques avec les observations expérimentales. Lorsque le modèle est en partie validé, il peut être utilisé pour mettre en évidence l'influence d'un paramètre particulier sur la dynamique du plasma. En LIBS, de nombreux travaux ont tenté de déterminer l'influence du gaz ambiant sur les propriétés du plasma et sur le signal mesuré pour l'identification chimique [16, 27, 28]. Cette double approche expériences/modélisation est donc utile pour progresser dans la compréhension de l'influence du gaz ambiant sur la dynamique du plasma.

Le manuscrit est divisé en cinq parties distinctes :

Le *premier chapitre* décrit les phénomènes physiques régissant l'ablation laser d'une cible métallique par une impulsion nanoseconde dans un gaz ambiant. Cette description s'accompagne des équations caractéristiques de chaque phénomène, ainsi que les hypothèses qui ont été posées pour l'utilisation de ces équations.

Le *deuxième chapitre* présente en détail le montage expérimental utilisé pour étudier les plasmas produits par laser. Cette partie présente également les propriétés des échantillons utilisés, qu'il est nécessaire de connaître pour la résolution des équations relatives à chaque phénomène.

Le *troisième chapitre* décrit le schéma numérique construit pour la modélisation des plasmas produits par laser.

Le *quatrième chapitre* présente les résultats expérimentaux, qui seront systématiquement comparés aux résultats numériques.

Enfin, le *cinquième chapitre* présente une application du modèle à la mise en évidence de l'influence du gaz ambiant sur les propriétés du plasma.

Liste des Références de l'introduction.

[1] Leon J. Radziemski and David A. Cremers. *Laser Induced Plasmas and Applications*. Marcel Dekker Inc., 1989.

[2] Chrisey Douglas B. and Hubler Graham K., editors. *Pulsed laser deposition of thin films*. 1994.

[3] Matthew Scott Rogers. *Laser-material interaction : From applications of pulsed laser deposition to the fundamental heat affected zone*. PhD thesis, University of California, Berkeley, 2008.

[4] H. Lubatschowski, G. Maatz, A. Heisterkamp, U. Hetzel, W. Drommer, H. Welling, and W. Ertmer. Application of ultrashort laser pulses for intrastromal refractive surgery. *Graefes Archive For Clinical and Experimental Ophthalmology*, 238(1) :33–39, 2000.

[5] H. Lubatschowski, A. Heisterkamp, F.Will, A.I. Singh, J. Serbin, A. Osterdorf, O. Kermani, R. Heermann, R. Welling, and W. Ertmer. Medical applications for ultrafast laser pulses. *RIKEN Review*, 50, 2003.

[6] O. Massow, F. Will, and H. Lubatschowskia. Optical coherence tomography controlled femtosecond laser microsurgery system - art. no. 662717. *Optical Coherence Tomography and Coherence Techniques Iii*, 6627 :62717–62717, 2007.

[7] O. Massow, F. Will, and H. Lubatschowski. Femtosecond laser microsurgery system controlled by optical coherence tomography - art. no. 688106. *Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers Viii*, 6881 :88106–88106, 2008.

[8] R. R. Gattass and E. Mazur. Femtosecond laser micromachining in transparent materials. *Nature Photonics*, 2(4) :219–225, 2008.

[9] M. R. H. Knowles, G. Rutterford, D. Karnakis, and A. Ferguson. Micromachining of metals, ceramics and polymers using nanosecond lasers. *International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, 33(1-2) :95–102, 2007.

[10] B. Salle, P. Mauchien, and S. Maurice. Laser-induced breakdown spectroscopy in open-path configuration for the analysis of distant objects. *Spectrochimica Acta Part B-atomic Spectroscopy*, 62 :739–768, 2007.

[11] A. De Giacomo, M. Dell'Aglio, O. De Pascale, R. Gaudiuso, R. Teghil, A. Santagata, and G. P. Parisi. ns- and fs-libs of copper-based-alloys : A different approach. *Applied Surface Science*, 253(19) :7677–7681, 2007.

[12] N. K. Rai and A. K. Rai. Libs - an efficient approach for the determination of cr in industrial wastewater. *Journal of Hazardous Materials*, 150(3) :835–838, 2008.

[13] G. Abdellatif and H. Imam. A study of the laser plasma parameters at different laser wavelengths. *Spectrochimica Acta Part B-atomic Spectroscopy*, 57(7) :1155–1165, 2002.

[14] J. T. Walsh, T. J. Flotte, and T. F. Deutsch. Er yag laser ablation of tissue - effect of pulse duration and tissue-type on thermal-damage. *Lasers In Surgery and Medicine*, 9(4) :314–326, 1989.

[15] D. Bleiner, Z. Chen, D. Autrique, and A. Bogaerts. Role of laser-induced melting and vaporization of metals during icp-ms and libs analysis, investigated with computer simulations and experiments. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 21 :910–921, 2006.

[16] S. S. Harilal, B. O'Shay, Y. Z. Tao, and M. S. Tillack. Ambient gas effects on the dynamics of laser-produced tin plume expansion. *Journal of Applied Physics*, 99(8), 2006.

[17] N. Glumac and G. Elliott. The effect of ambient pressure on laser-induced plasmas in air. *Optics and Lasers In Engineering*, 45(1) :27–35, 2007.

[18] B. Y. Man. Particle velocity, electron temperature, and density profiles of pulsed laser-induced plasmas in air at different ambient pressures. *Applied Physics B-lasers and Optics*, 67(2) :241–245, 1998.

[19] I.B. Gornushkin, A.Ya. Kazakov, N. Omenetto, B.W. Smith, and J.D. Winefordner. Radiation dynamics of post-breakdown laser induced plasma. *Spectrochimica Acta Part B*, 59 :401–418, 2004.

[20] A.V. Bulgakov and N.M. Bulgakova. Thermal model of pulsed laser ablation under the conditions of formation and heating of a radiation-absorbing plasma. *Quantum Electronics*, 29(5) :433–437, 1999.

[21] C. J. Hayden. A simple three-dimensional computer simulation tool for predicting femtosecond laser micromachined structures. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 20(2), 2010.

[22] A. Jeang, H. C. Li, and Y. C. Wang. A computational simulation approach for optimising process parameters in cutting operations. *International Journal of Computer Integrated Manufacturing*, 23(4) :325–340, 2010.

[23] A. V. Gusarov and I. Smurov. Thermal model of nanosecond pulsed laser ablation : Analysis of energy and mass transfer. *Journal of Applied Physics*, 97(1), 2005.

[24] Z. Y. Chen and A. Bogaerts. Laser ablation of cu and plume expansion into 1 atm ambient gas. *Journal of Applied Physics*, 97(6) :063305, 2005.

[25] A. Bogaerts and Z. Y. Chen. Effect of laser parameters on laser ablation and laser-induced plasma formation : A numerical modeling investigation. *Spectrochimica Acta Part B-atomic Spectroscopy*, 60(9-10) :1280–1307, 2005.

[26] A. Bogaerts and Z. Y. Chen. Nanosecond laser ablation of cu : modeling of the expansion in he background gas, and comparison with expansion in vacuum. *Journal of Analytical Atomic Spectrometry*, 19(9) :1169–1176, 2004.

[27] A.V. Gusarov, A.G. Gnedovets, and I. Smurov. Gas dynamics of laser ablation : influence of ambient atmosphere. *Journal of Applied Physics*, 88(7) :4352–4364, 2000.

[28] F. Garrelie, C. Champeaux, and A.Catherinot. Study by a monte carlo simulation of the influence of a background gas on the expansion dynamics of a laser-induced plasma plume. *Appl. Phys. A*, 69 :45–50, 1999.

1 Physique de l'interaction laser-matière en régime nanoseconde

Sommaire

1.1 Chauffage d'un matériau sous irradiation laser nanoseconde 9
1.1.1 Modélisation de l'absorption d'une impulsion laser par un métal . . . 9
1.1.2 Evaporation de la cible et condensation de la matière ablatée. 10
1.2 Expansion du Plasma 13
1.2.1 Caractérisation de la vapeur : équations de conservation 15
1.2.2 Choix de la loi d'état 16
1.2.3 Diffusion de masse - Viscosité - conduction thermique du plasma . . 18
1.2.4 Propagation d'une onde de choc. Théorie de Sedov 19
1.3 Formation du plasma 21
1.3.1 Mécanismes de gain en énergie dans la vapeur 21
1.3.2 Claquage par avalanche d'ionisation 24
1.3.3 Phénomènes induisant des pertes énergétiques 26
1.3.4 Processus émissifs dans un plasma 26
1.3.5 Composition du terme source - Equation de Beer-Lambert 29
1.4 Calcul du taux d'ionisation du plasma. 29

Ce chapitre décrit les processus physiques régissant l'interaction laser-matière en régime nanoseconde. Les équations décrivant le chauffage du matériau par laser, l'évaporation et l'expansion de la matière, et la formation du plasma sont présentées. Les approximations et simplifications qui ont été faites pour utiliser une forme particulière de ces équations sont également présentées.

1.1 Chauffage d'un matériau sous irradiation laser nanoseconde

1.1.1 Modélisation de l'absorption d'une impulsion laser par un métal

Pour des lasers impulsionnels dont la durée d'impulsion est de l'ordre de quelques nanosecondes, l'interaction laser-métal peut être considérée comme un processus thermique [1–3]. Les électrons libres dans la bande de conduction absorbent l'énergie de l'impulsion laser par Bremsstrahlung inverse. Aux premiers instants de l'interaction, les électrons présentent un fort déséquilibre thermique avec le réseau, mais l'équilibre thermique est atteint par relaxation électron-phonon au bout d'une durée de l'ordre de quelques picosecondes (τ_{e-i} ≈1-10 ps). Au regard d'une impulsion nanoseconde, il est justifié de supposer que ce transfert d'énergie est instantané et qu'un équilibre thermique est établi à chaque instant dans le métal. Par conséquent, la distribution en température dans le métal peut être décrite par une température unique $T = T_e$, où T_e est la température des électrons.
La variation de température dans le métal est alors décrite par l'équation de la chaleur à une température. En toute rigueur, l'équation de la chaleur à trois dimensions doit être résolue pour connaître le champ de température dans la cible. Cependant, il est raisonnable de supposer que la diffusion de la chaleur est uni-dimensionnelle lorsque le diamètre de la tache laser ϕ est très grand devant la profondeur de diffusion $z_{th} \approx \sqrt{2\xi\tau}$, avec ξ et τ la diffusivité du métal et la durée d'impulsion du laser. Pour nos conditions expérimentales, $\tau = 5$ ns amène $z_{th} \approx 2\ \mu m$, alors que le diamètre de la tache laser au niveau de la surface est $\phi = 1{,}3$ mm. La résolution de l'équation de la chaleur à une dimension est donc suffisante pour modéliser la diffusion de la chaleur dans le matériau. Cette équation s'écrit :

$$\rho(T)C_p(T)\frac{\partial T(z,t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(\kappa(T)\frac{\partial T}{\partial z}\right) + \alpha(z)\left(1-\mathbb{R}_f(T)\right)\centerdot I(z,t) \qquad (1.1)$$

ρ est la masse volumique de la matière constituant la cible, C_p la capacité thermique massique et κ la conductivité thermique. Le 2nd terme à droite de l'égalité est un terme source qui traduit l'absorption du faisceau laser dans la cible. $I(z,t)$ représente la valeur de l'intensité laser à la profondeur z et au temps t, $\mathbb{R}_f(T)$ est le coefficient de réflexion et α le coefficient d'absorption linéique du métal. I(z,t) est calculée par l'équation de Beer-Lambert [3] :

$$I(z,t) = I_0(t)\centerdot exp\left(-\int_0^z \alpha(T)dz\right) \qquad (1.2)$$

où $I_0(t)$ représente la valeur de l'intensité laser en surface de l'échantillon. Cette équation traduit que près de 90 % de l'énergie laser est absorbée sur une distance $\delta_{opt} = 2/\alpha$ appelée longueur de pénétration optique ou encore épaisseur de peau. Dans l'équation (1.1), nous avons négligé le mouvement de l'interface liquide-gaz dû à l'évaporation, car la vitesse de récession de la surface est très faible par rapport à la vitesse de diffusion de la chaleur dans le matériau [1]. Cette équation décrit les variations de température aussi bien dans la phase solide que dans la phase liquide.

Lorsque la température de la cible approche la température d'ébullition, il y a ablation de matière. Ce mécanisme est présenté dans la section suivante.

1.1.2 Evaporation de la cible et condensation de la matière ablatée.

Deux processus peuvent avoir lieu en surface de cible : l'évaporation et la condensation de matière. L'évaporation est un passage progressif de l'état liquide à l'état gazeux. La condensation est le processus inverse. Lorsqu'il existe un volume libre au-dessus d'un liquide, une fraction des molécules et atomes composant ce liquide passe toujours dans la phase gazeuse. Ce passage dépend de la *pression de vapeur saturante*, c'est-à-dire la pression à laquelle la phase gazeuse d'une substance est en équilibre avec sa phase liquide. Lorsque la pression partielle de la vapeur P_{vap} est inférieure à la pression de vapeur saturante P_s, une partie des molécules s'évaporent jusqu'à ce que $P_{vap} = P_{sat}$ (condition de saturation). Ce passage nécessite de fournir une certaine quantité d'énergie Q(T), appelée chaleur latente d'évaporation, afin de casser les liaisons entre particules dans la phase liquide. Ce mécanisme est illustré sur la figure 1.1. Lorsque $P_{vap} > P_{sat}$ la vapeur condense spontanément en surface de la cible jusqu'à ce que la conditon de saturation soit rétablie.

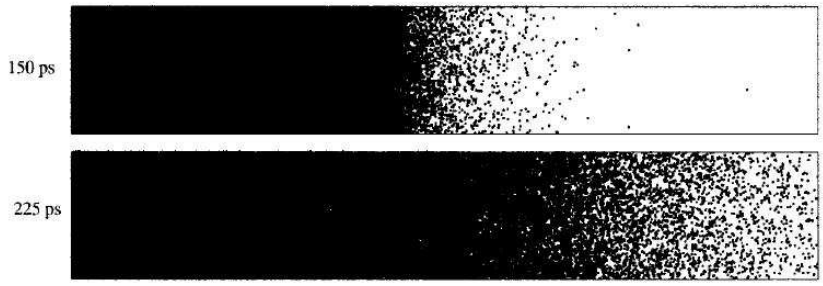

FIG. 1.1 - *Modélisation de l'évaporation dans le cas d'une impulsion de largeur τ = 150 ps et d'une fluence de 61 J.cm^{-2}. Résultats obtenus à t = 150 ps et t = 225 ps après le début de l'impulsion (résultat extrait de [4])*

La pression de vapeur saturante dépend exclusivement de la température. Elle est déterminée dans notre configuration par la température de surface de la cible T_s, suivant la loi de Clapeyron [5] :

$$Q(T_s) = T_s \left(v_g - v_l\right) \left.\frac{dp}{dT}\right|_{T=T_s} \tag{1.3}$$

v_l, v_g représentent les volumes massiques des phases liquide et gazeuse, la quantité dp/dT représente la dérivée *totale* de la courbe d'équilibre p(T) entre les deux phases liquide et vapeur. Lorsque la vapeur est supposée être un gaz parfait, en supposant que $v_l \ll v_g$ et que Q est indépendante de la température, cette loi se réduit à :

$$P_{sat}(T_s) = P_{\mathrm{ATM}} \exp\left[\frac{Q}{R}\left(\frac{1}{T_B} - \frac{1}{T_s}\right)\right] \tag{1.4}$$

$P_{ATM} = 10^5$ Pa est la pression atmosphérique et T_B est la température d'ébullition. A $T = T_B$, la pression de vapeur saturante est égale à la pression atmosphérique.

La condition de saturation traduit l'équilibre entre la phase vapeur et la phase liquide : le flux de particules évaporées est égal au flux de particules condensées en surface du matériau. Pour qu'il y ait ablation de matière, le flux de particules évaporées doit devenir plus grand que celui de particules condensées : ce déséquilibre

a lieu dans le cas de l'ablation laser dans un gaz ambiant, car l'absorption de l'énergie du faisceau laser dans la cible induit une augmentation de la température de surface, et donc de la pression de saturation. L'évaporation se poursuit tant que la condition de saturation n'est pas respectée.

La vapeur formée s'expand dans le demi-espace au-dessus de la cible. La distribution des vitesses des particules est alors décrite par une distribution demi-Maxwellienne [5]. Sur une distance de quelques libres parcours moyens s'établit une zone hors-équilibre appelée **couche de Knudsen** dans laquelle les particules évaporées effectuent suffisamment de collisions pour que leur distribution de vitesse évolue vers une Maxwellienne. Cette situation est illustrée sur la figure 1.2.

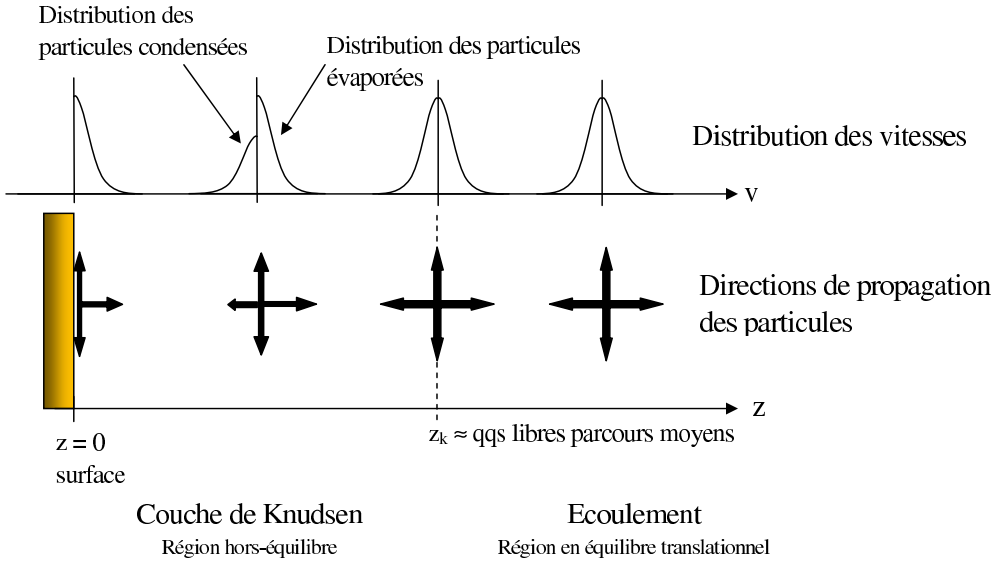

FIG. 1.2 - *Schéma monodimensionnel simplifié de la couche de Knudsen et représentation des fonctions de distribution de vitesse des particules dans cette couche.*

La couche de Knudsen représente une discontinuité dans les grandeurs hydrodynamiques (e, v, ρ, P). Une approche cinétique permet de lier les propriétés de la surface aux propriétés du fluide en sortie de couche de Knudsen [6–13], sous la forme d'un système d'équations, appelée *relations de saut*. En supposant que la vapeur est un gaz parfait monoatomique, ces relations s'écrivent de la façon suivante :

$$m = M \cdot \frac{\gamma}{2} = v_K \cdot \left(\frac{2\ k_B\ T_K}{m_v} \right)^{-1} \tag{1.5}$$

$$\frac{T_K}{T_s} = \left[\sqrt{1 + \pi \left(\frac{\gamma - 1}{\gamma + 1}\ \frac{m}{2} \right)^2} - \sqrt{\pi} \frac{\gamma - 1}{\gamma + 1}\ \frac{m}{2} \right]^2 \tag{1.6}$$

$$\frac{\rho_K}{\rho_s} = \sqrt{\frac{T_s}{T_K}} \left[\left(m^2 + \frac{1}{2} \right) e^{m^2} \mathrm{erfc(m)} - \frac{m}{\sqrt{\pi}} \right] + \frac{1}{2} \frac{T_s}{T} \left[1 - \sqrt{\pi} m\ e^{m^2} \mathrm{erfc(m)} \right] \tag{1.7}$$

$$\beta = \left[\left(2m^2 + 1 \right) - m \sqrt{\frac{\pi T_s}{T_K}} \right] exp\left(m^2 \right) \frac{\rho_s}{\rho_K} \sqrt{\frac{T_s}{T_K}} \tag{1.8}$$

$$\rho_K v_K \left(e_K + \frac{P_K}{\rho_K}\right) = \rho_s \frac{2\ k_B\ T_s}{m_v} \sqrt{\frac{k_B\ T_s}{2\pi m_v}} + \beta \rho_K \frac{k_B}{m_v} T_K \sqrt{\frac{k_B\ T_K}{2\pi m_v}} \left[m \left(m^2 + \frac{5}{2}\right) \sqrt{\pi}\ \mathrm{erfc(m)} - \left(m^2 + 2\right) exp\left(-m^2\right)\right] \tag{1.9}$$

Dans les équations (1.6)-(1.9), et dans toute la suite de ce manuscrit, les grandeurs indicées 'K' décrivent les propriétés de l'écoulement en sortie de couche de Knudsen. $\mathrm{T_K}$, $\mathrm{v_K}$ et $\mathrm{e_K}$ représentent respectivement la température, la vitesse et l'énergie totale du fluide. $\mathrm{m_v}$ représente la masse atomique de la cible. γ est le rapport des capacités thermiques à pression et à volume constants : dans le cas d'un gaz parfait monoatomique, $\gamma = 5/3$. k_B est la constante de Boltzmann. m est le *nombre de Mach réduit*, qui est lié au nombre de Mach par la relation (1.5). La fonction erreur complémentaire, notée erfc, est définie par :

$$\mathrm{erfc}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_x^{+\infty} e^{-u^2} \mathrm{d}u \tag{1.10}$$

La densité de vapeur saturante ρ_s est donnée par la loi des gaz parfaits :

$$\rho_s = \frac{P_{\mathrm{sat}}}{k_B\ T_s}\ m_v \tag{1.11}$$

Les relations (1.6)-(1.9) fournissent trois équations et cinq inconnues [T_s, $\mathrm{T_K}$, ρ_K, $\mathrm{e_K}$, M]. Une relation supplémentaire fournit la valeur du nombre de Mach en sortie de couche de Knudsen en fonction de la pression partielle de vapeur P_K. Cette relation, extraite des travaux de Gusarov et *al.*, a été établie en résolvant l'équation de Boltzmann avec un terme collisionel introduit par la théorie de Bhatnagar, Gross et Krook [14–17]. Cette relation s'écrit :

$$M = \frac{1 - (P_K/P_s)^{-0.275}}{1 - p_0^{-0.275}} \tag{1.12}$$

où $p_0 = 0.20742$ est le rapport des pressions au point sonique. Dans les références [6, 13], il a été prouvé que la vitesse d'éjection de la matière ablatée v_K ne peut pas dépasser la vitesse du son en sortie de couche de Knudsen. L'écoulement est alors nécessairement subsonique : $\mathrm{M} \leqslant 1$.
Enfin, la dernière relation est donnée par la condition de Stefan en $\mathrm{z} = 0$. Les particules évaporées emportent une partie de l'énergie du matériau absorbée pendant le chauffage laser. La condition de Stefan traduit la conservation de l'énergie à l'interface liquide-vapeur : l'apport d'énergie par conductivité thermique dans la phase liquide doit compenser l'énergie perdue due à l'évaporation des particules. Cette condition s'écrit [2] :

$$\kappa \left.\frac{dT}{dz}\right|_{z=0} = \rho_K v_K \left(Q + e_K + \frac{P_K}{\rho_K}\right),\ v_K \geqslant 0 \tag{1.13}$$

Lorsque la pression partielle de vapeur devient supérieure à la pression de vapeur saturante donnée par (1.4), la vapeur condense en surface de la cible. La théorie de la couche de Knudsen n'est pas applicable dans le régime de condensation, et les relations de saut sont remplacés par d'autres conditions qui traduisent la saturation de la vapeur. Ainsi, la température T_K est calculée par la relation de Clapeyron :

$$T_K = \left(\frac{1}{T_B} - \frac{R}{Q} \times \ln\left[\frac{P_K}{P_{\mathrm{ATM}}}\right]\right)^{-1}; \tag{1.14}$$

La densité de vapeur qui condense est donnée par la loi des gaz parfaits :

$$\rho_K = \frac{P_K}{k_B T_K} m_{\mathrm{v}} \tag{1.15}$$

où m_v est la masse atomique de la vapeur. La vitesse et l'énergie de cette vapeur s'écrivent respectivement :

$$v_K = M \frac{\gamma k_B T_K}{m_v} \tag{1.16}$$

$$e_K = \frac{v_K^2}{2} + \gamma \frac{P_K}{(\gamma - 1)\,\rho_K} \tag{1.17}$$

où M est le nombre de Mach caractéristique de la vapeur condensée. Ce nombre est lié à la pression partielle de vapeur P_K par la relation [15] :

$$M = -\frac{1 - (P_s/P_K)^y}{1 - \Upsilon^y} \tag{1.18}$$

où l'exposant y et Υ sont des fonctions du rapport $\ln(T_K/T_s)$, dont quelques valeurs sont données dans le tableau 1.1 et dont les variations sont représentées sur la figure 1.3 [15] .

Tab. 1.1 - *Dépendance dey et Υ en fonction de $ln(T_K/T_s)$ pour l'équation (1.18)*

$\ln(T_K/T_s)$	α	I_0
ln(0.1)	0.19	0.028571
ln(0.2)	0.223	0.042105
ln(0.5)	0.275	0.06
ln(1)	0.255	0.07403
ln(2)	0.17	0.08496
ln(4)	0.06	0.087719
ln(10)	-0.075	0.078678

Contrairement à l'évaporation, il est théoriquement possible que la condensation ait lieu en régime supersonique [18].

Ce raisonnement utilise également la condition de Stefan pour calculer la température de surface. Les particules condensées déposent de l'énergie en surface, et la température de surface doit alors augmenter. Sous l'hypothèse que toutes les particules arrivant à la surface du matériau condensent, la condition de Stefan s'écrit [7] :

$$\kappa \left.\frac{dT}{dz}\right|_{z=0} = \rho_K v_K \left(e_K + \frac{P_K}{\rho_K}\right),\ v_K \leqslant 0 \tag{1.19}$$

La section suivante est consacrée à la description de la phase gazeuse.

1.2 Expansion du Plasma

Il existe trois grandes catégories de modèles permettant de calculer l'évolution des propriétés de la matière ablatée : les codes cinétiques, les codes hydrodynamiques

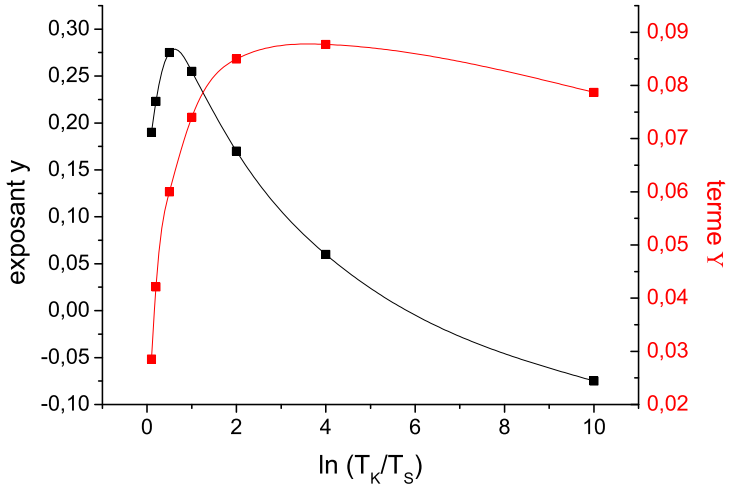

FIG. 1.3 - *Représentation des fonctions y et* Υ *et fonction du terme* $ln(T_K/T_s)$

(ou fluides) et les codes hydrides mêlant ces deux approches. Dans le premier cas, la matière est composée de nombreuses particules dont les populations dans l'espace des vitesses sont décrites par une fonction de distribution, solution d'une équation cinétique. Ces codes permettent de décrire la trajectoire de particules individuelles ainsi que les nombreuses collisions qu'elles effectuent dans la phase gazeuse. Ces modèles donnent généralement des résultats précis mais pour des temps de calcul généralement trop longs, car dépendants fortement du nombre de particules mises en jeu. Les codes hydrodynamiques sont beaucoup moins coûteux en temps de calcul, et beaucoup plus souples pour la résolution des équations. Ils permettent une description macroscopique du milieu à l'aide d'un nombre fini de grandeurs moyennes (e, v, ρ, P), qui sont obtenues en prenant les moments de l'équation de Boltzmann. De bons accords entre les résultats numériques et les résultats exprimentaux ont été reportés dans la littérature [19, 20].

La condition de validité de l'approche fluide s'écrit : L $\gg$ l, où L est la longueur caractéristique du gradient de densité, et l le libre parcours moyen des particules composant ce système [21]. Dans un plasma partiellement ionisé, ces particules sont des électrons, des ions de charges différentes (Z $\geqslant$ 1) et des atomes neutres. Pendant la phase d'expansion du plasma, le libre parcours moyen est donné par [22] :

$$l = \tau_{e,i} v_{th} \tag{1.20}$$

où $v_{th} = \sqrt{8\ k_B\ T/\pi\ m_e}$ est la vitesse thermique moyenne des électrons, avec T la température du plasma. Le temps caractéristique de collisions est donné en première approximation par la formule de Spitzer pour un gaz totalement ionisé [23] :

$$\tau_{\mathrm{ei}} = \left(\frac{4\pi\epsilon_0}{e^2}\right)^2 \frac{3m^{1/2}\,(k_B T)^{3/2}}{4\sqrt{2\pi}\bar{Z} n_e\ \ln(\Lambda)} \tag{1.21}$$

où $\bar{Z}$ est le degré moyen d'ionisation, n_e la densité électronique et ln(Λ) le logarithme coulombien [22]. En l'absence d'onde de choc interne (nous n'en avons pas observée dans le plasma pour les conditions expérimentales présentées dans ce manuscrit),

il n'y a pas de brusque variation de la densité et la longueur L représente alors la longueur du plasma. Un ordre de grandeur de $\tau_{e,i}$ est calculé dans le cas de l'ablation laser de cuivre dans une atmosphère d'argon à 1 atm, avec les conditions d'irradiation données dans le chapitre 2. Cet ordre de grandeur est calculé en utilisant la valeur maximale de température dans le plasma. A 100 ns, nous avons T = 20000 K, $n_e \approx 10^{25}$ m^{-3}, $\bar{Z} = 1$ et $\ln(\Lambda) \approx 5$. Le libre parcours moyen (1.20) vaut alors 25 nm, ce qui bien plus faible que la longueur L valant 1 mm. Il est donc raisonnable d'utiliser l'approche hydrodynamique pour décrire la dynamique de la phase gazeuse dans nos conditions expérimentales.

Dans l'approche hydrodynamique, des lois de conservation sont utilisées pour décrire les propriétés de la vapeur et du gaz ambiant. Ces lois sont présentées dans la partie suivante.

1.2.1 Caractérisation de la vapeur : équations de conservation

Par analogie avec la diffusion de la chaleur dans le matériau, l'expansion du plasma peut être décrite de façon unidimensionnelle tant que sa dimension, dans la direction de propagation du laser, reste très petite par rapport au diamètre de la tache laser en surface de la cible. Les propriétés (ρ, v, e) de la vapeur et du gaz ambiant sont décrites par les lois de conservation à une dimension, qui s'écrivent, dans la représentation *eulérienne* [24] :

$$\begin{cases} \partial_t \rho + \partial_z (\rho \mathrm{v}) = 0, \\ \partial_t (\rho \mathrm{v}) + \partial_z \left(\rho \mathrm{v}^2 + p\right) = 0, \\ \partial_t (\rho e) + \partial_z (\rho \mathrm{v} e + p \mathrm{v}) = \partial_t \left(\rho e_{\text{sources, pertes}}\right). \end{cases} \tag{1.22}$$

$\partial_t \left(\rho e_{\text{sources, pertes}}\right)$ est un terme source d'énergie qui sera explicité par la suite. P est la pression du fluide et est donnée par la loi d'état de ce fluide. Cette loi sera exposée dans la partie suivante.

La représentation eulérienne possède l'avantage de travailler dans le repère du laboratoire pour lequel les paramètres décrivant le plasma dépendent du temps et des coordonnées d'espace fixe. Cette formulation est très intuitive en physique expérimentale, car la mesure des propriétés des plasmas ou plus généralement des fluides est réalisée à l'aide de capteurs ou diagnostics qui sont généralement fixes dans le repère du laboratoire. Cependant, nous allons utiliser dans ce travail la formulation lagrangienne des équations d'Euler.
Dans cette représentation, l'étude de la dynamique de particules de matière discrètes, appelées *particules fluides* permet de restituer les trajectoires des particules en fonction de l'espace et du temps. Cette représentation est particulièrement utile pour suivre l'évolution de surfaces de discontinuité séparant des masses de fluides distinctes. L'expansion d'une vapeur métallique dans un gaz ambiant induit justement la formation d'une surface de discontinuité, tant que les phénomènes de diffusion de masse entre cette vapeur et ce gaz ambiant restent négligeables par rapport à l'expansion. Dans le chapitre 1.2.3 seront exposées les raisons qui ont conduit à négliger les effets de diffusion dans le système 1.22.

Les équations de conservation sont écrites pour un ensemble de particules discrètes dont la masse est conservée naturellement au cours du temps. En effet, la

variation de masse d'une particule fluide délimitée par les interfaces aux positions $z_1(t)$ et $z_2(t)$ s'écrit [21] :

$$\begin{aligned}\frac{\mathrm{d}m}{dt} &= \frac{d}{dt}\int_{z_1(t)}^{z_2(t)} \rho(z,t)\mathrm{d}z \\ &= \int_{z_1(t)}^{z_2(t)} \frac{\partial\rho}{\partial t}\mathrm{d}z + \rho\mathrm{v}(z_2) - \rho\mathrm{v}(z_1) \\ &= \int_{z_1(t)}^{z_2(t)} \frac{\partial\rho}{\partial t}\mathrm{d}z + \int_{z_1(t)}^{z_2(t)} \frac{\partial\left(\rho\mathrm{v}\right)}{\partial z}\mathrm{d}z \\ &= \int_{z_1(t)}^{z_2(t)} \left[\frac{\partial\rho}{\partial t} + \frac{\partial\left(\rho\mathrm{v}\right)}{\partial z}\right]\mathrm{d}z = 0\end{aligned}$$

Dans le raisonnement précédent, v représente une vitesse. Ce résultat montre que, de façon analogue à la représentation eulérienne qui utilise des coordonnées d'espace fixe pour la description des fluides, il est pertinent d'utiliser en représentation lagrangienne la variable de masse m et sa différentielle $\partial_m = \rho\ \partial_z$ (en 1D). Les équations de conservation s'écrivent dans cette représentation [24] :

$$\boxed{\begin{cases}\mathrm{d}_t\tau - \partial_m\mathrm{v} = 0, \\ \mathrm{d}_t\mathrm{v} + \partial_m p = 0, \\ \mathrm{d}_t e + \partial_m\left(p\mathrm{v}\right) = \partial_t e_{\text{sources, pertes}}\end{cases}} \tag{1.23}$$

La dérivée $\mathrm{d}_t = \partial_t\ +\ \mathrm{v}\ \partial_z$ est appelée *dérivée particulaire* ou *dérivée matérielle*. La première équation est équivalente à l'équation de conservation de la masse exprimée en terme du volume spécifique $\tau = 1/\rho$. Le terme source $\partial_t e_{\text{sources, pertes}}$ englobe plusieurs phénomènes tels que l'absorption de l'énergie laser et l'émission lumineuse de la vapeur. Ce terme sera décrit dans la section 1.3.

Dans le chapitre 3 sera utilisée la notation vectorielle du système (1.23). Celle-ci s'écrit, en notant $\mathbf{U} = (\tau, v, e)^T$, $\Psi = (p,\ -v)^T$ et $\mathrm{S} = (0,\ 0,\ \partial_t e_{\text{sources, pertes}})^T$:

$$\partial_t U + \partial_m \begin{pmatrix} M\Psi \\ -\frac{1}{2}\left(\Psi, M\Psi\right)\end{pmatrix} = S \tag{1.24}$$

où $\mathrm{M} = \begin{pmatrix}0 & 1\\ 1 & 0\end{pmatrix} \in \mathbb{R}^{2\times 2}$.

La résolution des équations d'Euler nécessite de connaître la loi d'état du fluide considéré. Cette loi est présentée dans la section suivante.

1.2.2 Choix de la loi d'état

Nous considérons que la vapeur et le gaz ambiant sont des gaz parfaits monoatomiques. Leur loi d'état est donc celle des gaz idéaux [5] :

$$\boxed{p = \left(\gamma - 1\right)\rho\left(e - u^2/2\right) = \rho\frac{R}{M}T} \tag{1.25}$$

avec γ le rapport des capacités thermiques à pression constante et à volume constant, $\mathrm{R} = 8.31$ J/mol/K la constante des gaz parfaits, M et T sont respectivement la

masse molaire et la température du gaz.

Nous vérifions par le calcul que cette équation d'état n'est pas trop simpliste. Le modèle du gaz parfait s'applique dans le cas d'un gaz dont les particules n'interagissent pas entre elles en dehors des chocs et dont la taille (le diamètre d dans l'approximation de sphères) est négligeable par rapport à la distance intermoléculaire moyenne $r_0 \propto n^{-1/3}$ (n est la densité (m^{-3}) du gaz). Ce modèle est une simplification du modèle du *gaz réel*, pour lequel ces deux hypothèses ne sont pas valides. La loi d'état d'un gaz réel est décrite par une loi de type Van der Waals. Cette loi s'écrit [5] :

$$P = \frac{\rho\ R\ T}{M\ -\ \rho\ b} - \frac{a\rho^2}{M^2} \tag{1.26}$$

b et a sont deux paramètres constants caractéristiques du gaz qui permettent de tenir compte respectivement du diamètre des particules et des interactions dans le gaz. Dans le cas du cuivre, a $\approx$ 2.9 $J.m^3.mol^{-2}$, et b $\approx 1{,}4.10^{-5}$ m^3/mol. [25]

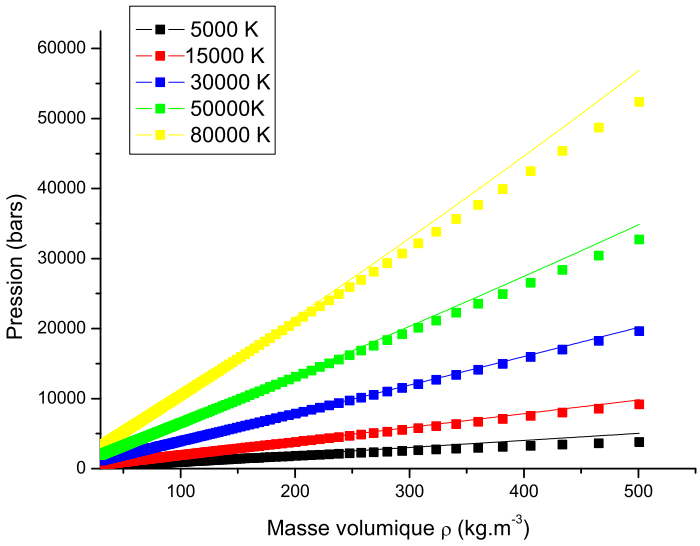

FIG. 1.4 - *Comparaison entre les équations d'état du gaz parfait (en points) et du gaz réel (en traits pleins) pour différentes températures.*

La figure 1.4 propose une comparaison entre la loi des gaz parfaits et la loi de Van der Waals classique pour différentes températures. La gamme de masse volumique a été choisie en fonction des valeurs qui ont été calculées dans le modèle par les équations d'Euler. Le résultat confirme que ces deux lois donnent des résultats similaires dans le cas d'un gaz dilué (pour ρ faible, de l'ordre de 10 à 200 $kg.m^{-3}$) quelle que soit la température. L'écart entre les deux lois, lorsque la masse volumique est élevée, est plus grand à plus haute température. Cet écart reste relativement acceptable, de l'ordre de 8 % pour T = 80 000 K à ρ = 500 $kg.m^{-3}$. L'utilisation de la loi des gaz parfaits est donc raisonnable pour les valeurs des propriétés du plasma rencontrées dans cette étude.

La forme des équations d'Euler dans le système (1.22) repose sur l'hypothèse que tout terme de diffusion pour la masse, la quantité de mouvement et l'énergie a été négligé. Cette hypothèse est justifiée dans le paragraphe suivant.

1.2.3 Diffusion de masse - Viscosité - conduction thermique du plasma

L'expansion de la vapeur très dense au dessus de la surface, aux énergies considérées dans les expériences, induit l'*effet chasse-neige* sur les 100 premières nanosecondes : les collisions entre les particules lourdes de la vapeur de cuivre et des particules légères du gaz ambiant (pour l'hélium et l'argon) impliquent que le gaz ambiant est repoussé par la vapeur sans possibilité de mélange entre les deux entités. Les échanges thermiques et massiques, et les effets visqueux entre ces deux entités restent minoritaires par rapport à l'effet d'expansion induit par l'effet chasse-neige. Il existe donc une interface bien delimitée entre la vapeur et le gaz ambiant, dont la position en fonction du temps peut aisément être suivie dans la représentation lagrangienne. C'est l'un des principaux arguments qui a conduit à utiliser ce type de représentation. Le faible effet de ces processus par rapport à l'expansion de la vapeur peut être mis en évidence en comparant les temps caractéristiques de chaque processus par rapport au temps d'étude des plasmas, soit 100 ns. La comparaison est faite pour la viscosité, mais un raisonnement similaire peut être conduit pour la conductivité thermique ou la diffusion massique (voir par exemple la référence [20] pour la diffusion de masse). Le gaz ambiant est l'argon. La théorie cinétique des gaz fournit une relation entre la viscosité cinématique ζ et la vitesse des particules considérées [26] :

$$\zeta = \frac{1}{3} d_{\mathrm{lpm}} \bar{v} \tag{1.27}$$

où $\mathrm{d_{lpm}}$ est le libre parcours moyen des particules, c'est-à-dire la distance moyenne entre deux collisions, et $\bar{v}$ la vitesse moyenne des particules. Cette vitesse moyenne, ainsi que le libre parcours moyen s'écrivent :

$$\bar{v} = \sqrt{\frac{8\ k_B\ T}{\pi\ m_{\mathrm{Cu}}}} \tag{1.28}$$

$$d_{\mathrm{lpm}} = \frac{\bar{v}}{\nu_{Cu-Ar}} \tag{1.29}$$

où T est la température du milieu, $\mathrm{m_{Cu}}$ la masse atomique du cuivre, ν_{Cu-Ar} est la fréquence de collision entre les atomes de cuivre et d'argon. Cette fréquence s'écrit $\nu_{Cu-Ar} = n_{Ar} \cdot \sigma_{\text{Cu-Ar}} \cdot \bar{v}_{\mathrm{Cu}}$, où $\mathrm{n_{Ar}}$ est la densité de particules d'argon et $\sigma_{\text{Cu-Ar}}$ est la section efficace de collision entre les particules de cuivre et d'argon.
L'analyse dimensionnelle du coefficient ζ montre qu'il s'exprime en $\mathrm{m^2/s}$. Le temps caractéristique du phénomène de viscosité est donné par :

$$\tau = \frac{S}{\zeta} \tag{1.30}$$

où S est la valeur de la surface de l'interface de contact entre la vapeur et le gaz ambiant.
Une application numérique pour un temps de l'ordre de 100 ns est proposée dans ce paragraphe, à partir de données collectées dans la littérature et des résultats numériques obtenus dans le chapitre 4. La section efficace de collision $\sigma_{\text{Cu-Ar}}$ est donnée, dans le modèle de type sphères dures, par la relation $\sigma_{\text{Cu-Ar}} = \pi d^2/4$, où d

est le diamètre d'un atome de cuivre (d $\approx 1{,}4.10^{-11}$ m [27]). A t = 100 ns, le modèle donne une température moyenne de l'ordre de 20 000 K et une densité d'atomes d'argon $n_{Ar} \approx 10^{22}$ m^{-3}. Le plasma peut être schématisé par un cylindre de diamètre $\phi = 1.3$ mm (le diamètre de la tâche laser) et une hauteur h ≈ 1 mm. La surface de contact est donc calculée grâce à la formule :

$$S = \pi\phi\left(h + \frac{\phi}{4}\right) \tag{1.31}$$

L'application numérique donne $\tau \approx 1.4$ μs, ce qui est beaucoup plus grand que les 100 ns d'étude et implique donc que la viscosité peut être négligée. Le même raisonnement pour la diffusion de masse et la conductivité thermique conduit au même résultat.

Les équations d'Euler, complétées par la loi des gaz parfaits, permettent de modéliser l'expansion de la vapeur et du gaz ambiant. Toutefois, elles ne sont plus valables dans des zones où les propriétés de l'écoulement deviennent discontinues. Ces zones, appelées *chocs*, nécessitent une modélisation spécifique qui est décrite dans le paragraphe suivant.

1.2.4 Propagation d'une onde de choc. Théorie de Sedov

L'éjection et l'expansion de matière ablatée induisent la formation d'une onde de choc qui se propage dans le gaz ambiant au repos. Une onde de choc marque une discontinuité dans les propriétés (ρ, v, e, P) de l'écoulement. Elle ne peut donc être modélisée par les équations d'Euler (système (1.22)) car les dérivées spatiales n'y sont pas définies. Pour fournir une description d'un fluide dans lequel se propage un choc à la vitesse S, le système (1.22) est complété de plusieurs relations de saut (une pour chaque grandeur conservée) issues de la forme intégrale des équations d'Euler [28]. Ces relations de saut s'écrivent :

$$\rho_G\left(v_G - S\right) = \rho_D\left(v_D - S\right) \tag{1.32}$$

$$\rho_G\left(v_G - S\right)^2 + p_G = \rho_D\left(v_D - S\right)^2 + p_D \tag{1.33}$$

$$e_G + \frac{p_G}{\rho_G} + \frac{1}{2}\left(u_G - S\right)^2 = e_D + \frac{p_D}{\rho_D} + \frac{1}{2}\left(u_D - S\right)^2 \tag{1.34}$$

où les indices 'G' et 'D' définissent les grandeurs conservées en amont (à gauche) et en aval (à droite) de l'onde de choc.

Dans le domaine de l'ablation laser, de nombreux modèles ont été présentés dans la littérature pour décrire analytiquement la position de l'onde de choc en fonction du temps [29–32]. Deux d'entre eux sont présentés dans cette section car ils sont utilisés au chapitre 4. Le modèle qui décrit le déplacement de l'onde de choc sur des durées de plusieurs dizaines de nanosecondes est le modèle d'onde de détonation établi par Sedov [29]. Ce modèle, dérivé des études sur l'explosion atomique, décrit la propagation d'une onde de choc dans un milieu gazeux due au dépôt instantané d'une grande quantité d'énergie dans un volume restreint. Ce dépôt peut s'effectuer en un point du milieu, le long d'une ligne ou sur une surface donnant naissance respectivement à une onde sphérique, cylindrique ou plane. Ce dernier cas semble plus plausible dans notre configuration, dans la mesure où l'expansion de la vapeur, qui donne naissance à l'onde de choc, a lieu à partir de la surface plane de la cible

métallique. Dans le modèle de Sedov, la position z(t) de l'onde de choc à l'instant t est décrite par la loi [29] :

$$\boxed{z(t) = \xi_0 \left(\frac{E}{\rho}\right)^{1/(2+\nu)} t^{2/(2+\nu)}} \tag{1.35}$$

ξ_0 est un coefficient proche de 1, E est l'énergie déposée dans le plasma et dans le matériau, et ρ la masse volumique du gaz dans lequel se propage l'onde de choc. ν est un coefficient sans dimension qui représente la symétrie du problème ($\nu = 1$ pour une propagation plane, $\nu = 2$ pour une propagation cylindrique, et $\nu = 3$ pour une propagation sphérique). En plus du caractère instantané du transfert d'énergie, la validité du modèle et de cette loi repose sur les deux hypothèses suivantes :

1. La masse de gaz mise en mouvement doit être grande devant la masse éjectée.
2. La pression du gaz ambiant au repos doit être nettement inférieure à celle en amont du front d'onde de choc.

En ablation laser, le gradient de pression au front de l'onde de choc est souvent suffisamment élevé pour ioniser le gaz ambiant lors de sa propagation : on parle alors d'*onde d'ionisation thermique*.

Aux temps plus longs, la seconde hypothèse sur laquelle est fondé le modèle peut être mise en défaut, et il faut tenir compte des effets visqueux dans le mélange vapeur-gaz ambiant. Plusieurs équipes ont alors montré que le modèle de forces de viscosité ("drag force model") s'appliquait assez bien pour décrire la propagation de l'onde de choc [32–34]. Dans ce modèle, une force de frottement s'exerce dans le gaz ambiant au passage de l'onde de choc. Cette force f_v est proportionnelle à la vitesse d'expansion v de l'onde, à un facteur β près dépendant de la fréquence de collisions des particules du milieu de propagation et donc dépendant de la pression ambiante :

$$f_v = m\frac{\mathrm{dv}}{\mathrm{d}t} = -\beta \ \mathrm{v} \tag{1.36}$$

m est la masse du gaz dans lequel se propage l'onde de choc. La relation entre la position z(t) de l'onde de choc et le temps t est alors donnée par :

$$\boxed{z(t) = z_f \left(1 - \exp\left[-\beta t\right]\right)} \tag{1.37}$$

avec z(0) = 0 et $\lim_{t\to\infty} z(t) = z_f$. La propagation de l'onde de choc est modélisée par une fonction exponentielle décroissante dont le coefficient d'atténuation b dépend de la pression ambiante. Lorsque la pression augmente, le nombre de collisions entre les particules du gaz augmente, entraînant un accroissement de la force de viscosité et une diminution de la distance d'expansion de l'onde de choc. Pour de très grands délais (plusieurs microsecondes), le modèle de force de viscosité ne s'applique plus car l'onde de choc devient une onde sonore se déplaçant à la vitesse du son dans le gaz ambiant.

Dans les deux sections précédentes, le chauffage du matériau par le laser, la formation de la vapeur et son expansion ont été décrits. La section suivante décrit l'interaction de la vapeur avec le laser et la formation du plasma.

1.3 Formation du plasma

Lorsque l'ablation débute, la vapeur, composée essentiellement d'atomes, est transparente au faisceau laser. L'état plasma est initié dans la vapeur lorsque le gain en énergie dans le volume du plasma est supérieur aux pertes d'énergie, ou bien si ces pertes sont négligeables sur une échelle de temps donnée. Ce deséquilibre est exprimé par le terme $\partial_t\ e_{\text{sources, pertes}}$ dans l'équation de conservation de l'énergie. Dans cette section, les mécanismes principaux de gain et de pertes énergétiques dans la vapeur (à l'état plasma ou non) sont décrits, et l'expression du terme $\partial_t\ e_{\text{sources, pertes}}$ est établie.

1.3.1 Mécanismes de gain en énergie dans la vapeur

Le gain en énergie est lié à la production en volume d'électrons *primaires* dans la vapeur. Ces électrons sont responsables, par collisions avec les atomes, de l'ionisation thermique en volume de la vapeur et la formation du plasma. Leur production est dûe à deux principaux mécanismes :

1. l'*émission thermoélectronique*, c'est-à-dire l'émission d'électrons de la cible chauffée par le faisceau laser.
2. L'absorption de photons par les électrons.

Ces deux mécanismes sont présentés séparément dans les parties suivantes.

a) L'émission thermoélectronique

L'émission thermoélectronique est l'émission d'électrons en surface d'un matériau chauffé à haute température. Les travaux pionniers sur l'observation du phénomène, publiés en 1923 par I. Langmuir et K.H. Kingdon [35,36], montraient qu'une vapeur constituée d'atomes de césium s'ionise au contact d'un filament de tungstène chauffé à 1200 K, suivant la réaction à l'équilibre :

$$M(g) \leftrightarrows M^+(g) + e^-$$

le symbole (g) désigne la phase gazeuse. L'ionisation des atomes de césium est due à la différence entre l'affinité électronique du tungstène (Travail d'extraction de Richardson, 4,53 eV) et le potentiel d'ionisation du césium (3,88 eV). Par la suite, de nombreux travaux ont été publiés pour d'autres matériaux [35, 37].

L'application de cette théorie à l'ablation laser permet de calculer la densité d'ions ionisés une fois n_1 par rapport à celle d'atomes n_a dans la matière évaporée :

$$\boxed{\frac{n_1}{n_a} = \frac{u_1(T_s)}{u_a(T_s)} \exp\left(-\frac{(\theta_1 - W)}{k_B\ T_s}\right)} \tag{1.38}$$

où W est le travail d'extraction, c'est-à-dire l'énergie qu'il faut fournir pour extraire un électron de la cible, θ_1 le 1^{er} potentiel d'ionisation du cuivre, T_s la température de surface de la cible, et u_1, u_a sont les fonctions de partitions, à la température T, de l'ion et de l'atome respectivement. Ces fonctions sont définies par la relation [38] :

$$u(T) = \sum_k g_k \exp\left[\frac{-E_k}{k_B T}\right] \tag{1.39}$$

où la sommation est réalisée sur tous les niveaux énergétiques de l'espèce considérée (atome ou ion). Dans cette sommation, g_k est le poids statistique du niveau d'énergie E_k (k=0 représente l'état fondamental, et $E_0 = 0$ par convention).

L'expression (1.38) montre que la matière ablatée reste composée majoritairement d'atomes si le travail d'extraction reste inférieur au potentiel d'ionisation des atomes. C'est le cas du cuivre notamment, pour lequel $\theta_1 = 7.8$ eV et W =4.5 eV [39]. En dehors de tout autre mécanisme d'extraction des électrons de la cible de cuivre, la vapeur formée sera majoritairement monoatomique.

b) L'ionisation multiphotonique

L'ionisation multiphotonique est définie comme l'absorption simultanée de k photons qui conduit à l'ionisation d'un atome :

$$A_n + k\ h\nu \longmapsto A^+ + e^- \text{ avec } k \geqslant E\left(\frac{\theta}{h\nu} + 1\right)$$

A_n représentant l'atome A dans l'état d'excitation n et ν la fréquence du laser. Le taux d'ionisation correspondant est défini par la formule [40] :

$$\chi_k = G_k\ I^k \tag{1.40}$$

où G_k est un coefficient qui dépend de la section efficace d'ionisation multiphotonique à k photons ($m^{2k}s^{-1}W^{-k}$), et I est l'intensité du laser ($W.m^{-2}$).
Dans les années 60 sont menés les premiers calculs du paramètre χ_k. La plupart est fondée sur la théorie de perturbation d'ordre m [41–43]. En 1975, Morgan propose une relation simple et élégante entre le coefficient χ_k et la section efficace d'absorption d'un photon [40]. Cette théorie s'appuie sur l'étude de la dynamique de peuplement des niveaux virtuels sur lesquels l'électron s'appuie pour franchir le potentiel d'ionisation. Sous réserve que les différents niveaux d'excitation aient la même probabilité d'absorption, cette relation s'ecrit :

$$G_k = \left(\frac{\sigma}{\hbar\omega^2}\right)^k\ \frac{2\pi\omega}{(k-1)!} \tag{1.41}$$

avec σ la section efficace d'absorption d'un photon. $\sigma = 10^{-20}\ m^2$ concorde généralement avec les ordres de grandeurs trouvés dans la littérature pour le cuivre. La relation (1.41) permet d'établir l'expression du coefficient d'absorption linéique de l'énergie laser par le processus d'ionisation multiphotonique :

$$\alpha_j = \frac{k\ \sigma^k\ \Phi^{k-1}}{(k-1)!\ \nu^{k-1}}\ n_j, \tag{1.42}$$

$$\alpha_{MPI} = \sum_j \alpha_j \tag{1.43}$$

$\Phi = I/\ h\nu$ est le flux de photons du laser incident. La dernière équation traduit le fait que le coefficient d'absorption est obtenu en sommant les différentes contributions des niveaux n_j de l'atome susceptibles de participer à l'absorption par ionisation multiphotonique.

L'ionisation multiphotonique est un processus de production d'électrons dans la vapeur et le gaz ambiant. Nous l'avons cependant négligée dans le gaz ambiant car ce processus d'ionisation est minoritaire par rapport à l'ionisation thermique du gaz ambiant par compression lors du régime d'expansion de la matière ablatée. Dans le cas du cuivre, les niveaux impliqués s'étendent du fondamental ($3d^{10}4s\ ^2S_{1/2}$, 4 photons) au niveau $3d^9 4s4p\ ^4D_{7/2}$ (5,4 eV, 2 photons) [44].

c) La photoionisation

La photoionisation est un cas particulier du phénoméne d'ionisation multiphotonique. Elle est définie comme l'ionisation d'un atome par un photon unique :

$$A_{n^*} + h\nu \longmapsto A^+ + e^-$$

Le niveau n^* est le niveau le plus bas en énergie pour lequel la photoionisation est possible à la longueur d'onde du laser. Ce niveau est déterminé par la condition $(\theta_1 - E_{n^*}) \leqslant h\nu$, θ_1 étant le 1$^{\text{er}}$ potentiel d'ionisation. La probabilité de photoionisation est caractérisée par la section efficace d'absorption d'un photon d'énergie $h\nu$ par un atome de numéro atomique Z dans l'état excité n. Cette section efficace s'exprime par [24] :

$$\sigma(\nu) = \frac{32\pi^2}{3\sqrt{3}(4\pi\epsilon_0)^3} \frac{u_1(T)}{g_n} \frac{Z^2\ e^6}{h^4\ c\ \nu^3} \left|\frac{dE_n}{dn}\right| \tag{1.44}$$

où e est la charge de l'électron, m la masse de l'électron, h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide. $\frac{dE_n}{dn}$ est la répartition moyenne des niveaux d'énergie autour du niveau de nombre quantique n. Cette répartition est calculée à partir des données de la référence [44]. La formule (1.44) traduit bien l'observation selon laquelle la photoionisation est plus efficace pour les courtes longueurs d'onde car plus de niveaux peuvent être photionisés.
Le coefficient d'absorption linéique est donné par l'expression :

$$\boxed{\alpha_{PI}(\nu) = \sum_{n*}^{\infty} N_n\ \sigma_{\nu n}} \tag{1.45}$$

où n* est déterminé par la condition d'absorption, mentionnée précédemment. La population N_n du niveau n est calculée à l'équilibre thermodynamique par la loi de Boltzmann :

$$N_n = \frac{N g_n}{u(T)} \exp\left(\frac{-E_n}{kT}\right) \tag{1.46}$$

N est la population totale, u(T) la fonction de partition de l'atome, g_n et E_n le poids statistique et l'énergie du niveau n et T la température du milieu.

