



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEURE ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCEN



THÈSE

Présentée à :

LA FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

DOCTORAT EN SCIENCES

Spécialité : Physique des Plasmas

Par:

Amina Kahina AIT OUMEZIANE

Sur le thème

Contribution à la modélisation de l'interaction laser-matière en régime nano et picoseconde : Optimisation des paramètres

Soutenue publiquement le 02/06/ 2016 à Tlemcen devant le jury composé de :

M. Mokhtar INAL	Professeur	Université de Tlemcen	Président
M. Bachir LIANI	Professeur	Université de Tlemcen	Directeur de thèse
M. Jean-Denis PARISSÉ	MCF-HDR	IUSTI Aix-Marseille	Co-Directeur de thèse
M ^{me} Fouzia Ould KADDOUR	Professeur	Université/Ecole de l'air	Examinatrice
M. Tewfik BABA HAMED	Professeur	Université de Tlemcen	Examinateur
M ^{me} Viviana LAGO	IR-HDR	Université USTO d'Oran	Examinatrice
M. Abdelhamid SARI	Maître assistant A	ICARE Université d'Orléans	Membre invité
		Université de Tlemcen	

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA
RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE ABOU BEKR BELKAID DE TLEMCCEN
FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
LABORATOIRE DE PHYSIQUE THEORIQUE

Thèse

Présentée par

Amina Kahina AIT OUMEZIANE

Pour l'obtention du diplôme de Doctorat en Physique

Intitulée

**Contribution à la modélisation de l'interaction laser-matière en régime nano
et picosecond- Optimisation des paramètres**

Membres du Jury

Pr.INAL Mokhtar	Président	UAB Tlemcen
Pr.OUELD KADDOUR Fouzia	Examineur	UST Oran
Pr.BABA HAMED Tewfik	Examineur	UST Oran
Dr.Viviana Lago	Examineur	ICARE UPR 3021, Orléans
Pr.LIANI Bachir	Directeur de thèse	UAB Tlemcen
Dr.Jean-Denis PARISSE	Co-directeur de thèse	IUSTI Aix-Marseille Université Ecole de l'air Salon de Provence
Dr.SARI Abdelhamid	Membre invité	UAB Tlemcen

Table des matières

Introduction générale	16
Bibliographie	26
1 État de l'art	28
1.1 Modélisation de l'interaction laser-cible	29
1.1.1 Modèles basés sur l'équilibre	33
1.1.1.1 Approches analytiques	33
1.1.1.2 Approches numériques	38
1.1.1.2.1 Terme source	38
1.1.1.2.2 Propriétés du matériau	38
1.1.1.2.3 Processus d'évaporation	40
1.1.1.2.4 Conditions aux limites	41
1.1.2 Modèles hors équilibre	43
1.2 Modélisation des plasmas induits par laser	44
1.2.1 Modèles basés sur l'équilibre thermique	47
1.2.1.1 Équations d'Euler	47
1.2.1.2 Équations de Navier-Stokes	49
1.2.2 Modèles basés sur le déséquilibre thermique	50
1.2.2.1 Modèles 0D	50
1.2.2.2 Modèles 1D	51
1.3 Conclusion	51
Bibliographie	52
2 Modélisation	56
2.1 Introduction	57
2.2 Interaction laser-cible	57
2.2.1 Hypothèses	57
2.2.2 Modèle	58
2.2.3 Méthode numérique	60
2.3 Chauffage de la plume et formation du plasma	61
2.3.1 Hypothèses :	61
2.3.2 Modèle	63
2.3.2.1 Équations hydrodynamiques	63
2.3.2.2 Termes sources des équations hydrodynamiques	65
2.3.2.3 Processus collisionnels	67
2.3.2.4 Processus radiatifs	69