Nous négligeons la photoionisation du gaz ambiant pour les mêmes raisons que nous avons négligé l'ionisation multiphotonique dans le gaz ambiant. De plus, nous négligeons la photoionisation des ions car d'autres processus de production de ces ions, tel que le Bremsstrahlung inverse, sont majoritaires devant la photoionisation. Enfin, la formule (1.44) ne tient pas compte de l'existence de niveaux autoionisants dont l'énergie est située au-dessus du potentiel d'ionisation.

Le paragraphe suivant présente les mécanismes qui conduisent à l'avalanche d'ionisation dans la vapeur à partir des électrons primaires produits.

1.3.2 Claquage par avalanche d'ionisation

Au cours de collisions avec les particules *lourdes* de la vapeur (atomes, ions), les électrons primaires gagnent de l'énergie cinétique en absorbant un photon du rayonnement incident : c'est le phénomène de Bremsstrahlung inverse. Les collisions se poursuivent jusqu'à ce que l'énergie cinétique des électrons soit égale ou supérieure à l'énergie requise pour ioniser les atomes de la vapeur, suivant la réaction :

$$e^- + M^{i+} + h\nu \rightarrow 2e^- + M^{(i+1)+}$$

La conservation de l'énergie implique que les deux électrons produits ont moins d'énergie que l'électron incident. Ces deux électrons vont à leur tour être accélérés par Bremsstrahlung inverse et générer de nouveaux électrons, conduisant ainsi au phénomène d'*avalanche électronique*. Par définition, le claquage optique correspond à cette augmentation brutale de la densité électronique dans la vapeur. La vapeur évolue brusquement vers l'état de plasma fortement ionisé, celui-ci absorbant le rayonnement par Bremsstrahlung inverse électron-ion.
Le coefficient d'absorption par Bremsstrahlung inverse est donné par la formule générale [45] :

$$\boxed{\alpha_{BI}(\nu) = -\frac{4\pi}{3\mu c}\frac{\nu_P^2}{\nu^2}\int_0^\infty \chi(\mathrm{v})\frac{\partial f}{\partial \mathrm{v}}\mathrm{v}^3 \mathrm{d}v} \tag{1.47}$$

où χ est la fréquence de collision électron-particule, μ est l'indice de réfraction du plasma, et ν_P est la fréquence plasma. Ces deux derniers termes sont données par les formules [46] :

$$\nu_P = \frac{1}{2\pi}\left(\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e}\right)^{1/2} \tag{1.48}$$

$$\mu \simeq \left(1 - \frac{\nu_P^2}{\nu^2}\right)^{1/2} \tag{1.49}$$

Au début de la phase d'évaporation, la vapeur est majoritairement constituée d'atomes, de sorte que l'absorption du laser par Bremsstrahlung inverse se fait par l'intermédiaire des collisions électrons-atomes. Dans ce cas, la fréquence de collision χ_{e-a} s'écrit $\chi_{e-a} = \sigma_{e-a}(\mathrm{v})\mathrm{v}\,\mathrm{n}_a$, où n_a est la densité d'atomes, σ_{e-a} la section efficace de transfert de quantité de mouvement et v la vitesse des électrons. La dépendance de la section efficace pour une collision électron-atome en fonction de l'énergie cinétique de l'électron est donnée sur la figure 1.5. Au vu du caractère non linéaire de cette courbe, une intégration numérique s'avère nécessaire pour calculer $\alpha_{IB,e-n}(\nu)$.

Pour simplifier les calculs, il est d'usage d'utiliser une valeur moyenne de cette section efficace. Au début de la phase d'évaporation, la température de la vapeur est comprise entre 0 et 1 eV. Les électrons primaires sont donc en moyenne peu énergétiques, cette énergie moyenne étant comprise entre 0 et 1 eV. En utilisant la figure 1.5, les valeurs correspondantes de la section efficace sont de l'ordre de 10^{18} m^2, valeur qui est choisie pour la section efficace de collisions.
Dans le cas d'une distribution maxwellienne, et tenant compte de l'approximation précédente, le coefficient $\alpha_{IB,e-n}$ s'écrit [46, 48] :

$$\boxed{\alpha_{BI,e-n}(\nu) = \frac{4}{3\mu c}\,\frac{\nu_P^2}{\nu^2}\,<\sigma_{e-a}>\,n_a\,n_e\,\bar{\mathrm{v}}} \tag{1.50}$$

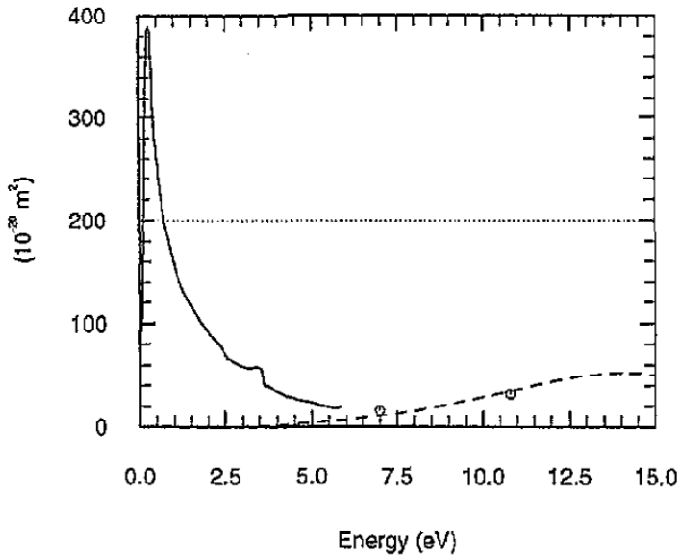

FIG. 1.5 - *Section efficace de transfert de quantité de mouvement lors d'une collision électron-atome de cuivre. L'image est tirée de [47].*

où $\bar{v}$ est la vitesse thermique moyenne des électrons et n_e la densité électronique. $\bar{v}$ est la vitesse moyenne thermique des électrons.

Lorsque le plasma atteint un certain degré d'ionisation, le Bremsstrahlung inverse électron-ion devient prédominant par rapport au Bremsstrahlung inverse électron-atome. En effet, les collisions électron-ion sont plus efficaces que les collisions électron-atome : la force d'interaction qui s'exerce sur un électron lors d'une collision électron-ion est proportionnelle à $\propto r^{-2}$, où r est la distance électron-ion, alors qu'elle est seulement proportionnelle à $\propto r^{-6}$ pour les collisions électron-atome dans le cas d'une interaction Van der Waals [26]). Le modèle de Rutherford établit, dans le cas d'une distribution maxwellienne des vitesses, que l'expression de la fréquence de collision est dans ce cas constante [46] :

$$\chi_{e-i} = \frac{4}{3}\sqrt{\frac{2\pi}{m_e}}\left(\frac{1}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \frac{e^4 \ln\Lambda}{(k_B\ T)^{3/2}} \sum_i Z_i^2 n_i$$

$\ln\Lambda$ est le logarithme coulombien, qui vaut 5-10 pour les propriétés des plasmas étudiés sur les 100 premières nanosecondes d'expansion [22]. Le coefficient d'absorption collisionnelle électron-ion est donc donné par l'expression [46] :

$$\boxed{\alpha_{BI,e-i}(\nu) = \frac{4}{3}\left(\frac{2\pi}{3kTm_e}\right)^{1/2} \frac{Z^2\ e^6}{(4\pi\epsilon_0)^3 m_e h c \nu^3} n_e \sum_i Z_i^2 n_i} \qquad (1.51)$$

Les formules (1.50) et (1.51) mettent en évidence l'importance de la longueur d'onde du laser d'ablation dans l'efficacité d'absorption des photons de la vapeur métallique. Ainsi, les photons infrarouges sont absorbés plus efficacement que les photons visibles ou UV. De plus, l'absorption collisionnelle est une fonction croissante de la densité électronique. La présence de l'indice de réfraction μ au dénominateur implique que la forme des coefficients est très piquée au voisinage de la densité

électronique critique, qui est la densité pour laquelle la fréquence plasma est égale à la fréquence du laser. A cette fréquence, le laser est en théorie totalement absorbé dans la zone à la densité critique puis réfléchi intégralement. Mentionnons toutefois que, pour tous les résultats présentés dans ce manuscrit, la densité électronique n'a jamais atteint la densité critique.

Les parties 1.3.1 et 1.3.2 décrivent les processus de gain en énergie dans le plasma. La section 1.3.3 présente les phénomènes induisant des pertes énergétiques en volume dans la vapeur.

1.3.3 Phénomènes induisant des pertes énergétiques

Par analogie avec les processus induisant un gain d'énergie dans le plasma, il existe deux types de phénomènes induisant des pertes énergétiques : ceux basés sur la perte d'électrons et ceux basés sur les pertes radiatives. Au cours des 100 premières nanosecondes de l'expansion, les pertes radiatives constituent la plus grande partie de la perte d'énergie dans le plasma.

1.3.4 Processus émissifs dans un plasma

Il existe trois types de processus émissifs dans les plasmas produits par laser aux éclairements laser considérés dans ce travail : ce sont l'émission de raies par les transitions lié-lié et l'émission continue par les transitions libre-lié et libre-libre [46]. Ces trois processus sont décrits indépendamment, et dans chaque paragraphe sera établie l'expression du coefficient d'émission spectrale et, quand c'est possible, le coefficient d'émission intégré sur l'ensemble des fréquences émises.

a) Transitions libre-libre

L'émission libre-libre, ou *Bremsstrahlung* (*rayonnement de freinage*), est l'émission d'un photon par un électron libre de la vapeur lors d'une collision avec une particule (atomes, ions et électrons – cependant, nous ne considérerons que le Bremsstrahlung induit par les atomes et les ions, car les collisions électrons-électrons ne produisent de radiation qu'à des vitesses relativistes). Selon la conservation de l'énergie, une partie de l'énergie cinétique de l'électron est convertie sous forme de photons. Celui-ci reste donc libre mais possède une énergie plus faible (d'où la dénomination *transition [énergétique] libre-libre*).
La puissance émise par la vapeur par Bremsstrahlung est donc la somme de la contribution des atomes avec la contribution des ions. Chaque contribution est donnée, dans la limite classique $h\nu \ll kT$ par l'expression générale [45] :

$$\boxed{j_B(\nu) = \frac{m\omega_P^2}{6\pi^2 c^3} \int_0^\infty \chi(\mathrm{v}) f(\mathrm{v}) \mathrm{v}^4 \mathrm{dv}} \tag{1.52}$$

L'émission en volume diffère donc, comme pour l'établissement du coefficient d'absorption du plasma, par la forme de la fréquence de collisions $\chi(\mathrm{v})$ entre l'électron et la particule cible.

Emission Bremsstrahlung électron-ion d'un plasma Maxwellien La puissance émise à la fréquence ω lors d'une collision électron-ion est déterminée par la relation suivante [46, 49–51] :

$$j_{B,e-i}(\nu) = \frac{\mu e^6}{6\left(4\pi\epsilon_0\right)^3 c^3 m_e^2}\left(\frac{m_e}{2\pi k_B T_e}\right)^{1/2} \exp\left(\frac{-h\nu}{k_B T_e}\right) \cdot n_e \sum_i Z_i^2 n_i \; \frac{\pi}{\sqrt{3}} \cdot \bar{g}_c(\nu, T_e) \tag{1.53}$$

$\bar{g}_c(\nu,\ T_e)$ est un facteur correctif, appelé facteur de Gaunt moyen. Ce facteur sert ici à tenir compte de l'émission de photons lors de collisions à faibles angles de déviation [52]. L'émission totale par Bremsstrahlung est calculée en intégrant l'expression précédente sur l'ensemble des fréquences :

$$\boxed{J = \int_0^\infty j_{B,e-i}(\nu)\mathrm{d}\nu = \frac{\mu e^6}{6\left(4\pi\epsilon_0\right)^3 h c^3 m_e^2}\left(\frac{m_e k_B T_e}{2\pi}\right)^{1/2} \cdot n_e \sum_i Z_i^2 n_i \cdot \bar{\bar{g}}} \tag{1.54}$$

où $\bar{\bar{g}}$ est le facteur de Gaunt moyenné sur la distribution de vitesses des électrons et sur l'ensemble des fréquences. L'estimation de ce facteur à partir de la formulation de Sommerfeld [49] donne une valeur proche de 1 (1.1-1.45) pour les températures supérieures à 1 eV, de sorte que nous omettrons ce coefficient par la suite.

Emission Bremsstrahlung électron-atome d'un plasma Maxwellien D'une façon générale, l'interaction entre un électron et un atome lors d'une collision a une portée beaucoup plus courte que l'interaction coulombienne entre un électron et un ion. Par conséquent, l'émission Bremsstrahlung électron-atome est beaucoup plus faible que l'émission lors d'une collision électron-ion. En reprenant la même forme que dans le paragraphe 1.3.2 pour la section efficace de collision électron-atome, le coefficient d'émission spectrale par Bremsstrahlung électron-atome est donné par la relation [24, 46, 48] :

$$\boxed{j_{B,e-a}(\nu) = \frac{\mu k T < \nu_{ea} > n_a\ n_e\ e^2}{2\pi^2\ \epsilon_0\ m_e\ c^3}} \tag{1.55}$$

Le rapport entre (1.53) et (1.55) donne l'équivalence :

$$\frac{j_{B,e-i}(\nu)}{j_{B,e-a}(\nu)} \sim \frac{\sum_i Z_i^2 n_i}{n_a\ \sqrt{T}}$$

Lorsque la vapeur est majoritairement constituée d'atomes, l'émission Bremsstrahlung électron-atome est le principale mécanisme de perte radiative : $j_{B,e-a}(\nu) \gg j_{B,e-i}(\nu)$. A partir de l'instant où le claquage optique a lieu, les pertes sont souvent dues à l'émission par Bremsstrahlung électron-ion $j_{B,e-a}(\nu) \ll j_{B,e-i}(\nu)$. Dans les conditions étudiées dans ce travail, les pertes radiatives par émission Bremsstrahlung électron-ion sont très supérieures par rapport à celles induites par Bremsstrahlung électron-atome. Nous avons donc négligé ce dernier phénomène.

b) Transitions libre-lié

Un autre phénomène déterminé par l'émission d'un spectre continu est la photorecombinaison, ou capture photoradiative. Ce phénomène est le processus inverse de

la photoionisation. Lors d'une collision électron-ion, un électron peut être capturé sur l'un des niveaux discrets de l'ion, suivant le processus :

$$A^+ + e^- \rightarrow A^n + h\nu$$

A^n représente l'atome excité dans l'état d'énergie 'n'. Le spectre émis est continu, car l'électron peut retomber potentiellement sur tous les niveaux énergétiques de l'atome, et ce pour tous les valeurs de vitesse possibles.

L'émission par photorecombinaison est représentée par le coefficient suivant [53] :

$$j_{rec}(\nu) = C_1 Z^2 \frac{n_e\ n_1}{\sqrt{T}} \xi\left(\nu, T\right) \left(1 - \exp\left[-\frac{h\nu}{kT}\right]\right) \tag{1.56}$$

où $\xi(\nu, T)$ est une fonction de la fréquence qui permet de tenir compte de la structure électronique de l'atome. Ce coefficient dépend faiblement de la température. Lorsque la photorecombinaison est observable, la température est en générale de l'ordre de 10000 K et ce coefficient est compris entre 1 et 2 [53].
L'émission totale est obtenue en intégrant le coefficient (1.56) sur l'ensemble des fréquences $J = \int j_{\mathrm{rec}}(\nu)\mathrm{d}\nu$. Cette intégration ne peut être réalisée dans le modèle car la dépendance en fréquence et température du coefficient ξ est inconnue pour le cuivre. Cela nous conduit à négliger ce processus d'émission dans le modèle. Ceci constitue une source d'erreurs pour le calcul des pertes radiatives, et donc pour l'estimation de l'énergie du plasma.

c) Transitions lié-lié

Le rayonnement du plasma est également constitué de plusieurs raies spectrales caractéristiques de différents élements. Ces raies spectrales émises par **émission spontanée** résultent des transitions électroniques entre des niveaux énergétiques des atomes ou des ions (on parle d'émission *lié-lié*).
La modélisation de l'émission de ces raies est utile pour diagnostiquer la présence d'un plasma (cf. chapitre 4). Dans le cas d'une distribution des populations d'espèces décrite par une loi de Boltzmann, la relation reliant l'intensité d'une raie à la densité de population d'atomes (ou d'ions) émetteurs s'écrit [38] :

$$\boxed{j_{m-n}(\nu) = h\nu_{m-n} A_{m-n} \frac{g_m}{u(T)} N \exp\left[-\frac{E_m}{k_B\ T}\right]} \tag{1.57}$$

m et n représentent respectivement les niveaux de haute et de basse énergie pour la transition électronique, ν_{m-n} est la fréquence du signal émis, A_{m-n} le coefficient d'Einstein relatif à l'émission du signal, n_m, g_m et E_m respectivement la densité, le poids statistique et l'énergie du niveau émissif n_m, et T est la température du milieu.

La connaissance des coefficients d'absorption et d'émission permet de déterminer l'expression du terme source $\partial_t e_{\text{sources, pertes}}$ dans l'équation de conservation de l'énergie. Cette expression est établie dans la section suivante.

1.3.5 Composition du terme source - Equation de Beer-Lambert

En tenant compte des phénomènes de gain et de perte en énergie, le terme source présent dans l'équation de l'énergie s'écrit :

$$\rho\partial_t e_{\text{sources, pertes}} = (\alpha_{IB,e-n} + \alpha_{IB,e-i} + \alpha_{PI} + \alpha_{MPI})\, I(z,t) - J \tag{1.58}$$

où J est donnée par la formule (1.54). L'équation (1.58) nécessite de calculer l'intensité du laser I en fonction de la position z dans le plasma à tout temps. Ce calcul est fondé sur la loi de Beer-Lambert :

$$\boxed{\frac{\mathrm{d}I(z,t)}{\mathrm{d}z} = (\alpha_{IB,e-n} + \alpha_{IB,e-i} + \alpha_{PI} + \alpha_{MPI})\, I(z,t)} \tag{1.59}$$

La solution de cette équation est :

$$\boxed{I(z,t) = I_0(t)\, \exp\left[-\int_z^{L_p} \alpha_P(u,t)\mathrm{d}u\right]} \tag{1.60}$$

où l'on a simplement noté α_P le coefficient d'absorption du plasma, qui regroupe les contributions de la photoionisation et du Bremsstrahlung inverse. L_P est la longueur du plasma. $I_0(t)$ est la distribution temporelle d'intensité en sortie de laser, avant l'interaction avec le plasma.

1.4 Calcul du taux d'ionisation du plasma.

La *loi de Saha* traduit l'équilibre entre les processus d'ionisation et de recombinaison en volume, équilibre défini par la réaction suivante :

$$A^{i+} \longleftrightarrow A^{(i+1)+} + e$$

La loi de Saha permet de connaître la densité des ions n_i entre deux états d'ionisation successifs connaissant la température et la densité électronique du plasma. Elle s'écrit [54] :

$$\frac{n_i\, n_e}{n_{i-1}} = 2\, \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{u_i(T)}{u_{i-1}(T)}\, \exp\left[-\frac{\theta_i - \Delta\theta_i}{k_B T}\right] \tag{1.61}$$

Les densités n_i, $\mathrm{i} \in \mathbb{N}$, correspondent à la densité *totale* des espèces ionisées i fois (la densité d'atomes sera notée n_0). θ_i est le potentiel d'ionisation de l'état i-1 à l'état i. $\mathrm{u}_i(\mathrm{T})$ est la *fonction de partition* de l'espèce considérée. Le terme $\Delta\theta_i$ traduit l'abaissement de potentiel dans le plasma [55]. La théorie de Debye montre qu'il dépend de la longueur de Debye :

$$\Delta\theta_i = \frac{(i+1)\, e^2}{\lambda_D} \tag{1.62}$$

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T}{n_e e^2}} \tag{1.63}$$

Les valeurs de densité électronique et température calculées par le modèle lors de cas test montrent que cet abaissement de potentiel est de l'ordre de 0.1 eV. Par conséquent, $\Delta\theta_i \ll \theta_i$, et la loi de Saha (1.64) peut se simplifier :

$$\boxed{\frac{n_i\, n_e}{n_{i-1}} = 2\, \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{u_i(T)}{u_{i-1}(T)}\, \exp\left[-\frac{\theta_i}{k_B T}\right]} \tag{1.64}$$

TAB. 1.2 - *Potentiels d'ionisation (en eV) des éléments utilisés dans notre code de calcul*

	1^{er}	2^{nd}	$3^{ème}$	$4^{ème}$
Cu	7.7	20.3	36.8	57.4
Ar	15.8	27.6	40.7	59.8
He	24.6	54.4	–	–
Xe	12.1	21	32.1	–

Le tableau 1.2 présente les valeurs des quatre premiers potentiels d'ionisation pour le cuivre et les gaz utilisés dans nos modèles. Ce tableau montre que l'on peut généralement se limiter aux calculs des densités ioniques jusqu'au deuxième potentiel d'ionisation. En effet, la température des plasmas dans nos conditions est au maximum de l'ordre de 20 eV, ce qui laisse penser que peu d'ions ionisés plus de deux fois seront formés. Dans le cas de l'hélium sera uniquement prise en compte la formation d'ions He^+.

Dans nos conditions, nous poserons toujours l'hypothèse d'électroneutralité des plasmas :

$$\sum_{k\geqslant 1} Z_k \; n_k = n_e \tag{1.65}$$

De même, la conservation de la masse s'écrit :

$$\sum_{i\geqslant 0} n_i = n_{\mathrm{tot}} \tag{1.66}$$

où n_{tot} est la densité totale (n_0 représente la densité des atomes).

Pour les calculs numériques, il est usuel de réécrire les équations (1.64), (1.65) et (1.66) à l'aide des fractions d'ionisation x_i définies par $x_i = n_i/n_{tot}$ (on notera $x_0 = n_0/n_{tot}$ la fraction d'atomes et $x_e = n_e/n_{tot}$ celle des électrons). Puisque nous nous limitons aux deux premiers potentiels d'ionisation, cela s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{x_1 \; x_e \; n_{\mathrm{tot}}}{x_0} & = 2 \; \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{u_1(T)}{u_0(T)} \; \exp\left[-\frac{\theta_1}{k_B T}\right] \\ \frac{x_2 \; x_e \; n_{\mathrm{tot}}}{x_1} & = 2 \; \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{u_2(T)}{u_1(T)} \; \exp\left[-\frac{\theta_2}{k_B T}\right] \\ x_1 + 2x_2 & = x_e \\ x_0 + x_1 + x_2 & = 1 \end{cases} \tag{1.67}$$

Il y a donc au final trois inconnues à déterminer : x_1, x_2 et T. Pour cela, il faut résoudre un système de trois équations : les deux premières correspondent aux deux premières équations du système (1.67). La troisième équation est l'expression de l'énergie interne u du plasma. Cette énergie s'exprime comme la contribution de trois termes : le premier est l'énergie thermique u_{th} des particules et des électrons à la température T, donnée par la théorie cinétique des gaz [38].

$$u_{th} = \frac{3}{2}\,(1 + x_e)\,\frac{k_B}{m} T \tag{1.68}$$

Le second terme est l'énergie potentielle u_{exc} portée par les électrons sur les niveaux énergétiques d'une espèce donnée (atome ou ion). Cette énergie est donnée

par la relation [24] :

$$u_{exc} = n_{\text{tot}} \sum_k x_k \ \Omega_k \tag{1.69}$$

$$\Omega_k = \frac{E_k \ \exp\left[-\frac{E_k}{k_B \ T}\right]}{\sum\limits_j \ \exp\left[-\frac{E_j}{k_B \ T}\right]} \tag{1.70}$$

Le troisième terme est l'énergie u_{ion} qu'il faut fournir pour ioniser les espèces chargées :

$$u_{ion} = n_{\text{tot}} \sum_{k \geqslant 1} x_k \ \theta_k \tag{1.71}$$

La contribution de ce terme est nulle dans une vapeur constituée uniquement d'atomes ($\theta_0 = 0$).

Au final, l'énergie interne u du plasma s'écrit donc :

$$\boxed{u = \left(e - \frac{v^2}{2}\right) = \frac{3}{2}\left(1 + x_e\right)\frac{k}{m}T + n_{\text{tot}}\left[\sum_k x_k \ \left(\Omega_k + \theta_k\right)\right]} \tag{1.72}$$

Le système à résoudre pour déterminer l'état d'ionisation du plasma est donc :

$$\boxed{\begin{cases} x_1 \centerdot x_e \centerdot n_{\text{tot}} - 2 \centerdot x_0 \centerdot \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{u_1(T)}{u_0(T)} \ \exp\left[-\frac{\theta_1}{k_B T}\right] & = 0 \\ x_2 \centerdot x_e \centerdot n_{\text{tot}} - 2 \centerdot x_1 \centerdot \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{u_2(T)}{u_1(T)} \ \exp\left[-\frac{\theta_2}{k_B T}\right] & = 0 \\ \left(e - \frac{v^2}{2}\right) - \frac{3}{2}\left(1 + x_e\right)\frac{k}{m}T + n_{\text{tot}}\left[\sum_k x_k \ \left(\Omega_k + \theta_k\right)\right] & = 0 \end{cases}} \tag{1.73}$$

Ce système, fortement non linéaire, sera résolu par la méthode de Newton-Raphson, comme nous le verrons au chapitre 3. Lorsque les inconnues x_1, x_2 et T sont déterminées, les termes x_0 et x_e sont alors calculés à l'aide des deux dernières équations du système (1.67).

Cette section clôt le chapitre 1 sur la description des phénomènes physiques régissant l'interaction laser-matière en régime nanoseconde. Le chapitre 2 décrit les conditions expérimentales et le montage expérimental utilisé pour étudier les plasmas produits par laser.

Liste des Références du chapitre 1.

[1] J. F. Ready. *Effects of high-power laser radiation.* Academic Press, 1971.

[2] H. S. Carslaw and J. C. Jaeger. *Conduction of Heat in Solids.* Oxford University Press, 2nd edition, 1986.

[3] A. M. Prokhorov. *Laser Heating of Metals.* Taylor & Francis, Inc., 1990.

[4] L. V. Zhigilei and B. J. Garrison. Microscopic mechanisms of laser ablation of organic solids in the thermal and stress confinement irradiation regimes. *Journal of Applied Physics*, 88(3) :1281–1298, 2000.

[5] José-Philippe Perez. *Thermodynamique : Fondements et applications.* 3rd edition, 2001.

[6] S. I. Anisimov. Vaporization of metal absorbing laser radiation. *Soviet Physics Jetp-ussr*, 27(1) :182–&, 1968.

[7] C.J. Knight. Evaporation from a cylindrical surface into vacuum. *Journal of Fluid Mechanics*, 75 :469–486, 1976.

[8] C. J. Knight. Theoretical modeling of rapid surface vaporization with back pressure. *AIAA Journal*, 17(5) :519–523, 1979.

[9] C. J. Knight. Transient vaporization from a surface into vacuum. *AIAA Journal*, 20(7) :950–954, 1982.

[10] C. Mas. *Modélisation physique du procédé de découpe de métaux par laser.* Thèse de doctorat, Université Paris VI, 2003.

[11] C. L. Chan and J. Mazumder. One-dimensional steady-state model for damage by vaporization and liquid expulsion due to laser-material interaction. *Journal of Applied Physics*, 62(11) :4579–4586, December 1987.

[12] J.W. Rose. Condensation heat transfer. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 35 :479–485, 1999.

[13] Carlo Cercignani. *Rarefied Gas Dynamics : From Basic Concepts to Actual Calculations.* Cambridge University Press, 1st edition, 2000.

[14] P. L. Bhatnagar, E. P. Gross, and M. Krook. A model for collision processes in gases .1. small amplitude processes in charged and neutral one-component systems. *Physical Review*, 94(3) :511–525, 1954.

[15] A. V. Gusarov, A. G. Gnedovets, and I. Smurov. Gas dynamics of laser ablation : Influence of ambient atmosphere. *Journal of Applied Physics*, 88(7) :4352–4364, 2000.

[16] A. V. Gusarov and I. Smurov. Influence of atomic collisions in vapour phase on pulsed laser ablation. *Applied Surface Science*, 168(1-4) :96–99, 2000.

[17] A. V. Gusarov and I. Smurov. Target-vapour interaction and atomic collisions in pulsed laser ablation. *Journal of Physics D-applied Physics*, 34(8) :1147–1156, 2001.

[18] K. Aoki, K. Nishino, Y. Sone, and H. Sugimoto. Numerical-analysis of steady flows of a gas condensing on or evaporating from its plane condensed phase on the basis of kinetic-theory - effect of gas motion along the condensed phase. *Physics of Fluids A-fluid Dynamics*, 3(9) :2260–2275, September 1991.

[19] Z. Y. Chen and A. Bogaerts. Laser ablation of cu and plume expansion into 1 atm ambient gas. *Journal of Applied Physics*, 97(6) :063305, 2005.

[20] S. Laville. *Modélisation des plasmas produits par laser dans le contexte de la technique d'analyse multi-élémentaire de matériaux solides.* Thèse de doctorat, Université du Québec - INRS - Energie, Matériaux et Télécommunications, 2003.

[21] S. Candel. *Mécanique des fluides : Cours.* Sciences Sup, 2001.

[22] J.-L. Delcroix et A. Bers. *Physique des plasmas*, volume 1. 1994.

[23] Lyman Spitzer Jr. *Physics of Fully Ionized Gases.* Dover Publications, 2006.

[24] Ya. B. Zel'dovich and Yu. P. Raizer. *Physics of Shock Waves and High-Temperature Hydrodynamic Phenomena.* Dover Publications, 2002.

[25] R. C. Weast, editor. *Handbook of Chemistry and Physics.* Cleveland Chemical Rubber Co., 53rd edition, 1972.

[26] R. Byron Bird, W. E. Stewart, and E. N. Lightfoot. *Transport Phenomena.* Wiley, 2nd edition, 2001.

[27] D. R. Lide. *Handbook Of Chemistry And Physics.* CRC Press, 2009.

[28] C. B. Laney. *Computational Gasdynamics.* Cambridge University Press, 1998.

[29] L. I. Sedov. *Similarity and Dimensional Methods in Mechanics.* CRC Press, 10th edition, 1993.

[30] G. G. Chernyi. The problem of a point explosion. *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, 112, 1957.

[31] M. R. Predtechensky and A. P. Mayorov. Expansion of laser-plasma in oxygen at laser deposition of htsc films : Theoretical model. *Applied Superconductivity*, 1(10-12) :2011–2017, 1993.

[32] D. B. Geohegan. Physics and diagnostics of laser ablation plume propagation for high-tc superconductor film growth. *Thin Solid Films*, 220(1-2) :138–145, 1992.

[33] B. Angleraud. *Etude de l'ablation par laser UV de cibles de nitrure de bore : application à la réalisation de couches minces.* Thèse de doctorat, Université de Limoges, 1995.

[34] W. Pietsch. *Plasma produit par laser à pression réduite pour le contrôle analytique isotopique.* Thèse de doctorat, Université d'Orléans, 1994.

[35] K.N. Kingdon and J. Langmuir. Thermoionic effects caused by alkali vapors in vacuum tubes. *Science*, 57 :58–60, 1923.

[36] K.N. Kingdon and J. Langmuir. Thermionic phenomena due to alkali vapors. *Phys. Rev*, 21 :380–382, 1923.

[37] M. J. Copley and T. E. Phipps. The surface ionization of potassium on tungsten. *Physical Review*, 48 :960–968, 1935.

[38] T. K. Bose. *High Temperature Gas Dynamics : An Introduction for Physicists and Engineers*. Springer-Verlag Berlin and Heidelberg GmbH & Co. K, 2003.

[39] J. A. Becker. Thermoionic electron emission and adsorption. *Reviews of Modern Physics*, 7(2) :95–130, 1935.

[40] C Grey Morgan. Laser-induced breakdown of gases. *Reports On Progress In Physics*, 38 :621–665, 1975.

[41] A. Gold and H. B. Bebb. Theory of multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 14(3) :60–&, 1965.

[42] Y. Gontier and M. Trahin. Multiphoton ionization of atomic hydrogen in ground state. *Physical Review*, 172(1) :83–&, 1968.

[43] G. Mainfray and C. Manus. Multiphoton ionization of atoms. *Reports On Progress In Physics*, 54(10) :1333–1372, 1991.

[44] J. Sugar and A. Musgrove. Energy-levels of copper, cu-i through cu-xxix. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 19(3) :527–616, 1990.

[45] G. Bekefi. *Radiation processes in plasmas*. Wiley, 1966.

[46] T. P. Hughes. *Plasmas and Laser Light*. Wiley, 1975.

[47] B. Chervy, O. Dupont, A. Gleizes, and P. Krenek. The influence of the cross-section of the electron-copper atom collision on the electrical-conductivity of ar-cu and sf6-cu plasmas. *Journal of Physics D-applied Physics*, 28(10) :2060–2066, 1995.

[48] V. L. Ginzburg. *Propagation of Electromagnetic Waves in Plasma*. Gordon & Breach Science Publishers Ltd, 1961.

[49] A. Sommerfeld. *AtomBau und Spektrallinien*, volume 2. Viewig & Sohn (Braunschweig), 1951.

[50] G. Elwert. Intensity and polarization in the continuous x-ray spectrum. *Ann. Physik.*, 34 :178–208, 1939.

[51] L. Oster. Emission, absorption and conductivity of a fully ionized gas at radio frequencies. *Rev. Mod. Phys.*, 33 :525–543, 1961.

[52] H. A. Kramers. Theory of x-ray absorption and of the continuous x-ray spectrum. *Phil. Mag.*, 46 :836–871, 1923.

[53] F. Cabannes et J. Chapelle. *Reactions under plasma conditions*, volume 1, chapter chapter 7 : Spectroscopic Plasma Diagnostics. Wiley-Interscience, 1971.

[54] M. Moisan et J. Pelletier. *Physique des plasmas collisionnels : Application aux décharges haute fréquence*. 2006.

[55] L. D. Landau and E.M. Lifshitz. *Statistical Physics*. Butterworth-Heinemann, 3rd edition, 1958.

Description du montage expérimental

2

Sommaire

2.1 Présentation des contraintes relatives à la conception du montage expérimental 39
2.2 Caractéristiques de la source laser 40
2.2.1 Description de la chambre d'ablation. 42
2.2.2 Montage optique - Mise en forme et transport du faisceau 43
2.2.3 Montage d'imagerie 45
2.2.4 Montage d'ombroscopie 48
2.2.5 Mesure de la profondeur des cratères par profilométrie 49
2.2.6 Mesure de la transmittivité du plasma. 51
2.3 Caractérisation de nos cibles de cuivre. 53
2.3.1 Composition de l'échantillon. 53
2.3.2 Définition des propriétés thermophysiques de nos cibles de cuivre. . . 54

Ce chapitre présente le montage expérimental et les différents diagnostics utilisés pour l'étude des plasmas produits par laser. Une attention particulière sera accordée aux caractéristiques du faisceau laser, dont la mise en forme . Chaque diagnostic a été choisi car il permet d'obtenir un résultat expérimental qui peut être directement comparé aux résultats du modèle numérique. Les résultats expérimentaux sont présentés dans le chapitre 4.

2.1 Présentation des contraintes relatives à la conception du montage expérimental

Le montage expérimental a été réalisé dans le but de faciliter les comparaisons entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques issus du modèle 1D. Le montage présenté dans ce chapitre a été conçu pour obtenir des résultats expérimentaux relatifs à un chauffage 1D de la cible et une expansion 1D du plasma. Le diamètre du faisceau ϕ en surface de cible joue dans ces deux cas un rôle essentiel : le chauffage de la cible est un problème 1D si ϕ est très grand devant la profondeur de diffusion z_{th} de la chaleur dans la cible. L'expansion du plasma est décrite en 1 dimension si sa longueur z reste très petite devant ϕ. Le montage optique doit être conçu de sorte que le diamètre du faisceau soit le plus grand possible, pour obtenir une configuration 1D dans les deux cas précédents sur des temps de mesures les plus longs possibles.

L'ordre de grandeur du diamètre ϕ est établi de façon analytique. La profondeur de diffusion z_{th} est liée à la durée d'impulsion du laser τ par la formule (cf. chapitre 1) :

$$z_{\mathrm{th}} = \sqrt{2\chi\tau} \tag{2.1}$$

χ est la diffusivité thermique du cuivre. La durée d'impulsion sera de l'ordre de 5 ns. L'ordre de grandeur de la profondeur de diffusion est donc quelques micromètres.

L'observation des plasmas produits par laser a été réalisée sur les 100 nanosecondes suivant l'impulsion. En première approximation, la longueur du plasma peut être estimée par la formule $z_P \approx \bar{v}\ \Delta t$, avec $\Delta t = 100$ ns et $\bar{v}$ la vitesse moyenne d'expansion du plasma. L'ordre de grandeur de cette vitesse est 10^4 m.s^{-1} dans des conditions d'irradiation similaires à celles présentées dans ce chapitre [1, 2]. L'application numérique montre que z_P est de l'ordre du millimètre.
Le choix du diamètre du faisceau ϕ doit donc être largement supérieur à z_{th} et z_P, afin que l'hypothèse de l'expansion unidimensionnelle du plasma soit respectée pour des durées les plus longues possibles. L'inégalité $z_{th} \ll z_P \ll \phi$ montre que c'est la phase d'expansion du plasma qui conditionne le choix du diamètre de faisceau. En pratique, il n'est pas possible d'obtenir des diamètres largement supérieurs au millimètre. Nous avons donc cherché à obtenir un faisceau dont le diamètre sur la cible est de l'ordre du millimètre. Précisément, le diamètre du faisceau en surface de cible a été fixé à 1.3 mm. Le système optique présenté dans la section suivante a donc été conçu dans le but d'obtenir cette valeur de diamètre en surface de cible.

D'un tir laser à l'autre, les résultats doivent être reproductibles. Cela implique que la source laser utilisée pour l'ablation doit avoir des caractéristiques précises : la forme temporelle de l'impulsion doit être la même à chaque tir. Par ailleurs, le faisceau doit être mis en forme pour obtenir une ablation homogène sur la cible : cela implique en effet que les propriétés du plasma sont identiques radialement, et donc justifierait le choix d'une représentation 1D pour décrire ces propriétés.

Dans la section suivante, la source laser est présentée.

2.2 Caractéristiques de la source laser

Le laser utilisé pour l'ablation est un laser impulsionnel Quantel YG981-C Nd :YAG. Les caractéristiques du laser sont présentées dans le tableau 2.1.

Tab. 2.1 - *Caractéristiques du laser d'ablation*

Forme temporelle du faisceau	gaussienne
Largeur à mi-hauteur de l'impulsion τ	6 ns
Profil spatial	"Top-Hat" avec des surintensités (fig. 2.2)
Diamètre du faisceau ϕ	18 mm
Energie maximale délivrée par impulsion	650 mJ
Cadence de tir	10 Hz
Longueur d'onde λ	532 nm

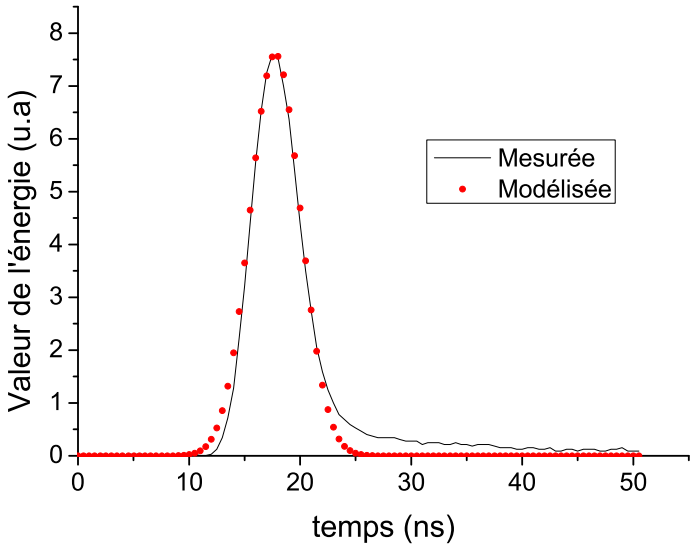

Fig. 2.1 - *Formes temporelles mesurée et modélisée de l'impulsion laser*

La figure 2.1 présente la distribution temporelle de l'impulsion mesurée en sortie du laser. Cette mesure a été réalisée grâce à une lame de verre simple placée en sortie du laser, qui permet de réfléchir une partie du faisceau vers une photodiode rapide (temps de réponse : 500 ps). Sur cette même figure, la distribution temporelle de l'impulsion utilisée dans les calculs est également représentée. Ce résultat montre que l'impulsion laser est assez fidèlement modélisée par une distribution gaussienne de largeur à mi-hauteur la durée d'impulsion 6 ns :

$$I(t) = \frac{E}{\sqrt{2\pi}\sigma} exp\left(-0.5\left(\frac{(t-\mu)}{\sigma}\right)^2\right) \tag{2.2}$$

E représentant l'énergie de l'impulsion, μ le décalage temporel du maximum d'impulsion, et σ l'écart-type de la distribution, lié à la largeur à mi-hauteur par la

formule :

$$\tau \;=\; \sigma / \left(2\sqrt{2ln\ 2}\right) \tag{2.3}$$

Deux différences persistent cependant entre le profil mesuré et l'impulsion modélisée : sur la figure 2.1, une quantité plus importante d'énergie est modélisée en pied de profil entre 10 et 15 ns après le début de mesure, tandis que la relaxation de l'énergie en fin d'impulsion (t$\geqslant$ 24 ns) n'est pas prise en compte.

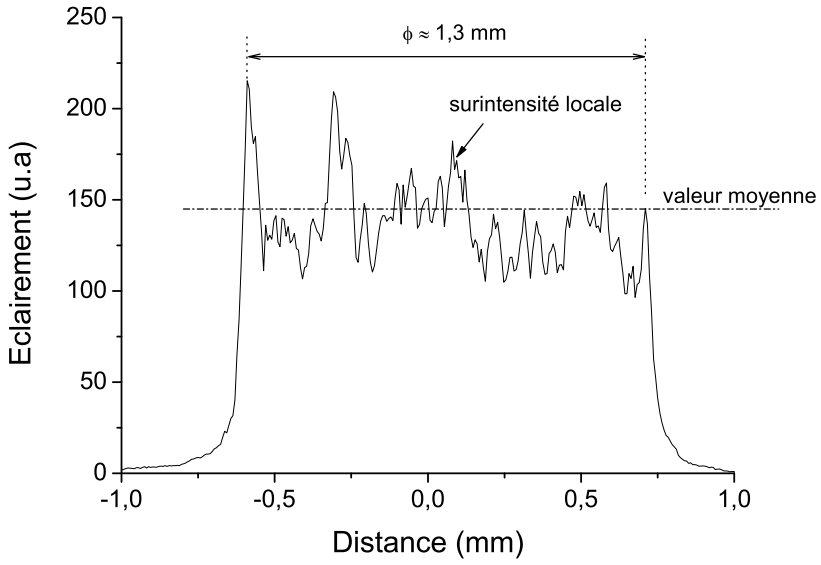

FIG. 2.2 - *Profil spatial d'éclairement du faisceau laser mesuré dans un plan d'onde.*

En sortie du laser, la distribution spatiale en éclairement[1] (appelée aussi *profil d'éclairement*) du faisceau dans un plan d'onde est de forme gaussienne. Pour assurer une ablation unidimensionnelle de la cible, nous avons ajouté en sortie du laser un cylindre en laiton avec une ouverture circulaire en son centre de diamètre 6.5 mm, qui joue le rôle de diaphragme et permet d'obtenir une distribution à bords droits. Cette distribution est présentée sur la figure 2.2 : à l'intérieur du faisceau, elle est constituée une succession de pics variant autour d'une valeur moyenne de l'éclairement. En périphérie, la valeur de l'éclairement chute brutalement, due à la limitation du faisceau par le diaphragme. Cette distribution permet de réaliser des cratères dont la profondeur est assez homogène sur toute la surface du spot, et dont les bords sont parfaitement droits. De plus, un tel profil permet d'obtenir des propriétés du plasma identiques radialement.

En sortie du diaphragme, et compte tenu des pertes énergétiques dues aux optiques utilisées dans le chemin du faisceau, l'énergie maximale disponible pour l'ablation est 220 mJ. Cette énergie permet d'étudier la dynamique du plasma sur la gamme de fluence[2] 0-15 J.cm^{-2}. Nous avons choisi de nous placer à une fluence

[1] L'éclairement est l'énergie de l'impulsion par unité de temps et de surface. Il se mesure en W.m^{-2} ou plus communément en W.cm^{-2}

[2] La fluence est l'énergie d'une impulsion par unité de surface. Elle s'exprime en J.m^{-2}, ou plus communément en J.cm^{-2}

de 11,4 J.cm^{-2} : cette valeur permet de conserver une certaine marge par rapport à 15 J.cm^{-2}, dans le cas où l'énergie du laser baisse au cours du temps. Cette valeur correspond à un éclairement laser de 1.9 GW.cm^{-2}.

La longueur d'onde du laser d'ablation est 532 nm. Cette longueur d'onde est moins utilisée, dans les expériences d'ablation laser, par rapport aux sources émettant dans l'ultraviolet (UV) ou dans l'infrarouge (IR). Il existe moins de résultats dans la littérature concernant l'étude de la dynamique et des propriétés du plasma à cette longueur d'onde. Notre étude permet donc d'apporter des réponses supplémentaires concernant l'identification et la compréhension des phénomènes physiques régissant l'interaction laser-matière à 532 nm.

En sortie du laser est placé un obturateur électromécanique qui permet de contrôler le nombre d'impulsions appliquées à la surface de la cible. Dans les expériences d'imagerie et d'ombroscopie, nous travaillons avec une seule impulsion, afin que les résultats expérimentaux soient directement comparables aux résultats obtenus par le modèle. En revanche, d'autres mesures (par exemple celle de la profondeur ablatée par impulsion, ou bien celle du seuil d'ablation) nécessitent de faire varier le nombre d'impulsions.
Les temps d'ouverture et de fermeture de l'obturateur se commande à distance à

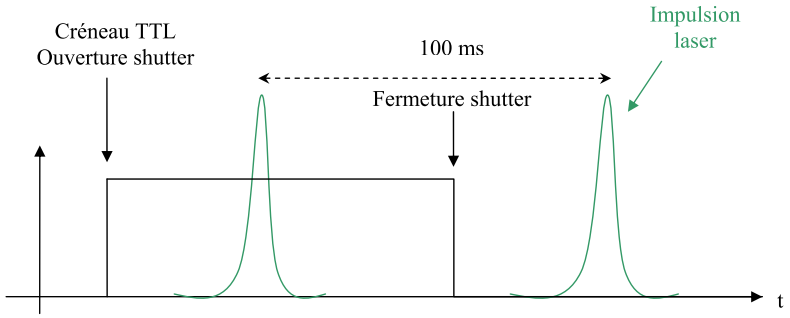

FIG. 2.3 - *Principe de travail en monotir.*

l'aide d'un dispositif électronique. La sélection d'une ou plusieurs impulsions est illustrée sur la figure 2.3. L'obturateur est déclenché manuellement par l'utilisateur. Le nombre d'impulsions à appliquer est déterminé par la durée d'ouverture. Le laser d'ablation cadencé à 10 Hz émet une impulsion toutes les 100 ms. Ainsi, il suffit de fixer la durée d'ouverture à 100 ms pour être sûr de sélectionner une impulsion. De même, une durée d'ouverture de 200 ms sélectionnera 2 impulsions, 300 ms 3 impulsions, et ainsi de suite. . ..

La section suivante présente la chambre d'ablation dans laquelle les cibles sont placées.

2.2.1 Description de la chambre d'ablation.

Afin de contrôler l'atmosphère environnante, les expériences d'ablation sont réalisées dans une chambre en acier inoxydable illustrée sur la figure 2.4. Cette chambre est équipée de deux hublots latéraux pour les visées optiques et d'un hublot pour le passage du faisceau laser. La transmittivité de ces hublots à 532 nm est 90 %. Les

10 % de pertes ont été prises en compte pour le choix de la fluence de travail F = 11.4 J.cm^{-2}.

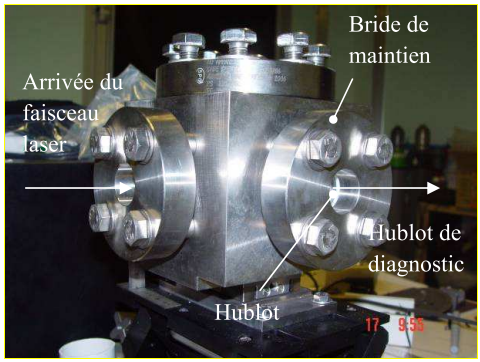

FIG. 2.4 - *Photographie de la chambre d'ablation.*

La chambre a été conçue pour contenir différents types de gaz dont la pression peut varier entre 10^{-3} mbar et 120 bars. Une pompe à huile permet d'établir un vide primaire dans l'enceinte à chaque nouvelle condition de mesure. Deux lignes de gaz permettent d'injecter différents gaz, dont la pression dans la chambre est contrôlée par une jauge à membrane céramique.
L'échantillon en cuivre est placé sur une platine rigide verticale de façon à ce que le faisceau arrive en incidence normale sur la surface. Deux platines en translation, situées en dehors de la chambre, permettent de déplacer l'échantillon après un certain nombre de tirs au même endroit sur la surface, afin de travailler avec une surface vierge de tout impact et supprimer ainsi l'influence de la profondeur du cratère sur l'expansion du plasma.

La section suivante présente maintenant le système optique servant au transport du faisceau laser du diaphragme à la chambre d'ablation.

2.2.2 Montage optique - Mise en forme et transport du faisceau

Le montage optique servant à la mise en forme et au transport du faisceau a été conçu dans le but d'obtenir un diamètre du faisceau ϕ = 1.3 mm sur la surface de la cible. Ce schéma est présenté sur la figure 2.5.

Le système optique est ainsi constitué d'un système afocal et d'une lentille de focalisation. Le système afocal est un système de deux lentilles convergentes L1 et L2 de focales $f_1 = f_2 = 480$ mm, et la lentille de focalisation L3 est une lentille convergente de focale $f_3 = 150$ mm. Il permet ainsi de former l'image du diaphragme au niveau de la surface de la cible avec un grandissement de 1/5 (le faisceau est réduit de 6.5 mm à 1.3 mm).

Le système afocal permet de réaliser l'image du diaphragme **devant le point de focalisation** de la lentille L3. Si nous avions utilisé une lentille convergente seule, l'image aurait été formée derrière le point de focalisation, comme le montre le schéma (a) de la figure 2.6. Dans ce cas se serait produit un claquage optique dans le gaz ambiant, réduisant de ce fait l'énergie servant à l'ablation du matériau, ce qui aurait faussé les résultats expérimentaux. Le système afocal forme l'image du diaphragme à une distance $4\times f_1$ de la position de ce dernier, dans l'espace virtuel de la lentille

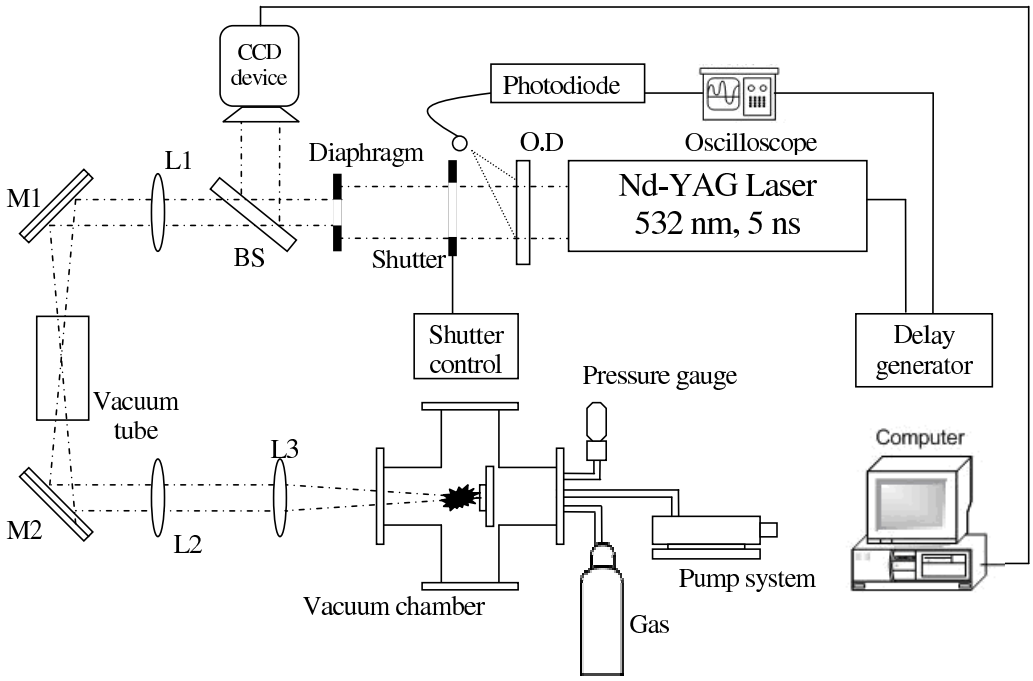

FIG. 2.5 - *Schéma du montage expérimental.*

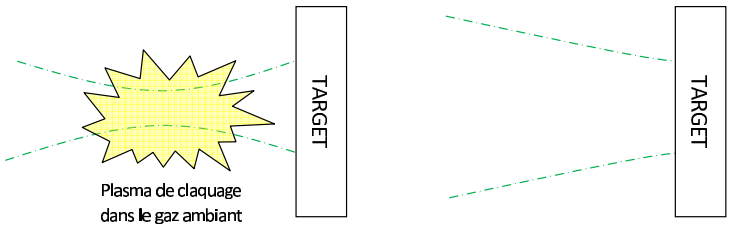

FIG. 2.6 - *Conditions de focalisation du faisceau : (a) sans système afocal, (b) avec système afocal.*

de focalisation. L'image de cet objet virtuel par la lentille L3 donne une image réelle devant le point de focalisation de la lentille (schéma (b)).

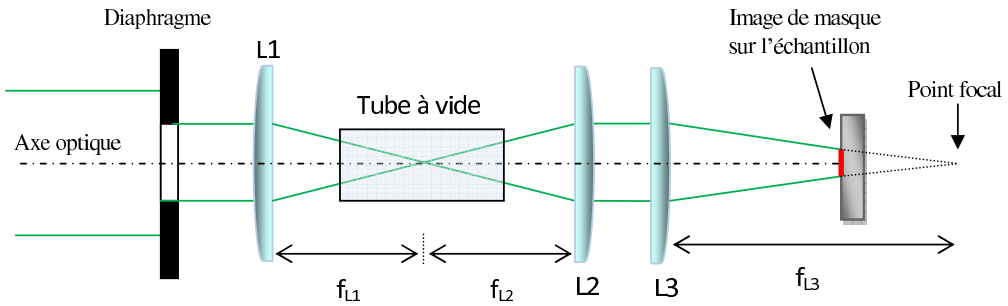

FIG. 2.7 - *Rôle du système afocal dans le montage optique.*

Entre les deux lentilles de l'afocal, il y a formation d'un point focal qui présente

les mêmes inconvénients que celui initialement présent devant la surface. L'utilisation de ce système n'a donc pas résolu le problème, mais l'a simplement déplacé dans un autre endroit du montage. Mais ce point focal est maintenant suffisamment éloigné de tous les autres instruments dans le montage optique pour pouvoir y placer un tube à vide, qui y empêche tout claquage lorsqu'un vide primaire est établi.

Enfin, le transport du faisceau vers la chambre d'ablation se fait à l'aide de deux miroirs M1 et M2 en $Si0_2$ dont la réflectivité à 532 nm est supérieure à 99.995 %.

Les différents diagnostics utilisés pour étudier la dynamique du plasma sont présentés dans les sections suivantes.

2.2.3 Montage d'imagerie

La dynamique du plasma est étudiée par un montage optique qui en réalise l'image dans une direction transverse à la direction de propagation du faisceau laser. Le schéma du montage est proposé sur la figure 2.8. Deux lentilles cylindriques, dont les axes de révolution sont orthogonaux l'un à l'autre, sont couplées à une lentille sphérique pour imager le plasma sur le capteur de la caméra. Le plasma est situé dans le plan focal image des lentilles C1 (f_{C1} = 150 mm) et C2 (f_{C2} = 300 mm), tandis que le capteur de la caméra iCCD est positionné au plan focal image de la lentille L4 (f_{L4} = 750 mm). Par conséquent, un grandissement de 5 est obtenu à l'aide de l'association C1 + L4 dans la direction de propagation du faisceau laser (qui est la direction d'expansion du plasma). Dans la direction radiale, le grandissement obtenu à l'aide de C2 + L4 est seulement de 2.5. Ce double grandissement permet de réaliser une image du plasma la plus grande possible sur le capteur de la caméra iCCD, et permet d'observer le plasma même pour des temps proches de la durée d'impulsion lorsque celui-ci est encore très peu étendu et donc très proche de la surface (quelques dizaines de microns d'expansion).

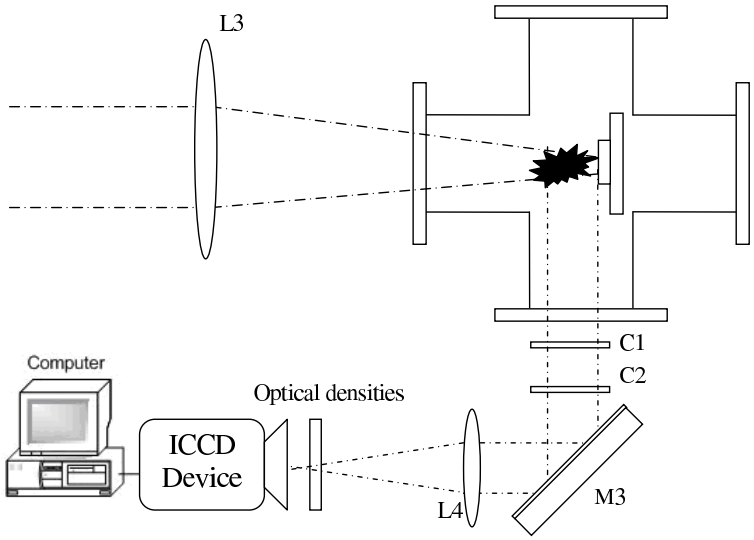

FIG. 2.8 - *Schéma du montage d'imagerie.*

Les deux paragraphes suivants présentent le réglage de la netteté et des grandis-

sements du système optique constitué des lentilles {C1+C2+L4}.

a) Calibration du système optique d'imagerie

Le réglage de la netteté et la mesure du grandissement pour les systèmes C1+L4 et C2+L4 sont réalisés à l'aide d'une mire constituée d'une fente de spectromètre d'une largeur de 500 μm. La fente est d'abord disposée dans une direction parallèle à la cible, afin de régler la netteté dans la direction d'expansion du plasma, et de calculer le grandissement du système C1+L4. La netteté est réglée par acquisition d'images sur la caméra iCCD. Les grandissements mesurés sont de 4.9 (longitudinal) et 2.75 (radial), valeurs très proches des grandeurs théoriques 5 et 2.5 calculées à partir des lois de l'optique géométrique.

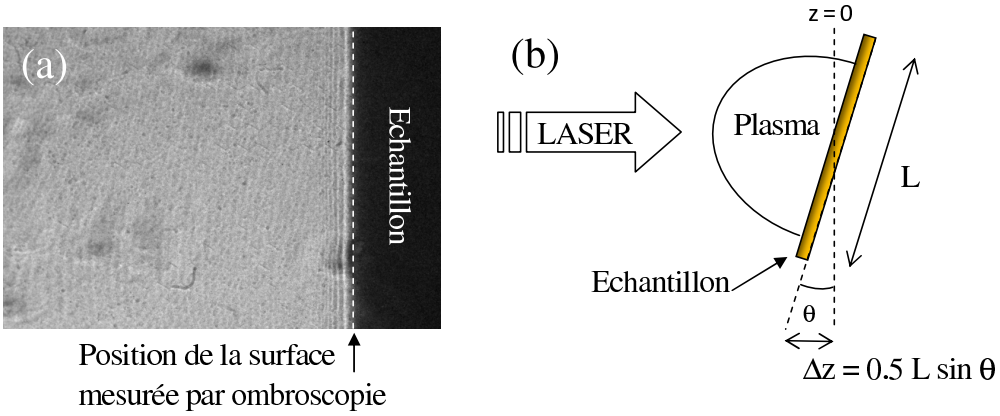

FIG. 2.9 - *Repérage de la surface de la cible par ombroscopie. (a) mesure par un hublot latéral. (b) schéma avec une vue de dessus.*

La position de la surface de la cible est repérée à l'aide d'une image d'ombroscopie (le principe de l'ombroscopie est décrit dans la sous-section suivante). Une image qui a servi à repérer la position de la cible est présentée en figure 2.9. Notons que cette image donne seulement une approximation de la position de la surface. En effet, la conception du porte-échantillon ne garantit pas que celui-ci soit exactement perpendiculaire à la direction de propagation du faisceau laser. Par conséquent, celui-ci peut être légèrement incliné, comme le schématise la figure 2.9, ce qui ne serait pas visible sur l'image 2.9. Cette inclinaison induit donc une erreur d'estimation Δz de la position de la surface, suivant la formule $\Delta z = 0.5\times$ L$\times \sin(\theta)$, où L est la longueur de l'échantillon et θ l'angle qui caractérise cet inclinaison. Pour L = 1.3 cm et $\theta \approx 1^{\circ}$, on a $\Delta z \approx 0.022$ cm, soit 220 μm.

La mesure de la longueur du plasma est présentée dans la partie suivante.

b) Mesure de la longueur du plasma

Sur la figure 2.10, nous présentons une image plasma acquise pour un délai de 90 ns après le maximum d'impulsion laser, avec une porte d'acquisition de 10 ns. La surface est représentée en tirets blancs à gauche de l'image.

Sur la même figure, nous présentons le profil d'intensité du plasma en fonction de la distance à la cible, calculé de la façon suivante :

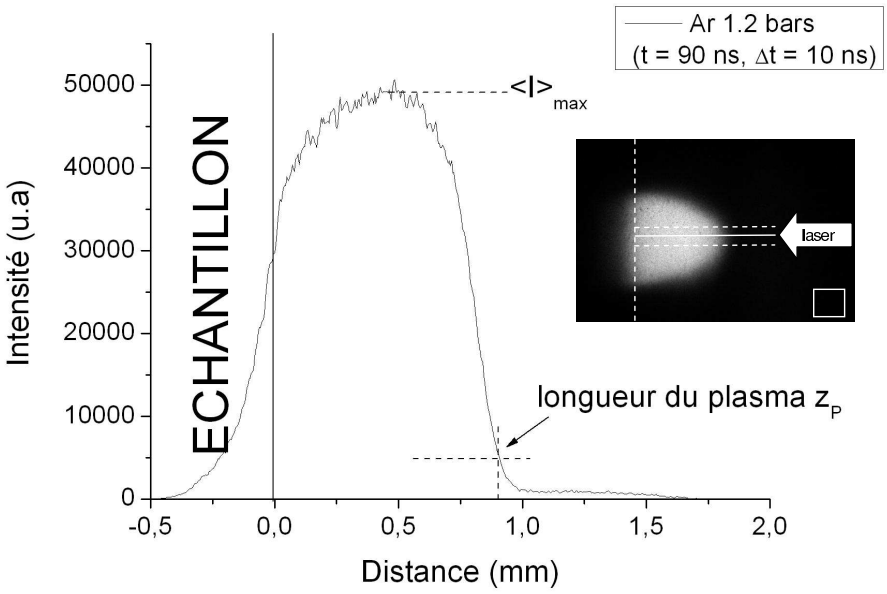

FIG. 2.10 - *Méthode de calcul du front de plasma.*

1. la valeur moyenne du fond de l'image est calculée en choisissant une zone sombre non perturbée par le plasma. Sur l'image, nous avons représenté cette zone par un carré blanc de 60 pixels de côté. La valeur du bruit de fond est alors calculée par la formule :

$$I_{\text{fond}} = \frac{1}{60^2} \sum_{i=1}^{60} \sum_{j=1}^{60} I(i,j)$$

2. l'axe de symétrie du plasma est repéré par une droite en trait plein.
3. deux droites en tirets sont définies symétriquement de part et d'autre de l'axe de symétrie. Ces droites sont séparées de 10 pixels. L'intensité moyenne du plasma dans cette bande de 10 pixels en fonction de la direction d'expansion z est donnée par la formule :

$$\bar{I}(z) = \frac{1}{10} \sum_{i=1}^{10} I(i)$$

Le profil I(z) est présentée sur la figure 2.10. Ce profil bruité est corrigé en ôtant la valeur du fond de l'image calculée précédemment.

Le plasma se propage uniquement dans la direction de propagation du faisceau laser. Son diamètre est celui de la tache laser en surface de la cible, et seule sa longueur z_P change en fonction du temps. Celle-ci est définie comme *la position pour laquelle l'intensité du plasma est égale à l'intensité maximale (moyenne) divisée par 10*. La position de la surface est prise comme origine z = 0. Ce calcul, et la façon dont est déterminée l'intensité maximale du signal, ont été précédemment utilisés dans la référence [1]. L'intensité maximale moyenne du plasma est calculée par la formule :

$$\bar{I}_{\text{MAX}} = \int_{\Delta z} I(z) \mathrm{d}z$$

où Δz est choisi arbitrairement. Sur l'image précédente, nous avons choisi Δz = [0.4 mm ; 0.6 mm].

Les paragraphes suivants détaillent le montage d'ombroscopie et la mesure de la position de l'onde de choc au cours du temps.

2.2.4 Montage d'ombroscopie

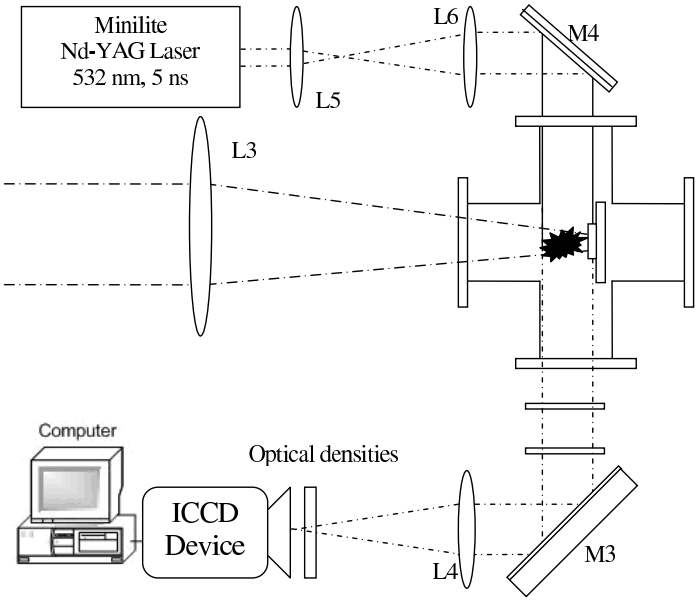

FIG. 2.11 - *Montage d'ombroscopie.*

Les mesures de la dynamique de l'onde de choc sont réalisées par ombroscopie. Cette méthode consiste à éclairer la phase gazeuse avec une impulsion laser et à observer en transmission, à l'aide d'une caméra CCD, l'ombre produite par cet éclairement. Les inhomogénéités de l'indice de réfraction dans la phase gazeuse, dues à des variations locales de la pression dans le plasma ou au passage de l'onde de choc, réfractent les rayons lumineux de l'impulsion laser de mesure. L'ombre produite permet de visualiser ces changements d'indice. Une image d'ombroscopie est proposée à titre d'illustration sur la figure 2.12.

Le système de mesure par ombroscopie est présenté sur la figure 2.11. Le laser d'éclairement est un laser Nd :YAG à 532 nm délivrant des impulsions de largeur à mi-hauteur 5 ns. Le faisceau est agrandi à l'aide d'un expanseur, constitué de deux lentilles convergentes L5 et L6, afin qu'il couvre une très grande zone dans la phase gazeuse. L'ombre formée est mesurée par le même système optique et la même caméra que ceux utilisés dans le montage d'imagerie.
L'ombre de la phase gazeuse est réalisée en appliquant, pour chaque image, une impulsion du laser de sonde. Cette ombre est visible pendant les 5 ns de l'impulsion, donc la résolution temporelle des images acquises par ombroscopie est 5 ns. L'impulsion du laser sonde est synchronisée avec celle du laser d'ablation avec un générateur de porte. La dynamique de l'onde de choc est étudiée au cours du temps

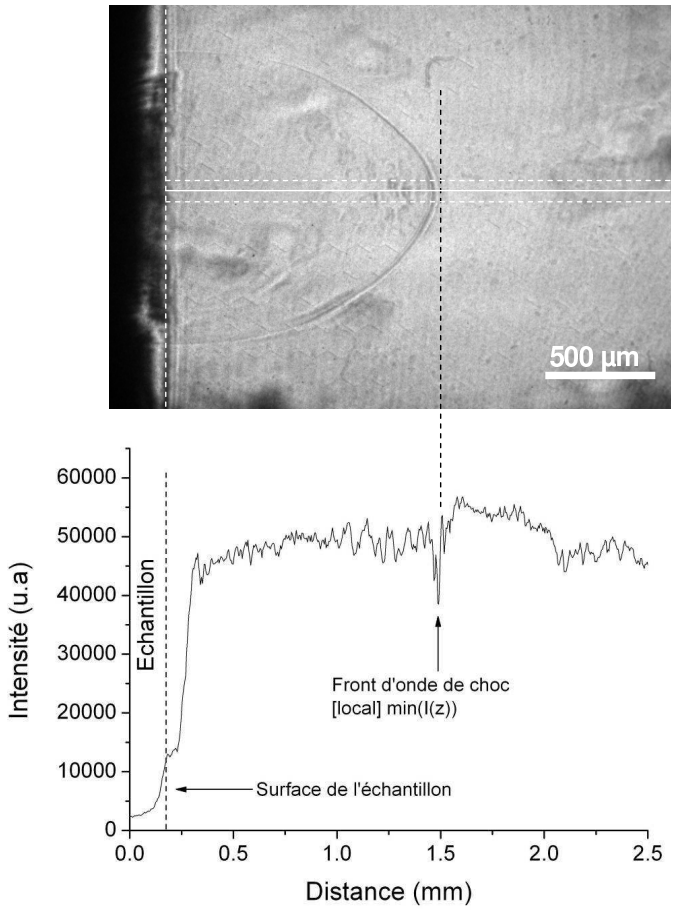

FIG. 2.12 - *Procédure de calcul de la position de l'onde de choc. Image acquise à t = 200 ns (Δt = 10 ns).*

en faisant varier le délai entre ces deux impulsions.

La position de l'onde de choc est repérée avec la même méthode de mesure de la longueur du plasma. Nous choisissons une bande de 10 pixels autour de l'axe de symétrie de l'onde de choc, puis nous représentons l'intensité moyenne de cette bande en fonction de la coordonnée d'expansion. Un exemple de profil obtenu pour t = 200 ns est présentée sur la figure 2.12. La position de l'onde de choc est repérée par une discontinuité dans la fonction I(z). Localement, la chute de l'intensité moyenne signifie que le laser sonde a été localement plus réfracté que pour les régions adjacentes. Cette réfraction correspond à un changement important de l'indice du milieu induit par une variation de la pression au passage de l'onde de choc.

2.2.5 Mesure de la profondeur des cratères par profilométrie

La profondeur des cratères d'ablation a été mesurée à l'aide d'un perthomètre mécanique. Le perthomètre est un appareil de mesure constitué d'une pointe montée sur trois axes de déplacement micrométriques piézoélectriques. La pointe est placée au contact de la surface et se déplace sur l'échantillon dans une direction donnée. Un capteur de mouvement enregistre le déplacement de la pointe dans un plan perpendiculaire à la surface, ce qui permet de mesurer le relief ou "profil" de la surface. Un

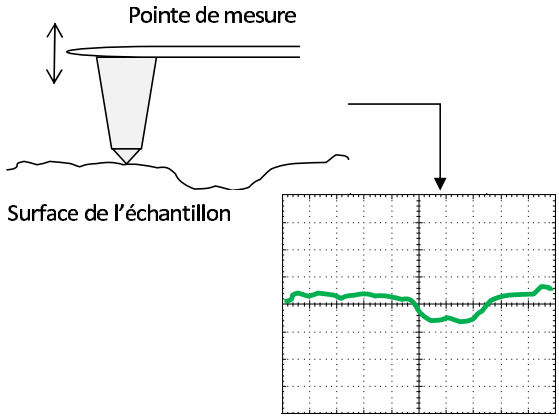

FIG. 2.13 - *Schéma de principe de la mesure par profilométrie mécanique.*

schéma illustrant le principe de la mesure est donnée en figure 2.13.
Un exemple de profil d'un cratère est illustrée sur la figure 2.14. Ce profil met en

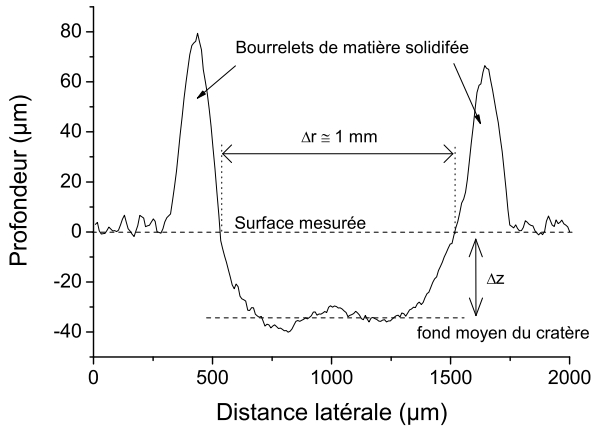

FIG. 2.14 - *Mesure d'un profil de cratère. 600 tirs laser ont été appliqués sur la cible.*

évidence deux zones : la première zone, qui s'étend de 500 μm à 1.5 mm, représente le cratère. En périphérie du cratère (r $\in$ [250-500]$\cup$[1500-1800]), deux pics de matière traduisent l'interaction plasma-couche liquide de cuivre : lors de son expansion, le plasma exerce une *pression de recul* sur la couche liquide. Celle-ci est alors en partie chassée vers l'extérieur du cratère, déborde en périphérie du cratère et se solidifie en partie, ce qui forme ces deux bourrelets. [1]
Le profil présenté est déformé par la géométrie de la pointe de mesure. La pointe est taillée avec un angle de 60°, ce qui lisse nécessairement les bords, comme le schématise la figure 2.15. En réalité, les bourrelets en périphérie ne sont pas aussi épais, et la taille du cratère, égale à 1 mm sur la figure 2.14, vaut 1.3 mm approximativement. Ce résultat a été mesuré précisément par microscopie électronique à balayage, et on retrouve alors le diamètre du spot en surface de cible. Cet élargissement induit n'est pas préjudiciable à la mesure de la profondeur, car il reste très faible par rapport au diamètre mesuré du cratère (1 mm). La partie du profil dans la zone r$\in$[500 μm-1.5 mm] contient suffisamment d'informations pour calculer la profondeur moyenne du

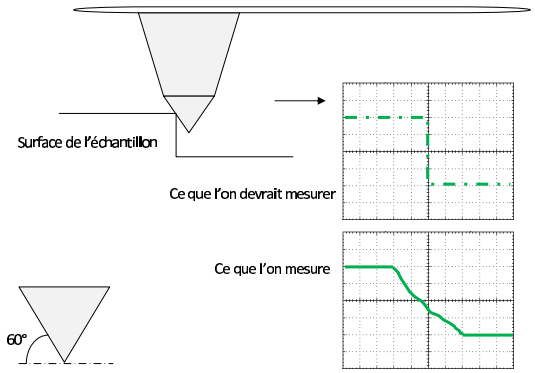

FIG. 2.15 - *Erreur de mesure induite par la géométrie de la pointe*

cratère, selon la formule :

$$\bar{z} = \int_{\Delta r} z(r)dr$$

où $\Delta r \approx 1$ mm dans le cas du profil 2.14. La résolution en profondeur de la mesure est de 500 nm. Il est donc impossible de mesurer la profondeur d'un cratère pour un seul tir, car les mesures montreront que l'épaisseur ablatée par tir vaut 40 nm. Au minimum, il faut donc 20 tirs sur un même cratère pour pouvoir réaliser une mesure par profilométrie de contact.

Enfin, notons que la profilométrie est utilisée pour déterminer :
- le seuil d'ablation de nos cibles de cuivre, c'est-à-dire l'irradiance minimale pour que l'ablation de la cible débute.
- l'épaisseur de la couche de matière ablatée par impulsion. Une série de cratères est réalisée à énergie donnée avec un nombre d'impulsions variables. En représentant la profondeur du cratère en fonction du nombre d'impulsions appliquées, on peut connaître la dynamique d'ablation à l'énergie laser choisie.

Les résultats issus de ces deux séries de mesure seront directement comparés aux résultats du modèle.

2.2.6 Mesure de la transmittivité du plasma.

La transmittivité du plasma en fonction de l'énergie du faisceau incident est mesurée en comparant le profil temporel de l'impulsion incidente à celui de l'impulsion arrivant sur la surface de la cible. Le principe consiste à mesurer le profil temporel de l'impulsion à partir d'une fraction du faisceau qui a traversé et donc interagi avec le plasma. La figure 2.16 présente le montage expérimental associé à cette expérience. [1]
Le profil temporel de l'impulsion incidente est mesuré à l'aide d'une photodiode placée en sortie du laser devant une lame de verre, qui réfléchit une partie du faisceau incident (cf. section 2.2). Le profil de l'impulsion après interaction avec le plasma, c'est-à-dire celui qui arrive en surface de l'échantillon, est mesuré à l'aide d'une seconde photodiode placée derrière l'échantillon. Dans ce dernier, un trou a été percé et chaque impact laser est réalisé de façon à ce que le trou soit au centre du spot en surface. La seconde photodiode mesure une diffusion du faisceau par un échantillon diffusif, dans notre cas une plaque d'acier dépoli.

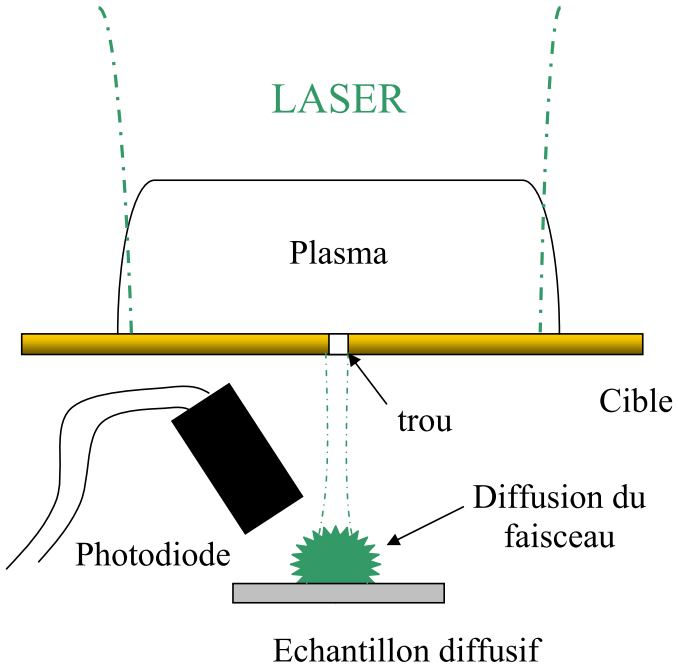

FIG. 2.16 - *Mesure de l'atténuation du faisceau.*

Pour des raisons de place, il a fallu enlever la chambre à vide et travailler en flux gazeux. Autrement dit, le gaz ambiant (l'hélium et l'argon dans cette expérience) est maintenant soufflé au niveau de l'impact laser. De plus, nous avons obligatoirement travaillé avec des échantillons moins épais : dans cette expérience, nous utilisons des feuilles de cuivre de 30 μm d'épaisseur. En effet, les trous percés dans l'échantillon font 15 μm de diamètre, trous que nous avons réalisés par micro-usinage. Il était en effet impossible de percer de tels trous dans des échantillons d'épaisseur 2 mm. Pour assurer la planéité des feuilles de cuivre durant l'expérience, une bague spéciale a été conçue pour tendre les feuilles.
La raison de l'utilisation de trous de 15 μm est la suivante : pour mesurer la transmittivité du plasma, il faut que le plasma ait "recouvert" le trou pendant l'impulsion laser, sinon l'impulsion mesurée sera identique à l'impulsion laser initiale. Cette configuration est présentée sur la figure 2.17. Pour un grand diamètre (a) ($\propto$ 500 μm, le temps que met le plasma pour recouvrir intégralement le trou est supérieur à la durée d'impulsion 6 ns. Dans ce cas, le profil mesuré est dû à une superposition du profil de l'impulsion incidente et du profil écranté aux bords. Un trou d'une dimension de quelques microns de diamètre (b) suffit à corriger le problème. L'ordre de grandeur du diamètre du trou peut être estimé de façon analytique.
Supposons que, pour une mesure fiable, le plasma devrait avoir recouvert le trou en 1 ns au maximum. Ce temps semble raisonnable par rapport à la durée d'impulsion τ = 6 ns. La distance que parcourt le plasma pendant une durée de 1 ns vaut en première approximation z = 2 $\bar{v}\times$ 1 ns, où $\bar{v}$ est la vitesse moyenne du plasma pendant cette expansion. Le facteur 2 vient du fait que deux petits plasmas sont créés autour du cratère pour se rejoindre en couvrant le trou. L'ordre de grandeur de cette vitesse est donné par les résultats de calculs au chapitre 4. Pour I = 1.9 GW.cm^{-2}, l'application numérique donne $\bar{v} \approx 10^4$ m.s^{-1}, et donc z $\approx$ 20 μm. Le plasma recouvre effectivement un trou de 15 μm bien avant la fin de l'impulsion.

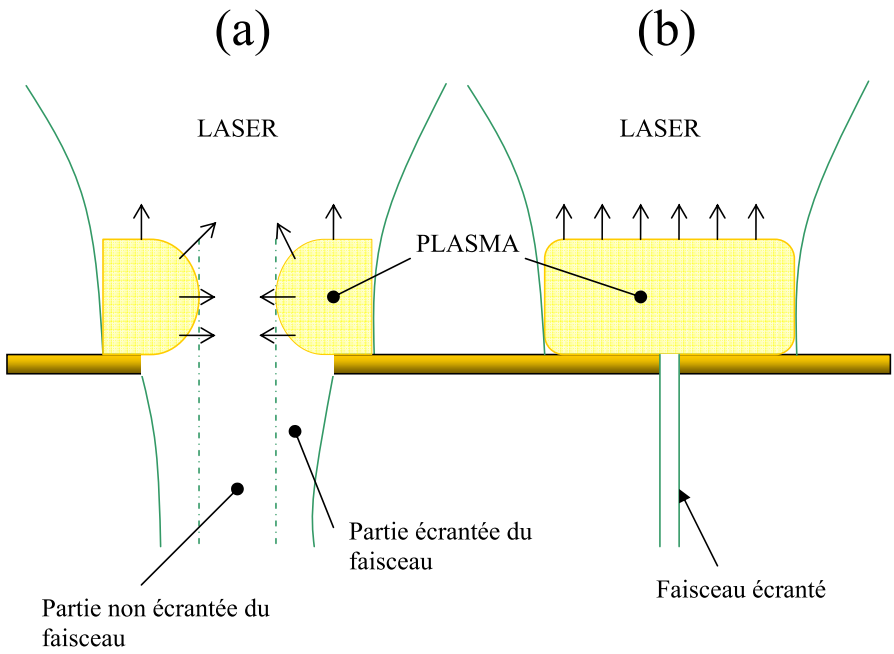

FIG. 2.17 - *Influence du diamètre du trou sur la mesure de transmittivité. (a) grand diamètre (b) petit diamètre.*

Dans cette expérience, les résultats expérimentaux ont été réalisés en monotir, pour deux raisons :

1. En premier lieu, la fusion du matériau et les mouvements de liquide entraînent souvent le rebouchage du trou après un tir. La cible est donc constituée de plusieurs trous sur lesquels un seul tir est appliqué.
2. la feuille étant peu épaisse, quelques dizaines de tirs suffisent à la déchirer, du fait de l'ablation du cuivre due au faisceau laser, à l'interaction plasma-cible (chauffage, pression de recul...).

Avant chaque série de mesures, nous vérifions qu'à faible énergie (puisque l'impulsion laser incident ne crée pas de plasma en surface de cible), le profil transmis doit être identique au profil du rayonnement incident.

Dans cette section, les principaux diagnostics du plasma et les mesures relatives à l'ablation ont été présentés. Dans la section suivante, la composition et les propriétés thermophysiques des cibles sont présentées. La dernière partie de la section est consacrée à la mesure de la réflectivité des cibles de cuivre, paramètre qui joue un rôle essentiel lors de l'interaction entre le laser et la cible.

2.3 Caractérisation de nos cibles de cuivre.

2.3.1 Composition de l'échantillon.

Les cibles de cuivre sont des cibles à surface carrée de 1,3 cm de côté. Chaque cible a été décapée par sablage afin d'éliminer les saletés et la couche d'oxyde en surface du matériau. La composition des cibles a été estimée à l'aide d'une analyse LIBS à caractère semi-quantitatif. Cette analyse permet de connaître la composition des

cibles, pour les éléments majeurs (le cuivre) et mineurs (les traces d'autres éléments). Celle-ci est donnée dans le tableau 2.2.

TAB. 2.2 - *Composition des cibles de cuivre utilisées.*

Cu	99.74 %
Al	0.01%
Ca	0.01%
Si	0.23 %
Na	0.01%
total	100 %

La présence des traces n'a pas d'influence sur les résultats présentés dans ce manuscrit. Les cibles sont constituées de cuivre avec des traces d'aluminium et de silicium provenant du sablage. Le calcium et le sodium sont déposés lors de la manipulation des cibles.

La section suivante présente les propriétés thermophysiques des cibles.

2.3.2 Définition des propriétés thermophysiques de nos cibles de cuivre.

Les propriétés du métal utilisées dans notre modèle sont listées dans le tableau 2.3. Toutes les données regroupées dans ce tableau sont données à la température

TAB. 2.3 - *Propriétés thermomécaniques du cuivre utilisées dans notre modèle. Les données sont données à T = 300 K [3].*

Paramètre	unité	Valeur
Masse volumique, ρ	$kg.m^{-3}$	8960 (solide), 8900 (liquide)
Masse molaire, M_v	$kg.mol^{-1}$	$63,54.10^{-3}$
Masse atomique, m_v	kg	$1,05.10^{-25}$
Coefficient d'absorption linéique, α	m^{-1}	$2.46.10^{7}$ (à 532 nm)
Coefficient de réflexion, $\mathbb{R}$	–	0,34
Température de fusion, T_m	K	1358
Température d'ébullition, T_b	K	2836
Chaleur latente de fusion, Q_m	$J.m^{-3}$	$1,89.10^{9}$
Chaleur latente d'évaporation, Q	$J.mol^{-1}$	$3,05.10^{5}$
Premier potentiel d'ionisation, θ_1	eV	7,73
Second potentiel d'ionisation, θ_2	eV	20,29

ambiante T = 300 K. En réalité, les propriétés thermomécaniques et optiques d'un matériau dépendent de la température. Mais la connaissance de ces dépendances est essentiellement fondée sur le nombre et la qualité des travaux publiés dans la littérature. Le cuivre est un matériau assez bien connu et l'évolution de la plupart de ses propriétés en fonction de la température a été largement étudiée au cours du siècle dernier. Cela concerne par exemple la conductivité thermique ou la capacité thermique. Mais certaines dépendances restent très difficiles à trouver, ou bien elles

n'ont jamais été publiées. C'est le cas des propriétés optiques telles que la réflectivité ou l'absorptivité linéique.

La conductivité thermique et la capacité thermique sont modélisées par les expressions suivantes : [4, 5]

$$\kappa(T) = \begin{cases} -2.10^{-5}\ T^2 - 0.0347\ T + 409.96 & \text{si T}\leqslant T_f \\ 8.10^{-10}\ T^3 - 2.10^{-5}\ T^2 + 0.0632\ T + 109.92 & \text{si T} > T_f \end{cases}$$

De même, la capacité thermique à pression constante est donnée par la fonction :

$$C_p(T) = \begin{cases} 0.1147\ T + 354.04 & \text{si T}\leqslant T_f \\ 494 & \text{si T}\geqslant T_f \end{cases}$$

Il existe très peu de publications montrant la dépendance en température des paramètres optiques de la cible, c'est-à-dire la réflectivité et l'absorptivité linéique. A notre connaissance, il n'existe aucune publication traitant de la dépendance en température du coefficient d'absorption du cuivre. A ce titre, nous choisissons un coefficient constant $\alpha = 2{,}56.10^7\ \text{m}^{-1}$, dont la valeur découle de l'indice d'absorption du matériau à 532 nm [3]. Ce point génère des incertitudes pour le caractère réaliste du modèle, car Wu a montré, à partir d'un couplage expérience-modélisation dans le cas de l'ablation laser de cibles d'aluminium, que la dépendance en température du coefficient d'absorption pour des températures proches de la température critique, influence très fortement la dynamique d'ablation [6].

La dépendance en température du coefficient de réflexion est généralement mesurée en associant deux dignostics : il s'agit de mesurer, à l'aide d'une sphère intégrante, le coefficient de réflexion du matériau pour différentes intensités laser. En parallèle est mesurée pour chaque énergie, par pyrométrie optique, la température du matériau. Dans la littérature, il n'existe pas, à notre connaissance, de résultats publiés pour la longueur d'onde 532 nm. Nous ne pouvons citer que les travaux de N.G. Basov sur la mesure de réflectivité de différents métaux irradiés par un laser Nd :YAG (1064 nm) (cf. figure 2.18). Cette étude montre qualitativement que le coefficient de réflexion du cuivre chute au cours du chauffage, pouvant atteindre des valeurs inférieures à 10 %. Il est extrêment difficile de mesurer ce coefficient de réflexion pour deux raisons :

- Pour des éclairements supérieurs à 400 MW.cm^{-2}, il y a formation d'un plasma qui absorbe une partie du rayonnement incident et réfléchi.
- La réflectivité dépend fortement de l'état de surface du matériau. Un matériau poli réfléchira près de 100 % de la lumière tandis qu'un matériau rugueux en réfléchira une plus faible partie. Lorsque les mesures sont réalisées à l'aide d'un laser pulsé, il faut tenir compte du changement de l'état de surface à chaque tir, ce qui peut fausser les mesures.

Nous n'avons pas mesuré la dépendance en température du coefficient de réflexion. En revanche, nous avons mesuré ce coefficient à température ambiante. Le coefficient de réflexion peut être décomposée comme la somme de deux termes : une partie est la réflexion spéculaire, dans la même direction que le faisceau incident, et une partie la réflexion diffuse, dans toutes les directions. On écrit donc :

$$R = \frac{P_{\text{spec}} + P_{dif}}{P_{\text{inc}}}$$

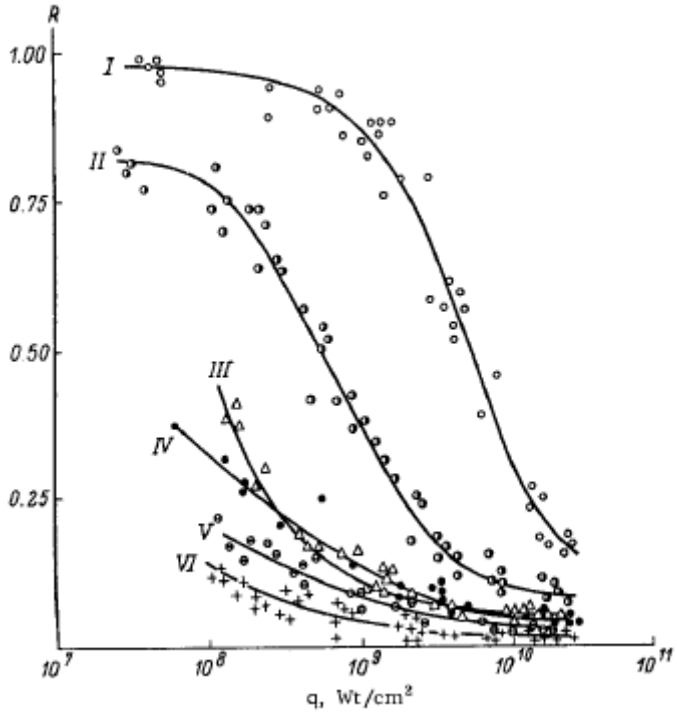

FIG. 2.18 - *Variation du coefficient de réflexion de plusieurs matériaux en fonction de l'énergie laser incidente ; (I) Teflon, (II) Aluminium, (III) étain, (IV) cuivre, (V) ebonite, (VI) carbone. (image extraite de [7])*

où P_{spec}, P_{dif} et P_{inc} sont respectivement la mesure de puissance mesurée du faisceau réfléchi par réflexion spéculaire, par réflexion diffuse, et celle du faisceau incident. La puissance P_{spec} est mesurée à l'aide d'un spectrophotomètre, à partir du montage présenté sur la figure 2.19.

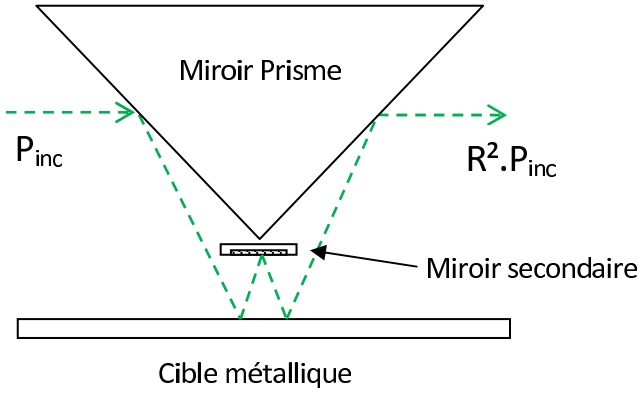

FIG. 2.19 - *Schéma du montage de mesure de la réflectivité à 10°.*

Le montage en W permet de mesurer le coefficient de réflexion à 10°. En première approximation, nous considérerons que cette valeur est identique à celle que nous aurions obtenue pour une incidence normale. Notons que l'expérience permet de mesurer le carré du coefficient de réflexion, puisque le faisceau incident est ré-

fléchi deux fois sur la cible métallique. A 532 nm, nous mesurons que la réflectivité spéculaire est nulle.

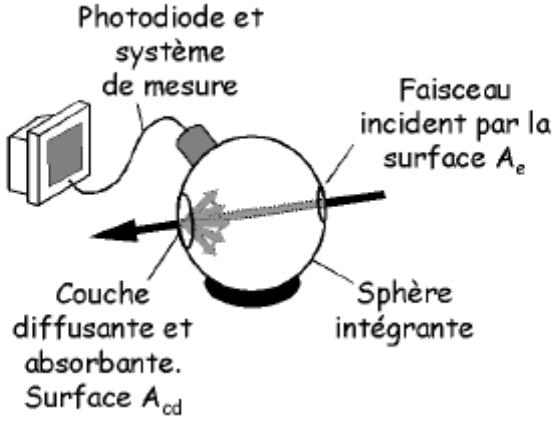

FIG. 2.20 - *Mesure de la réflectivité diffuse par sphère intégrante.*

La mesure du coefficient de réflectivité diffuse est réalisée à l'aide d'une sphère intégrante dont un schéma illustratif est présenté en figure 2.20. Un faisceau incident (dans notre cas, provenant d'une laser HeNe à 532 nm) entre dans la sphère intégrante. Les faisceaux lumineux diffusés, provenant de n'importe quel point de la surface interne de la sphère, sont distribués de façon égale à tous les autres points de la sphère et ceci indépendamment de la direction originale de la lumière. L'intégration de ce rayonnement diffus sur l'ensemble de la surface diffusante permet d'estimer la puissance lumineuse diffusée, et donc de mesurer le coefficient de réflexion diffuse. Dans notre cas, nous mesurons $R_{dif} = P_{dif}/P_{inc} \approx 0.34$.

Nous pouvons donc conclure que 34 % du rayonnement incident à 532 nm est diffusé en surface des échantillons. Ceux-ci font 2 mm d'épaisseur et il est sûr que le rayonnement ne peut traverser une telle épaisseur. La partie du rayonnement qui n'est pas diffusé est alors obligatoirement absorbé dans la cible. Nous en concluons de plus que 66% du rayonnement est absorbé dans la cible.

Le chapitre 3 décrit le schéma numérique qui a servi à résoudre les différentes équations présentées dans le chapitre 1.

Liste des Références du chapitre 2.

[1] B. Sallé. *Etude de l'interaction laser-matériau appliquée à l'analyse élementaire des solides.* Thèse de doctorat, Université d'Orléans, 1999.

[2] S. S. Harilal, C. V. Bindhu, M. S. Tillack, F. Najmabadi, and A. C. Gaeris. Internal structure and expansion dynamics of laser ablation plumes into ambient gases. *Journal of Applied Physics*, 93(5) :2380–2388, 2003.

[3] D. R. Lide. *Handbook Of Chemistry And Physics.* CRC Press, 2009.

[4] Y. S. Touloukian. *Thermal conductivity : metallic elements and alloys.* New York, IFI/Plenum, 1970.

[5] Y. S. Touloukian. *Specific heat : metallic elements and alloys.* New York, IFI/Plenum, 1970.

[6] B. X. Wu and Y. C. Shin. Absorption coefficient of aluminum near the critical point and the consequences on high-power nanosecond laser ablation. *Applied Physics Letters*, 89(11), 2006.

[7] N. G. Basov, V. A. Boiko, O. N. Krokhin, O. G. Semenov, and G. V. Sklizkov. Reduction of reflection coefficient for intense laser radiation on solid surfaces. *Soviet Physics Technical Physics-ussr*, 13(11) :1581–&, 1969.

Description du code pour la modélisation de l'interaction laser-matière en régime nanoseconde

3

Sommaire

3.1 Schéma de volumes finis. 63
3.2 Résolution de l'équation de la chaleur. 64
3.2.1 Discrétisation de l'équation de la chaleur 64
3.2.2 Construction du maillage de résolution 66
3.2.3 Méthode de résolution 66
3.2.4 Conditions initiales - Conditions aux limites 67
3.3 Résolution des équations d'Euler. 68
3.4 Gestion de l'évaporation et de la condensation 73
3.4.1 Cas d'une ablation 73
3.4.2 Cas d'une condensation. 75
3.4.3 Présentation des résultats 76
3.5 Résolution des équations de Saha 78

Ce chapitre présente l'architecture du schéma utilisé pour modéliser les plasmas produits par laser. Celui-ci est divisé en deux parties : le calcul du champ de température dans le matériau est résolu par un schéma de volumes finis. Un second schéma de volumes finis est utilisé pour résoudre les équations d'Euler dans la phase gazeuse. Les deux schémas sont liés par les conditions à l'interface liquide-vapeur. Pour chaque schéma seront présentés le maillage, la discrétisation des équations mises en jeu et la méthode de résolution, et les conditions aux limites. En premier lieu, nous rappelons la structure d'un schéma de volumes finis.

3.1 Schéma de volumes finis.

La dénomination de volumes finis est un mode de construction de schémas des lois de conservation. Ce n'est pas une méthode de résolution, mais uniquement la façon dont les équations sont discrétisées dans le système à résoudre.
Le domaine de résolution spatiale Ω est divisé en *cellules* (ou maille) $\left[z_{\text{j-1/2}},\ z_{\text{j+1/2}}\right]$, où $z = z_{\text{j+1/2}}$ est appelée *interface* de la cellule. Le temps T d'étude des phénomènes est discrétisé en *intervalles de temps* $\left[t^n,\ t^{n+1}\right]$, où t^n est simplement appelé temps 'n'. Le pas d'espace et le pas de temps sont respectivement définis par les grandeurs $\Delta z_j = z_{\text{j+1/2}} - z_{\text{j-1/2}}$ et $\Delta t^n = t^{n+1} - t^n$. Cette définition implique :

$$Z_\Omega = \sum_j \Delta z_j$$
$$T = \sum_n \Delta t^n$$

où Z_Ω est la taille du domaine de résolution spatialle.
La forme d'un schéma de volumes finis s'appuie sur la forme intégrale des lois de conservation. Pour une grandeur u conservée, exprimée au centre d'une cellule j, et en notant f le flux de cette grandeur aux interfaces $z_{j+1/2}$, on obtient :

$$\int_{z_{j-1/2}}^{z_{j+1/2}} \left[u(z,t^{n+1}) - u(z,t^n)\right]\ \mathrm{d}z = -\int_{t^n}^{t^{n+1}} \left[f(u(z_{j+1/2},t)) - f(u(z_{j-1/2},t))\right]\ \mathrm{d}t$$

Cette forme intégrale est discrétisée de la façon suivante :

$$\bar{u}_j^{n+1} = \bar{u}_j^n - \lambda\left(\hat{f}_{j+1/2}^n - \hat{f}_{j-1/2}^n\right) \tag{3.1}$$

où :

$$\bar{u}_j^n = \frac{1}{\Delta z_j}\int_{z_{j-1/2}}^{z_{j+1/2}} u(z,t^n)\mathrm{d}z \tag{3.2}$$
$$\hat{f}_{j+1/2}^n = \frac{1}{\Delta t^n}\int_{t^n}^{t^{n+1}} f(u(z_{j+1/2},t)\mathrm{d}t \tag{3.3}$$
$$\lambda = \frac{\Delta t^n}{\Delta z_j} \tag{3.4}$$

Dans les expressions ci-dessus, les grandeurs barrées sont moyennées sur un pas d'espace, tandis que les grandeurs avec un chapeau sont moyennées sur un pas de temps. Les grandeurs $\hat{f}_{j+1/2}^n$ sont appelées *flux numériques conservatifs*.
L'équation (3.1) décrit l'évolution de la grandeur u_j^n du temps 'n' au temps 'n+1'. Dans une méthode *explicite*, les termes à droite du signe '=' sont exprimés uniquement au temps 'n' : la résolution permet de calculer les inconnues u_j^{n+1} au temps 'n+1' en fonction des grandeurs connues au temps 'n'. Dans une méthode *implicite*, ces termes peuvent également dépendre des grandeurs au temps 'n+1', ce qui conduit à des méthodes de résolution plus complexes.

D'une façon générale, trois critères assurent une précision correcte pour le calcul de la solution numérique : la consistance de l'équation discrétisée, la stabilité et la convergence de la solution à l'Equation aux Derivées Partielles (EDP).

Définition 3.1 *Une équation discrétisée est* consistante *à une équation différentielle si, pour toute solution suffisamment régulière de cette équation, l'erreur de troncature (c'est-à-dire la différence entre l'équation discrétisée et l'équation différentielle) tend uniformément vers zéro par rapport à (t,z) lorsque les pas d'espace et de temps (Δz, Δt) tendent vers zéro.*
Lorsque l'erreur de troncature tend vers 0 comme $O\left((\Delta z)^p + (\Delta t)^q\right)$ lorsque Δz et Δt tendent vers zéro, on dit alors que le schéma est précis à l'ordre p en espace et à l'ordre q en temps.

La stabilité est une propriété de la solution d'une équation différentielle (ordinaire ou aux dérivées partielles). La solution peut être une solution exacte ou une solution numérique (résultant d'une discrétisation). Nous reprenons la définition de Grégoire allaire décrite dans [1]. Dans cette définition, nous avons besoin d'utiliser la norme $||\ \ ||_p$ bien connue dont la définition est la suivante :

$$||u^n||_p = \left(\sum_{i=0}^{N} \Delta_x \left|u_j^n\right|^p\right)^{1/p} \quad \text{pour } 1 \leqslant p \leqslant +\infty \tag{3.5}$$

La stabilité d'un schéma est alors définie de la façon suivante.

Définition 3.2 *Un schéma aux différences finies est dit stable pour la norme $||\ \ ||_p$ s'il existe une constante K>0 indépendante de Δt et Δz (lorsque ces valeurs tendent vers 0) telle que :*

$$||u^n||_p \leqslant K \,.\, ||u^0||_p \text{ pour tout } n \geqslant 0 \tag{3.6}$$

quelle que soit la donnée initiale u^0.
Si (3.6) n'a lieu que pour des pas Δt et Δz astreints à certaines inégalités, on dit que le schéma est ***conditionnellement stable.***

Enfin, la convergence est une propriété de la **solution numérique**.

Définition 3.3 *La solution numérique d'une EDP est dite convergente si elle tend vers la solution exacte de cette équation quand Δt et Δz tendent vers 0.*

Les deux sections suivantes décrivent les schémas utilisés pour résoudre l'équation de la chaleur et les équations d'Euler. Dans chaque paragraphe, l'équation discrétisée et la méthode de résolution sont présentées. Le maillage utilisé pour la résolution est également décrit. Enfin, les résultats sur la consistance de l'équation discrétisée, la stabilité et la convergence de la solution sont présentés.

3.2 Résolution de l'équation de la chaleur.

3.2.1 Discrétisation de l'équation de la chaleur

L'équation de la chaleur 1.1 est résolue en utilisant un schéma 1D de volumes finis *implicite*. La température discrète et les flux numériques sont exprimés par :

$$T_j^n = \frac{1}{\Delta z_j} \int_{z_{j-1/2}}^{z_{j+1/2}} T(z, t^n) \mathrm{d}z \tag{3.7}$$

$$f_{j+1/2}^{n+1} = \frac{1}{\Delta t^n} \int_{t^n}^{t^{n+1}} \kappa \left(T(z_{j+1/2}^{n+1}, t)\right) \left.\frac{\partial T}{\partial z}\right|_{j+1/2} \mathrm{d}t \tag{3.8}$$

Nous omettons les barres et chapeaux utilisés pour noter des grandeurs moyennées dans l'espace et le temps. En notant $\rho(T(z_{j+1/2}^{n+1}, t^n) = \rho_j^n$, $C_p(T(z_{j+1/2}^{n+1}, t^n) = Cp_j^n$ et $\kappa(T(z_{j+1/2}^{n+1}, t^n) = \kappa_j^n$, l'équation 1.1 discrétisée s'écrit :

$$\rho_j^n \; Cp_j^n \; \Delta z_j \frac{T_j^{n+1} - T_j^n}{\Delta t} = \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j+1/2} \left(T_{j+1}^{n+1} - T_j^{n+1} \right) + \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j-1/2} \left(T_{j-1}^{n+1} - T_j^{n+1} \right) + \alpha(1 - \mathbb{R}_f) I_{-1/2} \exp\left(-\alpha z_{j+1/2}\right) \tag{3.9}$$

où $I_{-1/2}$ est la valeur de l'éclairement laser en surface de la cible. Cette valeur est donnée par la loi de Beer-Lambert (1.59) lorsque la structure et l'absorptivité de l'écoulement ont été déterminées dans la phase gazeuse. Le coefficient α est considéré constant, et le coefficient $\mathbb{R}_f$ est pris égal à sa valeur mesurée présentée dans le chapitre 2 : $\mathbb{R}_f = 0.34$.

L'expression du flux numérique à l'interface j+1/2 s'appuie sur l'hypothèse selon laquelle le flux est constant sur un pas de temps, et sa valeur est celle donnée au temps 'n+1'. L'intégration de (3.8) donne :

$$f_{j+1/2}^{n+1} \approx \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j+1/2} \left(T_{j+1}^{n+1} - T_j^{n+1} \right) \tag{3.10}$$

où le terme $\langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j+1/2}$ est donné par la moyenne harmonique :

$$\langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j+1/2} = \frac{2}{\frac{\Delta z_j}{\kappa_j^{n+1}} + \frac{\Delta z_{j+1}}{\kappa_{j+1}^{n+1}}} \tag{3.11}$$

La valeur numérique de la conductivité thermique est normalement exprimée au temps 'n+1', mais pour simplifier la méthode de résolution, nous supposerons que $\kappa_j^{n+1} \approx \kappa_j^n$. De même, nous supposerons que $\mathrm{Cp}_j^{n+1} \approx \mathrm{Cp}_j^n$ et $\rho_j^{n+1} \approx \rho_j^n$. Ces hypothèses sont raisonnables pour des pas de temps très courts (en pratique nous avons $\Delta t \approx 10^{-12}$ s) qui impliquent une variation très faible de ces coefficients.

Les propriétés de consistance de ce schéma et de stabilité et de convergence de la solution ont été établies dans de nombreux ouvrages. Ces propriétés sont rappelées grâce aux trois théorèmes suivants. Les démonstrations de ces théorèmes peuvent être trouvées dans tout livre sur la résolution des équations aux dérivées partielles (par exemple [2, 3]).

Théorème 3.1 *La discrétisation est consistante, au sens des différences finies, avec l'équation 1.1 à l'ordre 2 en espace et 1 en temps : l'erreur de troncature tend vers 0 lorsque Δt et Δz tendent vers 0 comme $O\left((\Delta z)^2 + \Delta t\right)$*

La résolution au premier ordre en espace est cohérente avec le fait que nous résolvons les équations d'Euler à l'ordre 1. Ce point sera aborbée dans la partie suivante.

Théorème 3.2 *Avec un choix adapté des conditions aux limites, le schéma implicite de l'équation de la chaleur est inconditionnellement stable.*

Autrement dit, la solution numérique est stable quel que soit le choix des pas de temps et d'espace.

La section suivante présente le maillage construit pour calculer les valeurs de températures à l'instant 'n+1'.

3.2.2 Construction du maillage pour la résolution de l'équation de la chaleur discrétisée

L'absorption du laser dans la cible est réalisée sur une distance de l'ordre de l'épaisseur de pénétration optique δ. Il apparaît donc logique que le maillage soit plus fin dans cette zone, c'est-à-dire que le pas d'espace localement soit choisi beaucoup plus petit que δ ($\approx$ 80 nm dans nos conditions). Le maillage spatial sur lequel est discrétisée l'équation de la chaleur est un maillage régulier avec un pas d'espace constant Δz = 5 nm. Ce pas d'espace a été choisi pour obtenir une précision suffisante pour les résultats numériques tout en minimisant le nombre de mailles dans le domaine de calcul. Ce domaine est choisi égal à 10 μm, soit 10 fois la profondeur de diffusion de la chaleur $z_{th} = \sqrt{2\xi\tau} \approx 1$ μm pour $\tau = 6$ ns. Le nombre de cellules J du maillage vaut donc J = 2000. A z = 10 μm, on peut considérer que la cible n'a pas été affectée par la diffusion de la chaleur :

$$T(z = 10\ \mu m, t) = T_{\text{amb}} = 300K, \quad \forall t \geqslant 0. \tag{3.12}$$

Le pas de temps est déterminé dans la phase gazeuse par la condition CFL, qui assure la stabilité du schéma utilisé pour décrire les équations d'Euler. [4]

La méthode de résolution de l'équation (3.1) sur le maillage ainsi défini est présentée dans la section suivante.

3.2.3 Méthode de résolution

La résolution de l'équation (3.1) se réduit à un problème d'inversion de matrice : $M \,.\, T^{n+1} = T^n$, où M est une matrice tridiagonale carrée de taille J×J, et T^n le vecteur température à l'instant 'n', c'est-à-dire le vecteur contenant les valeurs de la température à l'instant 'n' dans chaque cellule du maillage. On note :

$$M = \begin{pmatrix} 1 & 0 & \dots & & & & \\ m_{21} & m_{22} & m_{23} & 0 & \dots & & \\ 0 & m_{31} & m_{32} & m_{33} & 0 & \dots & \\ & & & \ddots & & & \\ & & \dots & 0 & m_{J-2} & m_{J-1} & m_J \\ & & & & \dots & 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad T^n = \begin{pmatrix} T_0^n \\ T_1^n \\ \vdots \\ \vdots \\ T_{J-1}^n \\ T_J^n \end{pmatrix}$$

avec :

$$\begin{cases} m_{j,j-1} = -\frac{\Delta t}{\Delta z_j\ \rho_j^n\ Cp_j^n}\ \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j-1/2} \\ m_{j,j} = 1 + \frac{\Delta t}{\Delta z_j\ \rho_j^n\ Cp_j^n}\ \left(\langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j-1/2} + \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j+1/2} \right) \\ m_{j,j+1} = -\frac{\Delta t}{\Delta z_j\ \rho_j^n\ Cp_j^n}\ \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{j+1/2} \end{cases}$$

Le calcul du vecteur T^{n+1} est réalisé à l'aide de la méthode du balayage de Choleski [2]. Cette méthode évite de calculer l'inverse de la matrice M et est simple à implémenter. Elle nécessite toutefois la donnée d'une condition initiale et de deux conditions aux limites en bord du domaine de résolution, conditions qui sont

présentées dans le paragraphe suivant.

3.2.4 Conditions initiales - Conditions aux limites

La température initiale du matériau est prise égale à la température ambiante :

$$T_j^0 = 300, \ \forall j \tag{3.13}$$

La condition (3.12) est imposée numériquement par une condition de Neumann : [3]

$$T_J^n = 300, \ \forall \ n \geqslant 0 \tag{3.14}$$

La température en z = 0 est calculée en utilisant la relation (1.13) et en modifiant le flux numérique $f_{-1/2}$ de l'équation (3.1) de la façon suivante :

$$\rho_0^n C p_0^n \Delta z_0 \frac{T_0^{n+1} - T_0^n}{\Delta t} = \langle \frac{\kappa}{\Delta z} \rangle_{1/2} \left(T_1^{n+1} - T_0^{n+1}\right) - \rho_K v_K \left(Q(T) + h_K + \frac{v_K^2}{2}\right) + \alpha(1-\mathbb{R}_f) I_{-1/2} \tag{3.15}$$

pour $v_K > 0$. Dans le cas de la condensation, l'équation précédente est toujours valable, mais le terme Q(T) disparaît.

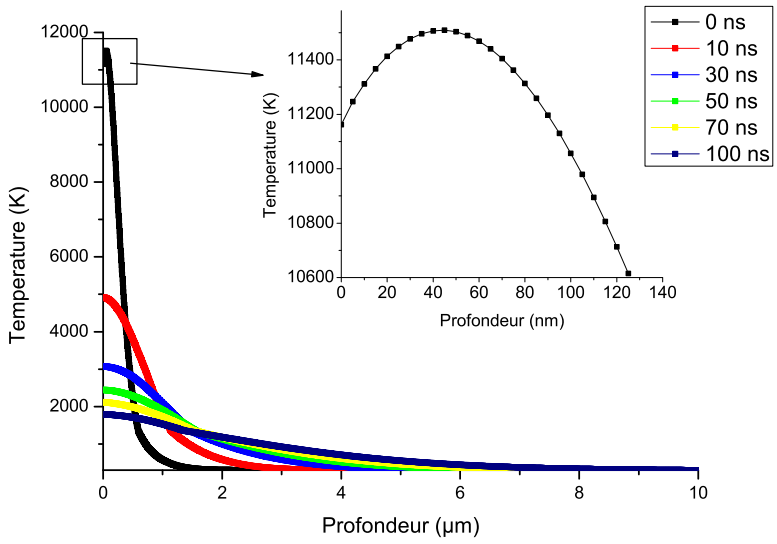

FIG. 3.1 - *Profils de température dans la cible calculées à différents temps pour une énergie d'impulsion 150 mJ, et l'argon à 1 bar comme gaz ambiant.*

La figure 3.1 présente plusieurs profils de température dans le matériau à différents temps de calcul. L'utilisation de l'équation discrétisée (3.15) implique que la surface de la cible est plus froide que des couches à quelques dizaines de nanomètres de profondeur. Sur le profil calculé à t = 0 ns (maximum d'impulsion), la température est maximale à 50 nm de profondeur. Cette température plus faible en surface traduit physiquement le fait que la matière évaporée emporte une partie de l'énergie thermique de cible, sous forme cinétique et thermique (cf. Chapitre 1). Pour les temps plus longs, le gradient thermique en surface redevient positif du fait

de la conductivité thermique dans le métal.

La condition aux limites (3.15) ne peut être résolue que lorsque les propriétés de l'écoulement en sortie de la couche de Knudsen sont connues. Mais ces propriétés sont liées d'une part à la température de surface T_0^{n+1} et d'autre part aux propriétés de l'écoulement. Il faut donc en premier lieu déterminer les propriétés de l'écoulement en entier. Le schéma servant à la résolution des équations d'Euler est présenté dans la section suivante.

3.3 Résolution des équations d'Euler.

Le schéma utilisé pour la résolution des équations d'Euler est un schéma lagrangien développé par B. Després [5]. Ce schéma est un schéma de volumes finis explicite. Le paragraphe suivant résume les résultats établis par B. Després. Pour les démonstrations associées aux lois mathématiques, nous renvoyons à la référence [5].

a) Construction du schéma numérique.