2.3.2.5	Création des espèces doublement ionisées	71
2.3.3	Méthode numérique	74
2.4	Conclusion	75
	Bibliographie	75
3	Résultats et discussions	79
3.1	Introduction	80
3.2	Interaction d'une impulsion laser avec une cible en cuivre	80
3.2.1	Validation du modèle thermique 1D	80
3.2.2	Processus pris en compte dans le modèle hydrodynamique	82
3.2.2.1	Modèle hydrodynamique à cinq espèces	82
3.2.2.2	Modèle hydrodynamique à six espèces	83
3.2.3	Résultats	84
3.2.3.1	Modèle hydrodynamique à cinq espèces	84
3.2.3.1.1	Calcul des seuils d'allumage et validation	84
3.2.3.1.2	Effet de la pression sur les seuils d'allumages	85
3.2.3.1.3	Seuils de fusion et d'évaporation	86
3.2.3.1.4	Écrantage plasma	88
3.2.3.1.5	Profondeurs ablatées	94
3.2.3.1.6	Déséquilibre thermique dans le plasma	99
3.2.3.1.7	Dynamique et expansion du plasma	105
3.2.3.2	Modèle hydrodynamique à six espèces	109
3.2.3.2.1	Seuil d'allumage plasma et validation	109
3.2.3.2.2	Profondeur ablatée et écrantage plasma	110
3.2.3.2.3	Formation et expansion du plasma	112
3.3	Interaction d'une impulsion laser avec une cible en titane	129
3.3.1	Validation de l'approche 1D	129
3.3.2	Processus pris en compte	131
3.3.3	Seuil d'allumage et validation	132
3.3.4	Seuils de fusion et d'évaporation	134
3.3.5	Écrantage plasma	134
3.3.6	Profondeurs ablatées	137
3.3.7	Déséquilibre thermique dans le plasma	138
3.3.8	Dynamique et expansion du plasma	140
3.3.9	Comparaison avec le cuivre	143
3.4	Conclusion	146
	Bibliographie	146

Table des figures

1	Principe de fonctionnement d'un laser	17
2	Inversement de population et émission d'un rayonnement laser.	18
3	Échelle temporelle des impulsions laser	18
4	Exemple d'impulsions laser [5] (a) impulsion Gaussienne, (b) impulsion carrée, (c) profile triangulaire, (d) impulsion régulière, (e) impulsion croissante, (f) impulsion décroissante	19
5	Focalisation d'une impulsion laser	19
6	États de la matière	21
7	Étapes de l'interaction laser-solide [10]	23
8	Principe de la technique PLD [11]	24
9	Principe de la technique LIBS [12]	24
1.1	Processus d'ablation laser en régime court et ultra court [14].	30
1.2	Cratère formé par ablation laser d'une feuille épaisse en acier par une impulsion laser nanosecond de 781 nm [16].	31
1.3	Effets thermiques en régime ultra court [14].	31
1.4	Cratère formé par ablation laser d'une feuille épaisse en acier par une impulsion laser picoseconde de 781 nm [16].	32
1.5	Changement de phase dû à l'absorption de l'énergie du rayonnement laser.	35
1.6	Représentation simplifiée des principaux processus dans les plasmas induits par laser. [53].	45
1.7	Représentation simplifiée de l'expansion du plasma dans le milieu environnant [43].	47
2.1	Diagramme d'état d'un corps pur [6]	60
2.2	Discrétisation spatiale [6]	61
2.3	Schéma représentatif de l'expansion du plasma dans le milieu environnant [5]	62
2.4	Schéma représentatif des différentes réactions prises en compte dans notre modèle à cinq espèces.	66
2.5	Schéma représentatif des différentes réactions prises en compte dans notre modèle à six espèces.	72
2.6	Représentation du régime d'ablation [6]	75
3.1	Schéma représentatif des différents processus et niveaux énergétiques pris en compte dans notre modèle à cinq espèces dans le cas du cuivre.	82
3.2	Schéma représentatif des différents processus et niveaux énergétiques pris en compte dans notre modèle à six espèces dans le cas du cuivre	83