Au cours de la phase lagrangienne est résolu le système (1.23) dont la forme vectorielle est ici rappelée :

$$\partial_t U + \partial_m \begin{pmatrix} M\Psi \\ -\frac{1}{2}(\Psi, M\Psi) \end{pmatrix} = S \tag{3.16}$$

où $\mathrm{U} = (\tau, v, e)^T$, $\Psi = (p,\ -v)^T$, $\mathrm{S} = \left(0,\ 0,\ \frac{\partial e}{\partial t}\Big|_{\text{sources, pertes}}\right)^T$ et $\mathrm{M} = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \in \mathbb{R}^{2\times 2}$.

La construction du schéma numérique est basé sur la discrétisation du système (3.16) suivante :

$$\frac{U_j^{n+1} - U_j^n}{\Delta t} + \frac{f_{j+1/2}^n - f_{j-1/2}^n}{\Delta m_j^n} = 0, \quad \Delta m_j^n = \rho_j^n \Delta z \tag{3.17}$$

f représente le **flux numérique lagrangien**. Ce flux est construit à partir d'un splitting de la matrice M définie dans le système (3.16).

Définition 3.4 *On se donne deux matrices $M^+ \in \mathbb{R}^{2\times 2}$ et $M^- \in \mathbb{R}^{2\times 2}$ On suppose que ces deux matrices sont telles que*

$$M^+ = \left(M^+\right)^T \geqslant 0, \quad M^- = \left(M^-\right)^T \leqslant 0, \text{ et } M = M^+ + M^-$$

On dira que le couple (M^+, M^-) est un ***splitting de matrice*** *pour la matrice M.*

Les flux numériques sont alors définis par :

$$f_{j+1/2}^n = \begin{pmatrix} M^+\Psi_{j+1}^n + M^-\Psi_j^n \\ -\frac{1}{2}\left(\psi_{j+1}^n,\ M^+\Psi_{j+1}^n\right) - \frac{1}{2}\left(\psi_j^n,\ M^-\Psi_j^n\right) \end{pmatrix} \tag{3.18}$$

où :

$$M^+ = \begin{pmatrix} \frac{1}{2\rho c} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} & \frac{\rho c}{2} \end{pmatrix} \qquad M^- = \begin{pmatrix} -\frac{1}{2\rho c} & \frac{1}{2} \\ \frac{1}{2} & -\frac{\rho c}{2} \end{pmatrix}$$

c est la vitesse locale du son.

Le flux lagrangien avec ce splitting s'écrit :

$$f^n_{j+1/2} = \begin{pmatrix} -v^*_{j+1/2} \\ p^*_{j+1/2} \\ (pv)^*_{j+1/2} = p^*_{j+1/2}\ v^*_{j+1/2} \end{pmatrix}$$

avec :

$$\begin{cases} v^*_{j+1/2} = \frac{1}{2}\left(v^n_j + v^n_{j+1}\right) + \frac{1}{2(\rho c)^n_{j+1/2}}\left(p^n_j - p^n_{j+1}\right) \\ p^*_{j+1/2} = \frac{1}{2}\left(p^n_j + p^n_{j+1}\right) + \frac{(\rho c)^n_{j+1/2}}{2}\left(v^n_j - v^n_{j+1}\right) \end{cases}$$

Le terme $(\rho c)^n_{j+1/2}$ s'écrit :

$$(\rho c)^n_{j+1/2} = \frac{1}{2}\left[(\rho c)^n_j + (\rho c)^n_{j+1}\right]$$

Le schéma numérique construit est donc :

$$\begin{cases} \frac{\rho^n_j \Delta z}{\Delta t}\left(\tau^{n+1}_j - \tau^n_j\right) + p^*_{j+1/2} - p^*_{j-1/2} = 0 \\ \frac{\rho^n_j \Delta z}{\Delta t}\left(u^{n+1}_j - u^n_j\right) + p^*_{j+1/2} - p^*_{j-1/2} = 0 \\ \frac{\rho^n_j \Delta z}{\Delta t}\left(e^*_j - e^n_j\right) + p^*_{j+1/2} v^*_{j+1/2} - p^*_{j-1/2} v^*_{j-1/2} = 0 \end{cases} \tag{3.19}$$

Nous rappelons que $\Delta z = \left(z^n_{j+1/2} - z^n_{j-1/2}\right)$ et $\tau^n_j = 1/\rho^n_j$. L'équation discrétisée de conservation de la masse en fonction du volume spécifique τ est équivalente à la relation :

$$\boxed{\rho^{n+1}_j \left(z^{n+1}_{j+1/2} - z^{n+1}_{j-1/2}\right) = \rho^n_j \left(z^n_{j+1/2} - z^n_{j-1/2}\right)} \tag{3.20}$$

Lors de la résolution, cette relation est privilégiée par rapport à la première relation du système (3.19) car elle est plus intuitive et fait intervenir directement ρ.

La pression p qui intervient dans le calcul des flux numériques est définie suivant l'équation des gaz parfaits (1.25) :

$$\boxed{p^n_j = (\gamma - 1)\,\rho^n_j \left(e^n_j - \frac{(v^n_j)^2}{2}\right)} \tag{3.21}$$

Enfin, la position des interfaces $z^n_{j+1/2}$ est mise à jour après chaque pas de temps par la formule :

$$\boxed{z^{n+1}_{j+1/2} = z^n_{j+1/2} + v^*_{j+1/2}\ \Delta t} \tag{3.22}$$

Le terme source $\partial_t e_{\text{sources, pertes}}$ est ajouté dans l'équation de conservation de l'énergie indépendamment de la phase lagrangienne. Dans un premier temps, la résolution de l'équation de conservation de l'énergie dans (3.19) donne une valeur

intermédiaire e^* à partir de e^n. Puis l'énergie à l'instant 'n+1' e^{n+1} est calculée dans un second temps en ajoutant le terme source.
Cette méthode est une méthode de splitting : deux équations couplées qui caractérisent deux phénomènes ayant lieu simultanément sur un pas de temps sont résolues de façon découplée [6]. La résolution de la première équation donne une solution qui est prise comme condition initiale pour la seconde équation. Dans ce cas précis, ce découplage a une signification physique : les vitesses d'expansion du plasma sont très inférieures à la vitesse de la lumière. Ainsi, la dynamique d'expansion du plasma est très lente par rapport à la propagation et l'absorption de la lumière dans le plasma ($v \ll c$). L'interaction laser-plasma a donc lieu instantanément par rapport au mouvement de la matière dans la phase gazeuse.
Le terme source de l'équation de conservation de l'énergie est pris en compte en discrétisant l'équation (1.58) de la façon suivante :

$$\rho^* \ \frac{e^{n+1} - e^*}{\Delta t} = \alpha_j^n \ I_{j+1/2}^n - J_j^n \tag{3.23}$$

où l'on a noté α_j^n et J_j^n les coefficients d'absorption et d'émission moyens dans la cellule 'j' au temps 'n'. Ces coefficients, dans un schéma de volumes finis, représentent les grandeurs :

$$\alpha_j^n = \frac{1}{\Delta z_j} \int_{z_{j-1/2}}^{z_{j+1/2}} \alpha(z, t^n) \mathrm{d}z \tag{3.24}$$

$$J_j^n = \frac{1}{\Delta z_j} \int_{z_{j-1/2}}^{z^{j+1/2}} J(z, t^n) \mathrm{d}z \tag{3.25}$$

L'éclairement laser $I_{j+1/2}^n$ à l'interface j-1/2 est calculé à partir de la solution de l'équation de Beer-Lambert (1.60) :

$$I_{j-1/2}^{n+1} = I_{j+1/2}^{n+1} \exp\left[-\alpha_j^n \Delta z_j\right] \tag{3.26}$$

avec $I_{J+1/2} = I_0(t)$ le profil temporel d'éclairement du faisceau laser (J représente l'indice de la dernière cellule du maillage, sur le bord du domaine le plus éloigné de la cible).

Le schéma établi présente les conditions requises de consistance, de stabilité et de convergence. Le schéma est consistant par construction des flux (3.18) [5]. La condition CFL assure non seulement la stabilité du schéma, mais également la croissance de l'entropie dans chaque maille. Le théorème suivant décrit la condition CFL.

Théorème 3.3 *Soit le schéma de Volumes Finis (3.19) avec le flux lagrangien (3.18). Le schéma est stable si, pour tout $j \in \mathbb{Z}$ et $n \in \mathbb{N}$, la condition suivante est vérifiée :*

$$\left(\max_j c_j^n\right) \frac{\Delta t}{\Delta z} \leqslant CFL \tag{3.27}$$

CFL<1 est un facteur de garde qui incorpore toutes les incertitures et approximations menant à l'établissement du schéma numérique. Cette condition assure également la croissance de l'entropie dans la maille j :

$$s_j^{n+1} \geqslant s_j^n \quad \forall j$$

On dit également que le schéma est *entropique*. Un tel schéma permet de décrire les phénomènes de création d'entropie tels que la génération d'ondes de choc. Cela s'applique dans notre cas à la description du mouvement de l'onde de choc créée lors de l'expansion de la vapeur, et au calcul des propriétés inhérentes à l'écoulement au passage de cette onde. Autrement dit, les équations de saut (1.5)-(1.9) sont prises en compte implicitement dans le schéma numérique. Dans tous nos cas de calcul, la valeur CFL = 0.1 convient pour obtenir des résultats précis.

Enfin, remarquons qu'il n'existe pas de preuve formelle de la convergence de la solution numérique vers la solution exacte. Cependant tous les tests préliminaires classiques (tube à Choc de Sod, onde de détente de Sedov, cas test de Noh...) montrent qu'il y a convergence. De plus, dans le chapitre 4, nous présenterons des résultats numériques en très bon accord avec les résultats expérimentaux. Ces deux derniers points nous ont convaincus de la convergence des solutions numériques.

b) Choix du maillage.

Le maillage sur lequel est résolu le système (3.19) est choisi régulier initialement, avec un pas d'espace égal à 500 nm. Au cours du calcul, après chaque phase lagrangienne, le maillage se déforme et la position des interfaces est recalculée à l'aide de la formule (3.22). Initialement, la dimension du maillage est définie suffisamment grande pour que toute perturbation issue de la surface n'atteigne pas le bord du domaine le plus éloigné de la cible. Généralement, il couvre 2 à 4 mm au delà de la surface, 4 mm pour les cas expérimentaux où le gaz ambiant oppose une faible résistance à l'expansion de la vapeur.

c) Conditions aux limites.

Le schéma (3.19) nécessite 4 conditions aux limites (2 en $z_{-1/2}$ et 2 en $z_{J+1/2}$). Ces conditions aux limites sont les valeurs des flux numériques $[v^*, p^*, p^*v^*]$. En $z_{J+1/2}$, les flux numériques sont définis par la condition suivante :

$$\begin{aligned} v^*_{J+1/2} &= v^{n+1}_J = 0 \\ p^*_{J+1/2} &= p^{n+1}_J = P_{\mathrm{ATM}} \end{aligned}$$

La longueur du domaine a été choisie suffisamment grande pour qu'aucune perturbation de l'écoulement ne l'atteigne. Initialement, la phase gazeuse est au repos et donc $v^{n+1}_J = 0$. La pression p^{n+1}_J vaut la pression atmosphérique P_{ATM}, qui dépend du choix, par l'utilisateur, des conditions environnementales.

En $z_{-1/2}$, les flux numériques sont définis par les propriétés du fluide en sortie de la couche de Knudsen :

$$\begin{aligned} v^*_{-1/2} &= v_K \\ p^*_{-1/2} &= p_K \end{aligned}$$

la pression p_K est la pression partielle de vapeur qui est calculée par interpolation linéaire des données calculées dans les deux premières cellules (indicées respectivement '0' et '1') de la phase gazeuse [7] :

$$p^*_{-1/2} = \frac{3}{2}p_0 - \frac{1}{2}p_1. \tag{3.28}$$

Le calcul de v_K est couplé à ceux des grandeurs $[T_s,\ T_K,\ e_K,\ \rho_K]$ dans les équations (1.1) et (1.5)-(1.9).
Une procédure itérative permet de calculer toutes ces grandeurs à partir d'une

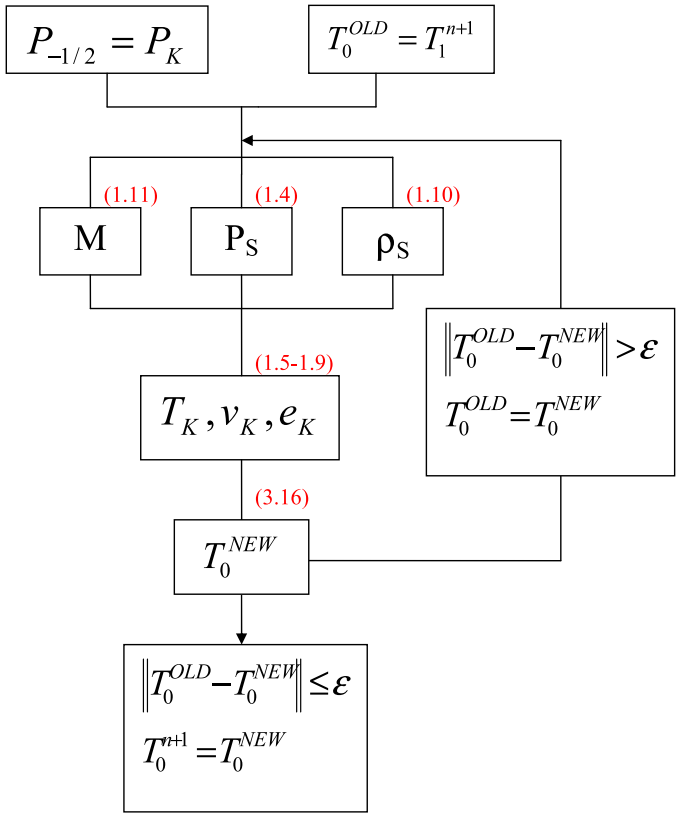

FIG. 3.2 - *Procédure itérative pour le calcul de la température de surface et des propriétés de l'écoulement en sortie de couche de Knudsen. Les expressions en rouge revoient aux labels des formules de ce manuscrit. ϵ est la précision du calcul (dans tous nos cas, $\epsilon = 10^{-3}$)*

valeur initiale de la température de surface $T_s = T(0,t) = T_0^n$. Cette procédure est illustrée sur la figure 3.2. En première approximation, on peut considérer que le gradient de température en surface de la cible est nul : $\left.\frac{\partial T(z,t)}{\partial z}\right|_0 = 0$. La valeur numérique initiale pour la température de surface est donc $T_0 = T_1$ (dans le domaine de la cible). Cette valeur permet de calculer la pression de saturation (eq. (1.4)), le nombre de Mach (eq. (1.12)), puis toutes les grandeurs en sortie de couche de Knudsen via les relations de saut (1.5)-(1.9). Une nouvelle valeur de la température de surface est obtenue à partir de l'équation (3.15), valeur qui est comparée à la valeur initiale. Lorsque les deux valeurs sont suffisamment proches, l'algorithme est stoppé, et les grandeurs obtenus pour p_K et v_K déterminent les conditions à l'interface liquide-vapeur pour la phase gazeuse. Généralement, moins de 10 itérations suffisent à calculer la valeur de la température de surface T_0^{n+1} à l'instant 'n+1'.

La valeur de la vitesse $v^*_{-1/2}$ est généralement non nulle. La position $z_{-1/2}$ est donc non nulle au cours d'un pas de temps, et les relations de saut (1.5)-(1.9), établies en $z = 0$, ne sont plus valables. La section suivante présente la procédure qui permet, à chaque pas de temps, de repositionner l'interface '-1/2' en $z = 0$, tout en respectant les équations de conservation.

3.4 Gestion de l'évaporation et de la condensation

L'équation de conservation de la masse, en formalisme lagrangien, stipule que la masse dans les mailles doit rester constante au cours du temps. Cependant, la masse de la maille contigüe à la surface dans la phase gazeuse doit augmenter au cours au cours de l'évaporation. De même, elle doit diminuer au cours d'une condensation. De plus, le maillage initial ne contient que des cellules de gaz ambiant. Une procédure de création/suppression de mailles a donc été developpée pour gérer convenablement l'évaporation et la condensation tout en respectant les lois de conservation. Cette section détaille cette procédure.

3.4.1 Cas d'une ablation

a) Phase de projection

L'interface liquide/vapeur est commune aux deux phases liquide et gazeuse. Elle se situe en z = 0. Théoriquement, nous avons posé l'hypothèse que cette interface est immobile. Le maillage du domaine a été construit de telle sorte que l'interface '-1/2' soit située initialement en z = 0 et coïncide avec l'interface liquide-vapeur. Cependant, l'utilisation du formalisme lagrangien dans la phase gazeuse implique que cette interface se déplace, au terme d'un pas de temps, à la position $z_{-1/2} = v_{-1/2}\ dt$, où $v_{-1/2} = v_K > 0$ lors d'une ablation (cf. relation (3.22). Cette interface ne coïncide donc plus avec l'interface liquide-vapeur et par conséquent, il n'est plus possible d'utiliser les relations de saut (1.5)-(1.9). Le déplacement de cette interface induit l'apparition d'une cellule fictive dans le maillage de la phase gazeuse, que nous avons indicée '-1' sur la figure 3.3. Cette cellule est limitée par l'interface liquide-vapeur (z=0) et l'interface '-1/2' ($z_{-1/2}>0$).

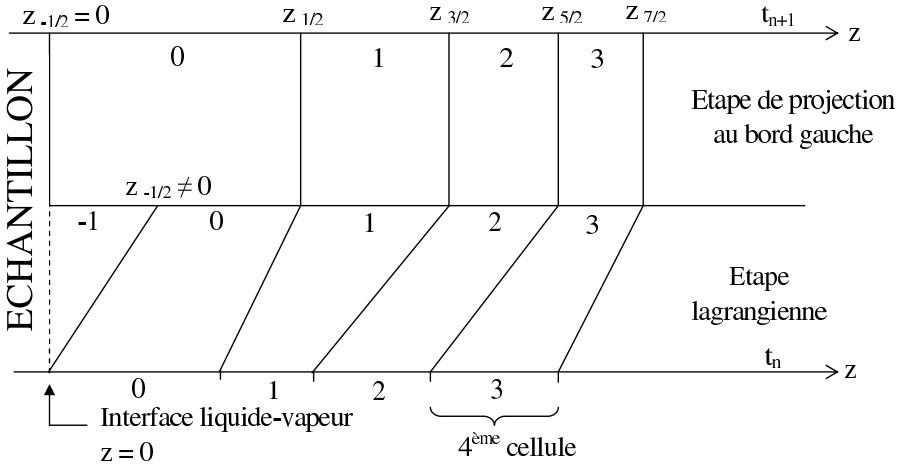

Fig. 3.3 - *Illustration de la phase de projection au cours d'un pas de temps dans la phase d'évaporation. Les numéros entiers représentent les numéros de cellules, les demi-entiers les interfaces.*

Une procédure mathématique permet de repositionner l'interface -1/2 en z = 0 (ce qui rend l'utilisation des conditions de saut possible) tout en intégrant cette cellule fictive dans le maillage de la phase gazeuse. Cette procédure est la *projection* de la cellule '-1' dans la cellule '0' après chaque pas de temps. Elle consiste à *fusionner*

ces deux cellules afin d'obtenir une unique cellule délimitée par les interfaces -1/2 et 1/2, dont la première se situerait en $z_{-1/2} = 0$.
Examinons les propriétés de cette cellule fictive. Cette cellule, comprise entre z = 0 et $z_{-1/2}$, contient une certaine quantité de vapeur qui a été ablatée au terme d'un pas de temps Δt. Ainsi les propriétés de la cellule '-1' (e_{-1}, v_{-1}, ρ_{-1}, P_{-1}) sont données, en première approximation, par les propriétés en sortie de couche de Knudsen. On a donc :

$$\begin{aligned} e_{-1} &= e_K \\ v_{-1} &= v_K \\ \rho_{-1} &= \rho_K \\ p_{-1} &= p_K \end{aligned}$$

Les propriétés de la nouvelle cellule obtenue (qui sera alors indicée '0') sont calculées à partir des lois de conservation :

$$\begin{cases} \rho_0 \; z_{1/2}^{n+1} & = \rho_{-1} \; z_{-1/2} + \rho_0 \left(z_{1/2}^{n+1} - z_{-1/2}^{n+1} \right) \\ \rho_0 \; z_{1/2}^{n+1} \; v_0 & = \rho_{-1} \; z_{-1/2} \; v_{-1} + \rho_0 \; \left(z_{1/2}^{n+1} - z_{-1/2}^{n+1} \right) \; v_0 \\ \rho_0 \; z_{1/2}^{n+1} \; e_0 & = \rho_{-1} \; z_{-1/2} \; e_{-1} + \rho_0 \; \left(z_{1/2}^{n+1} - z_{-1/2}^{n+1} \right) \; e_0 \end{cases} \tag{3.29}$$

Les grandeurs à gauche du signe d'égalité dans le système (3.29) sont les grandeurs de la cellule '0' à l'issue de la phase de projection, tandis que celle de droite sont celles calculées à l'issue de la phase lagrangienne. Au pas de temps suivant, l'interface -1/2 se déplace à nouveau vers les z croissant et la procédure est réitérée. Ainsi, l'utilisation des conditions de saut en z = 0 est toujours possible entre la phase dense et la phase gazeuse.

Initialement, il n'existe aucune maille de vapeur disponible dans la phase gazeuse. Ainsi, lorsque l'évaporation débute, la première cellule '-1' de vapeur sera projetée dans une cellule '0' de gaz ambiant. Pour éviter une zone de mélange, il suffit de ne pas repositionner la première interface $z_{-1/2}$ lorsque la première maille de vapeur apparaît. Celle-ci est alors indicée '0' et nous réindiçons toutes les autres cellules en conséquence.

Une telle procédure implique que la masse et le volume (la longueur en 1D) de la première cellule croissent tant que l'ablation se poursuit. Si cette ablation est longue, la masse et la taille de la première cellule deviennent très grandes. En particulier, une cellule trop grande implique que la résolution du maillage près de l'interface liquide-vapeur est fortement dégradée, et donc les propriétés de la phase gazeuse sont moins bien décrites dans la région contigüe à la cible. Une procédure simple de coupure de maille a été développée pour résoudre ce problème.

b) Coupure de mailles à l'interface

La procédure de coupure de maille ne concerne que la maille '0' qui jouxte la surface. Cette procédure s'applique dès que la masse de cette maille excède une masse critique choisie arbitrairement. Cette coupure implique la création de deux mailles dont les propriétés dépendent de celles de la maille coupée.

Soit m_c la masse maximale que peut posséder la maille '0'. Lorsque $m_0^{n+1} \geqslant m_c$, la maille indicée '0' est coupée en deux mailles de la façon suivante :

$$m_1 = \frac{m_c}{2} \tag{3.30}$$

$$m_0 = m_0^{n+1} - m_1 \tag{3.31}$$

Toutes les cellules sont réindicées pour tenir compte de ces deux nouvelles cellules. Cette procédure permet d'obtenir la même masse pour toutes les cellules de vapeur (au bord près), qui est donc $m = m_c/2$. La coupure en deux cellules implique la création d'une nouvelle interface dont la position est définie en utilisant les relations (3.30) et (3.31) :

$$z_{1/2} = z_{1/2}^{n+1} \cdot \left(1 - \frac{m_c}{2\ m_0^{n+1}}\right) \tag{3.32}$$

Enfin, puisque toutes les grandeurs sont intensives, les deux cellules '0' et '1' nouvellement créées possèdent les mêmes propriétés. Cela concerne les grandeurs dynamiques, la quantité de mouvement, la pression, mais également thermiques, l'énergie, la température, les fractions d'ionisation. La dernière étape est la réindexation de toutes les cellules du maillage et toutes les interfaces pour tenir compte de cette coupure. On écrit :

$$\begin{cases} z_{i+1/2}^{n+1} & = z_{i+3/2}^{n+1},\ i \geqslant 1 \\ e_{i+1}^{n+1} & = e_i^{n+1},\ i \geqslant 2 \end{cases} \tag{3.33}$$

Nous avons écrit cela dans le cas de l'énergie par unité de masse, mais cette méthode est utilisée pour toutes les grandeurs intensives utilisées. Notons enfin que la valeur choisie de la masse critique dépend de la résolution souhaitée. En pratique, nous avons choisi une valeur telle que la résolution n'excède pas 1 μm.

3.4.2 Cas d'une condensation.

Au cours d'une condensation, $v_{-1/2}<0$ et alors $z_{-1/2}<0$ à l'issue d'un pas de temps. Le volume occupé par la cellule '0' est beaucoup plus grand que le volume délimité par $z = 0$ et $z_{1/2}$. Puisque les propriétés du plasma sont des propriétés *intensives*, il suffit simplement de poser $z_{-1/2} = 0$ et d'écrire que les propriétés de la cellule '0' sont les mêmes à l'issue du remaillage, exceptée la masse qui s'écrit alors $m_0 = \rho_0 \cdot z_{j+1/2}^{n+1}$.

La condensation implique une perte de masse dans la cellule '0' adjacente à la cible. Cette perte de masse induit une diminution de la densité et de la pression, et la cellule '0' a tendance alors à se comprimer. L'interface '-1/2' se déplace vers la surface et la longueur Δz_0 de la cellule '0' diminue au cours du temps. Le pas de temps, calculé par la condition (3.27), devient alors infiniment petit et le temps de calcul trop long. Ce problème est résolu en utilisant une méthode de fusion des deux premières mailles adjacentes à la surface. Les cellules '0' et '1' sont fusionnées pour donner une nouvelle cellule '0' (puis les autres cellules sont réindexées en conséquence). Les propriétés de cette nouvelle cellule sont calculées à partir des équations

de conservation :

$$\begin{cases} \rho_0 \cdot z_{j+3/2}^{n+1} & = \rho_0 \cdot z_{j+1/2} + \rho_1 \left(z_{j+3/2}^{n+1} - z_{j+1/2}^{n+1} \right) \\ \rho_0 \cdot z_{j+3/2}^{n+1} \cdot v_0 & = \rho_0 \cdot z_{j+1/2} \cdot v_0 + \rho_1 \left(z_{j+3/2}^{n+1} - z_{j+1/2}^{n+1} \right) \cdot v_1 \\ \rho_0 \cdot z_{j+3/2}^{n+1} \cdot e_0 & = \rho_0 \cdot z_{j+1/2} \cdot e_0 + \rho_1 \left(z_{j+3/2}^{n+1} - z_{j+1/2}^{n+1} \right) \cdot e_1 \end{cases}$$

Les 3 équations précédentes représentent respectivement la conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie. Lors de la condensation, la masse de la cellule '0' diminue, et nous choisissons donc une masse minimale pour laquelle les deux premières cellules doivent condenser. Cette valeur de masse dépend de la quantité de matière ablatée. Nous choisirons une valeur faible pour la masse critique si la masse de matière ablatée est faible.

Le paragraphe suivant présente quelques résultats obtenus pour l'énergie, la vitesse, la masse volumique et la pression, pour une impulsion de 150 mJ et l'argon à 1 bar comme gaz ambiant. Ces résultats, ainsi que tous ceux présentés dans ce manuscrit, ont été réalisés pour des temps de calcul de moins de trois heures sur un pc de bureau (intel pentium dual core cadencé à 2×3.25 GHz).

3.4.3 Présentation des résultats

Quelques résultats à différents temps pour l'énergie, la vitesse, la masse volumique et la pression sont présentés en figure 3.4. Une discontinuité dans l'énergie et la masse volumique est observable, et celle-ci coïncide avec l'interface entre la vapeur et le gaz ambiant. Les courbes de vitesses et de pressions sont toutefois continues, et l'on peut montrer que seules ces deux grandeurs sont continues dans l'espace, toutes les autres présentant une discontinuité à l'interface vapeur-gaz ambiant. Cette discontinuité est par définition une *discontinuité de contact* [4].

Le schéma capture parfaitement l'onde de choc créée dans le gaz ambiant du fait de l'expansion de la vapeur. Cette onde de choc est marquée sur la figure décrivant l'évolution de la masse volumique au cours du temps. En fait, cette onde de choc est identifiable sur toutes les figures, elle est représentée par la discontinuité brutale la plus éloignée de la surface (z=0).

Les procédures de coupure et fusion de mailles génèrent des oscillations sur les conditions aux limites. La coupure d'une maille en deux mailles identiques implique que la condition (3.28) sur la pression limite p_K est celle d'un gradient nul (dans les deux premières mailles, $p_0 = p_1$), alors qu'il ne l'était peut-être pas avant la procédure de coupure. La figure 3.5 montre le résultat de cette coupure sur le nombre de Mach.
Ces oscillations se répercutent sur toutes les grandeurs couplées par les relations de saut (1.5)-(1.9) dans la couche de Knudsen. Cependant, cela ne semble pas préjudiciable au calcul des propriétés de l'écoulement et des propriétés de surface. La figure 3.5 montre bien que, malgré ces oscillations, les variations du nombre de Mach sont assez monotones : notamment à partir de t = -1.5 ns, la courbe est décroissante, *presque* continue avec quelques oscillations de faible amplitude. De ce fait, les répercussions de ces oscillations sur les propriétés de l'écoulement restent

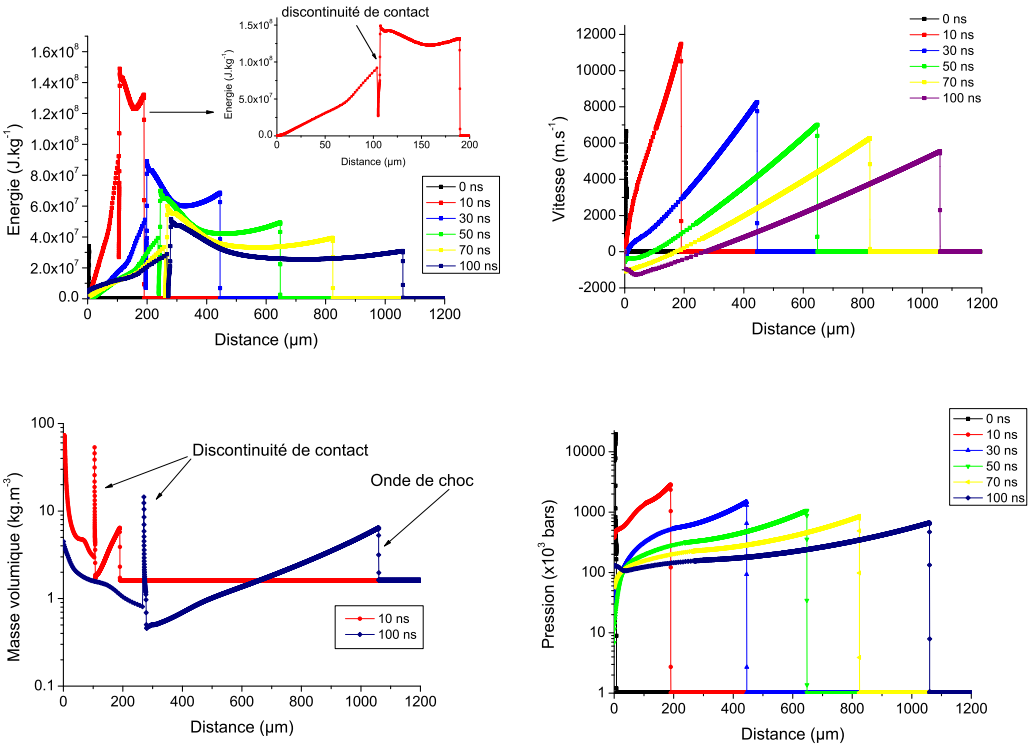

FIG. 3.4 - *Résultats numériques obtenus pour l'énergie, la vitesse, la masse volumique et la pression.*

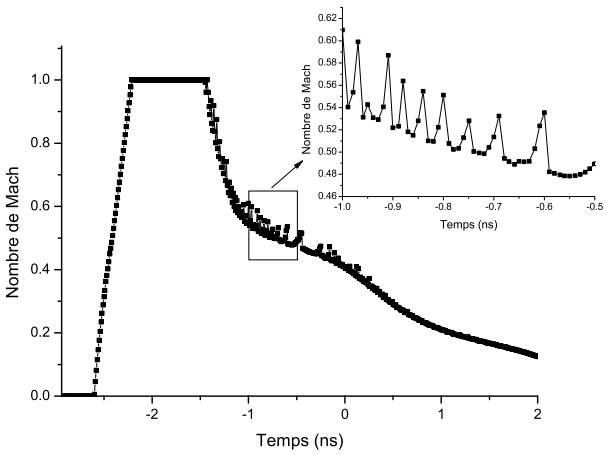

FIG. 3.5 - *Oscillations sur la valeur calculée du nombre de Mach résultant de la procédure de coupure de maille.*

minimes.

La section suivante détaille la résolution des équations de Saha et l'énergie interne pour calculer la densité d'espèces ionisées et la température du plasma.

3.5 Résolution des équations de Saha - Calcul de la température

Les fractions d'espèces ionisées et de la température dans le plasma sont calculées en résolvant le système (1.67) couplé à l'équation (1.72). Ce système non linéaire comporte trois équations à trois inconnues x_1, x_2 et T, qui sont rappelées ici :

$$\begin{cases} f_1(x_1,x_2,T) = x_2\ x_e - 2\ \frac{x_1}{n_{\text{tot}}}\ \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{Z_2(T)}{Z_1(T)}\ \exp\left[-\frac{\theta_2}{k_B T}\right] & = 0 \\ f_2(x_1,x_2,T) = x_1\ x_e - 2\ \frac{1-x_1-x_2}{n_{\text{tot}}}\ \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2}\right)^{3/2} \frac{Z_1(T)}{Z_0(T)}\ \exp\left[-\frac{\theta_1}{k_B T}\right] & = 0 \\ f_3(x_1,x_2,T) = u - \frac{3}{2}\,(1 + x_1 + 2\ x_2)\,\frac{k}{m}T + \frac{1}{m}\,(x_1\theta_1 + x_2\theta_2) & = 0 \end{cases} \tag{3.34}$$

Ce système s'écrit sous forme vectorielle :

$$\mathbf{F}(\mathbf{X}) = 0 \tag{3.35}$$

où $\mathbf{F}$ et $\mathbf{X}$ sont déterminés par leurs composantes $\mathbf{X} = \{ x_1, x_2, T\}$ et $\mathbf{F} = \{f_1, f_2, f_3\}$. La méthode de résolution de ce système est la méthode de Newton-Raphson [2]. La résolution débute en se donnant un vecteur X_0 voisin de la solution présumée. Dans notre cas, $\mathbf{X}_0$ sera le vecteur défini par les grandeurs au temps 'n' : $\mathbf{X}_0$=$\mathbf{X}_n$. Ce vecteur est certainement très proche de la solution obtenue au temps 'n+1', car le pas de temps est généralement très faible, de l'ordre de 10^{-12} s, et il est raisonnable de supposer (mais cela a été vérifié dans les cas de calcul) que les différentes grandeurs qui interviennent dans les équations du système (3.34) changent très peu sur un pas de temps de cet ordre de grandeur. L'équation (3.35) s'écrit :

$$\mathbf{F}(\mathbf{X}) = \mathbf{F}(\mathbf{X}_0 + \Delta\mathbf{X}) = \mathbf{F}(\mathbf{X}_0) + J(\mathbf{X}_0)\ \Delta\mathbf{X} = 0 \tag{3.36}$$

où $\Delta\mathbf{X}$ est le vecteur qui traduit la variation des inconnues sur un pas de temps, $J(X_0)$ est la matrice jacobienne du sytème en $\mathbf{X} = \mathbf{X}_0$, soit :

$$J(\mathbf{X}) = \begin{pmatrix} \partial f_1/\partial x_1 & \partial f_1/\partial x_2 & \partial f_1/\partial T \\ \partial f_2/\partial x_1 & \partial f_2/\partial x_2 & \partial f_2/\partial T \\ \partial f_3/\partial x_1 & \partial f_3/\partial x_2 & \partial f_3/\partial T \end{pmatrix} \tag{3.37}$$

Les valeurs de $\mathbf{F}(\mathbf{X}_0)$ et $J(\mathbf{X}_0)$ sont connues en $\mathbf{X}_0 = \mathbf{X}_n$. Le système 3.36 est maintenant un système linéaire de 3 équations et 3 inconnues $\Delta\ \mathbf{X} = \{\Delta x_1, \Delta x_2, \Delta T\ \}$, dont la solution est :

$$J(X_0)\ \Delta\mathbf{X} = F(X_0) \tag{3.38}$$

$$X^* = X_n + \Delta\mathbf{X} \tag{3.39}$$

$\Delta\ \mathbf{X}$ est déterminée dans la première équation par la méthode de Gauss. Celle-ci consiste à trianguliariser la matrice $J(X_0)$ pour résoudre simplement la première équation, ce qui évite de calculer sa matrice inverse opération plus difficile et beaucoup plus coûteuse en temps de calcul. Une fois que $\Delta\ \mathbf{X}$ est déterminé, la solution après calcul est donnée par la seconde équation. La méthode est réitérée jusqu'à convergence du calcul obtenue lorsque le critère suivant est vérifié [2] :

$$X^{\ T} X \leqslant \epsilon \tag{3.40}$$

où ϵ est la précision souhaitée.
Dans le système 3.34, nous n'avons pas tenu compte de la dépendance des fonctions

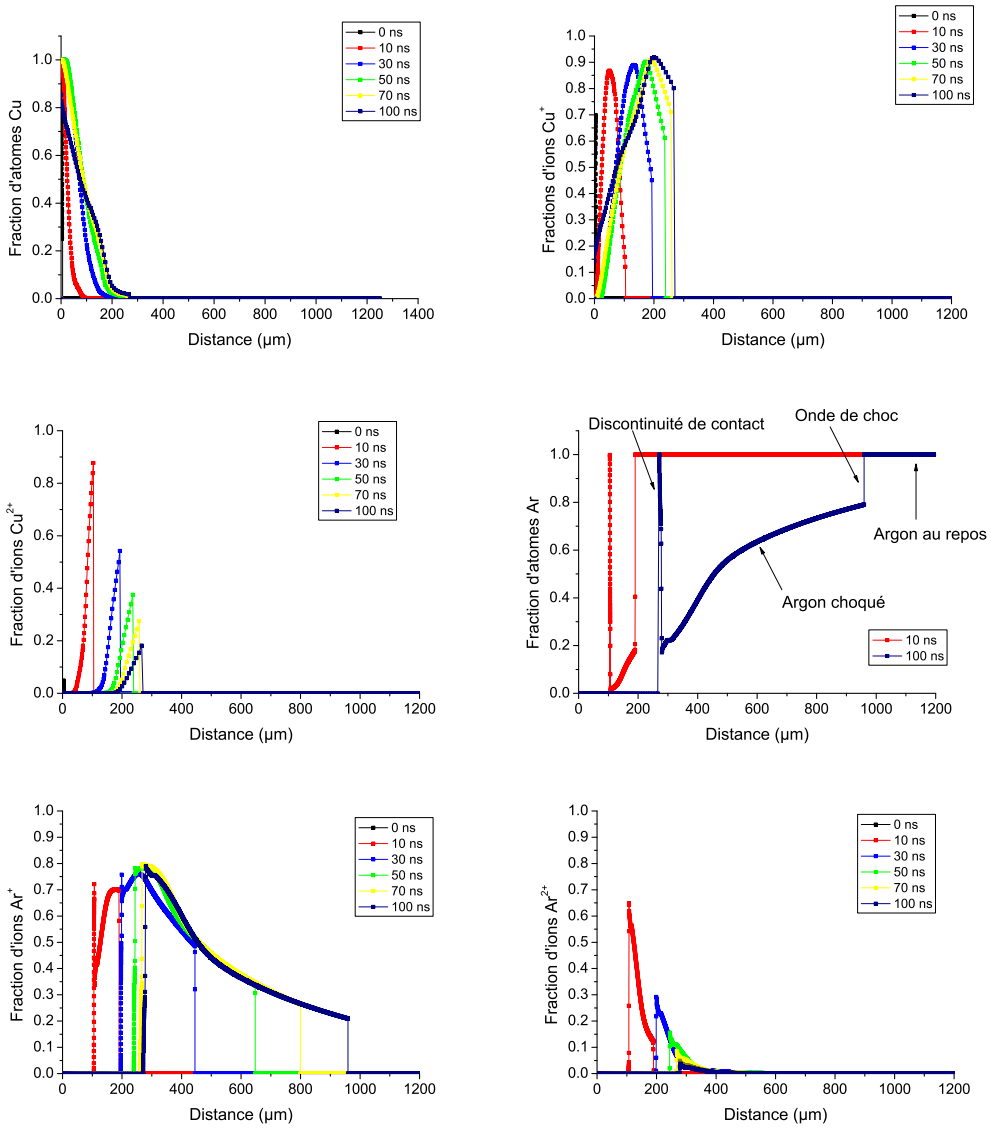

FIG. 3.6 - *Résultats numériques obtenus pour les fractions d'atomes, d'ions une fois et deux fois ionisés à différents temps.*

de partitions en fonction de la température pour le calcul de la jacobienne.

Lorsque les fractions d'ionisation et la température sont déterminées au temps 'n+1', les coefficients d'absorption sont calculés dans chaque cellule et l'intensité laser est calculée aux interfaces. Ces calculs ne présentent pas de difficulté particulière.

Nous clôturons ce chapitre par la présentation de quelques résultats sur la figure 3.6. Ces résultats décrivent la distribution spatiale des fractions d'atomes et d'ions dans le plasma à différents temps. La distribution en température est présentée sur la figure 3.7. Les conditions utilisées sont une impulsion de fluence 11.4 J.cm^{-2} et l'argon à 1 bar comme gaz ambiant.

Ces résultats concluent ce chapitre de présentation sur le schéma numérique pour étudier l'ablation laser d'une cible métallique avec formation d'un plasma. Le

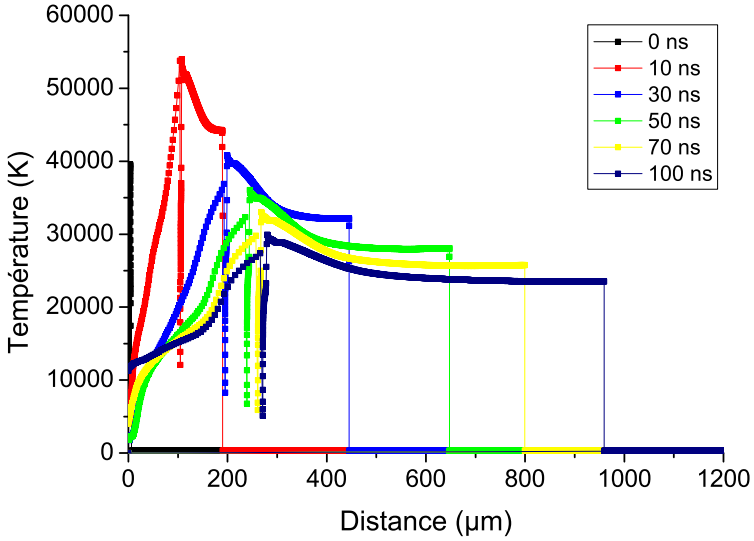

FIG. 3.7 - *Résultats obtenus pour la température du plasma à différents temps.*

chapitre 4 présente les résultats expérimentaux qui ont permis de caractériser les plasmas produits par laser. Ces résultats permettront en outre de valider le schéma numérique. Aussi souvent que possible, les résultats numériques viendront aider à la compréhension des phénomènes physiques régissant l'interaction laser-matière.

Liste des Références du chapitre 3.

[1] Gregoire Allaire. *Analyse numérique et optimisation*. 2007.

[2] Jean-Pierre Nougier. *Méthodes de calcul numérique - Volume 1 : Systèmes d'équations*. 2001.

[3] John C. Tannehill, Dale A. Anderson, and Richard H. Pletcher. *Computational Fluid Mechanics and Heat Transfer*. 2nd edition, 1997.

[4] C. B. Laney. *Computational Gasdynamics*. Cambridge University Press, 1998.

[5] B. Despres. Lagrangian systems of conservation laws - invariance properties of lagrangian systems of conservation laws, approximate riemann solvers and the entropy condition. *Numerische Mathematik*, 89(1) :99–134, 2001.

[6] R. I. McLachlan and G. R. W. Quispel. Splitting methods. *Acta Numerica 2002, Vol 11*, 11 :341–434, 2002.

[7] A. V. Gusarov and I. Smurov. Thermal model of nanosecond pulsed laser ablation : Analysis of energy and mass transfer. *Journal of Applied Physics*, 97(1), 2005.

Présentation des résultats 4

Sommaire

4.1 Etude de la dynamique de la phase gazeuse 85
4.1.1 Imagerie du plasma 85
4.1.2 Ombroscopie - Etude de la dynamique de l'onde de choc 88
4.1.3 Comparaison avec les résultats du modèle 93
4.2 Etude des cratères d'ablation 97
4.2.1 Forme des cratères 97
4.2.2 Profondeur ablatée par impulsion 98
4.2.3 Etude de la condensation 101
4.2.4 Seuil d'ablation 104
4.3 Etude du seuil d'observation du plasma - Ecrantage plasma 113
4.3.1 Détermination du seuil d'observation du plasma 113
4.3.2 Etude de l'écrantage plasma 115
4.3.3 Résumé des résultats 127

Dans ce chapitre sont présentés les résulats expérimentaux obtenus par ablation laser de cibles de cuivre pur dans une atmosphère d'Argon à 1 atm. Les expériences réalisées sont l'imagerie du plasma, l'ombroscopie de la phase gazeuse, l'étude des seuils d'ablation, d'observation du plasma et du claquage. Les résultats d'imagerie du plasma présentent l'évolution de la longueur et de la forme du plasma au cours du temps. Les résultats d'ombroscopie décrivent le mouvement de l'onde de choc au cours du temps. Les études de l'ablation, de la formation du plasma et du claquage optique permettent d'établir une chronologie dans la dynamique de formation du plasma.

Les résultats expérimentaux sont utilisés premièrement pour valider le modèle et évaluer sa précision dans nos conditions expérimentales. Cette validation s'appuie sur une comparaison des résultats expérimentaux aux résultats numériques, qui met en évidence les concordances et les écarts que prédit le modèle par rapport aux mesures. Les équations dans le modèle sont résolues sur les 100 premières nanosecondes de l'expansion, délai pour lequel la validité de l'hypothèse d'expansion unidimensionnelle commence à être erronée et où l'expansion en 2D du plasma est observée expérimentalement.

Les résultats numériques permettent également de comprendre plus en détails les phénomènes régissant l'interaction laser-matière. Notamment, ils donnent accès à l'évolution temporelle ou la distribution spatiale de nombreux paramètres qui sont

difficilement mesurables (ou ne peuvent pas être mesurés).

4.1 Etude de la dynamique de la phase gazeuse

L'étude de la dynamique de la phase gazeuse est réalisée à l'aide de deux diagnostics : l'imagerie rapide et l'ombroscopie. L'imagerie permet d'étudier l'expansion du plasma au cours du temps, via la mesure de sa longueur et de sa forme. L'ombroscopie est utilisée pour observer le mouvement de l'onde de choc créée lors de l'expansion de la vapeur. Dans cette section sont en premier lieu présentés les résultats expérimentaux pour ces deux expériences. Puis les comparaisons avec le modèle sont décrites.

4.1.1 Imagerie du plasma

L'imagerie du plasma donne l'évolution de sa longueur en fonction du temps (dans des conditions d'expansion unidimensionnelle). Cette évolution est observée en modifiant le délai et la largeur de la porte d'acquisition de la caméra iCCD (voir Chapitre 2). La durée de porte est choisie à chaque mesure pour garantir que la dynamique et les propriétés du plasma changent très peu pendant toute cette durée. En général, une porte de 10 ns est suffisante dans la première centaine de nanosecondes d'observation, puis il faut considérer des portes plus grandes (50 ns vers 500 ns et 500 ns vers 2 μs) lorsque l'intensité du plasma diminue.

La figure 4.1 représente l'expansion du plasma à différents délais de mesure, jusqu'à des temps de l'ordre de la microseconde. Sur chaque image, la cible est représentée par une ligne en tirets blancs. Ces images permettent de mettre en évidence quatre régimes d'expansion. Ces régimes sont reperés par les symboles ①, ②, ③ et ④ sur la figure 4.3.

① *Expansion unidimensionnelle pour $t \lesssim 100$ ns*

L'expansion du plasma a lieu principalement dans la direction du faisceau laser. Jusqu'à 80-90 ns, le plasma peut être représenté par une forme *rectangulaire* s'étirant dans la direction de propagation du faisceau laser. Puis il évolue clairement vers une forme triangulaire. La figure 4.2 présente l'évolution du diamètre moyen du plasma en fonction du temps. Cette figure montre que, pendant les 100 premières nanosecondes, le diamètre du plasma reste du même ordre de grandeur que le diamètre $\phi \approx 1.3$ mm du faisceau laser incident. L'expansion radiale est donc réduite par rapport à l'expansion longitudinale. Cette observation justifie l'utilisation d'un modèle unidimensionnel pendant les 100 premières nanosecondes de l'expansion.

La figure 4.3 décrit l'évolution de la longueur du plasma en fonction du temps. Cette longueur est mesurée suivant le protocole défini dans le chapitre 2. Dans le créneau temporel ①, la longueur du plasma augmente rapidement en fonction du temps, passant de 0 à t = 0 ns à près de 1 mm à t = 100 ns.

② *Expansion bidimensionnelle pour $100 \lesssim t \lesssim 275$ ns*

L'expansion devient bidimensionnelle. La longueur du plasma augmente jusqu'à $z_P \approx 1.5$ mm (figure 4.3) et son diamètre de 1.3 mm pour t = 100 ns à 2 mm approximativement pour t = 275 ns (cf. figure 4.2).

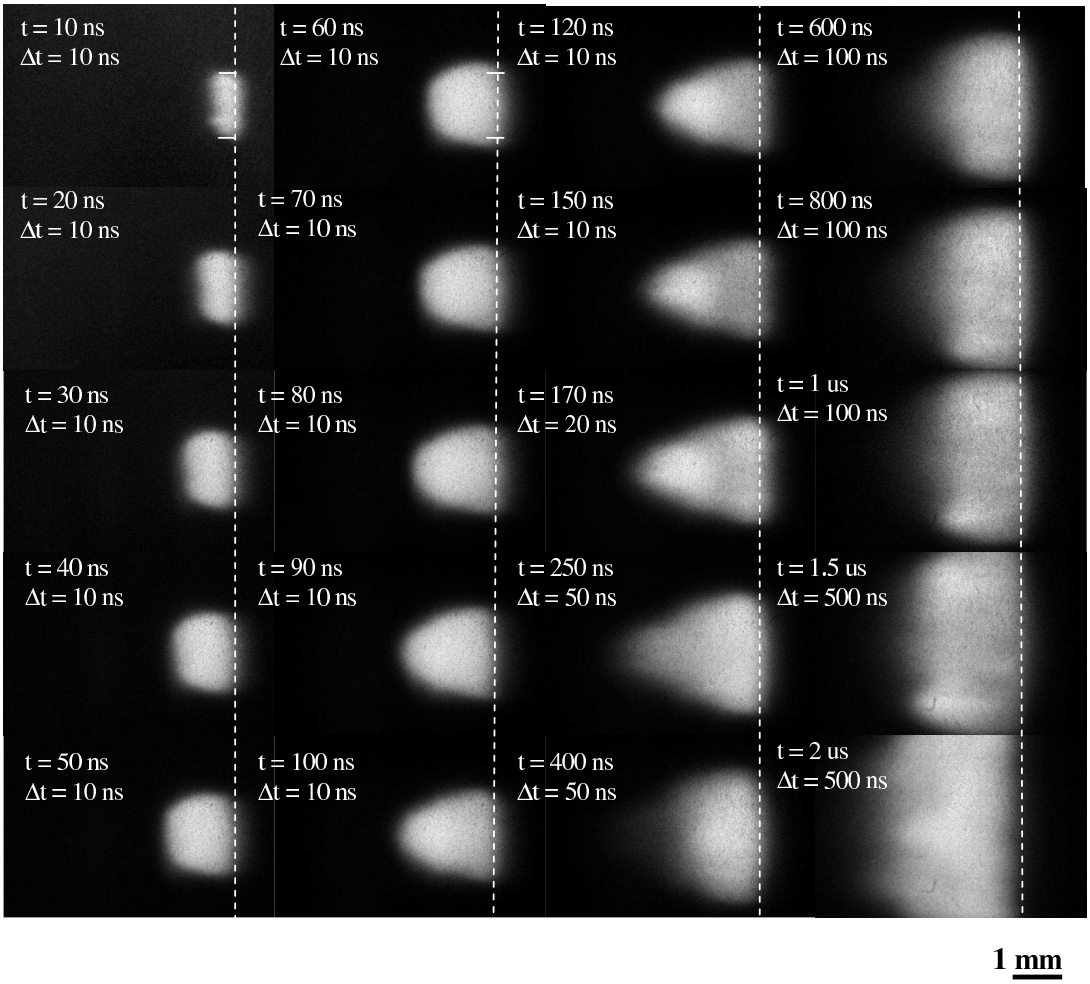

FIG. 4.1 - *Images du plasma réalisés dans l'argon à 1 bar à différents temps ($t \leqslant 100$ ns). La porte d'acquisition est 10 ns et la densité optique est 2 pour toutes les images*

③ *Extinction d'une partie du plasma pour $275 \lesssim t \lesssim 475$ ns*

Dans le créneau temporel ③, la longueur du plasma diminue de 1.5 mm à 1.2 mm pour t = 400 ns. Cette diminution est visible sur la figure 4.1 en constatant que le sommet de ce "plasma triangulaire" semble s'éteindre. A 400 ns, la forme du plasma est devenue clairement elliptique.

La figure 4.4 montre l'extinction de la zone du plasma la plus éloignée de la cible. Ce résultat décrit la répartition spatiale de l'intensité moyenne du plasma entre 150 et 400 ns. Les profils obtenus à ces différents temps montrent que l'intensité moyenne émise est constituée de deux pics distincts. Au cours du temps, l'intensité de chaque pic a tendance à diminuer : cela exprime l'expansion du plasma, au cours de laquelle la valeur des paramètres qui influencent l'émission diminue au cours du temps, notamment de la densité totale et la température. L'intensité du pic le plus éloigné de la surface diminue plus vite que celle du premier pic. Cette mesure montre donc qu'il existe deux régions dans le plasma dont l'émission évolue différemment au cours du temps. L'identification de ces régions sera expliquée dans la suite de ce chapitre, car elle nécessite une corrélation entre les résultats d'imagerie et d'ombroscopie.

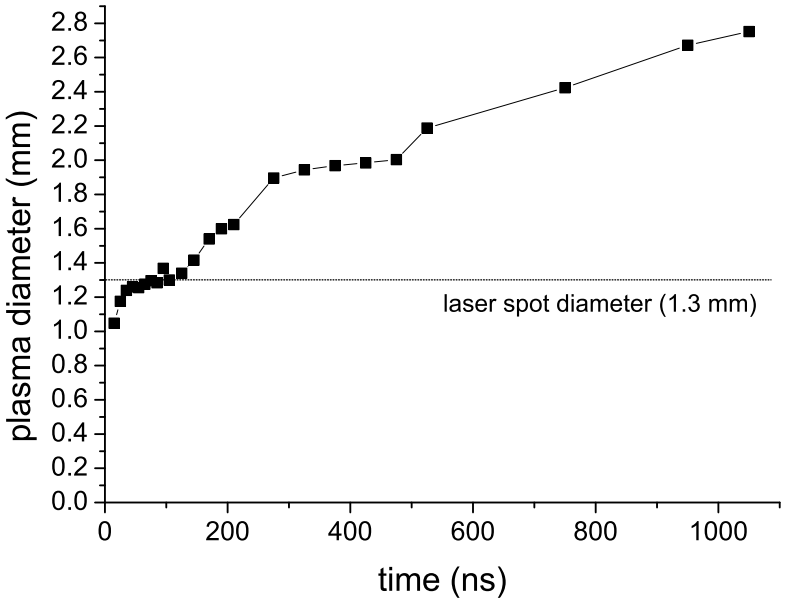

FIG. 4.2 - *Evolution du diamètre moyen du plasma en fonction du temps.*

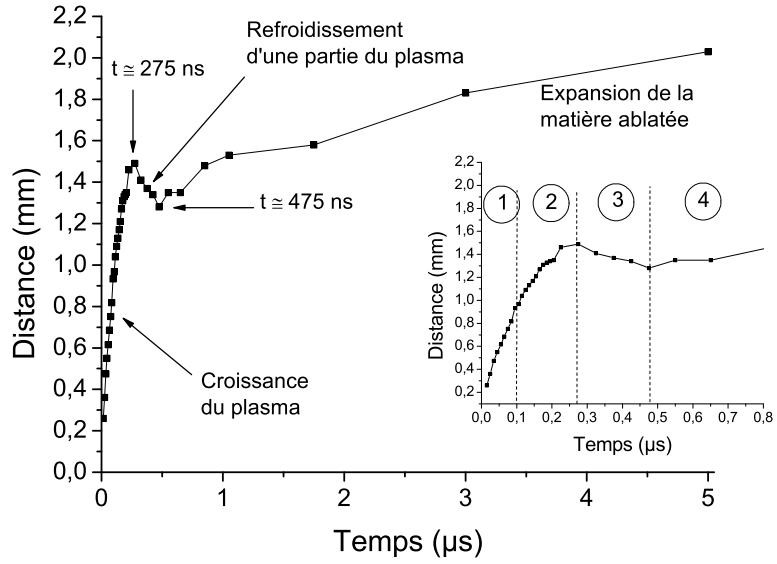

FIG. 4.3 - *Evolution de la longueur du plasma en fonction du temps.*

Les résultats d'ombroscopie seront donc présentés avant d'expliquer cette émission particulière. De plus, même si le modèle ne fournit des résultats que pour le créneau temporel ①, il permettra, en parallèle d'étayer les observations expérimentales pour le créneau temporel ②.

④ *Expansion bidimensionnelle pour* $475 \lesssim t \lesssim 1.5$ *µs*

Le plasma évolue d'une forme elliptique vers 600 ns vers une forme rectangulaire, vers 1 μs. Cela est dû à l'expansion 2D du plasma qui est fortement influencée par

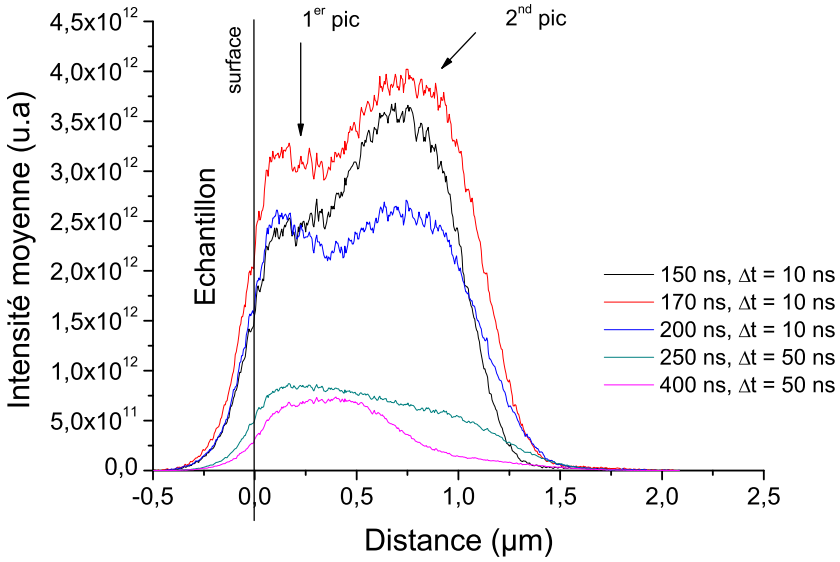

FIG. 4.4 - *Intensité moyenne du plasma en fonction de la distance à la cible*

l'interaction entre le plasma et le gaz ambiant. Le diamètre moyen de ce plasma atteint presque 3 mm. On remarque par ailleurs sur l'image acquise à t = 2 μs que le plasma semble se décoller de la surface de l'échantillon. En réalité, c'est probablement l'intensité qui a chuté de façon importante juste au dessus de la surface, probablement du fait d'un refroidissement du plasma dans cette région par conduction thermique sur la surface, de sorte que l'on ne décelle plus d'émission plasma par imagerie.

La mise en évidence de ces régimes d'expansion est très fortement correlée à la dynamique de l'onde de choc dans la phase gazeuse. Dans la section suivante, cette dynamique est étudiée en s'appuyant sur les résultats d'ombroscopie. La comparaison entre imagerie et ombroscopie permet de comprendre comment se forme le plasma dans la phase gazeuse.

4.1.2 Ombroscopie - Etude de la dynamique de l'onde de choc

Les expériences d'ombroscopie permettent de caractériser la dynamique de l'onde de choc. La figure 4.5 présente l'évolution de l'onde de choc en fonction du temps. Les temps de mesure représentés sur ces images sont les mêmes que pour l'imagerie, afin de comparer les résultats obtenus par les deux expériences. En ombroscopie, il n'y a pas de résultats au-delà de 600 ns, car l'onde de choc est sortie de la zone imagée sur le capteur de la caméra iCCD.

L'étude de l'onde de choc est abordée en deux étapes : en premier lieu, nous montrons que la propagation de l'onde de choc est assez bien décrite par les modèles analytiques présentés dans le chapitre 1. Puis, nous montrons que l'onde de choc joue un rôle dans la formation du plasma. Ces deux étapes sont décrites successivement

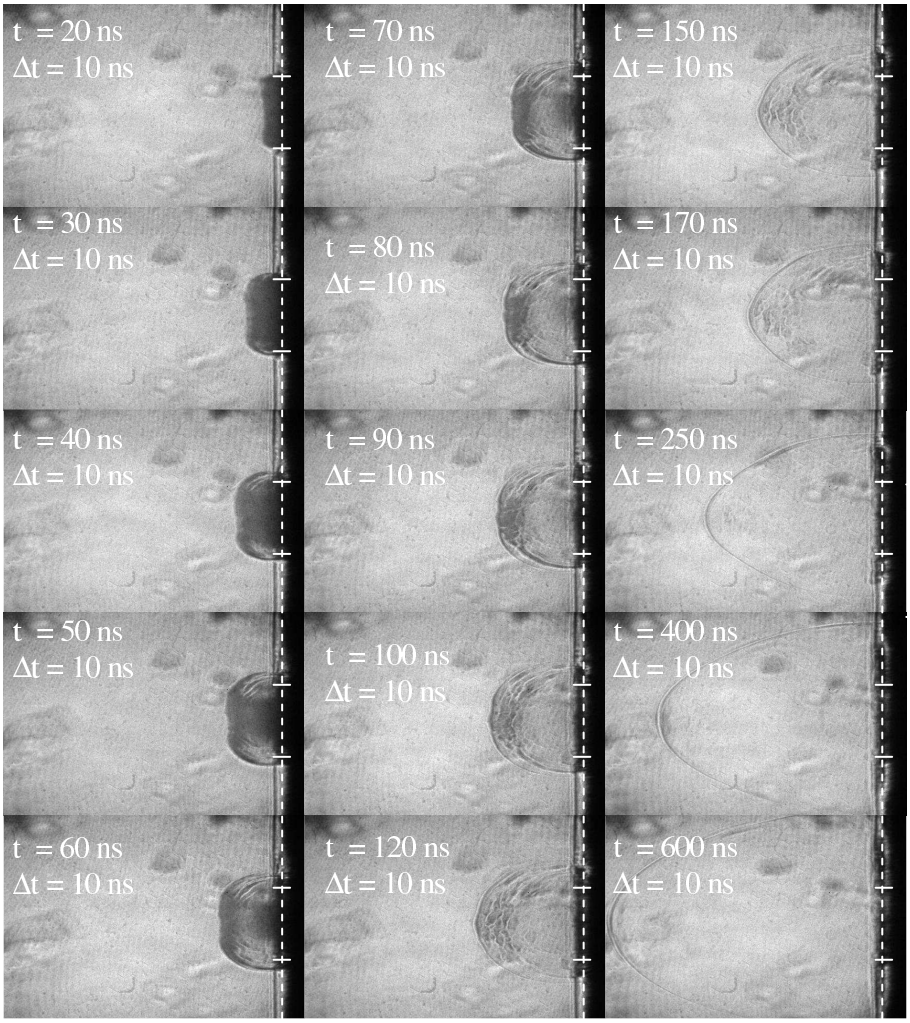

FIG. 4.5 - *Images de la matière dense réalisés dans l'argon à 1 bar à différents temps ($t \leqslant 100$ ns). La porte d'acquisition est 10 ns, la densité optique utilisée est 1,6.*

dans les paragraphes suivants.

a) Modélisation de l'onde de choc

La figure 4.6 présente l'évolution de la position de l'onde de choc en fonction du temps. Les valeurs des différents paramètres sont regroupées dans le tableau 4.1. Jusqu'à t $\approx$ 225 ns, l'onde de choc est assez bien décrite par la loi de Sedov décrite au chapitre 1, avec $\nu = 1$ caractérisant une onde plane. Remarquons que l'utilisation de deux grandissements différents pour le diagnostic donne une forme plutôt sphérique pour l'onde de choc, mais ce n'est que la déformation de l'image par le système optique imageur. De plus, nous avons utilisé une loi de Sedov modifiée par l'ajout d'un terme de décalage temporel, qui permet de tenir compte de la phase d'expansion du plasma pendant et juste après l'impulsion. Dans cette phase, les vitesses de la vapeur sont de l'ordre de 10 km/s, et l'onde de choc ne peut se déplacer plus vite que la vapeur : elle est alors littérallement "collée" à l'interface vapeur-gaz ambiant, on parle de l'effet "chasse-neige". L'onde de choc se "détache" de cette interface lorsque la vapeur ralentit et sa vitesse devient inférieure à celle de la masse de gaz

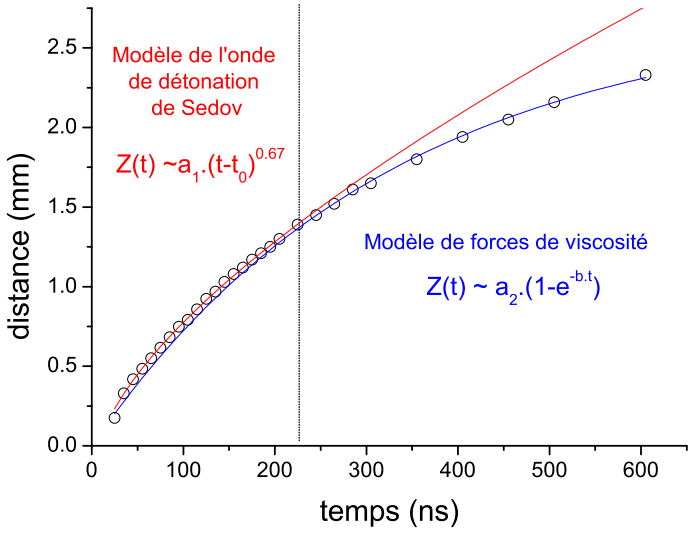

FIG. 4.6 - *Modélisation de la dynamique de l'onde de choc. Les cercles blancs représentent les mesures expérimentales.*

comprimée.

La loi de Sedov permet de calculer l'énergie E qui a servi à former l'onde de choc à partir des valeurs expérimentales de la position de l'onde de choc. Par identification avec la loi (1.35), a_1 s'écrit :

$$a_1 \approx \left(\frac{E}{\rho_0}\right)^{1/3}$$

ce qui nous permet de remonter à la valeur de l'énergie E. En utilisant les valeurs données dans le tableau 4.1, et connaissant la masse volumique de l'argon au repos (en $kg.m^{-1}$ pour une expansion d'onde plane), on calcule : E ≈ 75.4 J. Divisant par la surface d'interaction du laser avec le plasma (qui est le diamètre du faisceau incident en 1D), nous remontons à la fluence servant au chauffage de la cible et du plasma. On obtient $F_{abs} \approx 12.2$ $J.cm^{-2}$, ce qui correspond, aux incertitudes près sur les coefficients a1, t_0 et c, à la fluence de notre impulsion laser, $F_{las} = 11.4$ $J.cm^{-2}$.

TAB. 4.1 - *Valeurs des paramètres utilisées pour modéliser la dynamique de l'onde de choc.*

Modèle de Sedov $z(t) = a_1.(t-t_0)^c$		
Paramètres	Valeurs	Erreur absolue
a_1	42.25	8.32
t_0	10^{-8}	1.66×10^{-9}
c	0.67	0.013
R^2	0.999	
Modèle de forces de viscosité $z(t) = a_2.\exp(1-b\times t)$		
Paramètres	Valeurs	Erreur absolue
a_2	2.75×10^{-3}	3×10^{-5}
b	3.05×10^{6}	7.16×10^{4}
R^2	0.998	

Cela montre à nouveau la cohérence de l'utilisation de la loi de Sedov pour décrire le mouvement de l'onde de choc.

Après 225 ns, c'est plutôt le modèle de force de viscosité qui modélise la dynamique de l'onde de choc. L'hypothèse n°2 du modèle de Sedov (cf. Chapitre 1) est probablement mise en défaut aux temps plus longs, le gradient de pression diminuant du fait des collisions dans le gaz ambiant.

La section suivante présente la comparaison entre les résultats d'imagerie et d'ombroscopie, qui met en évidence le rôle de l'onde de choc dans la formation du plasma.

b) Comparaison entre les résultats d'imagerie et d'ombroscopie

La figure 4.7 présente une comparaison entre le plasma et l'onde de choc à t = 100 ns et t = 400 ns après l'impulsion laser. A t = 100 ns, la longueur du plasma, dans la direction de propagation du faisceau laser, est similaire à la position de l'onde de choc. Le plasma est donc délimité par la surface de la cible et l'onde de choc. A t = 400 ns, la distance de l'onde de choc à la cible est bien plus grande que la longueur du plasma. Nous allons montrer que l'onde de choc joue un rôle dans la formation du plasma dans nos conditions expérimentales.

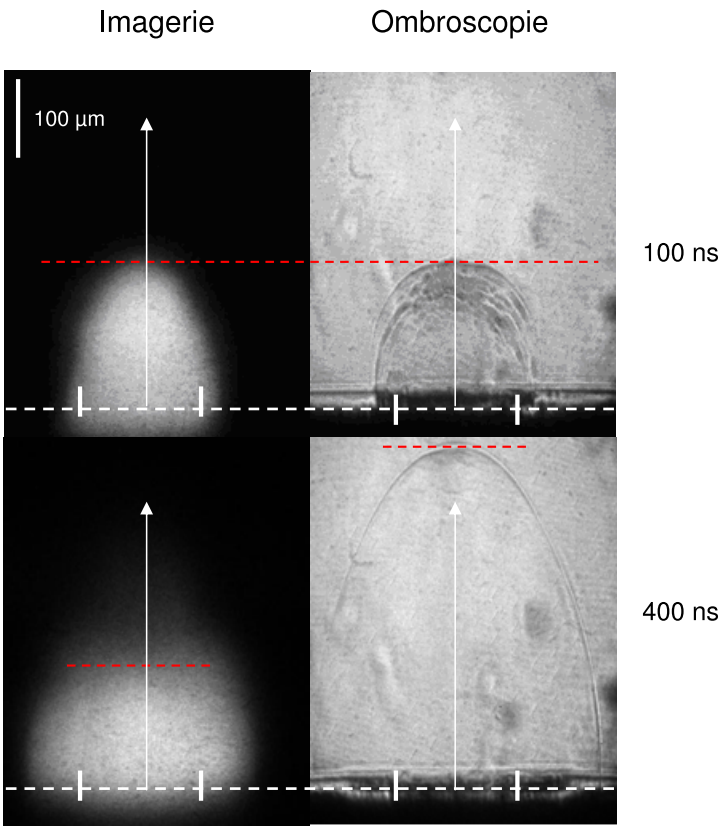

FIG. 4.7 - *Comparaison entre la longueur du plasma et la position de l'onde de choc au cours du temps*

L'évolution de la position de l'onde de choc en fonction du temps a été représentée sur la figure 4.8. Sur la même figure est également présentée l'évolution de la longueur

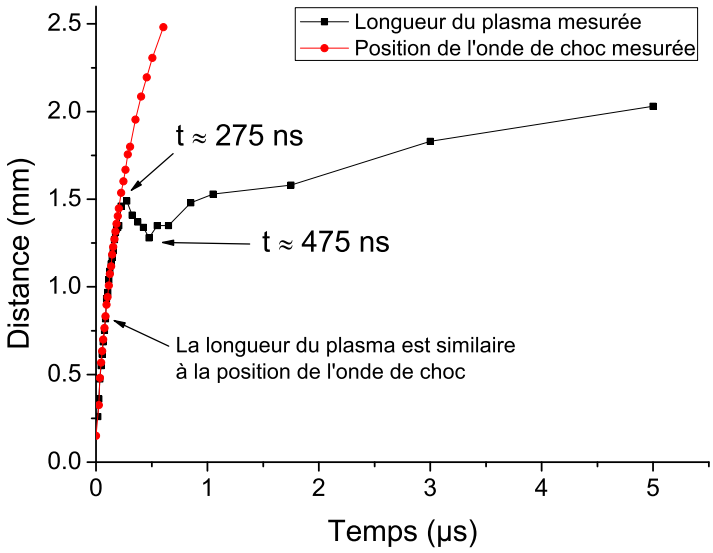

FIG. 4.8 - *Comparaison entre la longueur du plasma et la position de l'onde de choc au cours du temps*

du plasma en fonction du temps (ce résultat est celui de la figure 4.3. Jusqu'à t = 275 ns, la position de l'onde de choc coïncide avec la longueur du plasma. Autrement dit, le plasma s'étend donc de la surface de la cible jusqu'à l'onde de choc pendant les 275 premières nanosecondes de l'expansion. Aux temps plus longs, l'onde de choc se détache du front de plasma et continue de se propager dans le gaz ambiant.

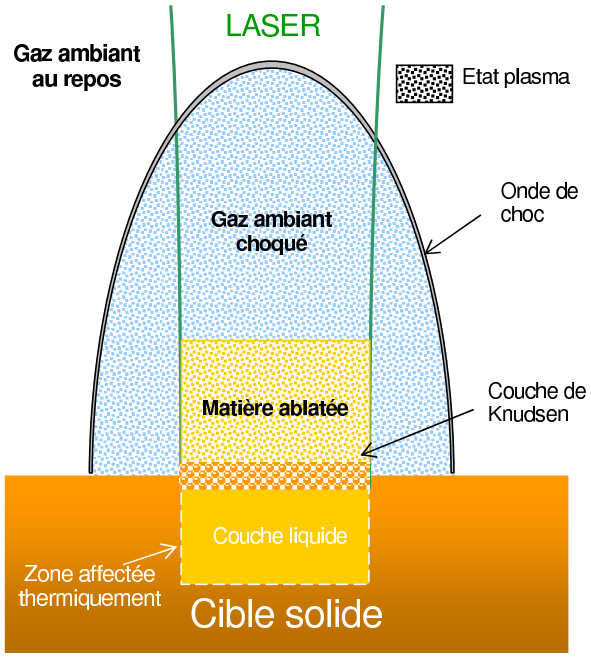

FIG. 4.9 - *Structure du plasma jusqu'à t = 275 ns*

La comparaison des résultats présentés sur les figures 4.7 et 4.3 permet de comprendre la dynamique de formation et de propagation du plasma au cours du temps. Au cours des créneaux temporels ① et ②, le plasma est constitué de vapeur de cuivre et d'argon choqué. Un schéma illustratif est proposé sur la figure 4.9. La propagation de l'onde de choc induit sur son passage l'excitation et peut-être même l'ionisation de l'argon initialement au repos. La région qui contient de l'argon choqué va émettre, au même titre que la vapeur de cuivre, de la lumière par différents mécanismes, qui peuvent être l'émission Bremsstrahlung, la photorecombinaison ou bien l'émission de raies spectrales. Ainsi, l'émission plasma observée par imagerie jusqu'à t = 275 ns est due à l'émission de la vapeur de cuivre et l'émission du gaz ambiant choqué. Ce résultat est cohérent avec celui de la figure 4.4, qui montre deux régions émissives dans le plasma. La première zone émissive (la plus proche de la surface de la cible) est due à la vapeur de cuivre, tandis que la seconde région (la plus éloignée de la surface) est représentative de l'argon choqué.

Dans le créneau temporel ③, la longueur du plasma semble diminuer et l'onde de choc se détache du front de plasma. Cela montre d'une part que le gradient de pression au front d'onde de choc n'est plus suffisamment élevé pour induire une excitation ou une ionisation importante de l'argon au repos. D'autre part, la diminution de la longueur du plasma prouve que l'émissivité de la région qui contient l'argon choqué diminue progressivement et devient suffisamment faible pour qu'elle ne soit plus visible sur les images du plasma. Cette diminution se poursuit jusqu'à t $\approx$ 475 ns. Cette diminution est d'ailleurs visible sur l'intensité du pic correspondant à l'argon choqué sur la figure 4.4.

Au delà de t $\approx$ 475 ns (créneau temporel ④), la longueur du plasma croît à nouveau, mais cette fois plus lentement que dans les créneaux ① et ②. Il est probable que l'émission plasma observée par imagerie provienne de la vapeur de cuivre.

Dans la section suivante, nous comparons les résultats expérimentaux présentés ci-dessus avec les résultats issus du modèle, sur les 100 premières nanosecondes de l'expansion.

4.1.3 Comparaison avec les résultats du modèle

L'évolution de la position de l'onde de choc et de la longueur du plasma mesurées expérimentalement sont comparés aux résultats numériques jusqu'à t = 100 ns sur la figure 4.11.

La longueur du plasma dans le modèle est déterminée à partir de la répartition spatiale de la densité électronique. Nous considérons que la vapeur est à l'état plasma lorsque la densité électronique est supérieure à la valeur 10^{22} m^{-3}, qui est l'ordre de grandeur des densités électroniques généralement mesurées dans des plasmas produits par laser très dilués en fin de temps de vie (quelques microsecondes). La figure 4.10 présente la répartition de la densité électronique à t = 1.5 ns après le maximum d'éclairement laser. La longueur du plasma vaut dans ce cas 40 μm. Cette figure présente également la répartition spatiale de pression : la discontinuité en pression qui traduit la présence d'une onde de choc coïncide avec une discontinuité dans la

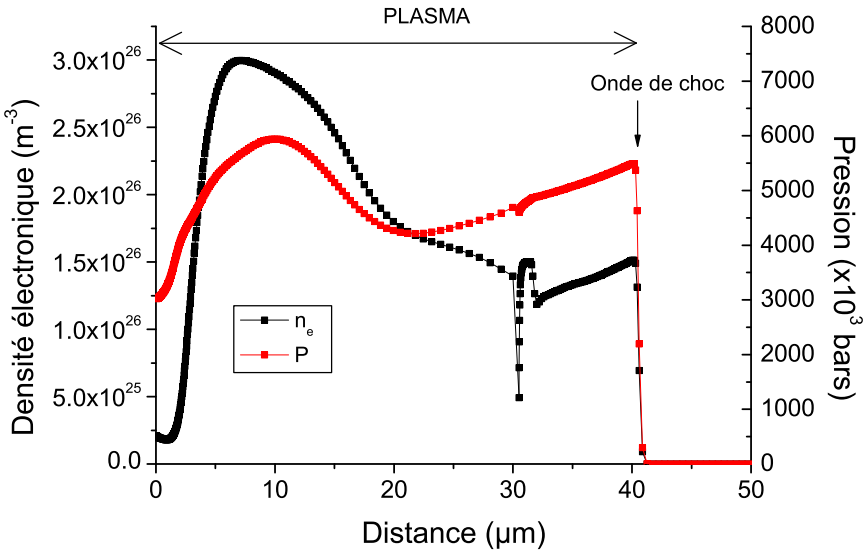

FIG. 4.10 - *Détermination de la longueur du plasma à partir de la densité électronique. Résultat de calcul à t = 1.5 ns*

densité électronique. A t = 1.5 ns, le modèle prédit que la longueur du plasma est donnée par la position de l'onde de choc dans le gaz ambiant.

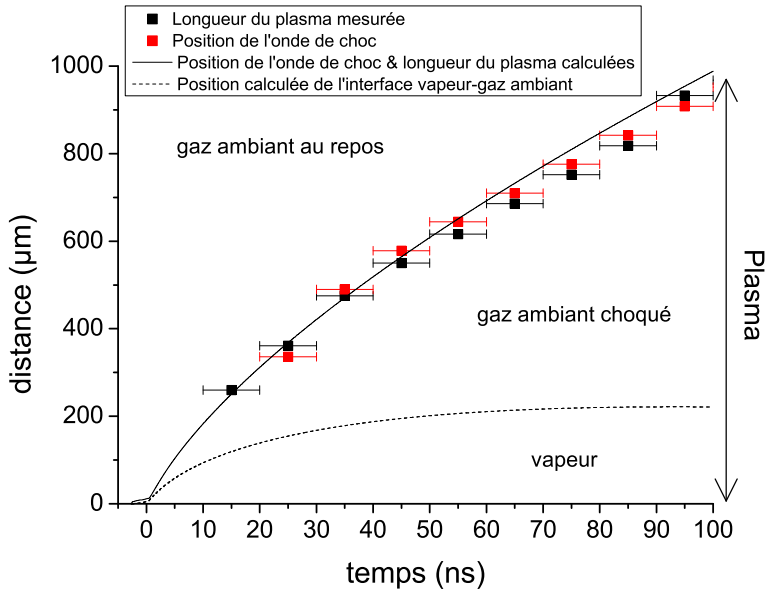

FIG. 4.11 - *Comparaison expériences-modélisation entre l'imagerie de plasma et l'ombroscopie dans l'argon à 1 bar*

Ce résultat est valable pour les 100 premières nanosecondes de l'expansion, comme le montre la figure 4.11. Sur cette figure, nous représentons les positions de

l'onde de choc et de l'interface vapeur-gaz ambiant en fonction du temps, à partir des deux approches mesure expérimentale (les points) et modélisation numérique (en trait). Il convient ainsi de remarquer que la longueur du plasma est égale, pour $t \leqslant 100$ ns, à la position de l'onde de choc dans le modèle. Le modèle montre donc également que le plasma croît du fait de la propagation de l'onde de choc dans l'argon initialement au repos, résultat qui concorde avec les observations expérimentales.

Par ailleurs, la comparaison entre les résultats expérimentaux et la modélisation numérique montre que le modèle décrit parfaitement la dynamique du plasma et de l'onde de choc. Les points de mesure, représentant la position de l'onde de choc et la longueur du plasma, se superposent, aux incertitudes près, avec la courbe représentant l'évolution, donnée par le modèle, de ces deux grandeurs au cours du temps.

Sur la figure 4.11, nous avons également représenté l'évolution au cours du temps de la position de l'interface vapeur-gaz ambiant calculée par le modèle. La postion de cette interface n'a pas été mesurée expérimentalement car cette mesure est extrêmement difficile à réaliser sur notre banc expérimental. Le modèle permet de confirmer l'hypothèse, qui a été posée dans la section b), concernant la structure du plasma (cf. figure 4.9. Ce résultat montre que la vapeur de cuivre s'étend beaucoup moins loin de la surface de la cible que le gaz ambiant choqué. La position de l'interface vapeur-gaz ambiant à $t = 100$ ns est $z \approx 200$ μm, ce qui veut dire que la longueur de la vapeur vaut 200 μm. En comparaison, le plasma s'étend sur près d'un millimètre. Le modèle prédit donc que le plasma que l'on observe à $t = 100$ ns sur la figure 4.1, est constitué au 2/5 de vapeur de cuivre et 3/5 d'argon choqué.

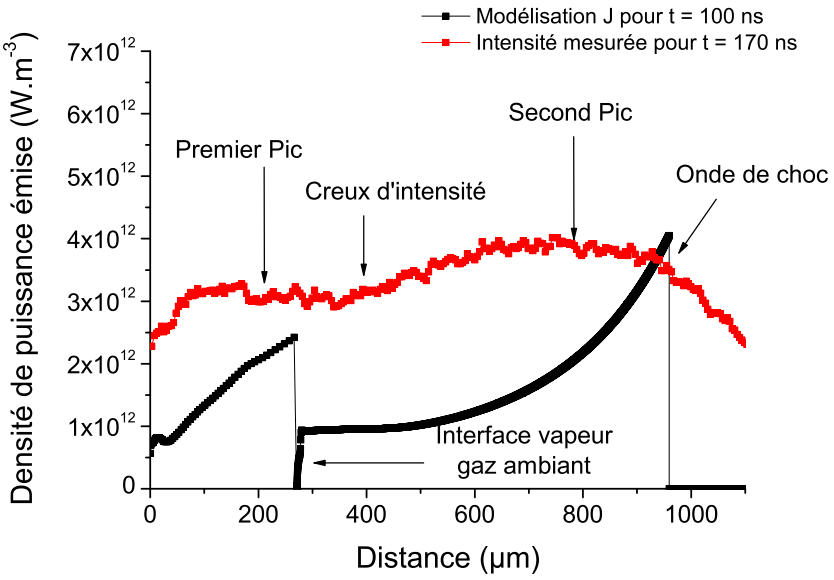

FIG. 4.12 - *Répartition spatiale de l'émissivite du plasma à $t = 100$ ns*

Le coefficient d'émission du plasma à $t = 100$ ns est présentée sur la figure 4.12. Ce résultat montre que la puissance rayonnée par le plasma (cf. figure 4.4) est également

constitué de deux zones très émissives séparées par une zone plus faiblement émissive. Sur la même figure, nous avons représenté l'intensité émise par le plasma mesurée à t = 170 ns (cf. figure 4.4). Malgré la différence entre les temps de représentation, les deux résultats présentent une forte similitude. En effet, la position des zones émissives donnée par le modèle concorde avec le résultat expérimental : sur la figure 4.12, l'une des zones fortement émissives se situe dans la vapeur vers 250 μm. La seconde zone se situe dans le gaz ambiant, en aval de l'onde de choc, pour z $\approx$ 950 μm. En étudiant la figure 4.4, ces zones sont respectivement situées vers 250 μm et 750 μm. Le fait que les bons ordres de grandeurs soient trouvés pour la position des zones émissives montre que la dynamique du plasma est bien décrite. Par ailleurs, ce résultat semble confirmer que la vapeur s'expand très peu par rapport au plasma, dans une région large de 300 μm approximativement au dessus de la surface.

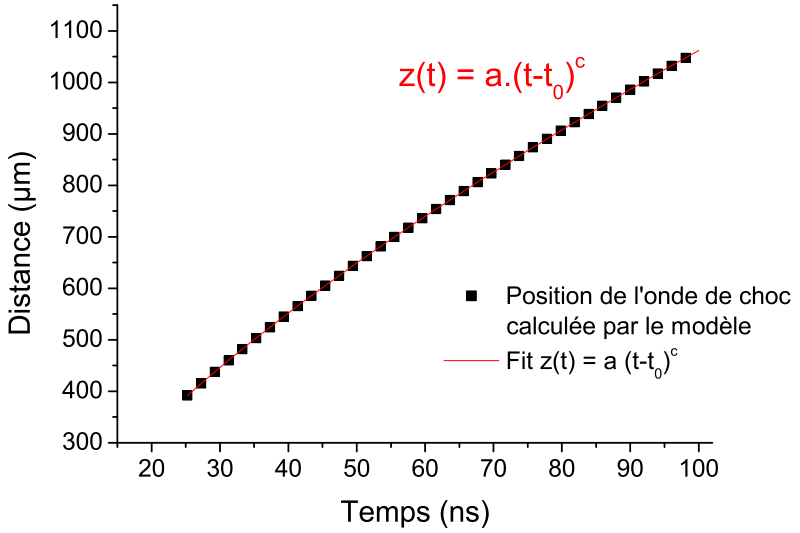

FIG. 4.13 - *Comparaison entre l'évolution de la position de l'onde de choc donnée par le modèle numérique et celle donnée par le modèle de Sedov*

Enfin, le résultat de la figure 4.13 montre que l'onde de choc suit la loi de Sedov dans le modèle pour t $\lesssim$ 100 ns. Il existe un léger écart entre les exposants calculés par les deux modèles (0.67 dans le tableau 4.1 et 0.68 dans le tableau 4.2), mais cet écart n'est pas significatif.

TAB. 4.2 - *Valeurs des paramètres utilisées pour modéliser la dynamique de l'onde de choc donnée par le modèle.*

Modèle de Sedov $z(t) = a_1.(t\text{-}t_0)^c$		
Paramètres	Valeurs	Erreur absolue
a_1	66.45	0.135
t_0	2.57×10^{-9}	9.83×10^{-12}
c	0.68	1.3×10^{-4}
R^2	1	

La section suivante décrit la dynamique d'ablation sur les cibles de cuivre dans les mêmes conditions (150 mJ, atmosphère d'argon à 1 bar). La forme des cratères confirme l'hypothèse d'homogénéité de l'ablation de matière sur toute la tache laser. La profondeur ablatée par impulsion est ensuite mesurée et comparée directement aux profondeurs calculées par le modèle. Enfin, nous présentons une étude du régime d'ablation en fonction de l'énergie de l'impulsion, ce qui permet de déterminer la valeur du seuil d'ablation[1] dans nos conditions expérimentales.

4.2 Etude des cratères d'ablation

L'étude des caractéristiques des cratères (profondeur, forme) permet d'obtenir plusieurs types d'informations : l'étude de la profondeur en fonction du nombre d'impulsions appliquées permet d'obtenir l'épaisseur de couche ablatée par impulsion, donnée qui est également calculée dans le modèle et permet ainsi de valider la modélisation d'ablation. Il est également possible de calculer le seuil d'ablation, qui est l'énergie requise pour obtenir un cratère avec une profondeur donnée[2]. Une étude de la forme des cratères par MEB montrera que la dynamique d'ablation n'est pas un mécanisme 'binaire' (il y a ablation pour des énergies supérieures au delà du seuil mais pas pour des énergies inférieures). Aux basses énergies, des mécanismes de structuration du matériau sont observables.

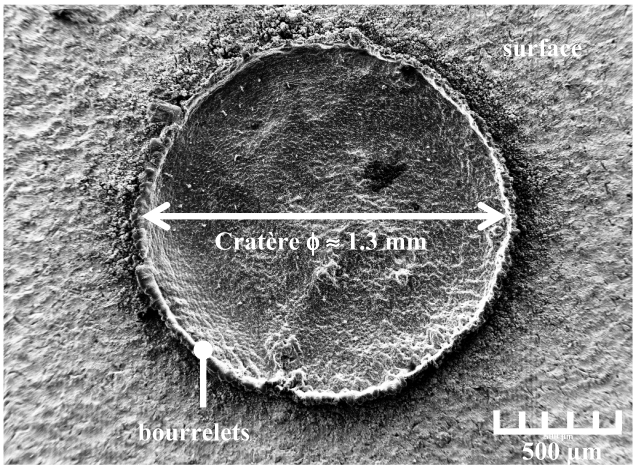

Fig. 4.14 - *Image d'un cratère réalisé avec 1000 tirs (Fluence de l'impulsion 11.4 J.cm^{-2}) dans l'argon à 1 bar*

4.2.1 Forme des cratères

La forme des cratères est étudiée principalement pour vérifier l'hypothèse d'ablation homogène (et donc unidimensionnelle) sur toute la tache laser en surface de cible. La figure 4.14 est une image de cratère réalisée au MEB. Ce cratère a été réalisé, dans nos conditions d'irradiation, avec 1000 tirs laser dans une atmosphère d'argon à 1 bar. La profilométrie de ce cratère est montré sur la figure 2.14. Le fond du cratère

[1] Le seuil d'ablation est la valeur minimale d'énergie requise (ou de fluence, ou d'éclairement) pour qu'il y ait ablation de matière.

[2] Nous définirons arbitrairement cette profondeur dans cette section.

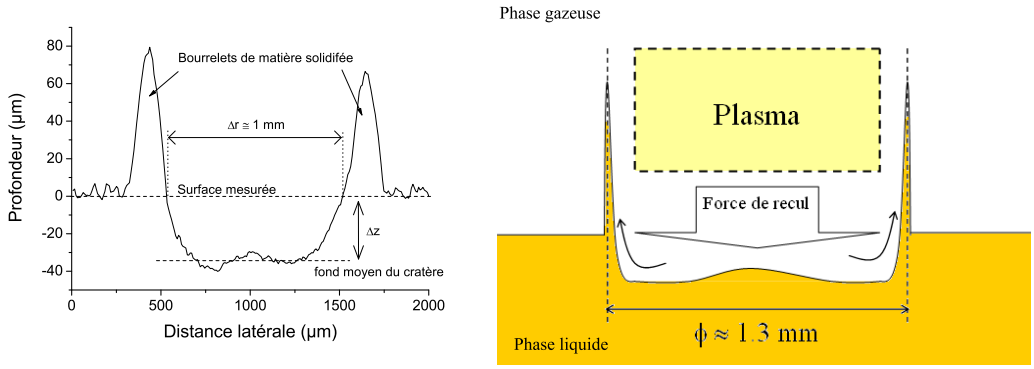

FIG. 4.15 - *Profil du cratère présenté en figure 4.14 - Schéma d'un cratère 'réel'*

est relativement plat, ce qui prouve que l'ablation se réalise de façon homogène sur l'ensemble du spot laser. Le diamètre Δr du cratère vaut ici 1 mm, valeur plus petite que la diamètre de la tache laser en surface (ϕ = 1.3 mm). Mais le cliché MEB en figure 4.14 montre bien que le diamètre du cratère vaut 1.3 mm. Cette différence provient de l'estimation de Δr entre les deux pics en périphérie de cratère. Ces pics correspondent à de la matière liquide qui s'est solidifiée après l'impulsion laser. Le plasma exerce une force de recul sur la phase liquide à la manière d'un piston. Une partie de ce liquide est alors expulsé vers l'extérieur du cratère, ce qui forme ces deux pics lors de la solidification du liquide. Nous avons schématisé ce principe sur la figure 4.15.

Les pics de matière sont élargis par la géométrie de la pointe lors de la mesure, comme cela a été expliqué dans le chapitre 2. De ce fait, nous avons représenté les pics beaucoup plus fins que le profil mesuré, hypothèse qui a été confirmé par microscopie électronique à balayage.

En toute rigueur, le cratère se forme donc par deux processus : une partie de la matière est vaporisée. Le laser a donc ablaté la cible sur une profondeur z_{abl}. Une autre partie de la masse liquide s'est déplacée sur les bords du cratère. Les mouvements de liquide ont donc induit un creusement supplémentaire, nommé $z_{mouv\text{-}liq}$. La profondeur mesurée est donc décomposée en la somme de ces deux termes :

$$z_{\text{mesurée}} = z_{\text{abl}} + z_{\text{mouv-liq}}$$

La largeur effective des pics de matière en bordure du cratère étant beaucoup plus petite que le diamètre du cratère, il est raisonnable de supposer que la masse de matière repoussée sur les bords est faible par rapport à la masse de matière ablatée ($z_{abl} \gg z_{mouv\text{-}liq}$). On a donc $z_{mesurée} \approx z_{abl}$. La profondeur du cratère est calculée par intégration du profil présenté sur la figure 2.14 par la formule (cf. Chapitre 2) :

$$\int_{\Delta r} z(r)dr$$

où r est le déplacement latéral et z la profondeur du cratère.

4.2.2 Profondeur ablatée par impulsion

La méthode de mesure de la profondeur ablatée par impulsion a été présentée dans le chapitre 2. La mesure, par profilométrie, de la profondeur moyenne des cratères

en fonction du nombre d'impulsions appliquées pour chaque cratère est représentée sur la figure 4.16. Les points de mesure s'alignent assez bien sur une droite, ce qui montre que l'épaisseur ablatée est proportionnelle au nombre d'impulsions appliquées. Le coefficient de proportionalité est la pente de cette droite, qui représente donc l'épaisseur de matière ablatée à chaque impulsion. Dans ces conditions de mesure, la profondeur ablatée à chaque impulsion vaut 40 nm. Elle est très faible, ce qui montre que peu de matière est injectée dans le plasma (m $\approx$ 0.43 μg).

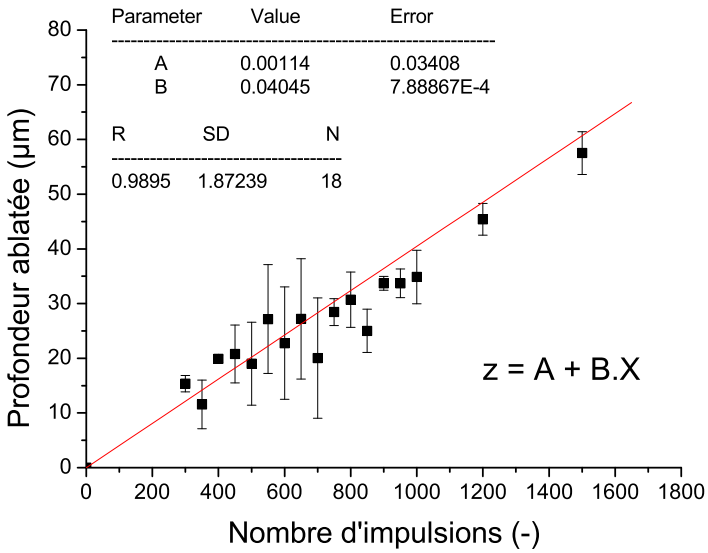

FIG. 4.16 - *Evolution de la profondeur ablatée en fonction du nombre d'impulsions appliquées.*

La valeur de cette profondeur correspond aux mesures effectués par Jordan et *al* sur des échantillons de cuivre dans les mêmes conditions laser mais dans un vide primaire (10^{-4} mbar) [1]. Leur résultat, présenté sur la figure 4.17, montre par interpolation que la profondeur ablatée vaut environ 30 nm pour une fluence de 11.4 J.cm^{-2}. Cette comparaison montre qu'un bon ordre de grandeur est obtenu pour les mesures de la pronfondeur ablatée par impulsion.

L'évolution de la profondeur du cratère en fonction du temps, donnée par le modèle, est représenté sur la figure 4.18. Sur la même figure, en rouge, nous avons représenté le profil d'intensité du laser en surface du matériau. Le modèle numérique montre que la dynamique d'ablation évolue de la façon suivante : la phase d'ablation de matière a lieu jusqu'à 2.5 ns après le maximum d'impulsions. A ce stade, il y a formation d'un plasma, puisque l'éclairement laser a brusquement chuté et n'excède plus 200 MW.cm^{-2}. Cela traduit donc le fait qu'une grande majorité de l'énergie du faisceau sert à chauffer le plasma. A t $\approx$ 2.5 ns, la profondeur du cratère atteint sa valeur maximale, $\Gamma \approx 160$ nm. Puis, à partir de 2.5 ns, et jusqu'à la fin du calcul (t = 100 ns), la matière ablatée condense en surface de l'échantillon. Le modèle prédit que la durée d'ablation est très courte par rapport à celle de la condensation. La vapeur de cuivre est ablatée en quelques nanosecondes à peine, tandis qu'elle condense en une centaine de nanosecondes, voire plus longtemps.

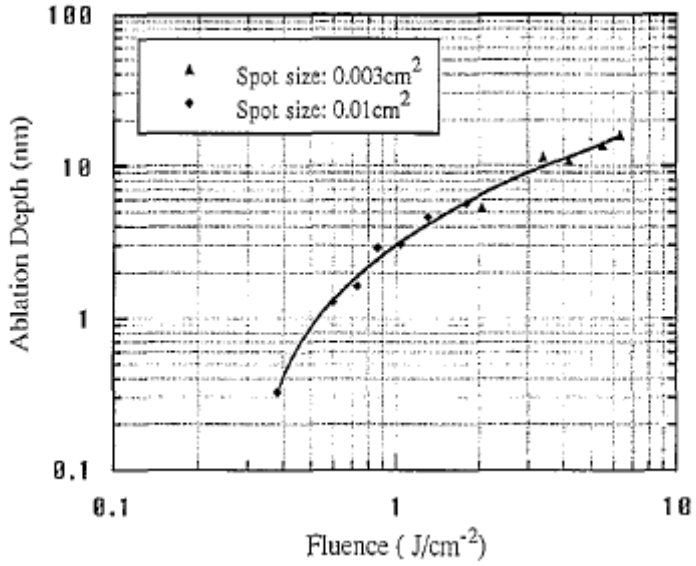

FIG. 4.17 - *Evolution de la profondeur ablatée en fonction de la fluence laser (Laser Nd :YAG, 532 nm, 6 ns FWHM). Image extraite de [1].*

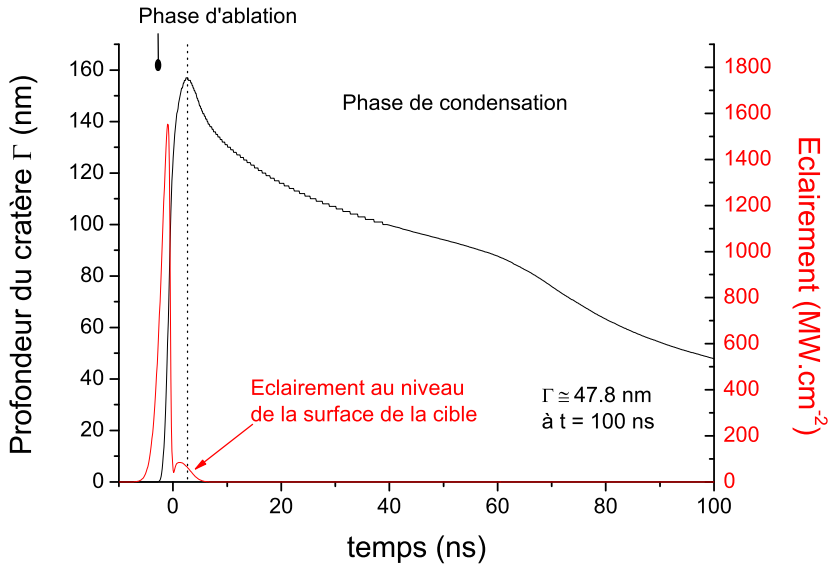

FIG. 4.18 - *Evolution de la profondeur du cratère en fonction du temps pour une impulsion.*

A la fin du calcul t = 100 ns, la profondeur ablatée vaut 47.8 nm. Nous avons arrêté le calcul à ce temps car l'hypothèse d'expansion unidimensionnelle n'est plus valable aux temps plus longs. Si le calcul avait été poursuivi (avec l'ajout d'un modèle d'expansion 2D), la précision de la valeur numérique aurait pu être améliorée.

La partie suivante présente une étude de la matière condensée au tour du cratère. Cette étude vise à déterminer les mécanismes de formation de la couche condensée

et sa composition. L'identification de ces mécanismes est utile pour expliquer les mécanismes de formation des micro-structures dans le cratère, pour des énergies de l'ordre de la dizaine de millijoules.

4.2.3 Etude de la condensation

L'étude de la profondeur ablatée par impulsion a montré que, lorsque plusieurs impulsions sont appliquées sur le cratère, un dépôt parfaitement circulaire se forme autour du cratère. Ce dépôt est observé sur la figure 4.19 qui est un cliché MEB d'un cratère ablaté dans l'argon.

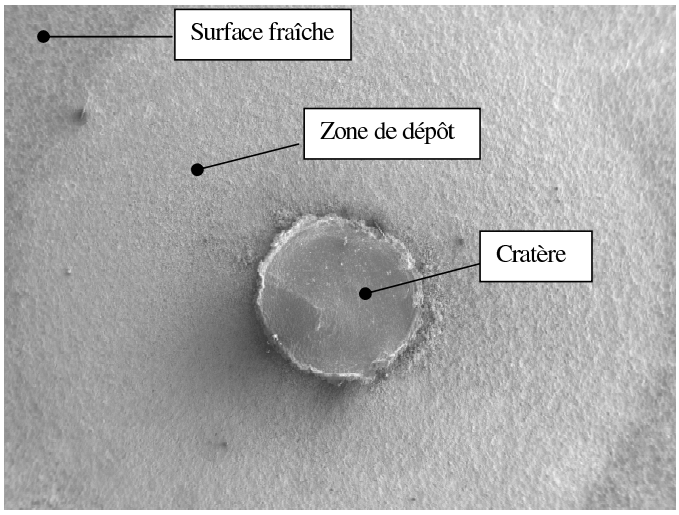

FIG. 4.19 - *Cliché MEB d'un cratère avec présence du dépôt (grand cercle blanc)*

Le dépôt est parfaitement circulaire et son diamètre est estimé à 5.5 mm, soit 4 fois le diamètre du cratère. En premier lieu, nous pouvons exclure le dépôt de matière par gravité. En effet, la cible est placée à la verticale et le dépôt n'aurait pas été de forme parfaitement circulaire, mais orienté préférentiellement vers le bas. On remarque, sur la figure 4.1 à 2 μs, que le diamètre du plasma est pratiquement 3 à 4 fois plus grand que celui du spot laser en surface de cible, donc du même ordre de grandeur que le diamètre du dépôt. D'autres études dans le xénon ou l'hélium ont également montré que le diamètre du plasma, aux temps de l'ordre de la microseconde, correspond à celui du dépôt observé. L'explication est la suivante : le plasma en expansion exerce une pression de recul sur la cible (loi d'action-réaction). Celle-ci contraint la matière dans la phase gazeuse à venir se plaquer sur la surface de l'échantillon. En périphérie du cratère, la surface est, en première approximation, à la température ambiante (en réalité, le plasma chauffe la surface par convection thermique et radiation - mais ce chauffage n'est pas suffisant pour qu'il y ait équilibre thermique) et la pression de la matière plaquée est généralement supérieure à la pression de saturation définie à partir de la température de surface. Il y a donc condensation de cette matière autour du cratère.

Les clichés MEB présentés sur la figure 4.20 montrent la différence entre la surface d'un échantillon vierge de tout impact et la zone de dépôt. Le cliché (b) met en

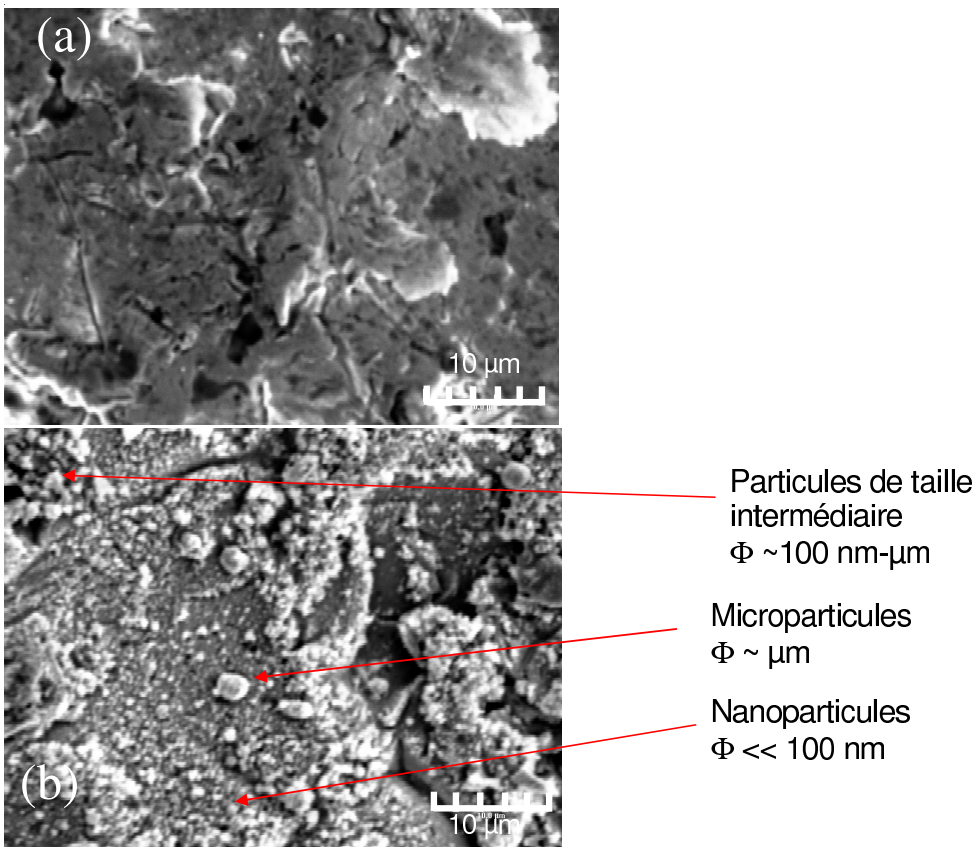

FIG. 4.20 - *Etat de surface de l'échantillon (a) et dans la zone de dépôt (b)*

évidence une granulométrie particulière dans la zone de dépôt. Celui-ci est constitué de particules de tailles variables, dont la taille s'échelonne de quelques centaines de nanomètres à plusieurs micromètres.

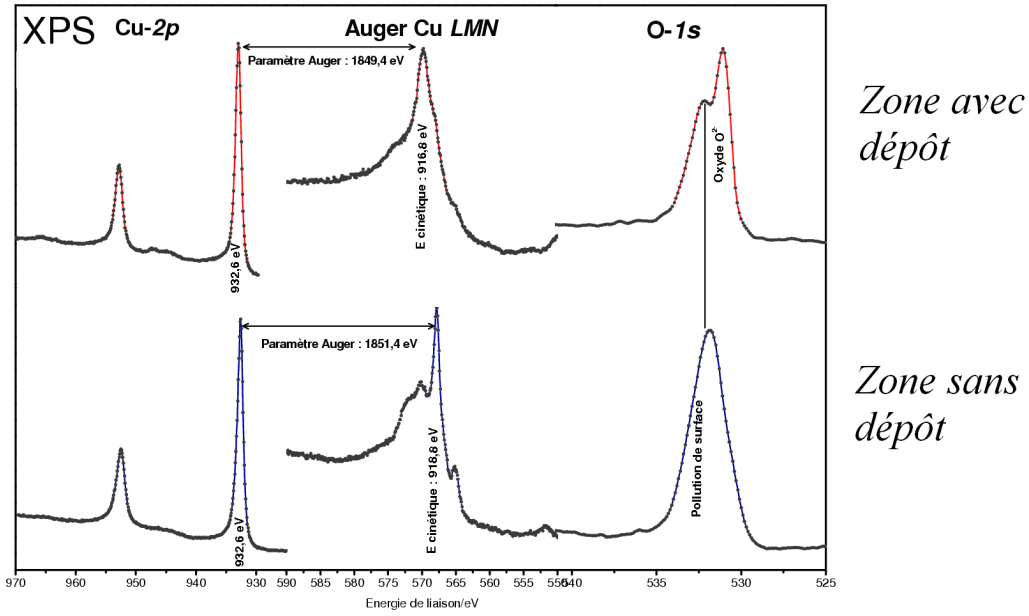

FIG. 4.21 - *Analyse XPS du dépôt.*

Une analyse XPS (X-Ray Photoelectron Spectrometry[3]) a été réalisée pour étudier la composition de ces particules. Les résultats de cette analyse, présentés en figure 4.21, montrent les spectres des niveaux Cu-2p, Auger LMN du cuivre et du niveau 1s de l'oxygène pour la zone avec le dépôt noir (a) et la zone sans le dépôt (b) (surface fraîche). Les pics à 932.6 eV (énergie de liaison du Cu-2p(3/2)) sont similaires pour le dépôt et la surface sans dépôt. Cette valeur d'énergie de liaison peut être attribuée soit à du cuivre métallique, soit à du cuivre ionique Cu^{+}, constituant par exemple la molécule Cu_2O. En revanche, l'absence d'un second pic à 933.8 eV prouve qu'il n'y a pas d'oxyde de cuivre CuO présent dans le dépôt noir.

Pour différencier le Cu métal et Cu_2O, il faut s'intéresser aux pics Auger du cuivre. Le pic Auger principal se situe à des valeurs d'énergie cinétique différentes (918.8 eV pour la zone sans dépôt et 916.8 eV pour la zone avec dépôt). Ces valeurs indiquent donc la présence de cuivre métal pour la zone sans dépôt et la présence de Cu_2O dans la zone avec dépôt noir.
Cette observation est confirmée par les pics de niveau O-1s. La mesure d'un large pic sur la surface vierge et de deux pics distincts sur le dépôt montre qu'il y avait une forte présence d'oxygène de pollution (C=O, OH, ...). Cet oxygène provient de l'air ambiant, contaminant par oxydation et adsorption l'échantillon pendant le transport jusqu'à l'analyseur XPS, par exemple. Une légère érosion ionique a été réalisée pour éliminer une partie de la contamination en surface. Après élimination, un pic sur le niveau 1s de l'oxygène à plus faible énergie de liaison (530.6 eV) a été mesuré. Ce pic traduit la présence de l'espèce O^{2-} lié à la présence de la molécule Cu_2O.

Les particules observées par MEB sont donc des particules d'oxyde de cuivre Cu_2O ou des particules de cuivre Cu_x. L'observation des différentes tailles de particules sur la photo (b) de la figure 4.20 peut être liée à deux mécanismes :

1. les particules ont donc été ablatées pendant la durée de l'impulsion laser. Nous avons supposé dans le modèle que l'ablation du cuivre se réalise par évaporation thermique, c'est-à-dire un enlèvement de la matière atome par atome. Mais il a été expérimentalement prouvé que les mécanismes d'ablation sont beaucoup plus complexes et que des particules de tailles diverses peuvent également être arrachées de la cible [2,3]. Ces particules sont éjectées de la surface puis redéposées dans le cratère ou sur le pourtour.
2. au sein du plasma peuvent se produire des processus de croissance de particules (agglomération, condensation...). Ces processus peuvent concerner plusieurs types d'agrégation : atome-atome, atome-particule (de cuivre Cu_x ou bien d'oxyde de cuivre Cu_2O) et particule-particule (on peut envisager les mêmes collisions avec des ions). Les particules formées sont venues se également se déposer dans ou autour du cratère.

Ces deux mécanismes peuvent naturellement se combiner, les particules éjectées de la cible peuvent croître par condensation dans le plasma.

L'atmosphère ambiante, dans laquelle ont été formés les plasmas de cuivre, n'est donc pas seulement constituée d'argon pur (ou plus généralement de gaz rare pur)

[3]La Spectroscopie photoélectronique-X est une technique d'analyse chimique des matériaux par bombardement de rayons X qui expulsent les électrons de coeur dans la matière. La mesure de l'énergie cinétique de ces électrons permet de remonter à leur énergie de liaison dans le matériau, et donc d'identifier une liaison chimique particulière

mais contient également des traces d'oxygène. Cet oxygène peut provenir de l'air ambiant résiduel dans la cellule après le pompage primaire, de la désorption des parois de la cellule ou bien de l'oxyde de cuivre présent initialement sur l'échantillon. Dans le plasma de cuivre et d'argon, cet oxygène va être dissocié (pour O_2), excité et ionisé. L'affinité électronique de l'oxygène conduit certainement à la formation d'ions O^{2-} qui vont interagir avec le cuivre environnant. L'oxygène O^{2-} met en commun ses deux électrons soit avec deux atomes de cuivre qui possèdent un électron unique sur leur couche de conduction (Z = 29, configuration $4s^1$), soit avec deux ions Cu^+.

Les analyses XPS ne permettent pas de mesurer une concentration en oxygène dans le dépôt. Avant les analyses XPS, nous avons réalisé des observations MEB-EDS qui n'ont pas mis en évidence d'oxygène dans ce dépôt. Cette absence est due à la sensibilité du détecteur qui ne peut pas mesurer une concentration en oxygène inférieure à quelques %. Cette limite donne une information précieuse : elle indique que le gaz ambiant est composée de très peu d'oxygène. Nous avons raisonnablement supposé que l'oxygène a très peu d'influence sur la dynamique du plasma sur les 100 premières nanosecondes d'expansion, et participent simplement aux réactions chimiques dans le plasma aux temps plus longs. Ainsi, nous n'en n'avons pas tenu compte dans le modèle.

4.2.4 Seuil d'ablation

Le seuil d'ablation est défini comme *l'énergie minimale que doit contenir l'impulsion incidente pour qu'il y ait ablation de matière*. Cela se traduit par la présence d'une empreinte du faisceau laser sur la surface. Dans le cas contraire, si aucune empreinte n'est visible après interaction laser-cible, on peut raisonnablement conclure qu'il n'y a pas eu ablation. Notons que ce seuil peut également être défini à partir de la fluence laser – en divisant l'énergie seuil par la surface du spot laser – ou bien de l'éclairement – en divisant la fluence seuil par la durée d'impulsion. Nous opterons pour la première notation.

Le seuil d'ablation est déterminé expérimentalement en mesurant la profondeur ablatée de plusieurs cratères obtenus pour différentes valeurs de la fluence laser. La gamme d'énergie de l'impulsion est ici 0-155 mJ, et nous avons effectué des mesures tous les 10 mJ approximativement. Cela correspond à une gamme de fluence 0-12 $J.cm^{-2}$. Le résultat est présenté sur la figure 4.22.