3.3	Variation des seuils de fusion et d'évaporation en fonction de la durée d'impulsion pour chacune des trois longueurs d'ondes 193, 248 et 351 nm.	87
3.4	Variation des seuils de d'allumage en fonction de la durée d'impulsion pour chacune des trois longueurs d'ondes 193, 248 et 351 nm.	88
3.5	Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 8 ns à 193 nm	89
3.6	Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 20 ns et 248 nm.	89
3.7	Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 30 ns et 248 nm.	90
3.8	Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 17 ns et 351 nm.	90
3.9	Variation du temps relatif au début du processus d'écrantage en fonction de la densité d'énergie pour les trois différentes longueurs d'onde (193, 248 et 351 nm)	91
3.10	Écrantage plasma en fonction de la densité d'énergie du rayonnement.	93
3.11	Écrantage plasma en fonction de la densité de puissance du rayonnement pour une densité d'énergie incidente de $4\text{J}/\text{cm}^2$	93
3.12	Profondeur ablatée pour une impulsion de 8 ns et 193 nm.	94
3.13	Profondeur ablatée pour une impulsion de 21 ns et 248 nm.	95
3.14	Profondeur ablatée pour une impulsion de 30 ns et 248 nm.	95
3.15	Profondeur ablatée pour une impulsion de 17 ns et 351 nm	96
3.16	Variation des temps du début et de la fin du processus d'ablation en fonction de la densité d'énergie du rayonnement.	98
3.17	Comparaison entre le temps du début et de la fin du processus d'ablation et le temps relatif au début du processus d'écrantage.	98
3.18	Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour une impulsion de 193 nm (8 ns).	100
3.19	Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour impulsion de 248 nm (20 ns).	101
3.20	Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour une impulsion de 248 nm (30 ns).	101
3.21	Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour une impulsion de 351 nm (17 ns).	102
3.22	Variation du temps d'équilibre en fonction de la densité d'énergie.	102
3.23	Température des électrons et des espèces lourdes dans la plume pour des impulsions de 193 nm (8 ns) et 351 nm (17 ns), à $3\text{ J}/\text{cm}^2$	103
3.24	Température électronique et des espèces lourdes dans la plume pour des impulsions de 193 nm (8 ns) et 351 nm (17 ns), pour $4\text{ J}/\text{cm}^2$ à 14 ns.	103
3.25	Pression de la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.	106
3.26	Vitesse de la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.	106
3.27	Densité des espèces excitées dans la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.	107
3.28	Densité des espèces neutres dans la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.	107
3.29	Densité des espèces une fois ionisées pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.	108
3.30	Densité du gaz environnant pour une impulsion de de 193 nm (8 ns) à différents instants.	108
3.31	Températures des électrons et des espèces lourdes au seuil d'allumage plasma à la première maille du domaine gazeux	110

3.32	Profondeurs ablatées pour des densités d'énergies de 2 and 3 J/cm ²	111
3.33	Effet de l'écrantage plasma pour des densités d'énergies de 2 and 3 J/cm ² .	111
3.34	Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à un temps $t = 9$ ns .	112
3.35	Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à un temps $t = 12$ ns	112
3.36	Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 2 J/cm ² à un temps $t = 9$ ns .	113
3.37	Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 2 J/cm ² à un temps $t = 12$ ns	113
3.38	Variation spatiale de la vitesse d'expansion de la plume à $t = 9$ ns pour une densité d'énergie de 3 J/cm ²	115
3.39	Variation spatiale de la vitesse d'expansion de la plume à $t = 12$ ns pour une densité d'énergie de 3 J/cm ²	115
3.40	Variation spatiale de la vitesse d'expansion de la plume à $t = 9$ ns pour une densité d'énergie de 2 J/cm ²	116
3.41	Variation spatiale de la vitesse d'expansion de la plume à $t = 12$ ns pour une densité d'énergie de 2 J/cm ²	116
3.42	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à $t = 9$ ns	118
3.43	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à $t = 9$ ns	119
3.44	Zoom sur la densité des espèces excités dans les deux cas (avec et sans Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à $t = 9$ ns	119
3.45	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à $t = 12$ ns	120
3.46	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² laser fluence at $t = 12$ ns	121
3.47	Zoom sur la densité des espèces excitées dans les deux cas (avec et sans la présence du Cu ²⁺) pour une densité d'énergie de 3 J/cm ² à $t = 12$ ns	121
3.48	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 2 J/cm ² à $t = 9$ ns	122
3.49	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 2 J/cm ² à $t = 9$ ns	123
3.50	Zoom sur la variation de la densité des espèces une fois ionisées présentes dans le plasma contenant du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 2 J/cm ² à $t = 9$ ns	123
3.51	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu ²⁺ pour une densité d'énergie de 2 J/cm ² à $t = 12$ ns	124

3.52	Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$.	125
3.53	Zoom sur la variation de la densité des espèces excitées présentes dans le plasma contenant du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$	125
3.54	Variation spatiale du taux d'ionisation pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 pour les deux cas à $t = 9$ et 12 ns	127
3.55	Variation spatiale du taux d'ionisation pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 pour les deux cas à $t = 9$ et 12 ns	127
3.56	Zoom sur le taux d'ionisation près du front de choc pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$, avec et sans la prise en compte des espèces doublement ionisées.	128
3.57	Zoom sur la température des espèces lourdes près du front de choc pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$, avec et sans la prise en compte de la présence des espèces doublement ionisées.	128
3.58	Variation spatiale de la densité du gaz ambiant pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9$ et 12 ns	129
3.59	Schéma représentatif des différentes réactions prises en compte dans notre modèle à cinq espèces.	132
3.60	Températures des électrons et des particules lourdes au seuil d'allumage du plasma pour trois longueurs d'ondes 193, 248 et 351 nm à la première cellule du domaine gazeux. T_{eg} et T_g représentent la température électronique et la température des particules lourdes respectivement	133
3.61	Variation de l'effet de l'écrantage plasma pour une impulsion laser de durée de 8 ns et quatre densités d'énergie 1, 2, 2.5 et 3 J/cm^2	135
3.62	Comparaison entre l'effet du plasma shielding de trois longueurs d'ondes 193, 248 et 351 nm pour une densité d'énergie de 2.5 J/cm^2	135
3.63	Variation du taux d'écrantage plasma en fonction de la densité d'énergie pour un rayonnement de 193 nm et une durée d'impulsion de 8 ns	136
3.64	Variation temporelle de la profondeur ablatée par une impulsion de 193 nm (8 ns).	137
3.65	Variation temporelle de la profondeur d'ablation par une impulsion 248 nm (8 ns).	138
3.66	Comparaison entre la température des électrons et celles des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour des rayonnement de longueurs d'ondes de 193 et 351 nm et une densité d'énergie de 2.5 J/cm^2 , T_g et T_{eg} représentent les températures des particules lourdes et des électrons respectivement.	139
3.67	Variation spatiale du déséquilibre électronique dans la plume pour des impulsions de durées de 8 ns (193 nm) et 17 ns (351 nm) et une densité d'énergie de 2.5 J/cm^2 à 14 ns. T_g et T_{eg} représentent les températures des particules lourdes et des électrons respectivement.	140
3.68	Variation spatiale de la pression de la plume créée par une impulsion de durée de 8 ns et une longueur d'onde de 193 nm pour quatre densités d'énergie différentes.	141
3.69	Variation spatiale de la vitesse de la plume créée par une impulsion de durée de 8 ns et une longueur d'onde de 193 ns pour quatre densités d'énergie différentes.	142

3.70	Variation spatiale de la densité des espèces neutres (Ti), excitées (Ti*) et une fois ionisées ainsi que celle du gaz ambiant (He) pour une impulsion de 8 ns de durée et une longueur d'onde de 193 ns pour une densités d'énergie de 2 J/cm ²	142
3.71	seuils de fusion d'évaporation et d'allumage en fonction de la longueur d'onde pour le cuivre et le titane.	145