Nous avons reporté sur l'axe des abscisses lla fluence laser, et en ordonnées la profondeur ablatée normalisée par le nombre de tirs appliqués. Pour chaque énergie, un nombre de tirs différent a été appliqué afin d'obtenir des cratères dont la profondeur est facilement mesurable. Par exemple, pour $0 \leqslant F < 5$ $J.cm^{-2}$, 6000 tirs ont été appliqués alors que seulement 1000 tirs ont été appliqués pour $5 \leqslant F \leqslant 12$ $J.cm^{-2}$.

Pour $F \leqslant 1.5$ $J.cm^{-2}$, les analyses profilométriques n'ont pas mis en évidence la formation d'un cratère. Des analyses MEB, qui ont une plus grande résolution pour l'observation de surface, ont confirmé ce résultat. On peut donc raisonnablement en déduire que le laser a uniquement chauffé la cible sans la conduire au delà du point d'ébullition. Pour des fluences supérieures à 2.3 $J.cm^{-2}$ en revanche, la mesure par profilométrie donne une valeur non nulle du cratère, montrant qu'il y a eu

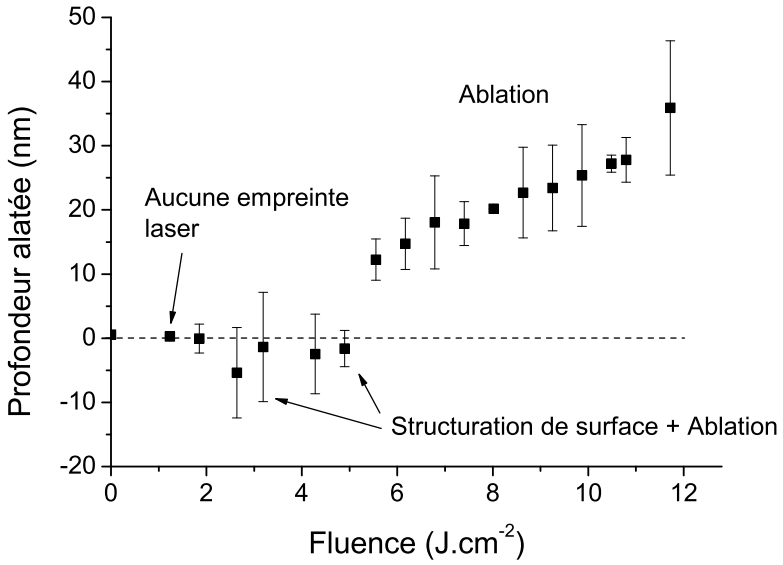

FIG. 4.22 - *Variation de la profondeur mesurée du cratère en fonction de la fluence laser.*

interaction entre le laser et la surface de la cible. *Le seuil d'ablation est donc situé entre 1.5 et 2.3 J.cm^{-2}.*

Au delà de ce seuil, 2 régimes d'interaction sont mis en évidence :

1. pour $1.5 \lesssim F \lesssim 7.5$ J.cm^{-2}, la profondeur mesurée par profilométrie est négative. Cela signifie qu'il n'y aurait pas formation d'un cratère, mais que la matière se serait *soulevée* par rapport à la surface de l'échantillon.
2. pour $F > 7.5$ J.cm^{-2}, il y a ablation sur toute la surface du spot laser. La profondeur mesurée est positive, et augmente linéairement en fonction de l'énergie de l'impulsion incidente.

Ces deux régimes sont détaillées dans les sections suivantes.

a) Régime de structuration de surface et ablation - $1.5 \lesssim F \lesssim 7.5$ J.cm^{-2}

Ce régime a été mis en évidence d'abord en profilométrie, puis en cartographie MEB. Dans la première analyse, des mesures de topographie 3D ont été réalisées pour consolider le résultat qui montre que la surface s'est "soulevée" vers le haut. Deux topographies de cratères (pour 3 et 5.3 J.cm^{-2}) sont présentées sur la figure 4.23. Elles montrent que de nombreuses structures colonnaires, dont la hauteur est de l'ordre de quelques micromètres, se sont formées dans le cratère. Leur formation prouve qu'un mécanisme de croissance en est à l'origine.

L'étude par MEB d'un cratère ablaté avec une impulsion d'énergie 5.3 J.cm^{-2} est présenté sur la figure 4.24. Ces clichés valident donc la formation de structure pour des énergies de quelques dizaines de millijoules. En réalité, le régime de structuration s'accompagne toujours, dans nos conditions expérimentales, d'une ablation de matière. Cela apparaît sur les clichés (b) et (e) : sur le premier, on voit en haut à gauche du cratère un trou (en forme de "C" renversé) entre les structures colonnaires, qui

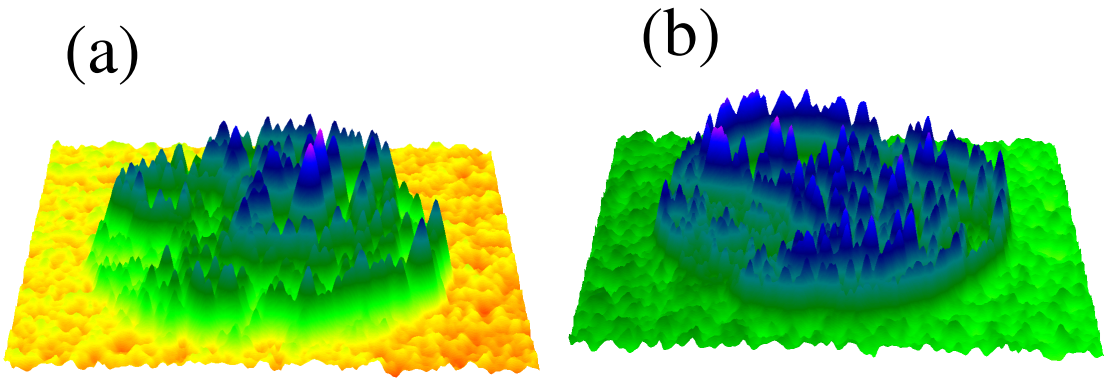

FIG. 4.23 - *Structuration de la surface pour une valeur de la fluence laser égale à : (a) 3 J.cm^{-2}, (b) 5.3 J.cm^{-2}.*

traduit une ablation de matière. Sur le second, une structure est grossie 700 fois, ce qui permet de voir, sur la partie gauche de l'image, le fond du cratère (en gris sombre). Notons également qu'à partir de 1.5 J.cm^{-2}, un plasma a systématiquement été observé à l'oeil nu au dessus de la surface, plasma caractéristique d'une ablation de matière.

De nombreux travaux reportent la formation de structures variés sur la surface de solides irradiés par laser [4–7]. N.M Bulgakova et *al.* présentent une théorie applicable dans notre cas, théorie que nous résumons dans ce paragraphe [4]. Ils ont obtenu le même type de structures sur des métaux **liquides** (Ga, In, alliages Sn-Pb et métal de Wood) avec deux types différents de sources laser impulsionnelles : l'une est un laser Nd :Yag (λ = 1064 nm, durée d'impulsion (FWHM) 2.5 ns et une fluence maximale de l'impulsion de 0.25 mJ) et l'autre un laser N_2 (λ = 337 nm, 4.5 ns FWHM et énergie maximale de l'impulsion 0.25 mJ). Le diamètre du spot sur la surface de la cible est 100 μm. Ils travaillent en multitirs (de 100 à 1000 tirs) avec des fluences de 3.2 et 1 J.cm^{-2} respectivement. La formation de ces microstructures est observée dans un gaz ambiant réactif, principalement l'air, le diazote N_2 ou l'hexafluorure de soufre SF_6.
En premier lieu, mentionnons que nous travaillons dans une gamme de fluence assez proche avec une durée d'impulsion similaire et en configuration multitirs (1000 et 6000 tirs). Seule la longueur d'onde est différente. Dans nos expériences, nous supposons que la faible quantité d'oxygène résiduel joue le rôle de gaz réactif.

La croissance d'une microstructure se déroule en 5 étapes :

a. La cible est soumise à une impulsion laser. Celle-ci chauffe le cuivre solide et la couche d'oxyde. Le profil spatial d'éclairement du faisceau laser joue ici un rôle crucial : la figure 2.2 montre que cette distribution est constituée de nombreuses surintensités. Pour des fluences dans la gamme 1.5-7.5 J.cm^{-2}, l'énergie moyenne de l'impulsion est insuffisante pour induire une ablation sur toute la surface du spot laser : en revanche, l'énergie des surintensités dans le profil d'éclairement peut entraîner une ablation localisée.
b. Au niveau d'une surintensités, l'évaporation du liquide devient très importante lorsque la température locale approche la température d'ebullition. La couche d'oxyde, si elle n'a pas été préalablement ablatée par le laser, subit une rupture due à l'expansion de la matière liquide évaporée. Localement, cette rupture

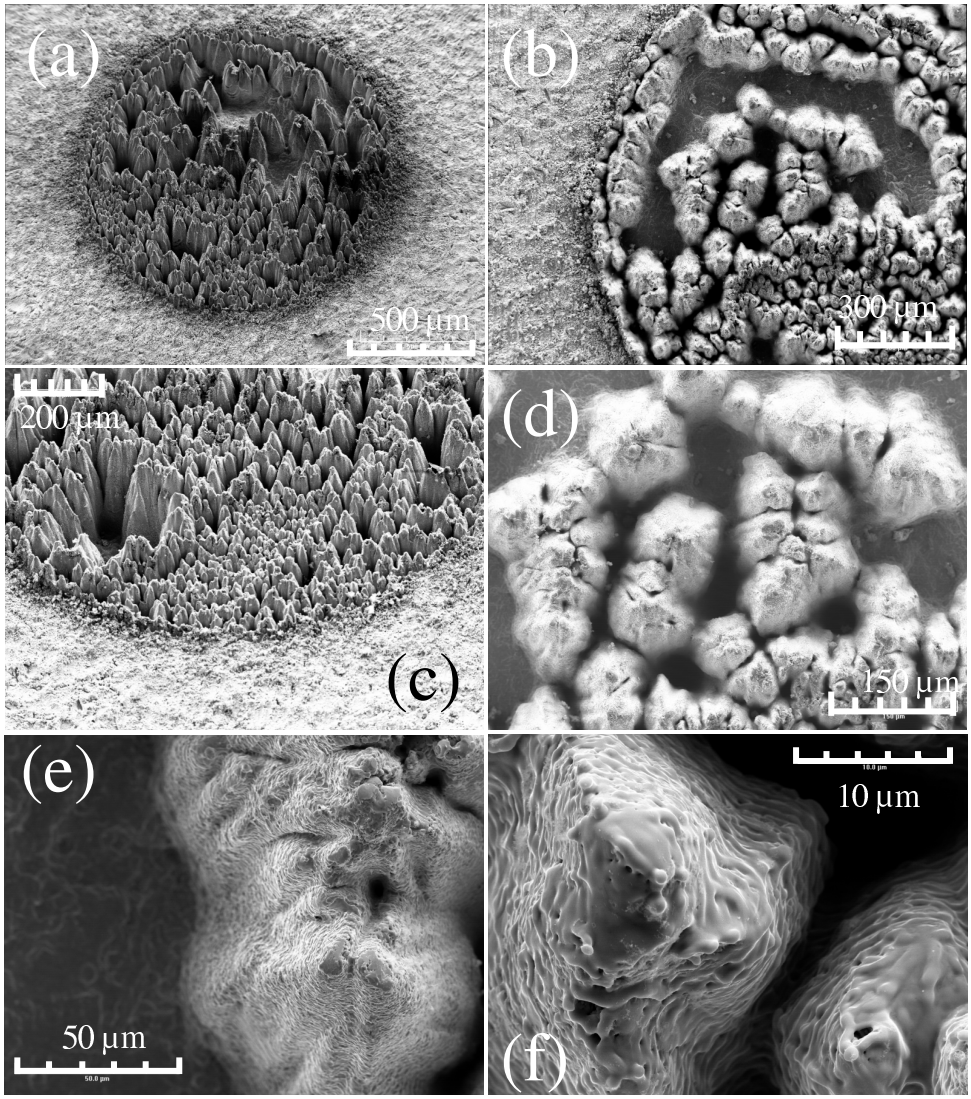

FIG. 4.24 - *Cratères observés par MEB pour une valeur de la fluence laser égale à 5.3 J.cm^{-2} à différents grandissements : (a) ×60 (tilté 28 °), (b) ×100, (c) ×120 (tilté 28°), (d) ×220, (e) ×700 et (g) ×4000.*

forme un *goulet* par lequel s'engouffre le liquide chauffé par des phénomènes de capillarité. Puis celui-ci refroidit et se solidifie rapidement. La structure colonnaire commence à croître.

c. L'oxygène résiduel dans la chambre se fixe sur cette structure nouvellement formée par **des processus d'oxydation rapide** (en 100 ms environ, durée entre deux impulsions), qui ont expérimentalement été observés lors d'expériences basées sur l'interaction laser-surface [8]. De plus, les réactions chimiques dans le plasma entre le cuivre et l'oxygène conduisent à la formation de particules oxydées qui peuvent se déposer en partie sur cette structure (voir paragraphe 4.2.3) .

d. L'impulsion suivante ablate le sommet de la structure en formation, mais pas les parois car l'angle d'attaque est plus élevé. Si une fine couche d'oxyde s'est formée au sommet entre ces deux tirs successifs, elle est instantanément ablatée par le laser ou rompue par expansion de la matière de la colonne (comme

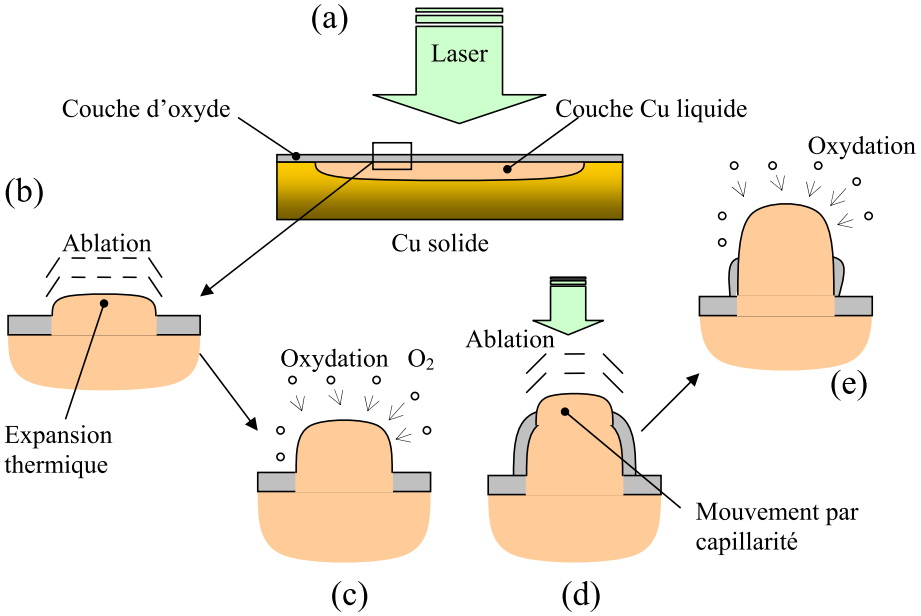

FIG. 4.25 - *Mécanisme de formation des microstructures en surface.*

au cours de b.). En revanche, la couche sur les parois est préservée. La colonne s'enrobe d'une couche d'oxyde. Les forces capillaires conduisent le cuivre liquide à s'expandre dans le tube, entraînant une croissance supplémentaire de la colonne.

e. l'étape c. se répète, la structure plus haute se couvre d'une couche d'oxyde. Puis, la croissance se poursuit au tir laser suivant, à partir de l'étape d. Cela explique pourquoi les microstructures ont une forme de colonnes.

Ce modèle semble cohérent avec ce qui est observé sur le cliché (f) de l'image 4.24. Une microstructure, observée par MEB avec un grandissement × 4000, semble constituée d'un empilement de couche de matière, dont la texture laisse penser qu'il y a eu solidification de matière liquide. D'après le modèle précédent, le sommet de cette microstructure a été ablaté à chaque tir, et le liquide à l'intérieur de la microstructure en a été expulsé par capillarité. Ce dernier a probablement en partie coulé sur les parois de la microstructure, puis s'est solidifié, ce qui a donné un empilement à chaque tir de couches liquides solidifiées.

b) Régime d'ablation - F > 7.5 J.cm^{-2}

Dans ce régime, les cratères dans le régime d'ablation ont un fond assez homogène et ne présentent aucune microstructure, comme le montre la figure 4.14. Ce cliché MEB d'un cratère formé à 11.4 J.cm^{-2} montre bien que l'ablation s'est produite sur l'intégralité du cratère.

La figure 4.26 montre que la profondeur du cratère augmente linéairement en fonction de la fluence laser. Le seuil d'ablation du matériau peut être également estimé en prolongeant cette droite, pour déterminer l'énergie à laquelle la profondeur est nulle. On cherche donc la valeur de F qui vérifie z = 0, ce qui donne, d'après les notations de la figure 4.26 :

$$F = -\frac{A}{B}$$

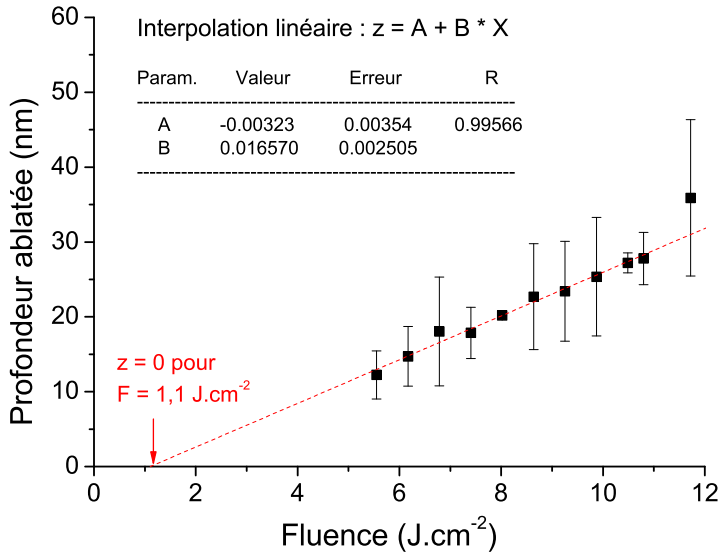

FIG. 4.26 - *Calcul du seuil d'ablation à partir des données expérimentales du régime d'ablation.*

Les valeurs du tableau présenté sur cette même figure donnent, en tenant compte de l'erreur relative sur chaque coefficient, une gamme de fluence pour le seuil d'ablation :

$$\boxed{F = 1.1\ J.cm^{-2} \pm 0.5\ J.cm^{-2}}$$

Cette valeur coïncide avec la valeur mesurée du seuil d'ablation, donnée dans la section a).

c) Comparaison avec les résultats numériques

La valeur du seuil d'ablation est calculée en réalisant plusieurs simulations pour des impulsions à différentes fluences, dans les mêmes conditions expérimentales (Argon à 1 bar). Nous avons représenté sur la figure 4.27 l'évolution de la profondeur ablatée en fonction du temps pour plusieurs fluences laser. Il faut ainsi distinguer trois groupes de courbes : les courbes pour F $<$ 3.8 J.cm^{-2} présentent une asymptote horizontale après t $\approx$ 8 ns, ce qui montre que la condensation ne joue aucun rôle dans l'évolution de la profondeur du cratère. Pour 3.8 $\leqslant$ E $\leqslant$ 8.3 J.cm^{-2}, la profondeur atteint un maximum entre 0 et 10 ns, puis diminue lentement, jusqu'à t = 100 ns, temps pour lequel chaque courbe donne l'impression de tendre vers une valeur finie. Ainsi, entre 0 et 8.3 J.cm^{-2}, la profondeur du cratère donnée par le modèle à 100 ns doit probablement être du même ordre de grandeur que celle donnée pour un calcul qui aurait été mené sur des temps plus longs. Enfin, pour F $\geqslant$ 9 J.cm^{-2}, cette diminution de la profondeur est nettement plus marquée que dans la gamme de fluences précédente, et son évolution pour chaque courbe semble montrer que cette diminution se poursuivrait si le calcul était poursuivi pour des temps plus grands que 100 ns. Notamment, pour les deux courbes présentées à 9.8 et 11.4 J.cm^{-2}, il semblerait que le cratère puisse être intégralement rebouché pour un temps de l'ordre de 200 ns, ce qui montre dans cette gamme de fluence que l'utilisation d'un modèle uniquement monodimensionnel ne permet pas de modéliser correctement la

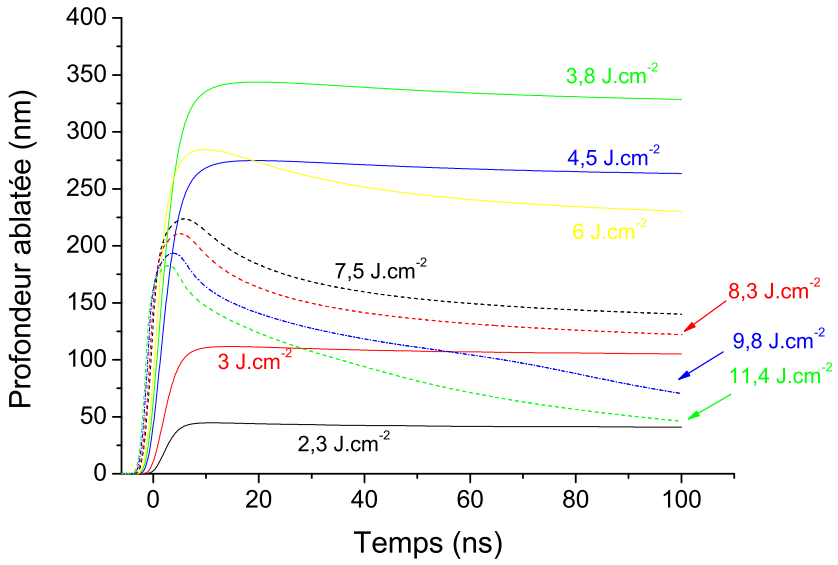

FIG. 4.27 - *Evolution, donnée par le modèle, de la profondeur du cratère en fonction du temps pour différentes fluences laser.*

dynamique du cratère d'ablation.

La profondeur ablatée par impulsion est donnée dans le modèle directement à la fin du calcul, puisque ce dernier simule l'interaction laser-matière pour l'application d'une impulsion laser unique sur la cible. Mais comme nous l'avons sous-entendu dans le paragraphe précédent, il faut prendre garde ici au fait que nous ne nous intéressons qu'aux 100 premières nanosecondes de l'expansion du plasma, et que la condensation, notamment pour des fluences supérieures à 9 J.cm^{-2}, peut induire une diminution de la profondeur du cratère sur des temps plus longs que 100 ns.

La figure 4.28 présente l'évolution de la profondeur du cratère en fonction de la fluence l7aser, donnée par le modèle et issus des résultats expérimentaux (qui est le résultat de la figure 4.22). En deça de 1.5 J.cm^{-2}, la valeur de la profondeur ablatée donnée par le modèle est nulle. Elle devient non nulle pour une fluence laser supérieure à 1.5 J.cm^{-2}, ce qui montre que le seuil d'ablation donné par le modèle est 1.5 J.cm^{-2}. La valeur mesurée a été estimée entre 0 et 2.6 J.cm^{-2}. Il y a donc un bon accord entre l'expérience et la modélisation dans la gamme de fluences $0 \leqslant F \leqslant 1.5$ J.cm^{-2}.

Dans la gamme de fluences $1.5 \lesssim F \lesssim 5.3$ J.cm^{-2}, la formation des structures colonnaires en configuration multitirs empêche de définir une profondeur ablatée par impulsion, comme nous l'avons fait dans la section b). Il n'y a donc pas de point de comparaison entre expériences et modélisation. Toutefois, nous allons commenter le résultat issu du modèle. La profondeur du cratère augmente avec l'énergie jusqu'à une fluence de 5.3 J.cm^{-2}, valeur pour laquelle elle est maximale. Nous montrerons cependant, dans la section c), qu'un plasma se forme dans la matière évaporée et qu'une partie de la fluence laser est absorbée dans ce plasma. Cette absorption est observable dès que l'ablation a lieu, soit à partir d'une fluence égale à 1.5 J.cm^{-2}.

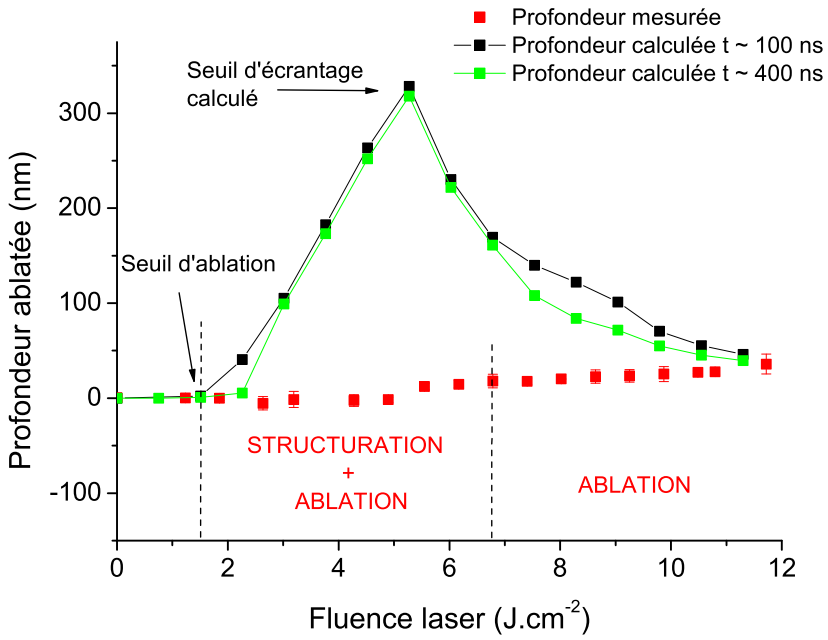

FIG. 4.28 - *Variation de la profondeur ablatée en fonction de la fluence laser. Comparaison expériences-modélisation.*

Dans le modèle, cette absorption ne débute que pour des fluences supérieures à 5.3 J.cm^{-2} (c'est ce qui explique notamment la diminution de la profondeur aux énergies plus élevées). Ce retard à l'absorption conduit à un dépôt maximal de l'énergie dans la cible, et donc à une ablation très forte et très probablement largement surestimée. Ainsi, le résultat du modèle dans cette gamme d'énergie représente certainement une surestimation de la profondeur ablatée.

Pour des fluences supérieures à 5.3 J.cm^{-2}, l'écrantage a lieu dans le modèle. La valeur de la profondeur ablatée diminue donc en fonction de la fluence, car une partie de l'énergie de l'impulsion est absorbée dans le plasma, et donc il y a moins d'énergie disponible pour ablater la cible de cuivre. Jusqu'à 8.3 J.cm^{-2}, nous avons dit précédemment que la profondeur calculée à 100 ns est représentative de la profondeur ablatée par impulsion. La comparaison avec les valeurs mesurées montre qu'il y a un très grand écart entre résultats numériques et expérimentaux, qui peut s'expliquer par plusieurs raisons :

1. en premier lieu, nous montrerons dans la section 4.3.2 que l'écrantage est probablement sous-estimé dans cette gamme de fluences, et donc que l'ablation de matière doit être moins importante.
2. De plus, l'ablation de matière se réalise dans le modèle par le mécanisme d'évaporation thermique. Ce mécanisme est valable lorsque la température de surface est inférieure à la température critique du matériau T_c (dans le cas du cuivre, $T_c \approx$ 7700-9000 K [9]). Au delà, il est probable que d'autres mécanismes entrent en jeu. La figure 4.29 montre justement que la température de surface n'excède pas la température critique pour des fluences inférieures à 3 J.cm^{-2}. Au delà, la résolution de l'équation de la chaleur montre que la température de surface excède la température critique pendant quelques nanosecondes. Pour

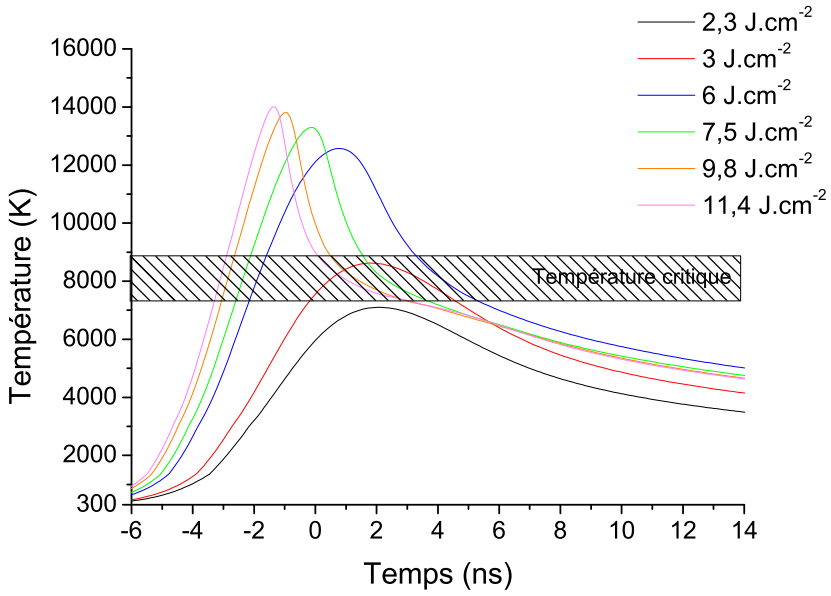

FIG. 4.29 - *Variation de la température de surface, donnée par le modèle, pour différentes valeurs de la fluence laser.*

ces énergies, l'hypothèse d'évaporation thermique n'est peut-être plus valable, et donc la valeur de la profondeur d'ablation est peut-être mal estimée.

Les mêmes remarques sont valables pour des fluences supérieures à 9 J.cm^{-2}, mais il faut tenir compte dans cette gamme de fluence de la condensation, dont nous avons montré qu'elle induit la diminution de la profondeur du cratère même pour des temps de calcul qui sont supérieurs à 100 ns. Sur la figure 4.28, nous avons d'ailleurs représenté le résultat d'un calcul mené jusqu'à t = 400 ns. Nous voyons que ce résultat, représenté en vert sur la figure, est similaire au résultat du calcul mené à t = 100 ns jusqu'à une fluence de 9 J.cm^{-2}, et qu'au delà, la profondeur ablatée est plus faible que celle à t = 100 ns. Pour les fluences supérieures à 10.5 J.cm^{-2}, la profondeur ablatée est même nulle, car la matière ablatée a complètement condensé en surface de la cible, ce qui est naturellement en désaccord avec le résultat expérimental de la figure 4.16. Ces résultats montrent que, pour la gamme de fluences F $>$ 9 J.cm^{-2}, la modélisation 1D est mal adaptée à la simulation de l'ablation et la condensation de la matière, et devrait être étendue à la représentation 2D aux temps plus longs de l'expansion.

Dans cette section, nous avons déterminé le seuil d'ablation de nos cibles de cuivre. Dans la section suivante, nous déterminons le seuil de fluence à partir duquel l'émission de la vapeur est observable, ainsi que le seuil à laquelle se manifeste l'écrantage plasma.

4.3 Etude du seuil d'observation du plasma - Ecrantage plasma

Nous nous intéressons dans cette section à la dynamique de formation du plasma dans la phase gazeuse. En premier lieu, nous déterminons la fluence minimale que doit posséder l'impulsion laser incidente pour qu'un plasma apparaisse dans la vapeur. Puis, nous étudions le phénomène d'écrantage du faisceau laser par le plasma, appelé plus simplement *écrantage plasma*. Ces deux études, corrélées à celle concernant la dynamique d'ablation, permettent d'établir une chronologie entre l'ablation, l'observation du plasma et le claquage optique. Notamment, nous cherchons à savoir si la matière est ablatée directement sous forme de plasma, ou bien si le passage à l'état plasma requiert un certain temps. Ces résultats seront comparés aux résultats numériques, ce qui permet de savoir si la dynamique temporelle de l'interaction laser-matière est correctement modélisée.

4.3.1 Détermination du seuil d'observation du plasma

Le seuil d'observation du plasma est défini comme *la valeur minimale de la fluence laser pour que l'émission plasma puisse être mesurée*. Expérimentalement, la détermination de ce seuil est réalisée par spectroscopie optique. Elle est basée sur le protocole suivant : une mesure de l'émission du cuivre, résolue spectralement, est réalisée par spectrométrie optique, à une énergie de l'impulsion donnée, immédiatement après la fin de l'impulsion laser. Si une ou plusieurs raies spectrales (atomiques ou ioniques) sont détectables, cela implique que les collisions électrons-particules sont suffisamment nombreuses pour peupler les niveaux émetteurs de ces raies spectrales. Dans ce cas, il est raisonnable de supposer que la valeur de la densité électronique est suffisamment élevée pour considérer que la vapeur est à l'état plasma.

Cette mesure a été réalisée sur un autre banc expérimental sur lequel sont déjà montés les diagnostics spectrométriques. La source laser est une source Nd :YAG à 532 nm, impulsionnelle de durée d'impulsion 6 ns FWHM. Le profil temporel de cette impulsion est gaussien. Le profil spatial est "top-hat", et le diamètre de la tache laser sur la surface de l'échantillon est 200 μm. Les caractéristiques de ce laser étant similaires à celle de notre laser d'ablation, il est raisonnable de supposer que deux résultats obtenus avec ces sources dans les mêmes conditions expérimentales donnent des résultats semblables. Les mesures concernent trois raies atomiques du cuivre, aux longueurs d'ondes 510.5 nm, 515.3 nm et 521.8 nm.

Le résultat des mesures est présenté sur la figure 4.30. Cette figure représente l'intensité des trois raies atomiques en fonction de l'énergie de l'impulsion incidente. Dans la gamme de fluences $F < 1.5$ J.cm^{-2}, le signal est très faible : cela peut s'expliquer par une faible valeur de la densité électronique dans la vapeur de cuivre, de sorte qu'il n'y a pas suffisamment de collisions entre les électrons et les atomes de cuivre pour peupler les niveaux émissifs correspondants aux trois raies précédentes. Au delà de 1.5 J.cm^{-2}, la densité électronique produite dans la vapeur doit augmenter (du fait de l'absorption du faisceau laser par la vapeur, qui augmente en fonction de l'énergie), ce qui augmente la fréquence de collisions avec les atomes : cela conduit à l'excitation des atomes de cuivre, et donc au peuplement des niveaux émissifs du cuivre, ce qui implique une augmentation de l'intensité des raies émises par le plasma.

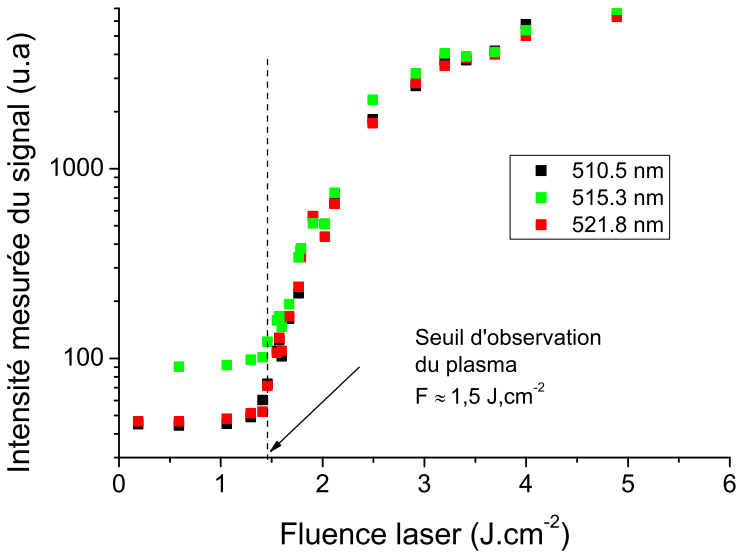

FIG. 4.30 - *Mesure du signal de trois raies atomiques de cuivre en fonction de la fluence laser.*

Ce résultat montre clairement qu'il existe une valeur seuil de fluence pour lequel le signal des raies augmente brusquement en fonction de la fluence laser.

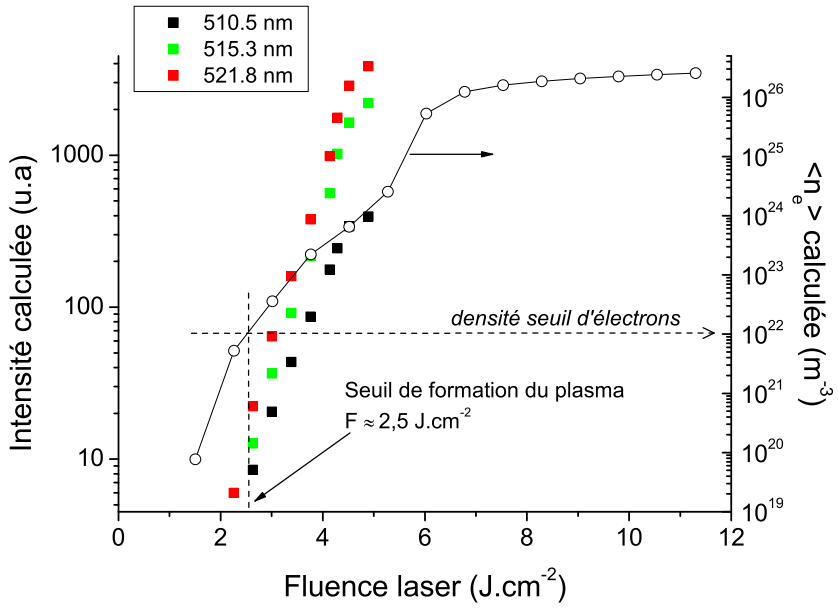

FIG. 4.31 - *Calcul du signal des raies atomiques de cuivre à 510.5, 515.3 et 521.8 nm en fonction de la fluence laser.*

Le modèle permet de calculer le seuil d'observation du plasma suivant le même protocole que celui utilisé expérimentalement. Plusieurs simulations sont réalisées en faisant varier la fluence laser, et nous représentons l'intensité des trois raies majeures

du cuivre en fonction de cette fluence. La formule qui donne l'intensité d'une raie est donnée par la formule (1.57), que nous rappelons ici :

$$j_{\nu,m-n} = f(\nu_{m-n}) h \nu_{m-n} A_{m-n} \frac{g_m}{u(T)} N \exp\left[-\frac{E_m}{k_B\ T}\right]$$

Les grandeurs caractéristiques de chaque transition ν, A, g_m et E_m ont été définies dans la section 1.3.3. Leurs valeurs ont été prises, pour les trois raies étudiées, dans la base NIST [10]. Le résultat donné par le modèle est présenté sur la figure 4.31.

L'intensité des trois raies est nulle pour une fluence inférieure à 1.5 J.cm^{-2}, puis augmente très rapidement en fonction de l'énergie de l'impulsion. Le modèle met donc également en évidence une valeur seuil à partir de laquelle l'émission de la vapeur est observable. Afin de déterminer le seuil de formation du plasma à partir du modèle, ce résultat doit être complété par l'étude de la densité électronique du plasma. Sur la figure 4.31, nous avons donc également représenté la densité électronique moyenne $<n_e>$, donnée par la relation :

$$< n_e >= \frac{1}{\tau}\frac{1}{\Delta z} \iint_{\tau,\ \Delta z} n_e(z,t) \mathrm{d}z\mathrm{d}t \tag{4.1}$$

Cette grandeur représente la densité électronique moyennée sur tout le volume Δz du plasma et sur la durée d'impulsion τ. La densité électronique moyenne augmente naturellement en fonction de la fluence laser. En deça de 1.5 J.cm^{-2}, cette densité électronique est nulle. Pour des fluences de l'ordre de 1.5-2 J.cm^{-2}, cette densité est de l'ordre de 10^{20}-10^{21} m^{-3}, ce qui est relativement faible pour considérer que la matière ablatée est à l'état plasma dans des conditions LIBS. L'ordre de grandeur typique de la densité électronique, qui caractérise la formation d'un plasma dans des condtions similaires à celles que nous étudions dans ce manuscrit, est plutôt située vers 10^{22} m^{-3} [11, 12]. Sur la figure, cette valeur correspond à une valeur de fluence de l'ordre de 2.5 J.cm^{-2}, valeur qui est très proche du seuil déterminé à partir de l'examen des raies atomiques du cuivre. La corrélation des résultats de la figure 4.30 et 4.31 prouve ainsi que la valeur du seuil de formation du plasma est de l'ordre de 1.5-2.5 J.cm^{-2}.

Le paragraphe suivant présente les résultats expérimentaux qui mettent en évidence l'écrantage du faisceau laser par le plasma. Ces résultats permettent d'évaluer si l'interaction laser-plasma est correctement modélisée. Par ailleurs, le modèle numérique permet d'expliquer la forme du profil temporel de l'impulsion écrantée.

4.3.2 Etude de l'écrantage plasma

L'étude de l'écrantage plasma se décompose en trois étapes : en premier lieu, celui-ci est mis en évidence pour une fluence laser égale à 10.5 J.cm^{-2}. La deuxième étape consiste à utiliser le modèle pour déterminer dans quelle région l'énergie laser est absorbée, notamment pour savoir si le gaz ambiant participe à l'effet d'écrantage, ou si l'absorption n'est due qu'à la vapeur de cuivre. Enfin, le seuil d'écrantage est déterminé en fonction de la fluence. Au terme de cette étude, une comparaison entre seuil d'ablation, d'observation du plasma et d'écrantage sera présentée.

a) Mise en évidence pour F = 10.5 J.cm^{-2}

L'écrantage plasma est mis en évidence en comparant le profil temporel intial du laser d'ablation avec le profil du laser mesuré au niveau de la surface de la cible. Le protocole de mesure a été présenté au chapitre 2 (cf. la figure 2.16). La figure 4.32 présente la comparaison entre ces deux profils mesurés pour une fluence égale à 10.5 J.cm^{-2}.

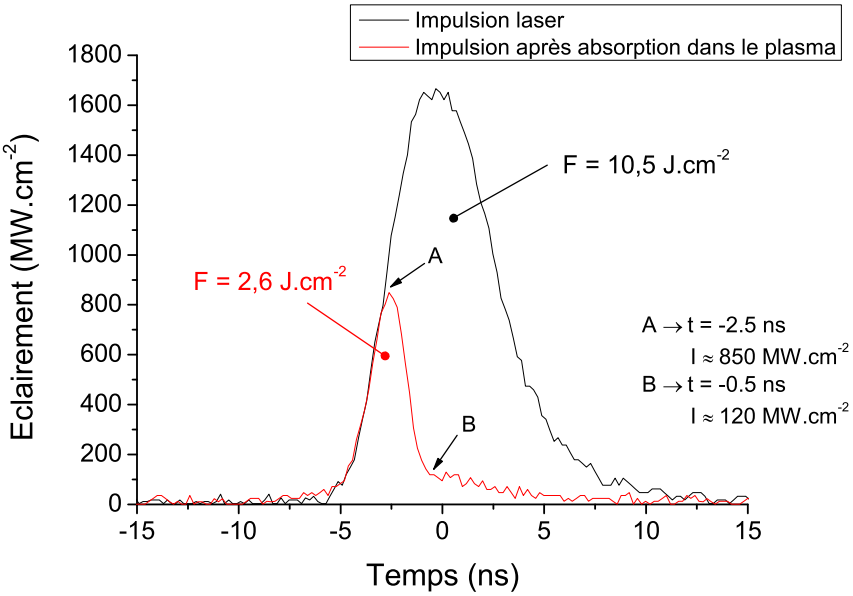

FIG. 4.32 - *Profils temporels de l'impulsion laser avant (en noir) et après absorption (en rouge) dans le plasma.*

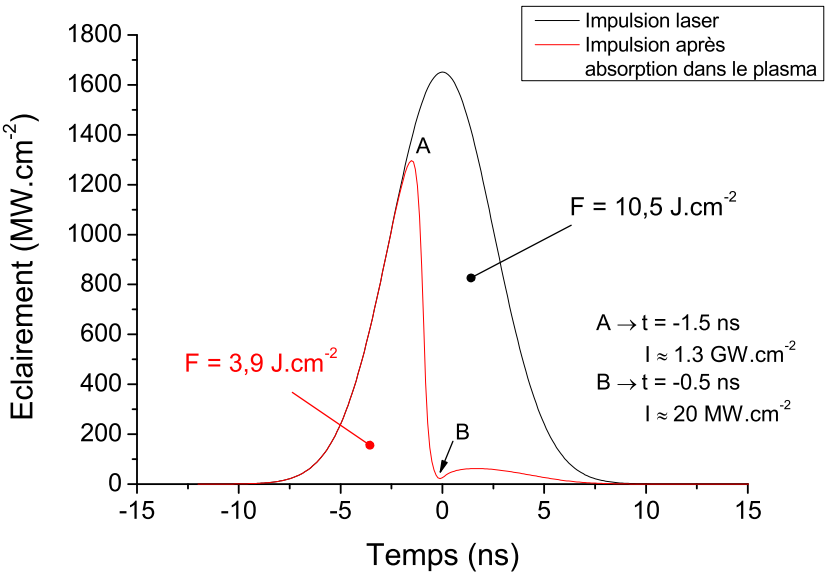

FIG. 4.33 - *Profils temporels* calculés *de l'impulsion laser avant (en noir) et après absorption (en rouge) dans le plasma.*

Le profil rouge représente la distribution temporelle de l'impulsion écrantée, mesurée au niveau de la surface de la cible. Au début de l'impulsion initiale, jusqu'à t ≈ -2.5 ns (point A), le profil temporel en surface est identique à celui de l'impulsion incidente. Cela prouve que la vapeur est faiblement absorbante, mais il faut également envisager l'hypothèse que celle-ci n'a peut-être pas entièrement recouvert le trou dans la cible, laissant alors passer une partie du faisceau incident [11]. Pour -2.5 ns $\leqslant$ t $\leqslant$ -0.5 ns, l'éclairement chute brutalement de 800 à moins de 100 MW.cm^{-2} (donc une perte de 90 % de l'éclairement en moins 2 ns, entre les points A et B), traduisant l'absorption du faisceau laser par le plasma. A partir de ce temps, la distribution temporelle de l'impulsion mesurée en surface ne se superpose plus au profil de l'impulsion initiale. Pour -0.5 $\lesssim$ t $\lesssim$ 5 ns, le profil diminue beaucoup plus lentement et présente même un rebond.

L'intégrale des deux profils en fonction du temps donne respectivement la valeur de la fluence laser et la valeur de la fluence en surface de la cible :

$$F = \int_{-\infty}^{+\infty} I(t)dt$$

La fluence laser est 10.5 J.cm^{-2}, la fluence en surface 2.6 J.cm^{-2} , et donc la fluence absorbée dans le plasma, obtenue par différence, est 7.9 J.cm^{-2}. Ce résultat montre qu'une grande partie de l'énergie de l'impulsion laser a été absorbée dans le plasma.

Le résultat numérique pour F = 10.5 J.cm^{-2} avec les mêmes conditions environnementales est présenté sur la figure 4.33. La forme temporelle de l'impulsion écrantée donnée par le modèle est similaire à celle mesurée expérimentalement : elle croît jusqu'à -1.5 ns (point A), puis elle chute brutalement jusqu'à -0.1 ns (point B), passant ainsi d'une valeur de 1300 MW.cm^{-2} à moins de 50 MW.cm^{-2} en 1.5 ns. A partir de t = -0.1 ns, le modèle prédit un rebond dans le profil d'éclairement.

Le modèle permet d'expliquer les mécanismes responsables de la chute brutale dans la valeur de l'éclairement ainsi que le rebond dans le profil après t = 0 ns. La figure 4.34 présente l'évolution de la valeur du coefficient d'absorption, pendant la durée de l'impulsion laser, dans la région du plasma où l'absorption est maximale. Sur la même figure, nous avons représenté la valeur de la densité électronique dans cette région. La chute de l'éclairement correspond à une brusque augmentation du coefficient d'absorption, elle-même engendrée par une augmentation simultanée de la densité électronique dans la vapeur. Ce phénomène correspond au claquage optique dans la vapeur, comme décrit dans la section 1.3.2 du chapitre 1. Les valeurs des densités d'électrons, d'ions Cu^{+} et Cu^{2+} dans la vapeur vers t ≈ - 1.5 ns suffisent à induire une absorption du faisceau par Bremsstrahlung inverse électron-ion. Cette absorption implique une production accrue d'électrons et d'ions dans la vapeur, ce qui en augmente d'autant plus l'effet sur l'écrantage du faisceau laser.

Le rebond dans la distribution temporelle de l'éclairement pour t $\geqslant$ 0 ns sera expliquée dans la section suivante.

L'intégration de la courbe représentant le profil écranté donne une valeur de 3.9 J.cm^{-2} pour l'énergie qui est déposée en surface de cible. Le modèle prédit donc que 6.6 J.cm^{-2} sont absorbés dans le plasma, valeur qui présente un écart avec la valeur mesurée 7.9 J.cm^{-2}. Cet écart doit être lié à l'amplitude du profil écrantée : le résultat

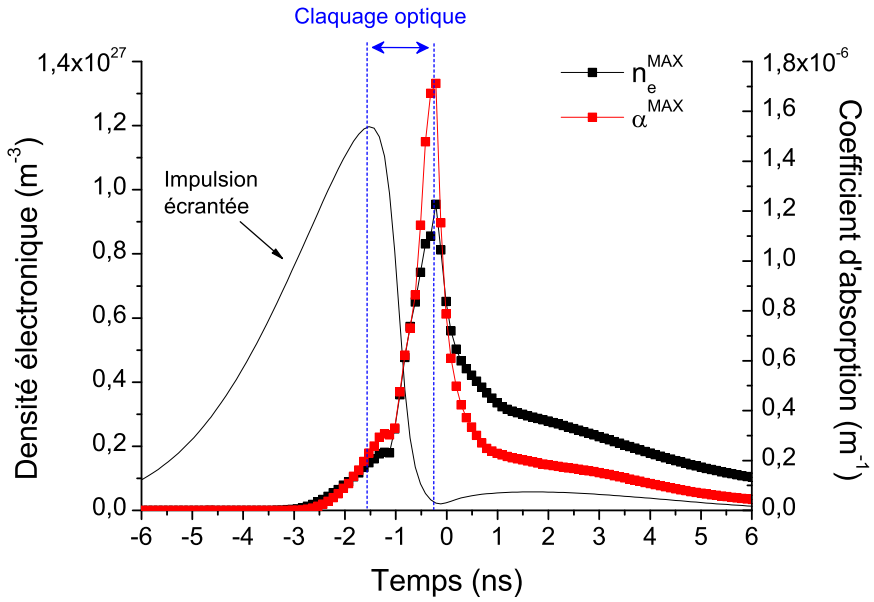

FIG. 4.34 - *Evolution du coefficient d'absorption et de la densité électronique dans le plasma pendant l'impulsion laser.*

expérimental montre que l'écrantage débute lorsque la valeur de l'éclairement est de l'ordre de 850 MW.cm^{-2} (point A de la figure 4.32). Le modèle montre qu'il a lieu pour une valeur plus élevée, soit 1.3 GW.cm^{-2}. Cette différence dans l'amplitude implique naturellement que l'intégrale du profil écranté mesuré est plus faible que celui modélisé. Deux hypothèses peuvent expliquer cette différence : en premier lieu, les coefficients d'absorption par Bremsstrahlung inverse électron-atome et par photoionisation peuvent être sous-estimés, de sorte que l'écrantage de l'impulsion laser est également sous-estimé. Pour le premier coefficient, l'utilisation d'une valeur constante pour les sections efficace de collision électron-atome est peut-être une hypothèse trop restrictive. De plus, nous avons supposé dans le modèle que la matière ablatée est uniquement composée d'atomes, sans ions, ni électrons libres. En réalité, la matière ablatée est composée d'atomes, d'ions, de particules (taille nm) et surtout d'électrons libres. Ainsi, la densité électronique n_e, avant la production d'électrons primaires dans la vapeur, est peut-être suffisamment importante dans la matière ablatée pour que l'absorption par Bremsstrahlung inverse électron-atome soit plus efficace dans la vapeur dès que l'ablation débute.
Pour le second, l'expression (1.45) du coefficient d'absorption par photoionisation a été établie à partir d'hypothèses valables en mécanique classique (notamment pour la section efficace d'absorption d'un photon (1.44)), ce qui est probablement trop simpliste et doit faire l'objet d'une approche fondée sur la mécanique quantique. C'est le cas également pour l'expression du coefficient d'absorption par ionisation multiphotonique. Pour la photoionisation, nous avons également utilisé la loi de Boltzmann (1.46) pour calculer les populations des niveaux qui peuvent être photo-ionisés. Cette loi suppose que la vapeur de cuivre est à l'équilibre thermodynamique, et notamment qu'il existe un équilibre thermique entre le gaz d'atomes et le gaz d'électrons libres qui constituent cette vapeur. Aux premiers instants de l'ablation, cette hypothèse est incertaine.

En conclusion, le modèle décrit parfaitement la forme du profil écranté : la chute de l'éclairement liée au claquage optique, et la présence du rebond entre 0 et 5 ns. Il donne également une bonne estimation de l'énergie absorbée dans le plasma. Dans la section suivante, nous montrons que l'écrantage a lieu dans différents endroits du plasma, et notamment dans le gaz ambiant.

b) Etude spatiale de l'écrantage plasma

L'étude spatiale de l'écrantage vise à déterminer dans quelle région du plasma l'énergie laser est absorbée, et de savoir quelles espèces sont à l'origine de cette absorption. La figure 4.35 présente l'évolution de l'éclairement absorbé en fonction de la position dans le plasma à t = -1 ns et t = 1.5 ns. Ces deux temps ont été choisis de part et d'autre de l'instant où se produit le claquage optique, car les propriétés du plasma varient brutalement lors de ce claquage, et cela permet donc d'étudier l'absorption du plasma lorsque ses propriétés sont très différentes.

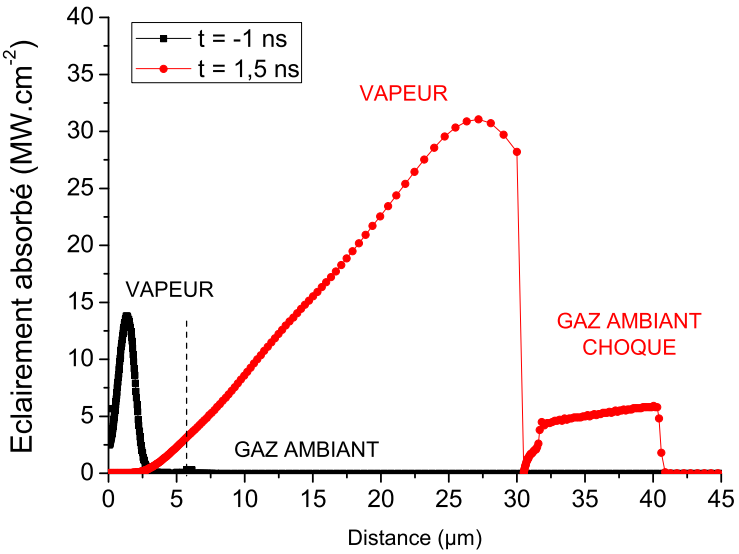

FIG. 4.35 - *Eclairement absorbé, donné par le modèle, en fonction de la position dans le plasma pour t = -1 ns et t = 1.5 ns.*

Etude de l'absorption à t = -1 ns.

A t = -1 ns, l'ablation vient juste de débuter, et la vapeur s'étend de 0 à 6 μm. Le gaz ambiant est faiblement choqué car l'onde de choc ne s'est pas encore formé à ce temps là. L'absorption a lieu uniquement dans la vapeur, dans une région localisée juste au dessus de la surface $0 \leqslant z \leqslant 2.5$ μm. La figure 4.36 (a) présente la variation du coefficient d'absorption en fonction de la position dans le plasma. Le coefficient est logiquement très élevé dans la région $0 \leqslant z \leqslant 2.5$ μm, et le mécanisme principal est la photoionisation. Le Bremsstrahlung électron-ion est 5 à 10 fois plus faible. Le

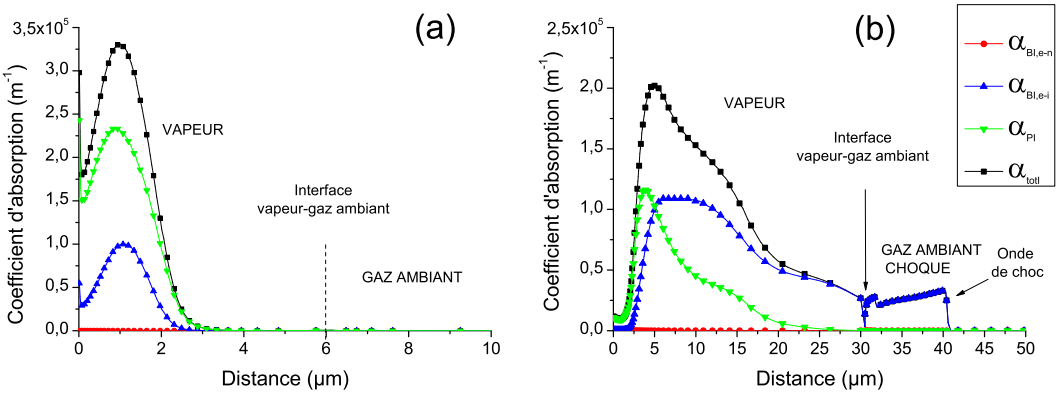

FIG. 4.36 - *Evolution du coefficient d'absorption en fonction de la position dans le plasma à t = -1 ns et t = 1.5 ns.*

Bremsstrahlung électron-atome est négligeable par rapport aux deux autres phénomènes contribuant à l'absorption.

Le lien avec la composition du plasma est donné sur les figures 4.37 (a) (composition de la vapeur) et (b) (composition du gaz ambiant). A t = -1 ns, la vapeur est majoritairement constituée d'atomes et d'ions Cu^+ en proportions plus faibles (de 10 à 1000 fois moins que les atomes) (figure (a)). La densité d'ions Cu^{2+} est extrêmement faible, de sorte que ceux-ci ne participent pas à l'absorption du faisceau laser. Cette composition explique ainsi pourquoi l'absorption de la vapeur est régie principalement par la photoionisation, bien qu'une contribution est également due au Bremsstrahlung inverse lors des collisions électrons-ions Cu^+.
Au même temps d'étude, le gaz ambiant *comprimé*[4] est constitué d'atomes majoritairement, dont la densité est 10000 fois plus importante que celle des ions Ar^+. Il n'y a pas d'ions Ar^{2+} produits à cet instant. D'une part, nous avons négligé la photoionisation dans le gaz ambiant. D'autre part, l'absorption par Bremsstrahlung inverse (électron-atome et électron-ion) est très faible car la densité d'espèces chargées est très faible. Cela explique ainsi pourquoi l'absorption induite dans le gaz ambiant comprimé est négligeable par rapport à celle induite dans la vapeur.