Liste des tableaux

1	Exemple des laser pulsés les plus largement utilisés [6]	20
2.1	Résumé des principaux termes de notre modèle et de leurs unités respectives	78
3.1	Propriétés du cuivre utilisées dans nos simulations.	81
3.2	Profondeur de pénétration et longueur de diffusion de la chaleur dans le cuivre sous nos conditions de simulation.	81
3.3	Condition expérimentales et théoriques de Clarke et al [7] et Dyer [8] . . .	84
3.4	Comparaison de nos seuil d'allumage plasma avec des seuils expérimentaux et théoriques déterminés sous les mêmes conditions pour des cibles en cuivre, en supposant l'interaction avoir lieu dans le vide [7, 8], F_{exp} , F_{theo} , F_{num} représentent les seuils expérimentaux, théoriques et numériques respectivement	85
3.5	Effet de la pression atmosphérique sur le seuil d'allumage plasma	86
3.6	Seuils de fusion et d'évaporation pour une cible en cuivre	87
3.7	Taux d'écrantage plasma en fonction de la longueur d'onde, la durée de l'impulsion et des densités d'énergie	92
3.8	Profondeurs ablatée pour chacune des trois longueurs d'ondes et des durées d'impulsions qui leur correspondent 193 nm (8 ns), 248 (30 ns) and 351 nm (17 ns) pour différentes densités d'énergies, t_1 et t_2 sont les temps correspondants au début et à la fin du processus d'ablation respectivement.	97
3.9	Températures maximales des espèces lourdes et des électrons à la première maille du domaine gazeux, pour chacune des longueurs d'ondes et durées d'impulsions suivantes 193 nm (8 ns), 248 (21, 30 ns) and 351 nm (17 ns), T_g an T_{eg} sont la température des espèces lourdes et des électrons respectivement.	104
3.10	Récapitulatif des taux de variation du nombre de Mach pour les différents cas étudiés	117
3.11	Valeurs maximales des diverses espèces présentes dans la plume.	126
3.12	Propriétés du titane utilisées dans nos simulations.	130
3.13	Profondeur de pénétration et longueur de diffusion de la chaleur dans le titane sous nos conditions de simulation.	131
3.14	Comparaison des seuils d'allumage plasma calculés par notre modèle avec des seuils expérimentaux en supposant que l'interaction à lieu sous vide. [7, 8] λ , τ , Exp, Théo, Num sont la longueur d'onde du rayonnement, la durée de l'impulsion, les seuils expérimentaux, les seuils théoriques et nos seuils numériques respectivement	133

3.15	Seuils de fusion et évaporation d'une cible en titane	134
3.16	Comparaison entre les seuils de fusion et d'évaporation du cuivre et du titane, λ et τ étant la longueur d'onde et la durée de l'impulsion.	144
3.17	Comparaison entre les seuils d'allumage plasma du cuivre et du titane. . .	144
3.18	Exemples de comparaison entre les profondeurs d'ablation du cuivre et du titane calculées sous les mêmes conditions.	145

Liste des symboles

α_0	Coefficient d'absorption du matériau
α_{e-i}	Coefficient de Bremsstrahlung inverse électron-ion.
α_{e-n}	Coefficient de Bremsstrahlung inverse électron-neutre.
χ	Diffusivité thermique
Δh	La chaleur latente de vaporisation
Δt_{evap}	le temps d'évaporation d'une maille
Δx	La taille d'une maille
\dot{m}	Le débit de la masse ablatée
κ	Conductivité thermique
Λ	Nombre d'électrons dans la sphère de Debye.
\mathcal{M}_e	La masse molaire des électrons
\mathcal{M}_i	La masse molaire de l'espèce i
\mathcal{N}	Nombre d'Avogadro
ν	Fréquence du rayonnement
ω_i	Le terme source massique de l'espèce i
ω_{E_e}	Le terme source de l'énergie électronique
ω_E	Le terme source de l'énergie des espèces lourdes
\Re	La constante des gaz parfaits
ρ	La densité du mélange
ρ_i	Densité partielle de l'espèce i
$\rho_v ap$	Densité de la vapeur
σ_{ph}	Section efficace de photoionisation.
τ	Temps de relaxation des électrons.
τ_p	Durée de l'impulsion
ζ	Temps correspondant à une intensité maximale du rayonnement

E	L'énergie totale des espèces lourdes
E_e	L'énergie électronique
P	Pression totale du mélange gazeux
P_0	La pression atmosphérique
P_e	Pression totale des électrons
P_l	Pression totale des espèces lourdes
P_s	La pression du gaz au dessus de la surface du matériau
u	Vitesse de la plume
C_{ES}	Terme de correction d'émission stimulée
E^*	Énergie d'excitation
E^+	Énergie d'ionisation
$E_n ; E_m$	Énergie des niveaux n et m
$E_n ; E_m$	Énergie des niveaux n et m
E_{IB}	Taux d'énergie absorbée par inverse Bremsstrahlung
e^{rec}	Énergie gagnée par les électrons durant la recombinaison à trois corps.
E_{ech}	Énergie d'échange entre les électrons et les particules lourdes.
E_{imp}	Énergie d'excitation par impacte électronique
E_{ioni}	Énergie d'ionisation par impacte électronique
$g_n ; g_m$	Poids statistique des niveaux n et m
H	Enthalpie
h	Constante de Planck
$I_0(t)$	Profil temporel du rayonnement incident
I_H	Potentiel d'ionisation d'un atome d'hydrogène
$I(x,t)$	Intensité du rayonnement transmise transmise à une distance x dans la cible au temps t
k_b	Constante de Boltzmann
$K_{e-i} ; K_{i-e}$	Taux d'ionisation et de recombinaison à trois corps par impacte électronique
$K_{f-e} ; K_{e-f}$	Taux d'excitation et désexcitation par impacte électronique
m_e	Masse des électrons
R	Réfectivité du matériau
S_q	Terme source du chauffage de la cible par laser
T	Température
t	temps

T_0	Température d'ébullition à pression atmosphérique
T_b	Température d'ébullition
T_e	Température électronique
x	Position (distance)
x_e	Taux des électrons à l'équilibre
x_f	distance maximale dans le matériau affectée par les effets thermiques
$x_i ; x_j$	Taux des espèces i et j fois ionisées à l'équilibre
$x_n ; x_m$	Taux de population des niveaux n et m à l'équilibre

Remerciements

Avant toutes choses, je tiens à remercier toutes personnes ayant contribué de près ou de loin pour à la réalisation de ce travail.

Plus particulièrement et du plus profond de mon cœur, je tiens à exprimer mes sincères remerciements à M. Abdelhamid SARI, pour m'avoir initié à la recherche dans le domaine de l'interaction laser-matière, pour tous les efforts qu'il a déployé pour me former durant mon magistère et pour m'avoir proposé ce sujet de thèse. Je lui suis à jamais reconnaissante.

Je tiens à remercier vivement M. Bachir LIANI, directeur du laboratoire de physique théorique (LPT) de l'université de Tlemcen, qui m'a encadré depuis mon DES jusqu'à mon doctorat et dont les conseils, les directives et l'incontestable soutien, m'ont permis d'arriver là où j'en suis aujourd'hui.

Une infinité de remerciements sont adressés à mon co-directeur de thèse, M. Jean-Denis PARISSE, qui m'a ouvert les portes de l'IUSTI, qui a cru en moi et a su me pousser au delà de mes limites, et sans qui le présent travail n'aurait jamais pu voir le jour.

Un grand merci à M. Lounès TADRIST directeur de l'IUSTI d'avoir accepté de m'accueillir dans son laboratoire. Je le remercie également pour sa disponibilité, son écoute et ses conseils judicieux.

Je remercie M. Mokhtar Kamel INAL, qui a été mon enseignant durant deux années de mon cursus universitaire, qui m'a beaucoup appris et que j'ai toujours considéré comme un modèle. Je suis très honorée qu'il ait accepté de présider le jury de ma thèse.

Je remercie Mme. Fouzia OUELD KEDDOUR pour avoir accepté de juger mon travail. Ses encouragements alors qu'elle était mon prof de mécanique quantique sont restés gravés dans ma mémoire et pour ça aussi je tiens sincèrement à la remercier.