Passons maintenant à l'étude de l'absorption du plasma à t = 1.5 ns.

Etude de l'absorption à t = -1 ns.

A t = 1.5 ns, le processus d'absorption est totalement différent que celui étudié au temps précédent : l'absorption a lieu dans la vapeur et le gaz ambiant choqué. Examinons le résultat de la figure 4.35. L'éclairement laser est absorbé de façon à peu près constante dans le gaz ambiant choqué, sauf près de l'interface vapeur-gaz ambiant où cette absorption chute. La figure 4.36 (b) montre que l'absorption est régie dans cette région par le Bremsstrahlung inverse électron-ion. La photoionisation n'a pas été prise en compte dans le gaz ambiant, et l'absorption par Bremsstrahlung électron-atome est négligeable. La composition du gaz ambiant choqué, donnée sur la figure 4.37 (d), montre que l'onde de choc a ionisé sur son passage les atomes d'argon

[4]Le terme approprié ici est gaz *comprimé* et non gaz choqué, car il n'y a pas encore eu formation de l'onde de choc.

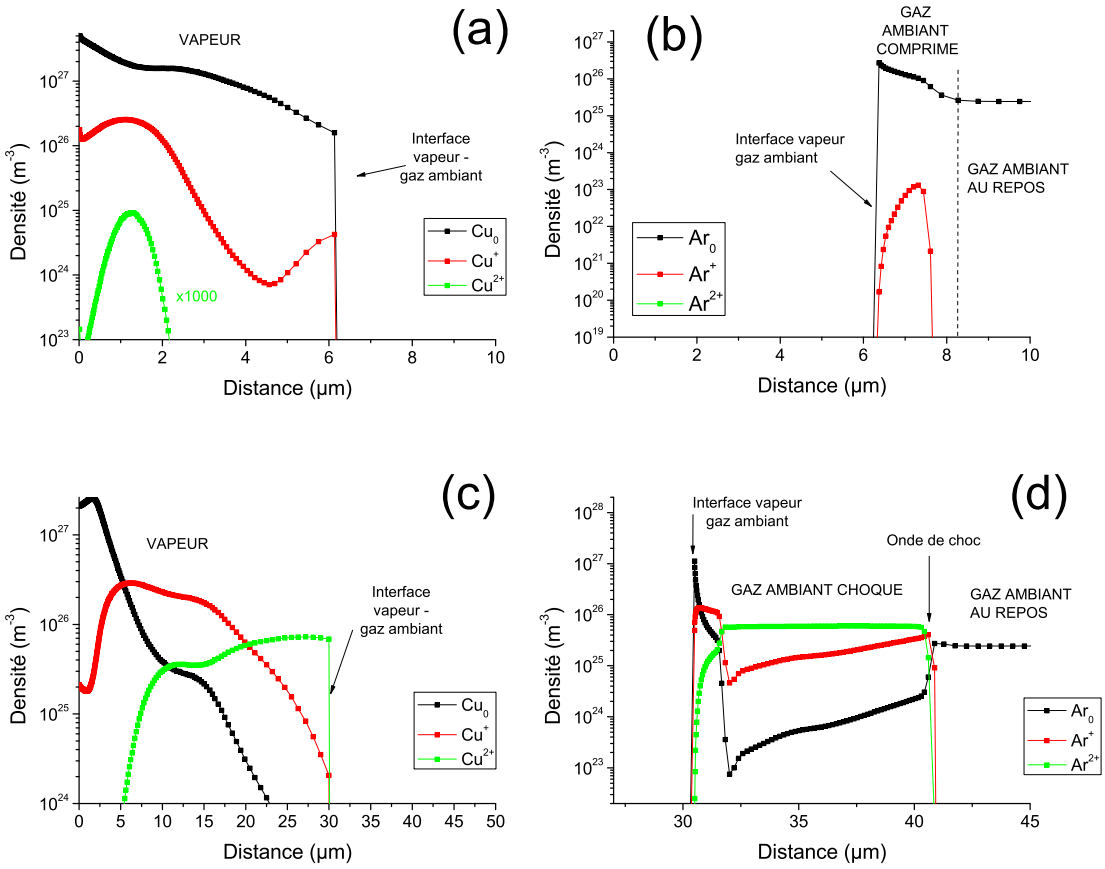

FIG. 4.37 - *Composition du plasma calculée dans la vapeur (a-c) et le gaz ambiant (b-d) à t = -1 ns (a-b) et t = 1.5 ns (c-d)*

au repos, ce qui a donc produit des ions et des électrons induisant une absorption par Bremsstrahlung inverse électron-ion. Vers l'interface vapeur-gaz ambiant (vers z $\approx$ 30 μm sur la figure 4.37 (d)), l'absorption par Bremstrahlung inverse électron-ion est plus faible car cette région est majoritairement constitué d'atomes.

Dans la vapeur, l'éclairement est absorbé fortement dans une région proche de l'interface vapeur-gaz ambiant, puis il diminue avec la distance à la cible. Cette diminution est expliquée par le fait que l'éclairement disponible après absorption dans chaque cellule diminue suivant la loi de Beer-Lambert (1.60). La figure 4.36 (b) montre que l'absorption dans la vapeur est régie par une combinaison de la photoionisation et du Bremsstrahlung électron-ion dans un large volume de plasma (2.5 μm $\leqslant$ z $\leqslant$ 20 μm). En surface de la cible cependant (0 $\leqslant$ z $\leqslant$ 2.5 μm), la photoionisation est majoritaire, mais la valeur du coefficient d'absorption est très faible par rapport à celle du volume où l'absorption est maximale. De même, le Bremsstrahlung inverse électron-ion est largement prépondérant dans la région 20 μm $\leqslant$ z $\leqslant$ 30 μm, qui est contigüe à l'interface vapeur-ambiant. Le Bremsstrahlung électron-atome est négligeable dans tout le volume du plasma, même dans la région où la densité atomique est plus élevée que la densité ionique.

Examinons le lien entre cette absorption et la composition du plasma, présentée sur la figure 4.37 (c). Nous détaillons la composition en partant de l'interface vapeur-

gaz ambiant jusqu'à la surface de la cible, de la même façon que laser interagit avec la vapeur. Dans la région 20 μm $\leqslant$ z $\leqslant$ 30 μm, la densité des ions Cu^{2+} excède de 2 à 10 fois celle des ions Cu^{+} et plus de 100 fois celle des atomes. La vapeur est à l'état de plasma presque totalement ionisé. La raison de cette production accrue d'ions deux fois ionisés à l'interface vapeur-gaz ambiant est, qu'en plus de l'absorption du laser, la vapeur est freinée fortement dans cette zone du fait de la présence du gaz ambiant. Ce freinage induit la conversion d'une partie de l'énergie cinétique de la vapeur en énergie thermique, ce qui induit une augmentation locale de la température, et donc une ionisation thermique accrue. Cette ionisation presque totale induit dans cette région une absorption maximale de l'éclairement du faisceau, comme le montre la figure 4.37. Le laser interagit ensuite également avec une région fortement ionisée (5 μm $\leqslant$ z $\leqslant$ 20 μm), mais dont la densité en ions Cu^{+} est prépondérante devant celle des autres espèces. Par ailleurs, la densité en atomes peut atteindre le même ordre de grandeur que la densité des ions Cu^{2+}. Dans cette région, l'absorption par Bremsstrahlung inverse est encore majoritaire, mais la photoionisation des atomes joue un rôle non négligeable (le coefficient α_{PI} est seulement 2 fois plus faible que le coefficient $\alpha_{\mathrm{BI,e\text{-}i}}$. L'éclairement absorbée diminue de plus en plus, car la valeur de l'éclairement disponible après l'absorption dans chaque cellule devient de plus en plus petite. Enfin, entre 0 μm et 5 μm, les atomes sont prépondérants dans la vapeur, et l'absorption de l'éclairement est due à la photoionisation principalement. La figure 4.36 montre cependant que l'éclairement absorbé est faible dans cette région, tout simplement parce que la valeur de l'éclairement est très faible lorsque le laser arrive dans cette région, celui-ci étant fortement absorbé dans les régions plus lointaines du plasma. Cette valeur est d'ailleurs si faible que l'absorption par photoionisation ne peut induire une ionisation importante des atomes dans cette région.

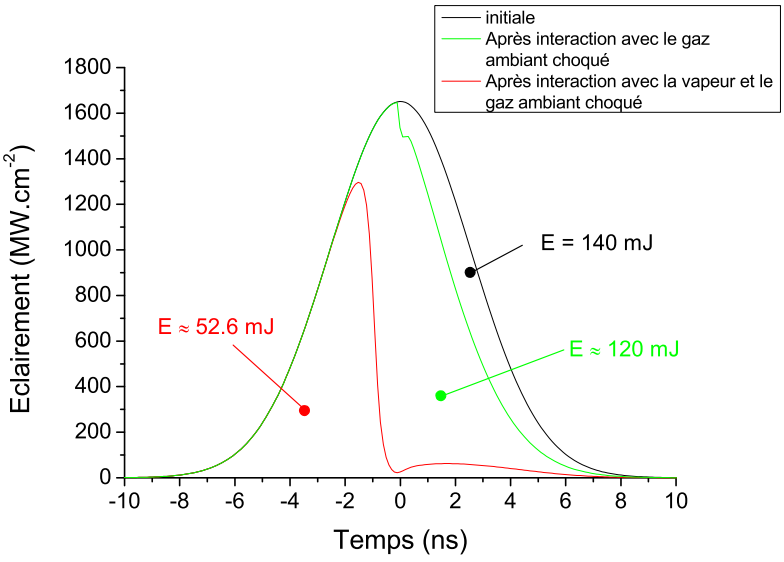

FIG. 4.38 - *Comparaison entre le profil temporel de l'impulsion laser, le profil écranté après avoir traversé le gaz choqué (en vert) et le profil écranté après avoir traversé le gaz choqué et la vapeur*

Le gaz ambiant joue donc un rôle dans l'écrantage du faisceau laser. Le résultat

de la figure 4.38 permet notamment de déterminer la fluence laser absorbée dans le gaz ambiant choqué et de comparer cette fluence à la fluence de l'impulsion incidente, et à la fluence absorbée dans la vapeur. Ce résultat présente une comparaison pour l'évolution du profil temporel de l'impulsion à différents endroits du plasma. Le profil en vert représente le profil de l'impulsion après que celle-ci ait traversé et interagit avec le gaz ambiant choqué. Le profil en rouge présente le profil temporel calculé en surface, c'est-à-dire après interaction avec le gaz ambiant et la vapeur. Le profil de l'impulsion initiale est représenté en trait noir. Sur cette figure sont également données les énergies des différents profils obtenues par intégration temporelle. Sur une impulsion de 10.5 J.cm^{-2}, 1.5 J.cm^{-2} ont été absorbés dans le gaz ambiant choqué (14 %), 5.1 J.cm^{-2} sont absorbés dans la vapeur (48 %), et 4 J.cm^{-2} sont déposés dans la cible (38 %).

Temporellement, il y a un décalage entre l'instant où se produit le claquage (vers t $\approx$ -1 ns) et le temps où l'écrantage du laser par le gaz ambiant choqué se produit (la chute sur le profil vert vers t $\approx$ 0 ns). Ce décalage s'explique par le fait que l'onde de choc ne peut produire les ions Ar^{+} et Ar^{2+} que lorsque le claquage a eu lieu dans la vapeur. En effet, le claquage optique induit une très forte augmentation de l'énergie laser dans la vapeur. Cette énergie est convertie en partie en énergie cinétique, et la vapeur se propage alors très rapidement. La conséquence est que le gaz ambiant est fortement comprimé, et cela produit une onde de choc forte qui conduit alors à l'ionisation du gaz ambiant. Cette explication s'appuie sur le résultat de la figure 4.39, qui présente l'évolution au cours du temps de la position de l'interface vapeur-gaz ambiant et de l'onde de choc. On peut remarquer la brusque augmentation de ces deux positions juste après le claquage optique.

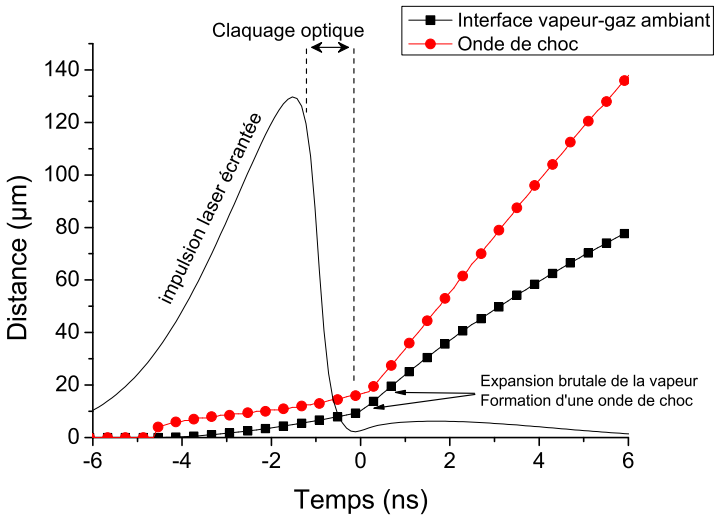

FIG. 4.39 - *Evolution temporelle des positions de l'onde de choc et de l'interface vapeur-gaz ambiant pendant la durée d'impulsion.*

Le résultat permet d'expliquer le rebond observé sur le profil d'éclairement de l'impulsion écranté pour t $\geqslant$ 0 ns, que ce soit sur le résultat expérimental (cf. figure 4.32) ou le résultat issu du modèle (cf. figure 4.33). En effet, la brusque expansion de la vapeur induit en conséquence une diminution tout aussi brusque des densités

d'espèces dans le plasma, et particulièrement des densités électroniques et ioniques. Cela peut être constaté en étudiant par exemple l'évolution de la densité électronique pendant l'impulsion laser. Le résultat correspondant est présenté sur la figure 4.40.

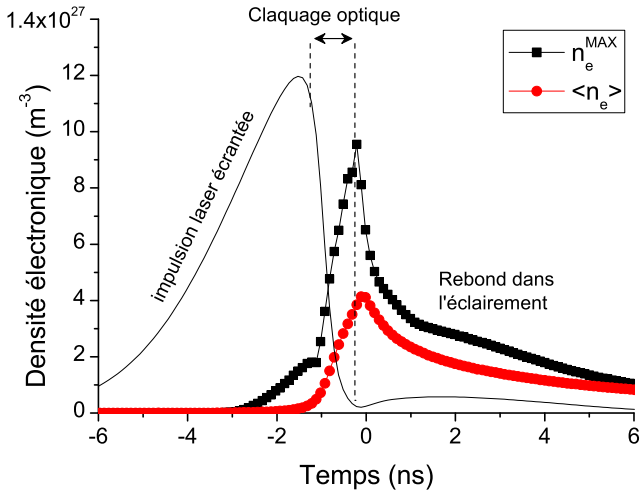

FIG. 4.40 - *Evolution temporelle des densités électroniques moyenne et maximales dans la vapeur pendant la durée d'impulsion.*

Sur cette figure, nous étudions la densité électronique moyenne (qui permet d'expliquer ce qui se passe dans tout le volume du plasma) et la densité électronique maximale (qui permet d'étudier l'évolution de la densité électronique en un point donné du plasma). La conclusion est donc que les deux valeurs chutent juste après que le claquage optique ait lieu dans la vapeur. Cette diminution pour chaque paramètre est induite par l'augmentation rapide du volume de la vapeur, qui n'est pas compensée par l'augmentation du nombre d'électrons dans la vapeur. Ainsi, la densité électronique, qui est le rapport entre le nombre d'électrons et le volume du plasma, diminue. On peut montrer que cette conclusion est également valable pour les densités ioniques. Ainsi, le coefficient d'absorption, qui dépend du produit des densités électroniques et ioniques suivant la relation (1.51), diminue également dans le plasma, et l'éclairement en surface de l'échantillon, qui est une fonction décroissante du coefficient d'absorption (cf. la loi de Beer-Lambert (1.60)), augmente alors en conséquence.

Cette étude a montré les similitudes et les différences dans le processus d'écrantage entre les résultats expérimentaux et numériques. Un bon accord est obtenu pour la forme de la distribution, mais il y a plus d'énergie qui est absorbée dans le plasma dans les expériences. Dans la section suivante, nous étudions le seuil de d'écrantage plasma.

c) Etude du seuil d'écrantage plasma

Le seuil d'écrantage plasma est l'*énergie minimale nécessaire pour que l'écrantage du faisceau laser soit observable dans le plasma*. Ce seuil se mesure et se calcule de la même façon que le taux d'ablation : les expériences (respectivement les simulations

numériques) sont reproduites pour différentes valeurs de la fluence laser, et pour chaque expérience, on vérifie s'il existe un écart entre l'énergie de l'impulsion et l'énergie de l'impulsion mesurée derrière la cible. Si c'est le cas, ce signifie que le plasma a absorbé une partie de l'énergie du faisceau laser.

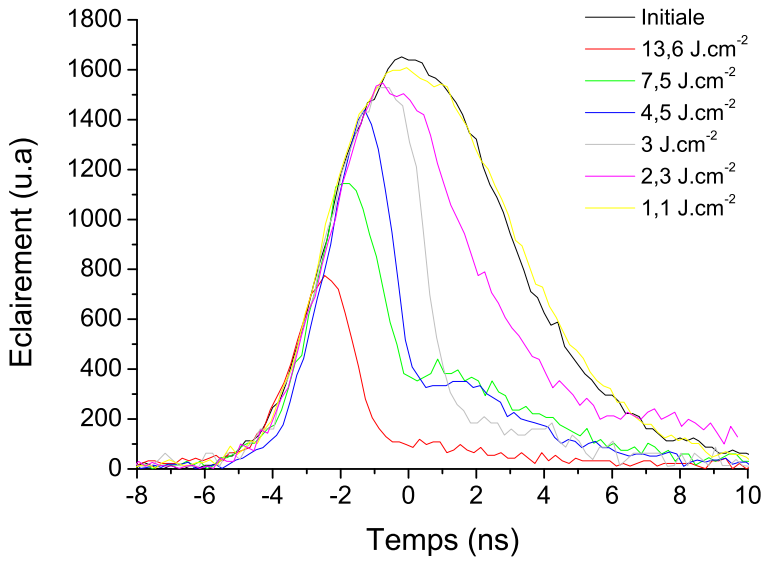

FIG. 4.41 - *Distribution temporelle du faisceau pour différentes valeurs de la fluence laser.*

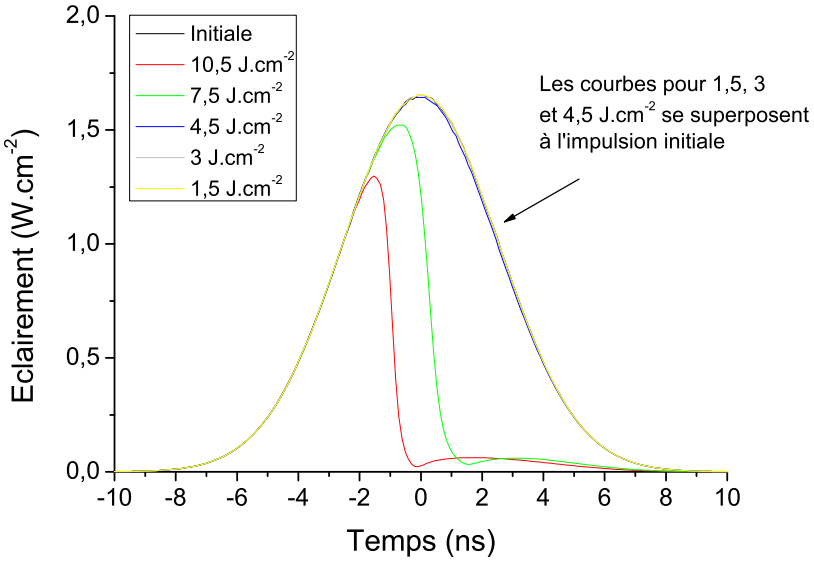

FIG. 4.42 - *Distribution temporelle du faisceau pour différentes valeurs de la fluence laser, donnée par le modèle*

La figure 4.41 présente la distribution temporelle de l'impulsion écrantée pour plusieurs énergies de l'impulsion incidente. Toutes les courbes ont été normalisées

pour pouvoir être comparées. L'impulsion incidente originale est représentée en trait plein noir. Ce résultat montre que pour F = 1.5 J.cm^{-2}, la ditribution temporelle de l'impulsion est identique avant et après la vapeur formée. Celle-ci est donc transparente au faisceau laser, il n'y a pas eu écrantage du faisceau laser. Pour F = 2.3 J.cm^{-2}, on constate déjà un écart entre le profil temporel écranté et le profil de l'impulsion initiale (en noir), qui traduit donc une absorption partielle de l'énergie du faisceau dans la vapeur. Cela signifie que la valeur du seuil d'écrantage plasma est comprise entre 1.5 et 2.3 J.cm^{-2}.

Les profils écrantés, mesurés pour une énergie de l'impulsion supérieure ou égale à 3 J.cm^{-2}, présentent la même évolution temporelle : le profil d'éclairement augmente et suit celui de l'impulsion initiale jusqu'à une certaine valeur de l'éclairement, pour laquelle une brusque chute de la valeur de l'éclairement est observée, ce qui traduit le claquage optique dans la vapeur. Puis un rebond dans le profil est visible vers la fin de l'impulsion, rebond dont nous avons éclairci les raisons dans la partie précédente.

Le résultat numérique correspondant à la mesure expérimentale de la figure 4.41 est présenté sur la figure 4.42. Il ne s'agit pas ici de faire une comparaison sur chaque courbe. Le paramètre pertinent pour la comparaison est ici la transmittivité du plasma. Par définition, la transmittivité Π est *le rapport de l'énergie de l'impulsion transmise sur l'énergie de l'impulsion incidente* :

$$\Pi = \frac{E_{\text{ecr}}}{E_{\text{las}}} \tag{4.2}$$

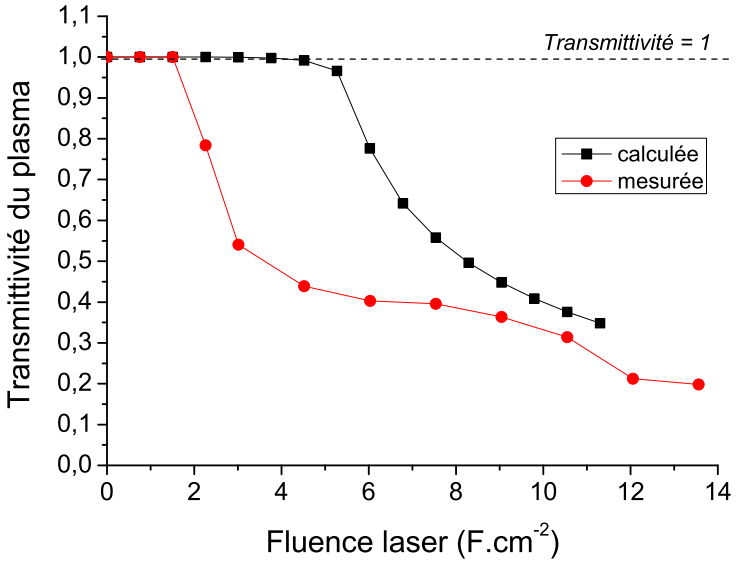

FIG. 4.43 - *Comparaison de la transmittivité mesurée à la transmittivité donnée par le modèle*

La transmittivité mesurée est comparée à la transmittivité donnée par le modèle sur la figure 4.43. Les deux résultats montrent que la transmittivité diminue en fonction de l'énergie incidente. Cela signifie que l'écrantage dans le plasma est plus

important lorsque l'énergie augmente. Le seuil d'écrantage prédit par le modèle (F $\approx$ 5.3 J.cm^{-2}) est plus élevé que celui mesuré expérimentalement (valeur comprise entre 1.5 J.cm^{-2} ($\Pi = 1$) et 2.3 J.cm^{-2} ($\Pi \approx 0.7$)). Pour des fluences inférieures à 7.5 J.cm^{-2}, l'écart entre les valeurs de transmittivité peut atteindre près de 50%. En revanche, pour les fluences supérieures à 7.5 J.cm^{-2}, l'écart se réduit entre les deux courbes, ce qui laisse penser que l'écrantage est mieux modélisé dans le régime d'ablation.

L'argument pour expliquer le fort écart aux basses énergies a déjà été présenté dans la section c) : la matière ablatée a probablement un taux d'ionisation plus élevé au début de l'évaporation, tandis que le modèle suggère qu'elle n'est composée que d'atomes. L'écrantage démarre donc plus rapidement en réalité, pour une fluence de l'ordre de 1.5 J.cm^{-2}, tandis, que dans le modèle, il a fallu fournir 3.8 J.cm^{-2} supplémentaire pour produire suffisamment de charges électriques qui vont induire l'écrantage du faisceau laser.

Pour conclure ce chapitre, nous résumons les résultats obtenus.

4.3.3 Résumé des résultats

Nous résumons dans ce paragraphe les résultats obtenus dans ce chapitre.

Les observations expérimentales, et les résultats issus du modèle, ont montré que l'ablation a lieu lorsque la fluence laser est supérieure à 1.5 J.cm^{-2}. Les deux approches montrent également qu'un plasma est observé dès qu'il y a ablation de matière (pour F $\approx$ 1.5-2.5 J.cm^{-2}). Cependant, l'écrantage du faisceau induit par ce plasma est observable à faibles fluences (F $\lesssim$ 2.3 J.cm^{-2}), alors qu'il se manifeste beaucoup plus tard dans le modèle, vers 5.3 J.cm^{-2}. Les différents seuils déterminés par les deux approches sont reportés dans le tableau 4.3.

Le modèle a montré que l'absorption de l'énergie du faisceau laser se réalise principalement dans la vapeur métallique, mais qu'une partie de cette énergie est également absorbée dans le gaz ambiant qui est ionisé par l'onde de choc produite.

TAB. 4.3 - *Valeurs des seuils (en J.cm^{-2}) déterminés par les deux approches.*

Phénomène	Valeur mesurée	Valeur donnée par le modèle
ablation	1.5-2.3	1.5-2.3
structuration	1.5	–
Formation du plasma	1.5-2.3	2.5
Ecrantage plasma	1.5-2.3	5.3

L'onde de choc ionise le gaz ambiant lors de sa propagation. Elle produit des ions Ar^+ et Ar^{2+}, malgré les fortes valeurs de ces deux potentiels d'ionisation de l'élément. L'émission plasma observée par imagerie rapide est donc due à une contribution double, qui regroupe celle du plasma de cuivre et celle du plasma d'argon produit dans la région choqué.

Remarquons enfin que la phase d'expansion est assez bien décrite par le modèle, de même que l'interaction laser-plasma. En revanche, des écarts sont mis en évidence sur la profondeur des cratères estimée par les deux approches, ce qui montre qu'un effort de compréhension de la dynamique de l'ablation, et un effort de développement numérique, devra être réalisé.

Ce résumé clôt le chapitre 4. Dans le chapitre 5, le modèle est utilisé pour comprendre l'influence du gaz ambiant sur la dynamique du plasma et l'ablation de matière.

Liste des Références du chapitre 4.

[1] R. Jordan, D. Cole, J. G. Lunney, K. Mackay, and D. Givord. Pulsed-laser ablation of copper. *Applied Surface Science*, 86(1-4) :24–28, 1995.

[2] M. F. Becker, J. R. Brock, H. Cai, D. E. Henneke, J. W. Keto, J. Y. Lee, W. T. Nichols, and H. D. Glicksman. Metal nanoparticles generated by laser ablation. *Nanostructured Materials*, 10(5) :853–863, 1998.

[3] M. Ullmann, S. K. Friedlander, and A. Schmidt-Ott. Nanoparticle formation by laser ablation. *Journal of Nanoparticle Research*, 4(6) :499–509, 2002.

[4] N. M. Bulgakova, A. N. Panchenko, A. E. Tel'minov, and M. A. Shulepov. Formation of microtower structures on nanosecond laser ablation of liquid metals. *Applied Physics A-materials Science & Processing*, 98(2) :393–400, 2010.

[5] S. I. Dolgaev, N. A. Kirichenko, A. V. Simakin, and G. A. Shafeev. Microstructures produced on spatially confined substrates exposed to repetitively pulsed laser radiation. *Quantum Electronics*, 37 :645–650, 2007.

[6] E. Skantzakis, V. Zorba, D. G. Papazoglou, I. Zergioti, and C. Fotakis. Ultraviolet laser microstructuring of silicon and the effect of laser pulse duration on the surface morphology. *Applied Surface Science*, 252(13) :4462–4466, 2006.

[7] S. I. Dolgaev, J. M. Fernandez-Pradas, J. L. Morenza, P. Serra, and G. A. Shafeev. Growth of large microcones in steel under multipulsed nd : Yag laser irradiation. *Applied Physics A-materials Science & Processing*, 83(3) :417–420, 2006.

[8] M. Wautelet. Laser-assisted reaction of metals with oxygen. *Applied Physics A-materials Science & Processing*, 50(2) :131–139, 1990.

[9] H. Hess. Critical data and vapor pressures for aluminium and copper. *Z. Metallkd.*, 89(6) :388–393, 1998.

[10] www.nist.com.

[11] B. Sallé. *Etude de l'interaction laser-matériau appliquée à l'analyse élementaire des solides.* thèse de doctorat, Uuniversité d'Orléans, 1999.

[12] Paul M. Bellan. *Fundamentals of Plasma Physics.* Cambrige University Press, 2006.

Un exemple d'application. Etude de l'influence du gaz ambiant.

5

Sommaire

5.1 Equivalence masse - pression du gaz ambiant 133
5.2 Influence du gaz pendant l'impulsion laser 137
5.2.1 Influence du gaz ambiant sur l'écrantage du faisceau laser 138
5.2.2 Influence sur les seuils d'apparition des phénomènes 141
5.3 Influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'ablation 146
5.4 Effet de freinage induit par le gaz ambiant 147
5.4.1 Effet de freinage sur la propagation de l'onde de choc 148
5.4.2 Effet du gaz ambiant sur l'expansion du plasma 150
5.4.3 Effet du gaz ambiant sur la propagation de la vapeur 151

L'étude de l'influence du gaz ambiant dans le contexte de la technique LIBS a fait l'objet de nombreuses publications dans la littérature. Il a été montré expérimentalement et numériquement que cette influence s'exerce sur la dynamique et les propriétés du plasma (dans le domaine de la LIBS, cette influence a surtout été étudiée sur la température du plasma et la densité électronique), sur la forme des cratères d'ablation, et sur l'intensité des raies spectrales dont la mesure sert à l'analyse de la composition chimique. Dans ce dernier cas particulièrement, de nombreux résultats ont montré que le rapport signal/fond[1] est amélioré lorsque le plasma est produit dans une atmosphère d'hélium, plutôt qu'une atmosphère d'argon, d'azote ou d'air (qui sont les gaz les plus fréquemment utilisés). D'une façon plus générale, il est souvent possible d'optimiser le signal LIBS en choisissant les conditions environnementales les mieux adaptées à l'analyse de la composition chimique d'un matériau, ce qui est possible en progressant dans la compréhension

[1]Le fond continu est une signal qui englobe tous les processus d'émission continue tels que le Bremsstrahlung et la photorecombinaison, et constitue une gêne pour la mesure d'une raie. En effet, il est probable que les raies spectrales servant à l'analyse de la composition soient noyées dans ce fond continu lorsque celui-ci est trop important. Cela nécessite de réaliser des mesures de l'intensité de ces raies à des délais beaucoup plus longs afin de que le rapport signal sur fond devienne assez élevé.

de l'influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'interaction laser-matière.

Généralement, les travaux sur l'étude du gaz ambiant présentent généralement des résultats de mesures et/ou de simulation qui ont été obtenus pour des délais très longs par rapport à l'impulsion laser. A notre connaissance, il n'y a pas de travaux qui étudient l'effet du gaz ambiant aux temps courts de l'expansion, c'est-à-dire pendant l'impulsion laser ou pour une durée très brève après cette impulsion (quelques dizaines de nanosecondes).

Dans ce chapitre, l'influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'interaction laser-matière est mise en évidence par la double approche expériences/modélisation. Les résultats expérimentaux décrivent l'interaction laser-matière sur plusieurs microsecondes après l'impulsion laser. Cependant, nous nous appuierons sur les résultats du modèle uniquement sur les 100 premières nanosecondes de l'expansion. Les paramètres clés de cette étude sont la masse molaire du gaz ambiant, sa pression, ses potentiels d'ionisation et sa réactivité chimique. L'influence est étudiée pour 3 gaz ambiants différents : l'hélium, l'argon et le xénon, dont les propriétés sont rappelées dans le tableau 5.1. Le choix de ces gaz a été fait car les masses et les potentiels d'ionisation sont très différents d'une part, et d'autre part ceux-ci sont chimiquement inertes, c'est-à-dire qu'il ne peut pas y avoir de réactions chimiques dans le plasma entre les atomes de cuivre et les atomes du gaz ambiant. Cela simplifie ainsi la modélisation de la phase gazeuse . La pression initiale de ces gaz est fixée à 1 bar.

Tab. 5.1 - *Propriétés de la cible et des gaz ambiants utilisés*

	θ_1 (eV)	θ_2 (eV)	M (g.mol^{-1})
Cu	7.7	20.3	63.54
He	24.6	54.4	4
Ar	15.8	27.6	39.9
Xe	12.1	21	131.3

Dans la première section, nous montrons que la masse exerce le même type d'influence que la pression sur la dynamique et les propriétés du plasma, de sorte que notre étude peut se restreindre à l'un ou l'autre de ces deux paramètres. Puis, l'influence du gaz ambiant pendant l'interaction laser-plasma sera mise en évidence. Dans une troisième partie, nous montrerons l'influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'ablation. Enfin, nous terminerons par l'étude de cette influence aux temps plus longs de l'expansion (quelques centaines de nanosecondes).

5.1 Equivalence masse - pression du gaz ambiant

Dans cette section, nous montrons que la masse et la pression exercent le même type d'influence sur les propriétés du plasma. Précisément, nous essayons de répondre à la question suivante : quelle peut être la différence sur les propriétés du plasma, lorsque l'ablation est réalisée sous argon à 1 bar, ou sous hélium à 10 bars ? La valeur de la pression initiale est 10 fois plus importante pour l'hélium que pour l'argon, mais la masse molaire de l'hélium est 10 fois plus faible que celle de l'argon. Par conséquent, les propriétés du plasma sont-elles identiques pour une variation similaire de la masse et de la pression ? La réponse à cette question est donnée en comparant certaines propriétés du plasma données par le modèle.

En premier lieu, nous comparons l'écrantage du faisceau laser, à travers l'évolution temporelle de l'éclairement calculée au niveau de la surface, et les positions des discontinuités dans le plasma, soit l'interface vapeur - gaz ambiant et l'onde de choc. Ces deux comparaisons sont présentées sur la figure 5.1. L'écrantage et la position de l'onde de choc sont identiques dans les deux cas. Les positions de l'interface liquide-vapeur sont similaires jusqu'à t = 10 ns, puis un écart se creuse entre la position de l'onde de choc dans chaque cas. Si l'influence de la masse était identique à celle de la pression, on se serait attendu à une propagation rigoureusement identique de l'interface vapeur-gaz ambiant dans les deux cas. Cela implique de cette équivalence n'est pas parfaite. L'écart sur la position de l'interface reste pour l'instant inexpliqué.

La comparaison de plusieurs propriétés du plasma produit dans les deux atmosphères, calculées à t = 100 ns, est présentée sur la figure 5.2. Ces propriétés sont la vitesse, la pression, la masse volumique et la température. Les valeurs de vitesse et de pression sont similaires dans tout le plasma pour les deux cas considérés. De faibles écarts sont visibles sur les profils de pression, mais ces écarts sont peu significatifs. Les profils de masse volumique sont également assez proches, même si trois différences peuvent être constatées : la masse volumique est légèrement plus élevée vers z = 100 μm dans le cas de l'argon ; la masse volumique est plus élevée dans l'hélium vers l'interface vapeur-gaz ambiant (250 μm $\leqslant$ z $\leqslant$ 450 μm) ; enfin, l'amplitude du pic de masse volumique à l'interface vapeur-gaz ambiant est légèrement plus faible dans l'hélium. Tous ces écarts restent cependant minimes.

Le résultat sur la température est le celui qui présente l'écart le plus grand. Dans

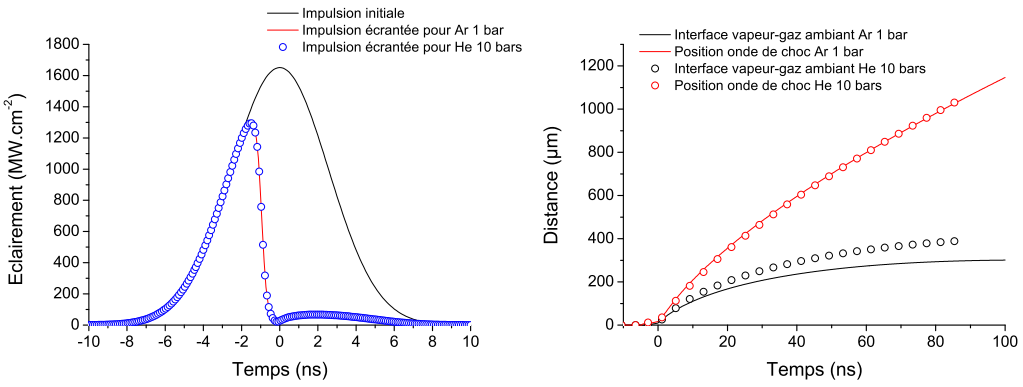

Fig. 5.1 - *Comparaison de l'écrantage et des positions des discontinuités dans le plasma.*

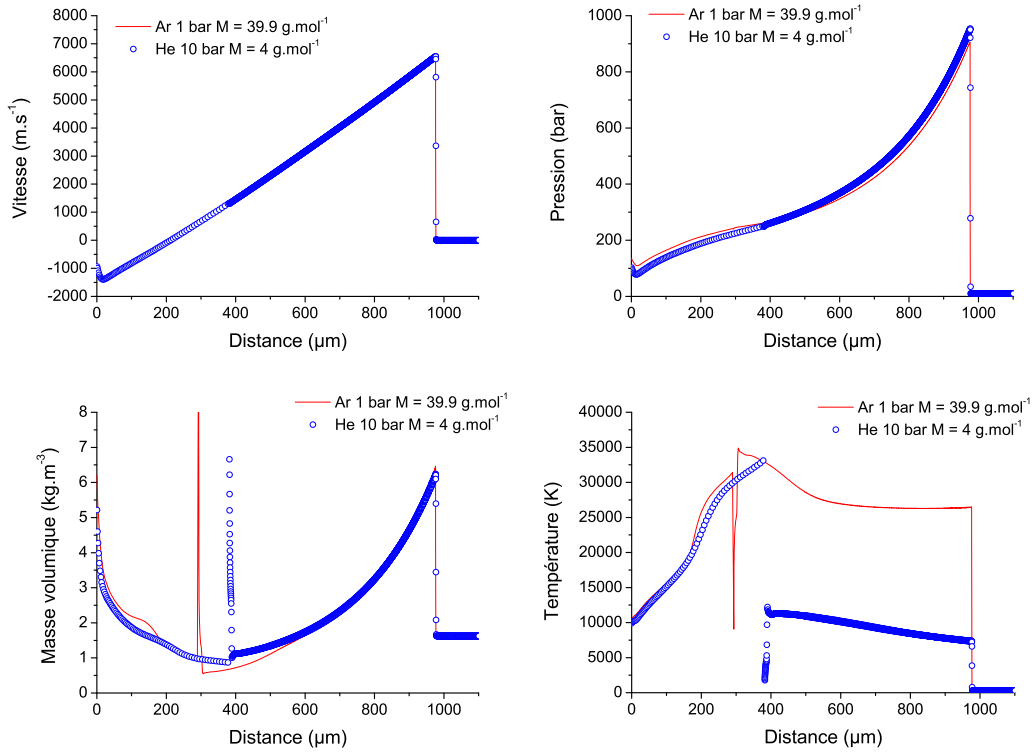

FIG. 5.2 - *Comparaison des propriétés du plasma calculées à t = 100 ns*

la vapeur, l'évolution de la température est similaire dans les deux cas : celle-ci croît d'une valeur T ≈ 12500 K en surface jusqu'à une valeur de l'ordre de 33000 K à l'interface vapeur - gaz ambiant. La différence se situe dans la région du gaz choqué. La température est beaucoup plus élevée dans le cas réel que dans le cas fictif (pour lequel la masse de l'argon a été divisée par 10 et sa pression multipliée par 10). Cette différence de température s'explique par deux raisons :

1. nous montrons en premier lieu, à partir des relations d'Hugoniot (1.32) - (1.34), que le saut en température au passage de l'onde de choc est plus importante lorsque l'onde de choc se propage dans un gaz ambiant dont la pression initiale est plus faible. C'est bien le cas dans l'argon à 1 bar comparé à l'hélium à 10 bars.
2. nous montrons que l'ionisation induite par la propagation de l'onde de choc change l'absorptivité de l'argon, qui absorbe alors une partie de l'énergie du faisceau laser. L'hélium est difficilement ionisable, avec un premier potentiel d'ionisation très élevé. Contrairement à l'argon, le faisceau laser interagit très peu avec l'hélium choqué.

Une forte température est induite au passage de l'onde de choc lorsque celle-ci se propage dans l'argon à 1 bar. Ce résultat peut être montré par les relations d'Hugoniot (1.32) - (1.34), qui relient les propriétés du fluide en amont de l'onde de choc et celles en aval de l'onde de choc. La comparaison des valeurs de la pression de part et d'autre de l'onde de choc tendent à montrer que $p_G \ll p_D$. Avec quelques manipulations, il est possible d'exprimer, à partir des relations (1.32) - (1.34), les propriétés du fluide en amont (indicées 'G') en fonction des propriétés du fluide en

aval (indicées 'D') de l'onde de choc et de la vitesse de l'onde de choc :

$$\frac{\rho_G}{\rho_D} = \frac{\gamma+1}{\gamma-1} \tag{5.1}$$

$$\frac{p_G}{p_D} = \frac{2}{\gamma+1}\frac{\rho_D}{p_D}S^2 \tag{5.2}$$

$$v_G = \frac{2}{\gamma+1}S \tag{5.3}$$

$$\frac{T_G}{T_D} = \frac{\rho_D}{\rho_G}\frac{p_G}{p_D} = \frac{\gamma-1}{\gamma+1}\frac{p_G}{p_D} \tag{5.4}$$

avec p_D = 1 bar, T_D = 300 K, v_D = 0, $\rho_D \approx 1.62$ (valeur calculée à l'aide de la relation des gaz parfaits (1.25)) et $\gamma = 5/3$ (l'argon étant un gaz monoatomique supposé parfait). S est la vitesse de l'onde de choc. Il convient de remarquer que ces relations ne font jamais intervenir la masse molaire (ou atomique) du gaz ambiant. Ce paramètre ne joue donc aucun rôle dans le calcul des propriétés du fluide en amont de l'onde de choc. Les valeurs des propriétés du fluide en amont de l'onde de choc calculées à l'aide de ces relations sont comparées aux valeurs calculées dans le modèle dans le tableau 5.2.

TAB. 5.2 - *Comparaison des propriétés du fluide en amont de l'onde de choc, calculées par les relations d'Hugoniot et le modèle*

	Cas de l'argon			Cas de l'hélium		
Propriétés	Aval	Amont		Aval	Amont	
		Hugoniot	Modèle		Hugoniot	Modèle
ρ (kg.m^{-3})	1.62	6.49	6.42	1.62	6.49	6.22
p (bar)	1	1059.6	961.2	10	1059.6	954
v (m.s^{-1})	0	7000	6656.1	0	7000	6550
T (K)	300	78500	27000	300	7850	7400

Dans les deux cas, les valeurs des propriétés [ρ, v, P] calculées par le modèle en amont de l'onde de choc sont très proches de celle données par les relations d'Hugoniot. Ce résultat est naturel, puisque le schéma numérique utilisé pour résoudre les équations d'Euler est construit de manière à intégrer les relations de saut, pour modéliser correctement les discontinuités tels que les chocs. Dans le cas de l'hélium, le saut de température à l'onde de choc est également assez bien estimé. En revanche, dans le cas de l'argon, la température calculée par le modèle est beaucoup plus faible que celle donnée par les relations d'Hugoniot. Cet écart s'explique par le fait que les relations d'Hugoniot ont été établies sans tenir compte de l'ionisation éventuelle du gaz au passage de l'onde de choc. Le modèle tient compte de cette ionisation : en examinant la composition du plasma, donnée par le modèle à t = 80 ns, présentée sur la figure 5.3, on peut constater qu'effectivement l'argon choqué est constitué d'atomes et d'ions, la densité d'ions Ar^+ étant majoritaire dans toute la région de l'argon choqué, et une densité d'ions Ar^{2+} étant non négligeable vers l'interface vapeur-gaz ambiant (région 350-450 μm). Or l'énergie interne du gaz choqué est définie, comme nous l'avons vu dans le chapitre 1, comme la contribution de deux termes : l'énergie thermique, qui a servi à chauffer le gaz ambiant, et l'énergie potentielle, qui lui a été fourni pour son ionisation. A énergie interne donnée, une production accrue d'ions implique que l'énergie potentielle augmente au détriment

de l'énergie thermique, ce qui induit une baisse de la température, et explique donc pourquoi la température dans l'argon choqué est bien inférieure à celle prévue par les relations d'Hugoniot.

Par ailleurs, le saut de température à l'onde de choc semble être d'autant plus important que la pression ambiante est initialement basse. Cette conclusion est liée directement au fait que le saut de température, dans la relation 5.4, ne dépend que du saut de pression à l'onde de choc. Or, la comparaison des deux cas précédents a montré que la pression en amont de l'onde de choc est similaire quelle que soit la valeur de la pression dans le gaz ambiant au repos, ce qui implique que le saut en température dépend alors de la valeur de la pression ambiante.

Dans l'hélium choqué, l'ionisation est extrêmement faible, du fait d'une valeur faible de la température. La figure 5.3 montre qu'à t = 100 ns, les valeurs de température varie entre 7000 et 10000 K. Ces valeurs sont trop faibles pour induire une ionisation thermique de l'hélium, car celui-ci possède des potentiels d'ionisation très élevées (24.6 eV pour le premier et 54.4 eV pour le second). L'examen de la composition de l'hélium choqué montre ainsi que celui-ci est constitué d'atomes : la densité d'atomes est de l'ordre de 10^{26} m^{-3}, tandis que la densité électronique et d'ions He^{+} est de l'ordre 10 ^{24} m^{-3} uniquement. Il n'y a pas d'ions He^{2+} produits.

Enfin, remarquons, sur la figure 5.3, que les densités d'atomes et d'ions dans la vapeur sont peu différentes d'un cas à l'autre.

L'ionisation produite dans l'argon choqué influence par conséquent l'absorption

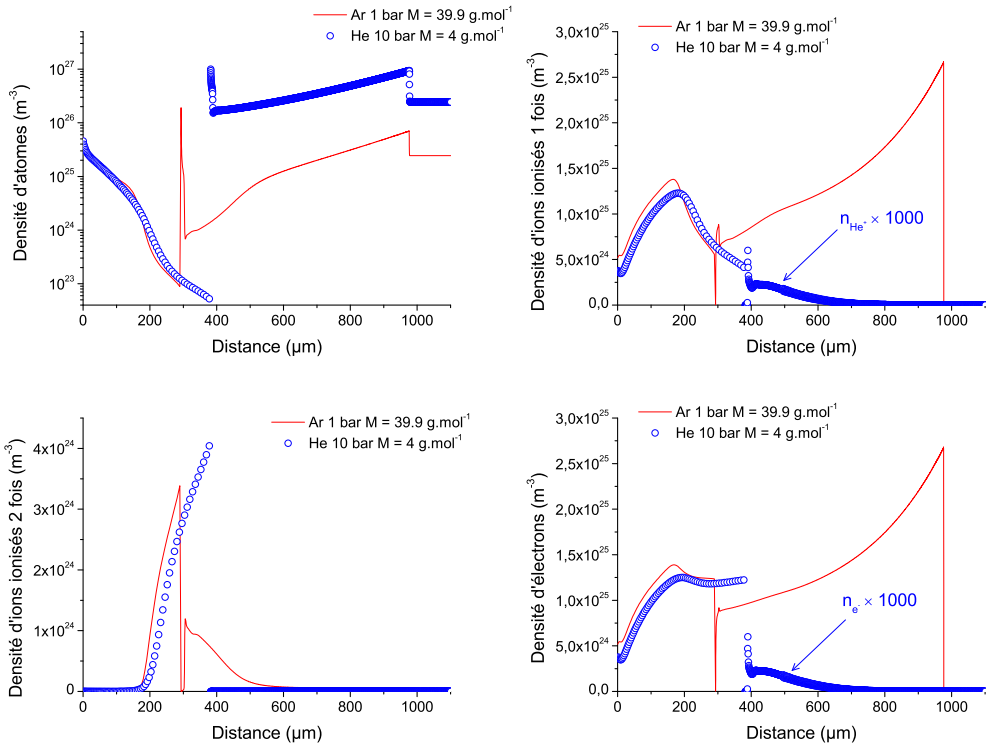

FIG. 5.3 - *Comparaison de la composition du plasma (atomes, ions une fois ionisés, ions deux fois ionisés et électrons) calculée à t = 100 ns pour les deux cas*

de l'énergie de l'impulsion laser. Ce résultat est montré sur la figure 5.4, qui compare le profil d'éclairement écranté dans les régions de gaz choqués pour les deux cas étudiés. Près de 1.5 J.cm^{-2} sont absorbés dans le plasma produit dans l'argon choqué, contre moins de 0.2 J.cm^{-2} dans l'hélium.

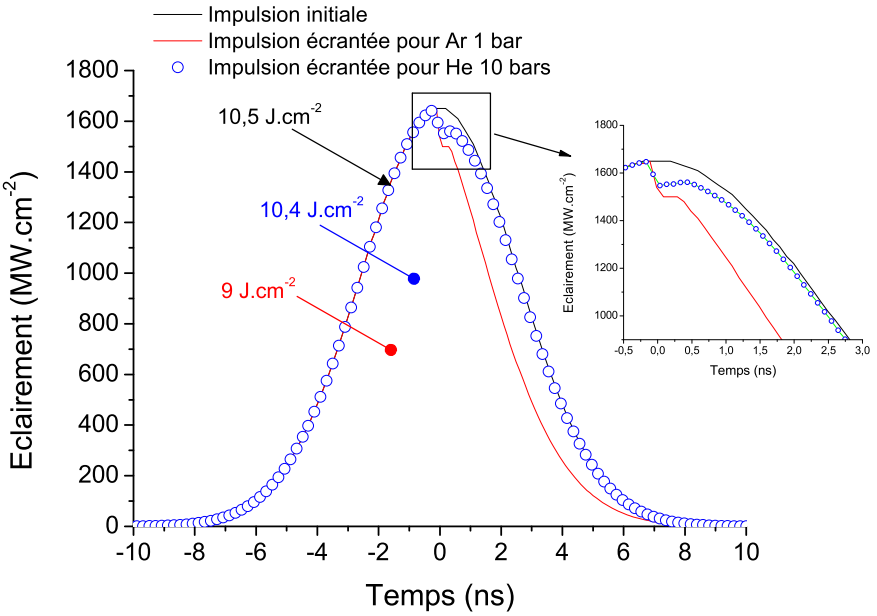

FIG. 5.4 - *Evolution du profil d'éclairement dans les zones choquées pour les conditions expérimentales suivantes : Ar à 1 bar et He à 10 bars.*

Nous avons donc montré, en s'appuyant sur les résultats issus du modèle, qu'un changement de conditions expérimentales, qui voit une variation identique opposée de la masse et de la pression, conduit à des résultats assez similaires pour l'interaction laser-matière sur les 100 premières nanosecondes de l'expansion. Deux différences sont observables : la première concerne l'expansion de la vapeur, qui se propage plus loin de la cible dans l'hélium à 10 bars. La seconde différence est l'ionisation de l'argon au passage de l'onde de choc, qui conduit à un écrantage partiel du faisceau laser. Cependant, ces différences n'influencent pas la dynamique du plasma, qui possède des propriétés similaires d'un cas à l'autre. Cela montre que la masse du gaz ambiant influence la dynamique de l'interaction laser-matière d'une manière assez similaire à la pression. Cette équivalence nous permet donc d'étudier uniquement l'un des deux paramètres, par exemple la masse du gaz ambiant, les conclusions tirées devant être en conséquence transposables à une étude similaire de l'influence de la pression.

Dans la section suivante, l'influence du gaz ambiant est étudiée pendant l'impulsion laser.

5.2 Influence du gaz pendant l'impulsion laser

L'influence du gaz pendant l'impulsion laser est mise en évidence par les résultats numériques concernant l'écrantage du faisceau laser et le calcul des seuils d'ablation,

d'apparition du plasma et de claquage optique dans la vapeur de cuivre. Ces trois différents résultats sont présentés dans les sections suivantes.

5.2.1 Influence du gaz ambiant sur l'écrantage du faisceau laser

Les profils d'éclairement sont mesurés en surface de l'échantillon pour une fluence laser de 9 J.cm^{-2}. Les résultats de mesures sont présentés sur la figure 5.5(a). Ces profils sont similaires dans leur forme et leur évolution au cours du temps. La même tendance est donnée par le modèle (cf. figure 5.5(b)), même si la valeur de la fluence absorbée donnée par le modèle ($\sim$ 5.3 J.cm^{-2}) est légèrement plus faible que celle mesurée ($\sim$ 6.2 J.cm^{-2}). Cela montre que l'absorption de l'énergie du faisceau est similaire dans le plasma produit sous trois atmosphères différentes, impliquant alors que l'absorption est indépendante du gaz ambiant.

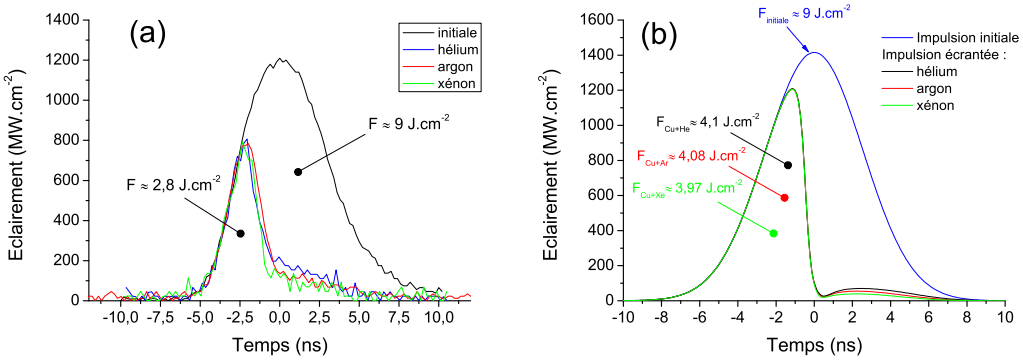

FIG. 5.5 - *Comparaison des profils écrantés de l'impulsion laser mesurés dans le cas des trois gaz*

Ce résultat est une coïncidence remarquable, car les propriétés (tant la composition que les propriétés cinétiques et thermiques) du plasma diffèrent d'un cas à l'autre. Nous pouvons notamment voir sur la figure 5.6, que la vitesse, la pression, la masse volumique et la température sont différentes. La vitesse du plasma est plus rapide lorsqu'il se propage dans un gaz léger. Il n'y a pas une grande différence dans les valeurs de la pression et de la température dans la région de la vapeur proche de la surface ($0 \leqslant z \leqslant 20$ μm). En revanche, ces deux quantités sont plus grandes dans la vapeur vers l'interface vapeur-gaz ambiant, lorsque celui-ci possède une masse molaire plus élevée. Comme nous l'avons expliqué dans la section 4.3.2 du chapitre 4, cela est dû au fait que la vapeur est d'autant plus freinée que la masse du gaz ambiant est élevée, ce qui a pour conséquence une compression de la région proche de l'interface vapeur-gaz ambiant (donc P est plus élevée), ainsi qu'une augmentation de la température (conversion de l'énergie cinétique en énergie thermique).

Les mêmes résultats sont observables dans le gaz ambiant choqué, qui est d'autant plus comprimé et chaud que sa masse est élevée. Une masse plus lourde implique une inertie plus importante, et donc une compression d'autant plus grande (à masse volumique plus élevée, ce qui est le cas comme le montre le résultat de la figure figure 5.6 sur la distribution spatiale de la masse volumique) suivant la relation de conversation de la quantité de mouvement dans le système (1.23). L'observation d'une température plus importante dans un gaz plus lourd est liée à deux facteurs :

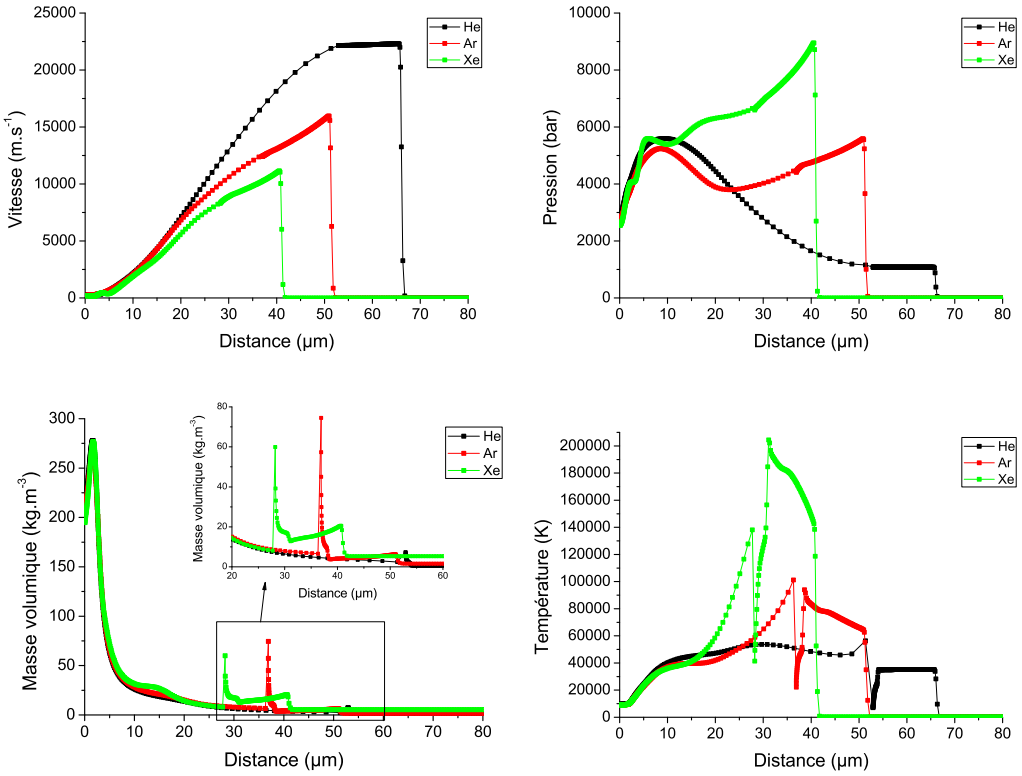

FIG. 5.6 - *Comparaison des propriétés du plasma calculées à t = 2.5 ns dans le cas des trois gaz.*

en premier lieu, le gradient de température au front d'onde de choc, lié au gradient de pression suivant la relation 5.4, est plus important dans un gaz lourd (en l'occurrence, le xénon) puisque la pression en amont de l'onde de choc est d'autant plus élevée que le gaz est lourd. Cela implique donc que la température dans la région du gaz ambiant choqué est plus élevée lorsque le gaz est plus lourd.

Cette élevation de la température induit une ionisation du gaz ambiant, et dans ce cas, les potentiels d'ionisation jouent un rôle très important : le xénon présente des potentiels d'ionisation plus faibles par rapport à ceux des deux autres gaz (cf. tableau 5.1). Cela conduit donc à une ionisation plus importante dans le xénon choqué que dans l'argon ou l'hélium. Les résultats du modèle le montrent sur la figure 5.7, qui présente la composition du plasma (densité d'atomes, d'ions et d'électrons) à t = 2.5 ns. La région du xénon choqué contient majoritairement des ions Xe^{2+}, tandis que les valeurs des densités d'ions Ar^{+} et Ar^{2+} sont assez similaires dans la région de l'argon choqué. A contrario, l'hélium choqué est majoritairement sous forme d'atomes (il n'y a pas d'ions He^{2+} produits à cause de la valeur trop élevée du second potentiel d'ionisation - 54.4 eV - et on a $n_{He_0} \approx 5\ n_{He^{+}}$).

La conséquence de l'utilisation d'un gaz ambiant dont les potentiels d'ionisation sont bas est que celui-ci participe à l'écrantage du faisceau laser. La figure 5.8(a) présente l'éclairement absorbé dans chaque cellule à t = 2.5 ns (l'éclairement du faisceau incident est à ce temps 880 $MW.cm^{-2}$). Dans les trois cas, la majeure partie de l'éclairement est absorbée dans la vapeur, dans la région où la densité des ions

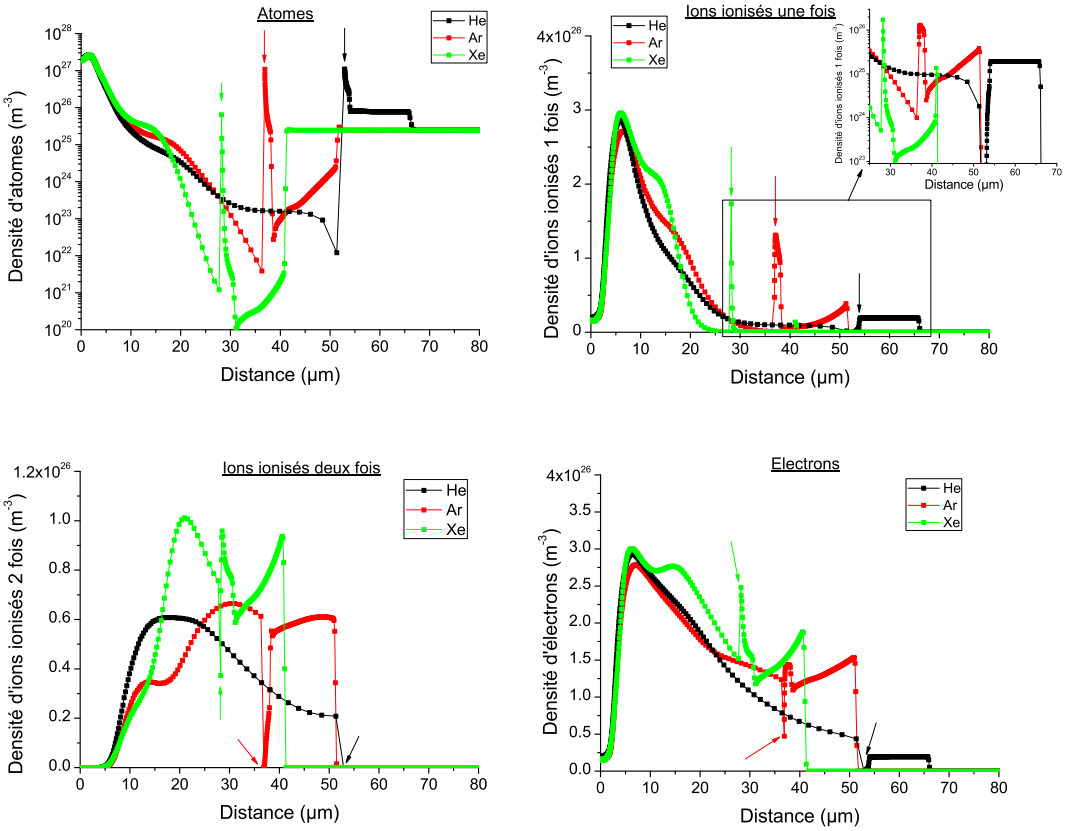

FIG. 5.7 - *Composition du plasma produit sous les trois gaz à t = 2.5 ns pour une fluence laser égale à 9 J.cm^{-2}. Les flèches situent dans chaque cas la position de l'interface vapeur-gaz ambiant.*

ionisés deux fois et maximale. Dans le cas de l'argon et du xénon, cette région est, comme nous l'avons dit précédemment, proche de l'interface vapeur-gaz ambiant, et dans le cas de l'hélium, elle est au centre de la vapeur. Une partie de l'éclairement est absorbée dans le gaz ambiant choqué pour l'argon et le xénon, dans lesquels ont été produits et des ions ionisés une fois et des ions ionisés deux fois, du fait de leurs potentiels d'ionisation plus bas que ceux de l'hélium. Ces ions sont responsables d'une absorption accrue par effet Bremsstrahlug inverse.

Enfin, la figure 5.8(b) généralise le résultat précédent pour toute la durée d'impulsion en présentant une comparaison entre les profils temporels écrantés de l'impulsion laser après que celle-ci a traversé la région du gaz ambiant choqué. Dans le cas de l'hélium, le profil écranté est globablement similaire à celui de l'impulsion initiale, ce qui montre que le gaz ambiant ne joue aucun rôle dans l'écrantage du faisceau pendant toute la durée de l'impulsion initiale. L'énergie de l'impulsion après la région d'hélium choqué est ainsi pratiquement identique à l'énergie de l'impulsion incidente (8.99 sur 9 J.cm^{-2} ont été transmis jusqu'à l'interface vapeur-gaz ambiant). Dans les deux autres gaz, le profil écranté est différent de celui de l'impulsion initiale, ce qui montre qu'il y a bien eu absorption d'une partie de la fluence laser dans la région du gaz ambiant choqué. La valeur de la fluence absorbée est similaire dans les deux gaz, soit 1.1 J.cm^{-2}.

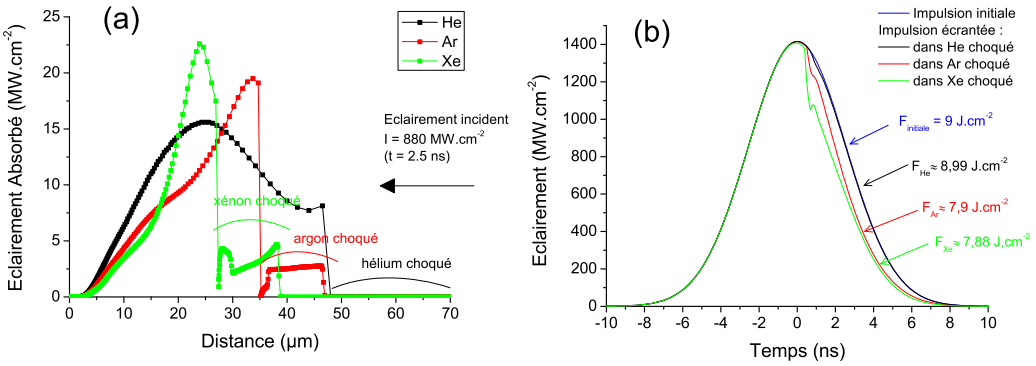

FIG. 5.8 - *(a) Répartition spatiale de l'éclairement absorbé à t = 2.5 ns. (b) Profils d'éclairement calculés après l'interaction laser-gaz ambiant choqué.*

Si l'écrantage du faisceau par le gaz ambiant reste faible dans nos conditions expérimentales, il est possible qu'il soit important dans d'autres conditions expérimentales, par exemple pour des fluences et des durées d'impulsion plus longues. Une absorption plus importante pourrait induire un claquage optique dans le gaz ambiant et non plus dans la vapeur. Un claquage optique dans le gaz ambiant peut être préjudiciable en LIBS car une partie de l'énergie du faisceau laser servirait chauffer le gaz ambiant, ce qui est totalement inutile pour l'analyse chimique d'une cible. De plus, l'énergie déposée dans la cible serait réduite, et donc il y aurait moins de matière ablatée, donc moins d'atomes émetteurs et donc moins de signal émis.

Dans la section suivante, nous étudions les seuils d'ablation, de formation du plasma et d'écrantage en fonction du gaz ambiant utilisé.

5.2.2 Influence sur les seuils d'apparition des phénomènes

La dernière partie de ce chapitre présente la comparaison, pour une ablation dans les trois gaz, des valeurs du seuil d'ablation, du seuil d'apparition du plasma et du seuil de claquage. Nous présentons le résultat pour le seuil d'ablation dans la section suivante.

a) Effet du gaz ambiant sur le seuil d'ablation

La figure 5.9 présente l'évolution de la profondeur ablatée par impulsion en fonction de la fluence laser. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 4, cette évolution n'est pas caractéristique des processus réels qui ont lieu en surface de la cible de cuivre, notamment elle ne tient pas compte de la phase de structuration. Cependant, nous avons vu que la valeur du seuil d'ablation donnée par le modèle est conforme à la valeur mesurée. La figure montre ainsi que le seuil d'ablation est identique pour une ablation dans les trois gaz, et vaut approximativement 1.5-1.9 J.cm^{-2}. En terme d'éclairement, il vaut respectivement 250-315 MW.cm^{-2}.

Ce résultat était prévisible. En effet, le processus d'ablation débute lorsque la température de la cible approche la température d'ébullition. Or, la variation de température au sein de la cible ne dépend que des propriétés thermophysiques du

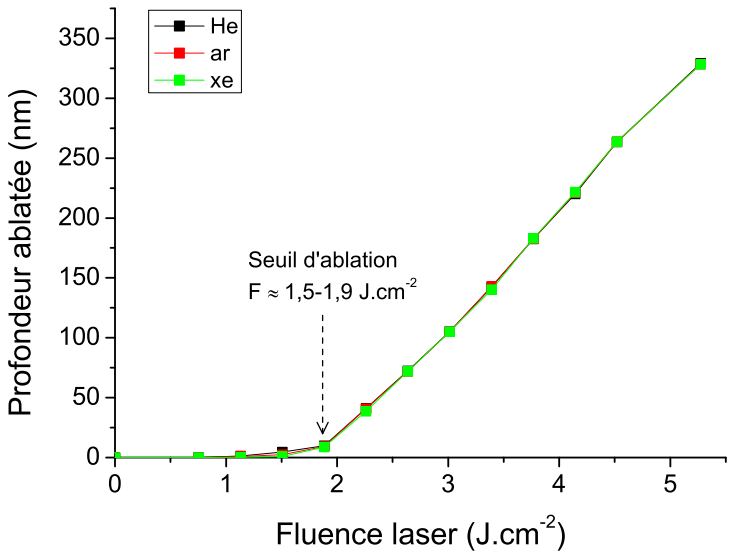

FIG. 5.9 - *Evolution de la profondeur ablatée par impulsion en fonction de la fluence laser dans le cas de l'hélium, l'argon et le xénon*

matériau qui constitue la cible, en l'occurence le cuivre dans notre gaz. Elle ne dépend pas du gaz ambiant utilisé.

Examinons maintenant le seuil d'apparition du plasma.

b) Effet du gaz ambiant sur le seuil d'apparition du plasma

Le seuil d'apparition du plasma est déterminé en examinant l'évolution de l'intensité des trois raies atomiques du cuivre à 510.5 nm, 515.3 nm et 521.8 nm en fonction de la fluence laser. La comparaison des intensités de raies pour les trois gaz ambiants est présentée à partir des figures 5.10, 5.11 et 5.12. Sur ces figures, nous représentons également la densité d'électrons moyennée sur tout le volume du plasma et également sur toute la durée de l'impulsion laser. La valeur minimale de densité électronique $n_{e,min}$ qui détermine la formation du plasma est de l'ordre de grandeur de 10^{22} m^{-3}, comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 4.

Dans les trois cas, l'intensité des trois raies devient non nulle pour une valeur de la fluence de l'ordre de 1.5 $J.cm^{-2}$. A partir de cette valeur seuil, le signal augmente linéairement (en échelle logarithmique), exprimant une augmentation de la densité des niveaux émissifs correspondants aux trois raies étudiées. Cette augmentation dans l'intensité des raies s'accompagne d'une augmentation de la densité électronique moyenne. Comme nous l'avons expliqué dans le chapitre 4, ces augmentations simultanées sont logiques : l'intensité d'une raie dépend de la densité des espèces dont le niveau d'énergie correspond à la longueur d'onde de cette raie. Cette densité augmente lorsque les électrons du cortège électronique effectuent des transitions vers la couche électronique correspondant à ce niveau d'énergie. Ces transitions sont généralement induites lorsque les espèces émissives (en l'occurrence les atomes de

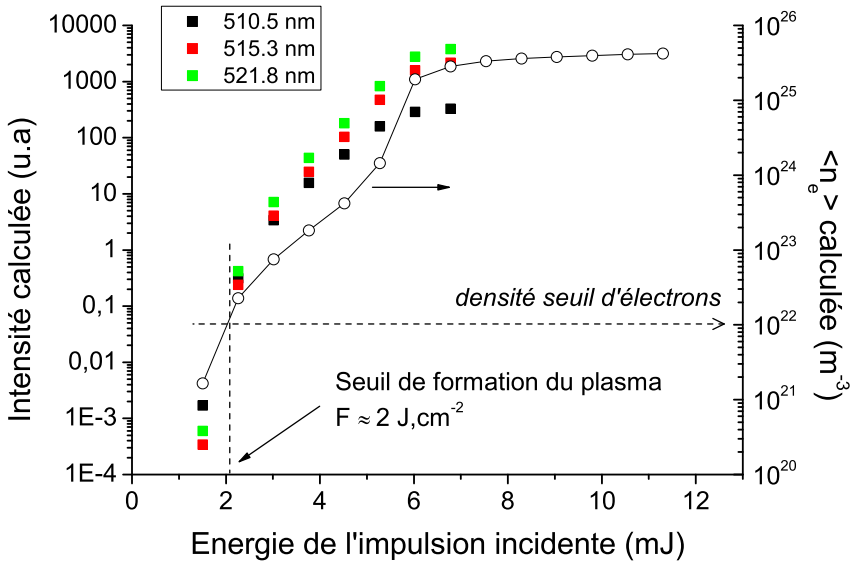

FIG. 5.10 - *Evolution de l'intensité des raies du cuivre et de la densité électronique moyenne du plasma dans le cas de l'hélium*

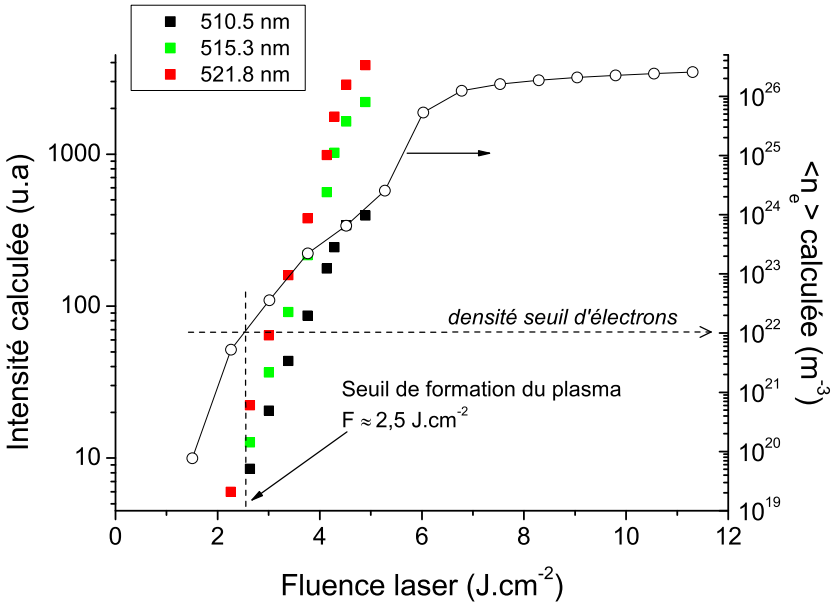

FIG. 5.11 - *Evolution de l'intensité des raies du cuivre et de la densité électronique moyenne du plasma dans le cas de l'argon*

cuivre dans ce cas) subissent des collisions avec les électrons libres de la vapeur. Ainsi, plus la densité électronique sera élevé, plus l'intensité des raies sera élevée.

Dans les trois cas, la densité électronique dépasse $n_{e,min}$ pour une valeur de la fluence de l'ordre de 1.5-2.3 J.cm^{-2}. Cet ordre de grandeur représente le seuil d'apparition du plasma quel que soit le gaz ambiant utilisé. Celui-ci n'a donc pas

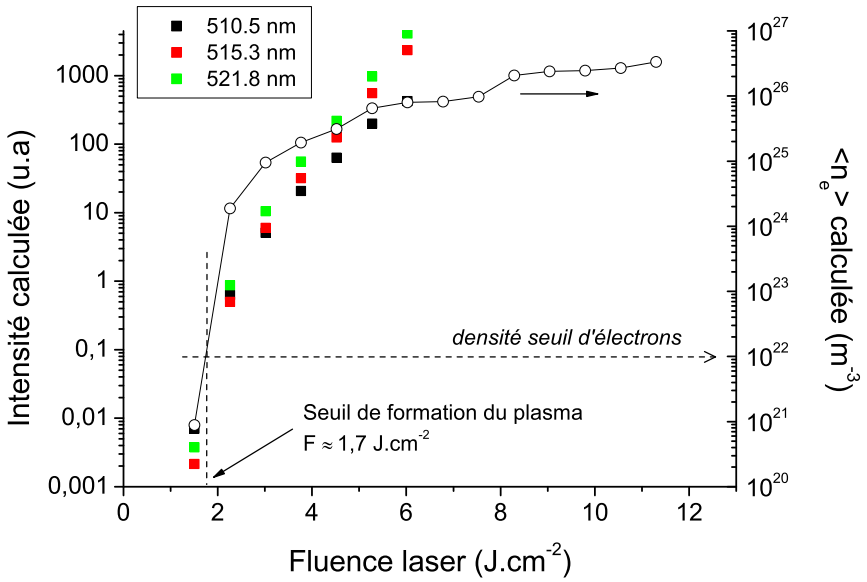

FIG. 5.12 - *Evolution de l'intensité des raies du cuivre et de la densité électronique moyenne du plasma dans le cas du xénon*

d'influence sur la formation du plasma. Par ailleurs, nous remarquons que la valeur de ce seuil est assez similaire au seuil d'ablation.

Enfin, nous étudions dans la section suivante l'influence du gaz ambiant sur le seuil de claquage optique.

c) Effet du gaz ambiant sur le seuil d'écrantage

Le seuil d'écrantage est déterminé à partir l'évolution de la transmittivité du plasma en fonction de la fluence laser. Le résultat expérimental, présenté sur la figure 5.13, montre que la transmittivité évolue à peu près de la même façon dans le cas des trois gaz. De plus, la transmittivité vaut 1 pour des fluences inférieures à 1.5 J.cm^{-2}, puis diminue rapidement lorsque la fluence augmente. Notamment, pour F = 2.3 J.cm^{-2}, elle vaut 85 % puis de l'odre de 60 % à 3 J.cm^{-2}.

Corrélons ce résultat avec les résultats concernant l'ablation de matière (paragraphe a)) et la formation du plasma (b)). La cible est ablatée pour une fluence supérieure à 1.5 J.cm^{-2}. Dans le paragraphe précédent, nous avons montré que la matière est ablatée directement sous forme d'un plasma. Les résultats de ce paragraphe montrent que ce plasma absorbe fortement l'énergie laser dès sa formation, et ce de la même façon lorsqu'il est formé dans une atmosphère d'hélium, d'argon ou de xénon.

Le résultat de la figure 5.14 présente le résultat correspondant donnée par le modèle. Comme dans le cas de l'argon, l'écrantage prédit par le modèle a lieu pour des fluences supérieures à 5.3 J.cm^{-2} dans l'hélium et le xénon. Cet écart avec le seuil réel a été expliqué d'une part par une sous-estimation des coefficients d'absorption.

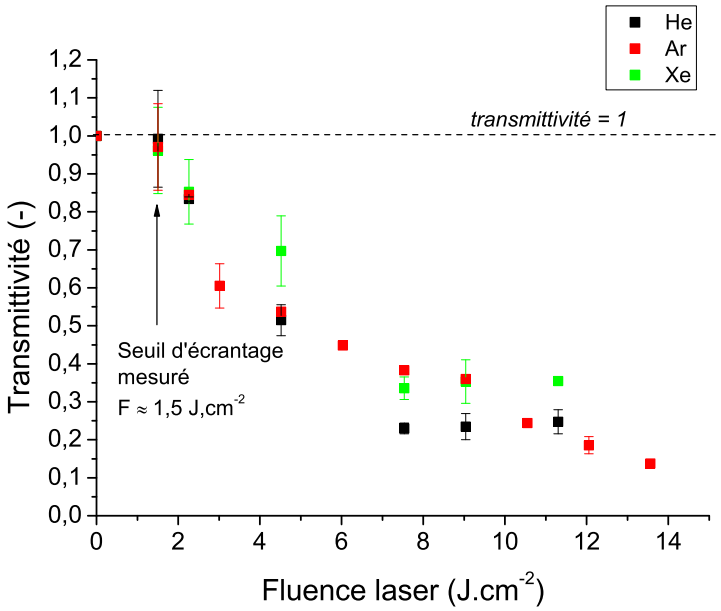

FIG. 5.13 - *Evolution de la transmittivité du plasma en fonction de la fluence laser pour l'hélium, l'argon et le xénon*

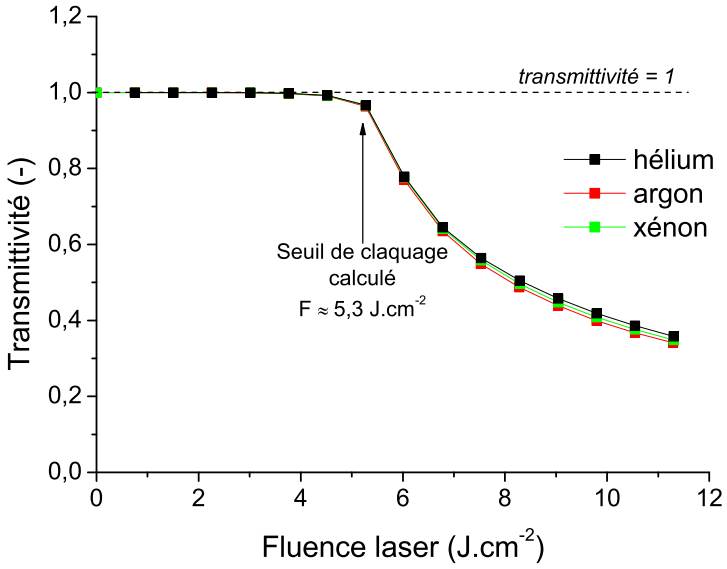

FIG. 5.14 - *Evolution, donnée par le modèle, de la transmittivité du plasma en fonction la fluence laser pour l'hélium, l'argon et le xénon*

Ainsi, la forme du coefficient de Bremsstrahlung inverse électron-atome est peut-être mal adaptée à la modélisation de l'absorption du plasma dans les conditions envisagées ici. De même, il est possible que les densités d'électrons et d'ions dans la matière ablatée soient sous-estimées dans le modèle, conduisant alors à une sous-estimation du coefficient d'absorption par Bremsstrahlung inverse électron-ion.
Le modèle prédit toutefois que l'évolution de l'écrantage est similaire dans les trois

gaz, conformément à ce que les résultats expérimentaux ont montré.

La section suivante présente l'étude de l'influence du gaz ambiant aux temps plus longs d'expansion.

5.3 Influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'ablation

Dans cette section, nous étudions l'influence des différents gaz ambiants sur la dynamique de l'ablation et la condensation de la vapeur. Cette étude s'appuie sur le résultat de la figure 5.15, qui présente l'évolution de la profondeur ablatée en fonction du temps pour une ablation dans les trois gaz.

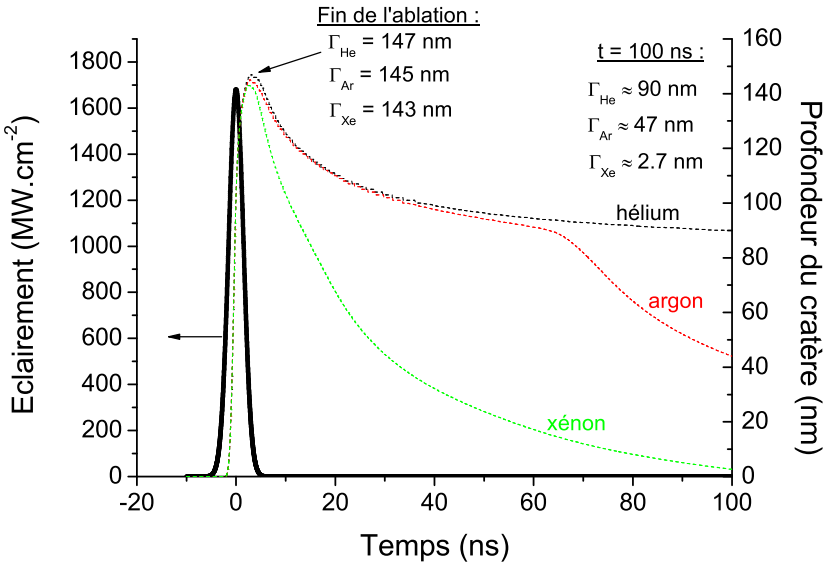

Fig. 5.15 - *Evolution de la profondeur du cratère donnée par le modèle en fonction du temps pour l'hélium, l'argon et le xénon*

Dans la phase d'ablation, jusqu'à t = 5 ns (donc vers la fin de l'impulsion laser), l'évolution de la profondeur ablatée est similaire dans les trois cas : elle croît rapidement et atteint une valeur maximale de 150 nm environ. Le modèle semble ainsi montrer que l'ablation de la cible de cuivre est indépendante du gaz ambiant choisi. A t $\geqslant$ 5 ns, la profondeur ablatée diminue marquant le début de la condensation. La condensation est différente dans les trois cas, car les propriétés du plasma formé dans les trois atmosphères diffèrent d'un cas à l'autre : la pression est notamment d'autant plus forte dans le plasma que la masse du gaz ambiant est lourde (c'est un résultat que nous montrerons dans la suite de ce chapitre). Ainsi, une plus forte pression dans le xénon conduit à une condensation plus importante que dans l'hélium ou l'argon, puisque celle-ci dépend de la différence de pression entre pression partielle de vapeur et pression de saturation. A t = 100 ns, les valeurs de la profondeur du cratère sont très différentes : sous hélium, cette profondeur semble atteindre une valeur asymptotique de l'ordre de 90 nm. Sous argon, cette valeur vaut environ 45

nm, mais l'évolution de la profondeur montre que celle-ci aurait continué à décroître en fonction du temps si le calcul avait été prolongé. Dans le xénon, à t = 100 ns, la profondeur ablatée vaut 2.6 nm, donc la vapeur a presqu'intégralement condensé au terme des 100 premières nanosecondes d'expansion.

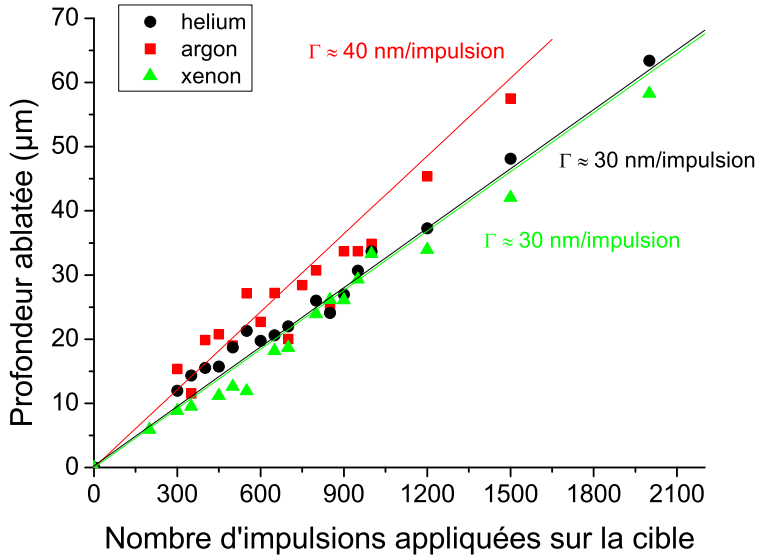

FIG. 5.16 - *Evolution de la profondeur ablatée sous les trois gaz étudiés en fonction du nombre d'impulsions appliquées*

Le résultat de la figure 5.16 présente l'évolution de la profondeur ablatée en fonction du nombre d'impulsion. Dans chaque cas, les points de mesure s'alignent sur une droite, dont la pente représente la profondeur ablatée par impulsion. Cette profondeur est du même ordre de grandeur dans le cas des trois gaz, soit $\Gamma \approx$ 30-40 nm. Nous avons montré dans le cas de l'argon que la matière condense sur une surface plus importante que la surface du spot laser en surface de cible. Nous n'en présentons pas les résultats, mais cela est le cas également pour l'hélium et le xénon. Le résultat précédent semble montrer que la modélisation de la condensation, telle que nous l'avons présentée dans le chapitre 1, est mal adaptée dans nos conditions expérimentales, puisqu'elle prévoit une condensation complète de la vapeur de cuivre sous xénon, alors qu'en réalité, le cratère doit faire 30 nm. A cela, il faut ajouter de plus que le modèle est incomplet, notamment il est utilisé jusqu'à 100 ns uniquement car la phase d'expansion 2D n'est pas modélisé, ce qui rajoute des incertitudes sur la modélisation de la condensation.

Dans la section suivante, l'influence du gaz ambiant sur l'expansion du plasma et la propagation de l'onde de choc est mise en évidence.

5.4 Effet de freinage induit par le gaz ambiant

Aux délais plus longs que la durée d'impulsion, le gaz ambiant influence la dynamique du plasma et celle de l'onde de choc. Cette influence est mise en évidence grâce

à l'imagerie rapide du plasma et à l'ombroscopie. En premier lieu, nous présentons les résultats d'ombroscopie.

5.4.1 Effet de freinage sur la propagation de l'onde de choc

Le déplacement de l'onde de choc est influencé par le gaz ambiant, comme le montre les résultats expérimentaux présentés sur la figure 5.17.

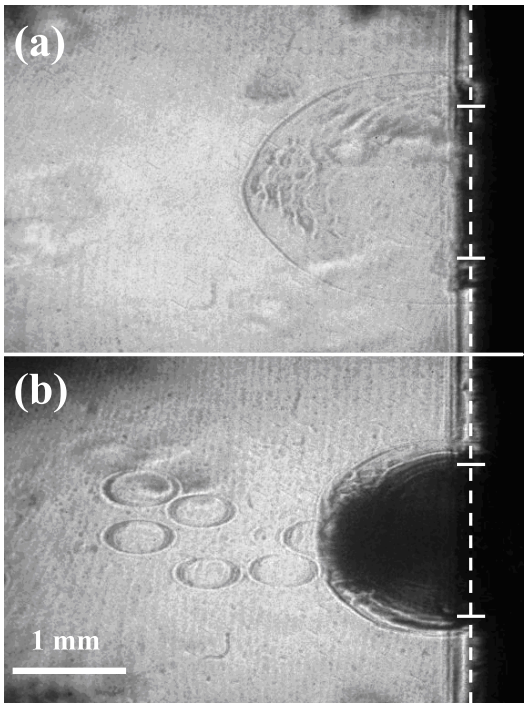

FIG. 5.17 - *Images de l'onde de choc, obtenues par ombroscopie pour un délai de t = 160 ns, pour une ablation réalisée dans (a) l'argon et (b) le xénon*

Ces deux images présentent l'observation de l'onde de choc à t = 160 ns après l'impulsion laser pour l'argon et le xénon. Le résultat sous hélium n'est pas représenté, car l'onde de choc ne peut pas être observée par ombroscopie dans l'hélium à 1 bar. Le saut de densité au niveau de l'onde de choc doit être trop faible pour induire signification la réfraction des rayons lumineux du laser sonde.

La comparaison entre ces deux figures montre que l'onde de choc se déplace moins loin de la cible dans le xénon que dans l'argon. La figure 5.18 confirme cette observation pour les 600 premières nanosecondes de l'expansion. Au delà, la comparaison n'est plus possible car l'onde de choc créée sous argon s'est trop étendue par rapport à la taille du capteur de la caméra CCD. Sur cette figure, nous avons également représenté la comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux issus du modèle. Un bon accord est obtenu dans le cas de l'argon et du xénon. Le modèle décrit donc assez bien la dynamique de l'onde de choc, et confirme la conclusion que celle-ci se déplace sur des distances moins grandes lorsque la masse atomique du gaz ambiant est plus élevée.

Le modèle montre (mais nous n'en présentons pas le résultat) que l'évolution de

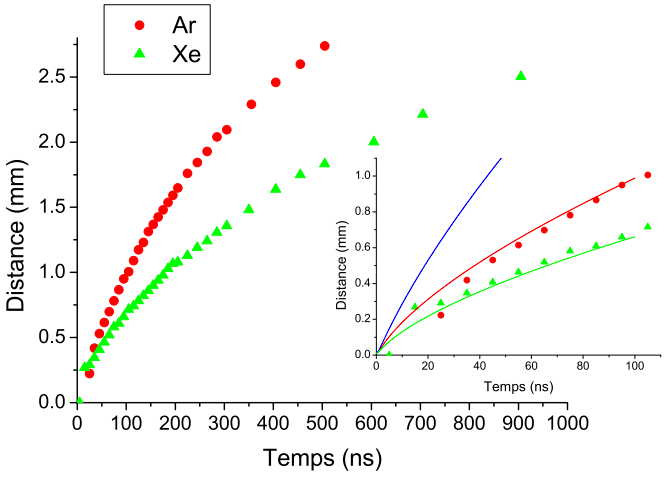

FIG. 5.18 - *Position de l'onde de choc au cours du temps pour les trois gaz ambiants. Les traits pleins représentent les résultats issus du modèle, et les symboles les mesures par ombroscopie*

la position de l'onde de choc sous hélium et xénon suit, au même titre que l'argon, la loi de Sedov (1.35) sur les 100 premières nanosecondes d'expansion. L'expression de la loi de Sedov permet d'expliquer le lien entre la propagation de l'onde de choc et masse du gaz ambiant. Cette expression, formulée en terme de la masse atomique m_{gaz} du gaz ambiant, est rappelée ici :

$$z(t) = \xi_0 \left(\frac{E}{m_{\text{gaz}} n_{\text{gaz}}} \right)^{1/3} t^{2/3} \tag{5.5}$$

La densité du gaz, définie par la loi des gaz parfaits :

$$n_{\text{gaz}} = \frac{P}{k_B T} \tag{5.6}$$

est une constante (P = 1 bar, T = 300 K) qui ne dépend pas de la nature du gaz. Ainsi la position de l'onde de choc z(t) dépend uniquement du terme $m_{gaz}^{-1/3}$. En dérivant l'expression (5.5) par rapport au temps, nous obtenons l'expression de la vitesse d'expansion de l'onde de choc, elle-même dépendant du terme $m_{gaz}^{-1/3}$:

$$v(t) = \frac{\mathrm{d}z(t)}{\mathrm{d}t} = \frac{2}{3}\xi_0 \left(\frac{E}{m_{\text{gaz}} n_{\text{gaz}}} \right)^{1/3} t^{-1/3} \tag{5.7}$$

Ainsi, la vitesse (et donc la position) de l'onde de choc est d'autant plus importante que la masse du gaz est faible. Cela se comprend naturellement car l'inertie d'une particule lourde est beaucoup plus importante que celle d'une particule légère.

Dans le chapitre 4, nous avons montré que l'onde de choc joue le rôle d'onde d'ionisation thermique dans le gaz ambiant. Le plasma formé sous argon est donc constitué d'un plasma de cuivre et d'argon. Dans la section suivante, nous montrons que c'est également le cas pour une ablation sous hélium et sous xénon.

5.4.2 Effet du gaz ambiant sur l'expansion du plasma

L'examen d'images plasma réalisées à deux temps successifs montre que le plasma s'étend plus rapidement dans un gaz léger que dans un gaz lourd. Cela se voit dans la taille du plasma, qui est nettement plus grande dans l'hélium que dans l'argon ou le xénon. A 90 ns, la zone émissive du plasma n'est même plus en contact avec la surface : la matière s'est suffisamment détendue (chute de n_e, n_{Cu^+} et $n_{Cu^{2+}}$) pour que l'émission ne soit plus visible dans la région contigüe à la surface. Sous argon et xénon, le plasma reste confiné dans une région proche de la surface de la cible.

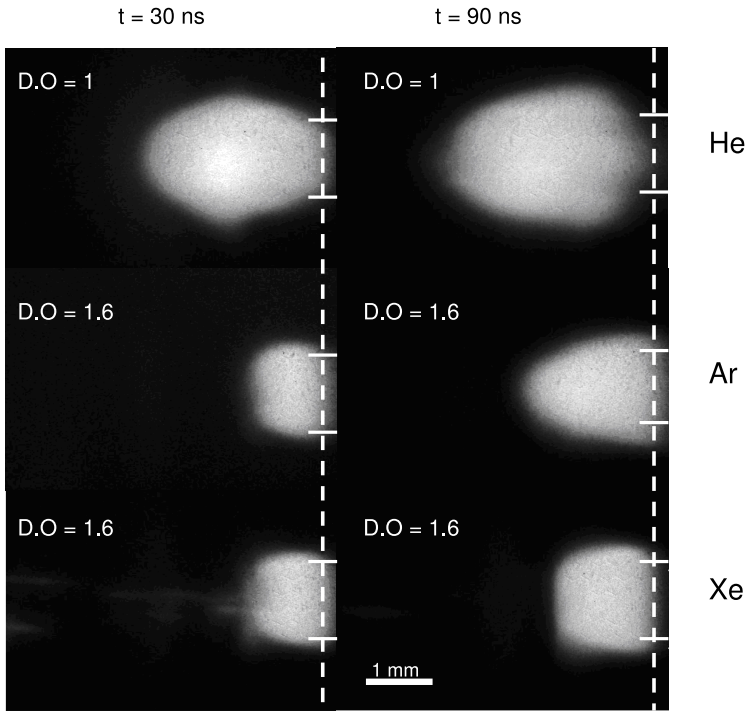

FIG. 5.19 - *Images du plasma à deux temps différents pour l'hélium, l'argon et le xénon*

La figure 5.20 présente l'évolution de la longueur du plasma en fonction du temps. Cette longueur est d'autant plus grande que la masse du gaz ambiant est faible. Comme nous l'avions remarqué dans le cas de l'argon, les valeurs de la longueur du plasma et de la position de l'onde de choc coïncident pour les premiers instants de l'expansion. Cela montre, comme dans le cas de l'argon, que le plasma croît du fait du déplacement de l'onde de choc, qui excite et ionise les atomes du gaz ambiant à son passage. Le résultat concernant la position de l'onde de choc n'étant pas disponible pour l'hélium, le modèle a été utilisé pour montrer que cette conclusion s'applique également dans ce gaz. Le résultat est présenté sur la figure 5.20.

Au bout d'un certain temps, la position de l'onde de choc ne coïncide plus avec la longueur du plasma : l'onde de choc n'induit plus une pression suffisante pour ioniser le gaz ambiant lors de sa propagation. Par ailleurs, dans le cas de l'argon et du xénon, la longueur du plasma diminue au bout d'un certain temps : le plasma s'éteint progressivement dans le gaz ambiant choqué du fait de l'expan-

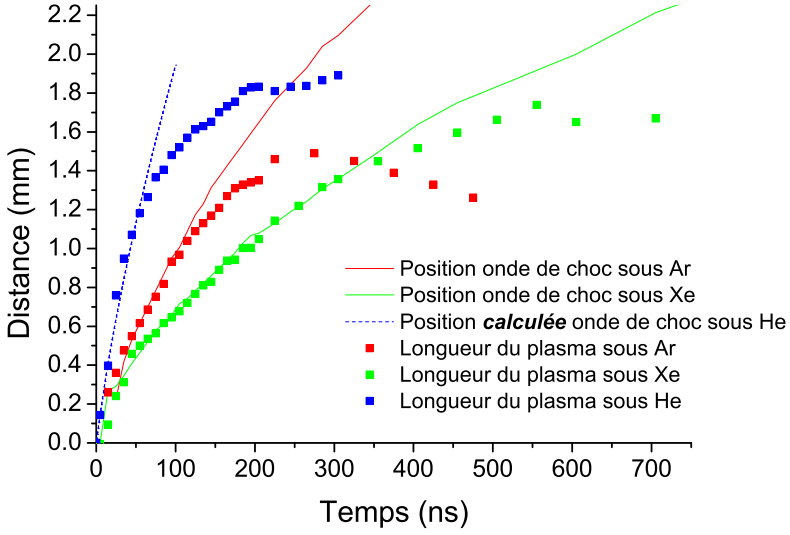

FIG. 5.20 - *Evolution en fonction du temps de la longueur du plasma pour les trois gaz*

sion et donc d'une chute de l'émissivité induite par une chute de la densité du plasma.

L'équivalence longueur du plasma - position de l'onde de choc permet ainsi de conclure que la taille du plasma est d'autant plus petite que la masse du gaz ambiant est élevée.

Le modèle permet d'étudier l'effet du gaz ambiant sur la vapeur, étude qui est présentée dans la section suivante.

5.4.3 Effet du gaz ambiant sur la propagation de la vapeur

L'effet de freinage de la vapeur dû au gaz ambiant est mis en évidence dans le modèle en examinant l'évolution de la position de l'interface vapeur-gaz ambiant au cours du temps. Ce raisonnement se fonde sur le fait que cette interface sera plus proche de la surface de l'échantillon si l'expansion de la vapeur est ralentie de façon plus importante. Ce résultat est présenté sur la figure 5.21.

Ce résultat montre que l'interface vapeur-gaz ambiant se déplace sur des distances moins grandes lorsque la masse atomique du gaz ambiant est plus élevée. La longueur de la vapeur est donc plus faible dans le xénon que l'argon ou l'hélium. Cette tendance se comprend naturellement car l'inertie du xénon est beaucoup plus importante que celle de l'argon, et encore plus importante que celle de l'hélium. Le modèle donne cependant un résultat particulier : l'interface vapeur-gaz ambiant diminue dans le xénon à partir de t $\approx$ 40 ns. La condensation est suffisamment forte en surface pour affecter maintenant toute la vapeur, ce qui induit un déplacement vers la surface. Ce résultat n'a pas été vérifié expérimentalement, mais il peut déjà être mis en cause. En effet, le code 1D suggère, par extrapolation de la courbe verte sur la figure 5.21 que toute la vapeur devrait condenser peu après 100 ns d'expansion. Or, nous avons vu dans la section 5.3 que la profondeur du cratère est

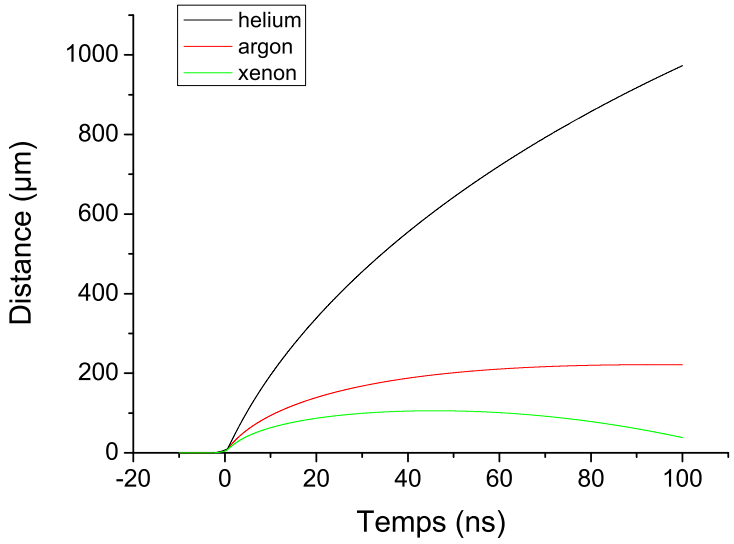

FIG. 5.21 - *Evolution de la position de l'interface vapeur-gaz ambiant en fonction du temps pour les trois gaz*

de l'ordre de 30 ns après un tir, ce qui contredit le résultat prédit par le modèle.

Conclusion générale

L'optimisation de l'analyse physico-chimique des matériaux par la technique LIBS nécessite d'améliorer notre connaissance des mécanismes régissant l'interaction laser-matière. De plus, il est souvent primordial de connaître les propriétés du plasma au temps de mesure du spectre lumineux, et particulièrement la densité électronique, la température et la quantité de matière ablatée. Cependant, dans de nombreuses conditions de mesures, il est difficile d'accéder expérimentalement à ces grandeurs. Les différentes études réalisées durant cette thèse ont prouvé que la progression vers une meilleure connaissance de l'interaction laser-matière en régime nanoseconde peut être obtenue lorsque les mesures expérimentales sont renforcées par une approche numérique.

Nous avons développé un modèle numérique qui simule l'interaction entre une impulsion nanoseconde et une cible métallique (dans cette étude, le cuivre), en présence d'un gaz ambiant. Ce modèle est pour l'instant limité aux régimes d'expansion 1D du plasma, ce qui équivaut à des diamètres de la tache laser en surface de l'échantillon de plusieurs centaines de micromètres à quelques millimètres. Dans cette étude, la modélisation est représentative d'une expansion du plasma sur des durées de l'ordre de 100 ns. En parallèle ont été menées diverses expériences qui ont permis de valider le modèle numérique, c'est-à-dire à en évaluer les degrés de réalité et de précision, en comparant méthodiquement résultats numériques et résultats expérimentaux. Tout au long de cette étude, nous nous sommes appuyés simultanément sur les résultats numériques et expérimentaux afin de progresser dans la compréhension des phénomènes physiques mis en jeu dans la formation des plasmas produits par laser.

Le modèle décrit de façon assez précise la structure du plasma : il prédit l'apparition d'une onde de choc dans le gaz ambiant, d'une discontinuité de contact entre la zone contenant de la matière ablatée et le gaz ambiant et d'une zone de raréfaction proche de la cible. L'existence de ces deux interfaces et de la zone de raréfaction a été prouvée expérimentalement à l'aide de l'imagerie rapide et l'ombroscopie. De plus, leurs positions mesurées coïncident avec les valeurs calculées par le modèle. D'un point de vue dynamique, le modèle décrit fidèlement la dynamique du plasma.

La discontinuité de contact sépare deux zones : la première, qui s'étend de la surface de la cible à la discontinuité, contient de la matière ablatée émissive, passée à l'état plasma suite à l'absorption de l'énergie du faisceau par les ions et les électrons produits dans cette matière ablatée. La seconde s'étend de la discontinuité de contact jusqu'à l'onde de choc et coïncide avec une région de gaz ambiant à l'état de plasma : il s'agit en fait de gaz ambiant choqué, produit au passage de l'onde de choc, qui a joué le rôle d'onde d'ionisation thermique. Les atomes de gaz ambiant sont ionisés au front de l'onde de choc par collisions inélastiques, et l'ionisation est d'autant plus importante que les potentiels d'ionisation du gaz ambiant sont faibles.

Ainsi, nous avons montré que l'ionisation est plus importante lorsque le gaz ambiant est le xénon, plutôt que l'argon ou l'hélium. Au delà de l'onde de choc s'étend une région constituée de gaz ambiant au repos.

Le processus d'absorption du faisceau laser par le plasma est fidèlement modélisée lorsque sont pris en compte les processus de photoionisation et Bremsstrahlung inverse électron-atome et électron-ion. Toutefois, un retard à l'apparition de l'avalanche électronique dans la vapeur de cuivre aux premiers instants du laser a été observé, ce qui a été expliqué par deux raisons : d'une part, les valeurs des coefficients intervenants dans les expressions de chaque coefficient d'absorption peuvent être sous-estimées. D'autre part, nous avons supposé que la vapeur formée suite à l'ablation de la cible est initialement neutre, c'est-à-dire ne contient pas d'ions ni d'électrons : or cette hypothèse d'un taux d'ionisation nul dans la matière ablatée est probablement éronée (mais elle est difficilement vérifiable par l'expérience).

Il y a un net écart entre les valeurs mesurées et calculées de la profondeur du cratère d'ablation. Ce résultat est naturellement lié à l'argument précédent : un retard à l'apparition de l'avalanche électronique implique qu'une plus grande part de l'énergie du faisceau laser est déposée dans la cible, ce qui augmente naturellement la profondeur du cratère. Une modélisation plus fine de l'absorption du faisceau peut donc vraisemblablement réduire l'écart des valeurs entre profondeur mesurée et calculée. De plus, nous avons modélisé l'ablation sur la base d'un mécanisme d'évaporation thermique, hypothèse qui est généralement valable pour des températures inférieures à la température critique du matériau. Au delà de cette température, d'autres mécanismes peuvent entrer en jeu et modifier totalement le processus d'ablation en surface, donnant ainsi des valeurs différentes de celles que nous avons mesurées pour la profondeur du cratère.

La double approche expériences-modélisation a permis de progresser dans la connaissance de l'influence du gaz ambiant sur la dynamique du plasma. Les deux approches redonnent les résultats bien connus d'un confinement et ralentissement accrus du panache d'ablation lorsque la masse du gaz ambiant est lourde. Nous avons mis en évidence le rôle des valeurs des potentiels d'ionisation de l'atome constituant le gaz ambiant, notamment pendant l'impulsion laser. L'onde de choc observée forme un plasma dans le gaz ambiant pendant l'impulsion laser, impliquant qu'une partie de l'énergie du faisceau est également absorbée dans le gaz ambiant. Dans nos conditions expérimentales, pour une durée d'impulsion de quelques nanosecondes, cette absorption reste cependant bien plus faible que celle mise en évidence dans la matière ablatée. Cependant, elle peut devenir importante pour des impulsions plus longues.
Par ailleurs, nous avons montré que le choix du gaz ambiant influence peu la quantité de matière ablatée, en mesurant la profondeur des cratères formés sous différents gaz ambiants sont identiques. Le modèle 1D est ici en désaccord avec les observations expérimentales : les profondeurs calculées sont d'autant plus grandes que le gaz ambiant a une masse atomique faible. Pour le xénon notamment, le modèle prédit que la matière ablatée condense totalement et "rebouche" intégralement le cratère, prédiction totalement contredite par l'observation. En étudiant le dépôt formé autour du cratère, nous avons montré que celui-ci est constituée de particules de tailles diverses (100 nm - plusieurs μm) qui ont été très probablement formées dans le plasma et déposées autour du cratère suite à l'expansion latérale de ce dernier.

La formation de particules et l'expansion latérale du plasma n'étant pas prise en compte dans le modèle, le mécanisme de condensation que nous avons modélisé devient alors beaucoup trop simpliste pour calculer des valeurs de la profondeur d'ablation très proches des valeurs mesurées.

Les perspectives de ce travail sont nombreuses : il est naturel de poursuivre le développement du schéma numérique vers une représentation bidimensionnelle, et, pour cela, une base de travail est l'extension que propose C. Mazeran dans la référence [1]. L'ajout de ce régime 2D, en formulation *lagrangienne*, permettrait de modéliser l'expansion du plasma produit par laser sur des durées de l'ordre de plusieurs microsecondes, et donc de valider le schéma numérique sur de telles durées. Toutefois, cette extension bidimensionnelle peut nécessiter l'ajout d'une phase de *repositionnement* du maillage ("*rezoning*") et d'une étape d'interpolation des données de l'ancien vers le nouveau maillage ("*remapping*") : le lecteur peut se référer aux travaux de M. Shashkov et de plusieurs auteurs avec lesquels il a collaboré [2].

Depuis quelques années, plusieurs résultats de modélisation MD (*Molecular Dynamics*, ou dynamique moléculaire) satisfaisants concernant l'ablation d'une cible par un laser ont été obtenus [3]. Ces résultats permettent de décrire les différents régimes d'ablation en fonction de la fluence laser appliquée sur la cible, particulièrement l'explosion de phase intervenant pour des températures de cible proches ou supérieures à la température critique du matériau, pour lesquelles l'hypothèse d'évaporation thermique est incertaine. Il serait donc intéressant de développer un modèle similaire pour décrire plus précisément l'ablation de la cible.

Dans la formulation bidimensionnelle des équations d'Euler, il est nécessaire d'introduire les phénomènes de diffusion de masse et les phénomènes qui produisent de l'entropie telles que la conductivité thermique et la viscosité. L'étape la plus difficile dans l'ajout de ces termes est de trouver une expression satisfaisante des coefficients de diffusion massique, de conductivité thermique et de viscosité. Pour des temps de plusieurs centaines de nanosecondes, pour lesquels la température du plasma a chuté vers des valeurs de l'ordre de 10 000 K, les coefficients donnés par la théorie cinétique des gaz peuvent être utilisés en première approximation. Une base pour l'inclusion de termes diffusifs dans les équations d'Euler est le travail de P.H Maire [4].

Dans le domaine de la LIBS, l'extension à la représentation 2D constitue une étape importante à la résolution de l'équation de transfert radiatif, qui décrit l'émission du spectre lumineux dans le plasma. En plus de l'approximation de radiation diffuse, l'une des méthodes les plus séduisantes est la modélisation nommée "Ray Tracing", qui consiste à déterminer le comportement de quelques rayons lumineux (au sens de l'optique géométrique) en interaction avec leur milieu environnant.

Liste des références de la conclusion.

[1] Constant Mazeran. *Sur la structure mathématique et l'approximation numérique de l'hydrodynamique lagrangienne bidimensionnelle*. Thèse de doctorat, Université de Bordeaux, 2007.

[2] Milan Kucharik, Mikhail Shashkov, and Burton Wendroff. An efficient linearity-and-bound-preserving remapping method. *Journal of Computational Physics*, 188 :462–471, 2003.

[3] Leonid V. Zhigileia) and Barbara J. Garrison. Microscopic mechanisms of laser ablation of organic solids in the thermal and stress confinement irradiation regimes. *J.Appl.Phys.*, 88(3) :1281–1298, 2000.

[4] Jérôme Breil and Pierre-Henri Maire. A cell-centered diffusion scheme on two-dimensional unstructured meshes. *Journal of Computational Physics*, 224 :785–823, 2007.

Titre Etudes théorique et expérimentale des plasmas produits par laser en vue de leur application à l'analyse chimique des matériaux en environnement complexe.

Résumé Ce travail présente une étude de l'interaction laser-matière en régime nanoseconde à l'aide d'une double approche expériences-modélisation numérique. L'approche expérimentale vise à caractériser les plasmas produits par laser et l'empreinte laissée par le faisceau laser sur la cible. L'approche numérique s'appuie sur un modèle 1D qui permet de décrire le chauffage de la cible par le laser, l'ablation de matière et la formation d'un plasma dans cette matière ablatée dûe à l'interaction avec le laser. Des comparaisons des résultats obtenus par les deux approches permettent d'évaluer le degré de précision des résultats issus du modèle. Ces comparaisons se limitent aux 100 premières nanosecondes d'expansion du plasma. Nous montrons ainsi que le modèle décrit assez bien l'écrantage du faisceau laser par le plasma, l'expansion du plasma et la propagation de l'onde de choc dans le gaz ambiant. De plus, les valeurs des seuils d'ablation et de formation du plasma sont calculées avec une bonne précision. En revanche, des écarts sont constatés pour la modélisation des processus d'interaction entre le laser et la cible. Le degré de précision du modèle est au final suffisamment bon pour nous permettre d'étudier précisément l'effet du gaz ambiant sur les propriétés et la dynamique du plasma.

Mots-clés Interaction laser-matière, plasmas produits par laser, LIBS, LIPS, ablation laser, plasmas, comparaison expériences-modélisation, modélisation, mécanique des fluides, schéma numérique, lois de conservation, formulation lagrangienne.

Title Theoritical and experimental studies of laser-induced plasmas for their application to chemical analyses of materials in complex environment.

Abstract This work provides an original study about laser-matter interaction in the nanosecond regime, based on a coupling between the experiments and the modelling. The experimental study provides a description of the dynamics of the laser produced plasmas. The modelling, based on a 1D numerical scheme, is aimed to describe the heating of the target by the laser pulse, the process of matter ablation and the formation of a plasma in this ablated material due to the interaction with the laser. The comparisons between both experimental and numerical results give the order of accuracy of the results obtained by modelling. These comparisons are limited to the first hundred nanoseconds of plasma expansion. We show that the plasma shielding, the plasma expansion and the propagation of the shockwave are well modelled. Furthermore, the values of both ablation and plasma formation threshold are accurately computed. However, many differences are observed in the results concerning the laser-target interaction process. Finally, the degree of accuracy of the model is sufficiently high to study precisely the background gas effet on both plasma dynamics and properties.

Keywords Laser-matter interaction, laser-produced plasmas, LIBS, laser ablation, plasmas, experiments-modeling coupling, computational fluid dynamics, numerical scheme, conservation laws, lagrangian description.