Je voudrai grandement remercier Mme. Viviana LAGO d'avoir accepté de faire partie du jury de ma thèse. Je lui suis sincèrement reconnaissante pour le temps qu'elle m'a consacré lors de nos échanges, pour ses remarques et ses suggestions qui ont fortement contribué à la mise en valeur de mon manuscrit.

Un grand merci à M. Tewfik BABA-HAMED

Je remercie Ibtissem DIDI (ma Bissa) pour tout ce qu'elle représente pour moi, pour

les longues heures que nous passons à se pauser les plus étranges des questions existentielles et à refaire le monde. Je la remercie d'avoir été là dans une des périodes les plus difficiles de ma vie, d'avoir compris ma peine, pleurer pour moi, séché mes larmes, écouté sans jamais se plaindre, et puis de m'avoir conseillé et aider à me relever, et d'être toujours là pour moi. Je la remercie également pour les purs moments de bonheur, les fous rire et la complicité que nous partageons...

Je remercie sincèrement mon amie Chafea BOUCHENNA (chouchou) pour son soutien, sa sincérité et ses précieux conseils. Elle m'a aidé à traverser pas mal de périodes difficiles avec une compassion inouïe. Elle a toujours su trouver les mots pour me reconforter et me dire la vérité sans jamais me blesser. Je lui suis tellement reconnaissante de m'avoir appris tant de chose sur la vie, d'avoir veillé sur moi et m'avoir protégé...

Je remercie du fond de mon coeur Meberika BENYAMINE, pour sa douceur sa gentillesse et son affection maternelle avec lesquelles elle nous a entouré moi et Chafea. C'est une femme exceptionnelle, la connaître est un immense privilège.

D'immenses remerciements tout particuliers sont adressés à mon ami Lionel ISNARD, pour son écoute, sa disponibilité, et ses précieux encouragements.

Un grand merci à Amel BOUTASTA d'être aussi serviable et à l'écoute. Je la remercie pour son soutien, ses encouragements et ses conseils judicieux . Je la remercie également pour nos agréables escapades qui furent de purs moments de plaisir.

Je remercie Meriem KEBBAB pour son écoute sa gentillesse et son soutien moral.

Je ne voudrais pas oublier de remercier grandement toutes les personnes qui ne font plus concrètement partie de ma vie, elles m'ont donné autant de raison de réussir par leur présence à mes côté que que lorsque j'ai dû me séparer d'elles, je leur suis profondément et sincèrement reconnaissante pour tout...

Dédicaces

Aux prunelles de mes yeux

Maman, Papa

Je vous dois tout...Je vous aime...

A mes chères tantes et mon petit Zizou. Je vous aime...

Introduction Générale

Ce travail de thèse qui est inscrit dans le cadre d'une collaboration entre le Laboratoire de Physique Théorique (LPT) de l'université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen et l'Institut Universitaire des Systèmes Thermiques Industriels (IUSTI) de l'université d'Aix-Marseille, est une continuation de ce que nous avons commencé lors de notre thèse de magistère soutenue en Juin 2012. Il a pour but de proposer une contribution à la modélisation de l'interaction laser-matière et des plasmas induits par laser. Pour ce faire nous présentons une approche complète décrivant les divers aspects de l'interaction des impulsions lasers avec les solides et plus particulièrement les métaux.

Avant d'entrer dans le vif du sujet, nous présentons d'abord dans la présente introduction, des notions de base nécessaires à la compréhension de la physique de l'interaction laser-matière, ainsi que l'intérêt de la modélisation au vu des divers applications qui en découle. Nous revenons enfin vers la description de notre propre travail et l'organisation de la suite du manuscrit.

Rayonnement laser

Laser : Acronyme pour Light amplification by stimulated emission radiation (Amplification de la lumière par émission stimulée de rayonnement). Les lasers sont des dispositifs basés sur l'amplification cohérente d'une onde lumineuse survenant lors de la traversée d'un milieu actif par émission stimulée (figure(1)).

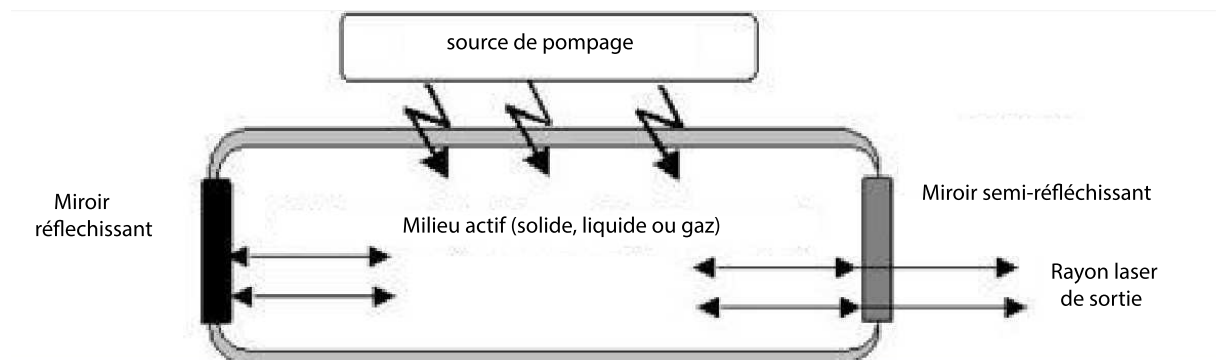


FIGURE 1 – Principe de fonctionnement d'un laser

Si le taux des espèces (atomes ou molécules) du milieu qui se trouvent dans un état excité est supérieur au taux de ces espèces à l'équilibre thermodynamique le phénomène d'émission stimulée peut devenir dominant on parle ainsi d'inversement de population. L'onde s'enrichit alors en photons ayant tous des propriétés identiques : même fréquence, même direction, même polarisation et même phase. Il en résulte une lumière présentant une excellente cohérence temporelle [1].

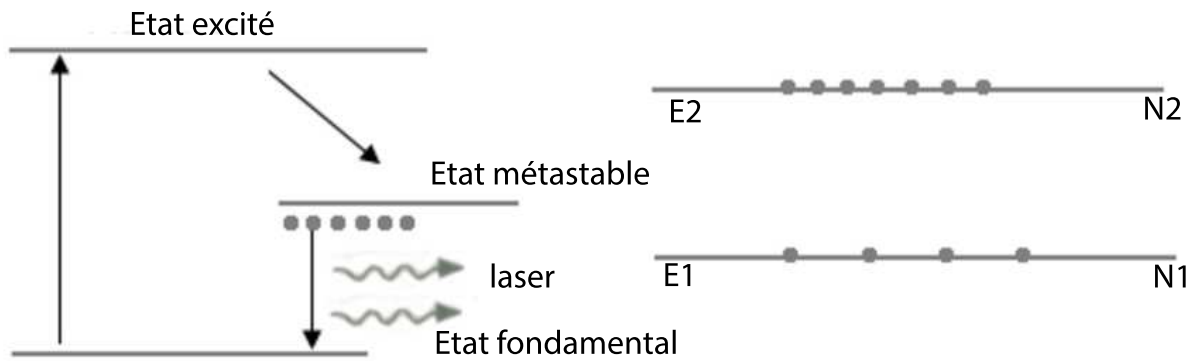


FIGURE 2 – Inversement de population et émission d'un rayonnement laser.

Depuis son invention vers la fin des années cinquante, le laser a été très largement développé de sorte qu'il puisse, en plus de ses propriétés fondamentales à savoir, la cohérence ; la monochromaticité et la directionnalité, couvrir un large domaine du spectre électromagnétique, et délivrer de très fortes puissances. C'est précisément ce développement associé aux propriétés des lasers, qui est à l'origine de ses différents domaines d'application, quelques une de ces applications sont assez anciennes, presque aussi ancienne que le laser lui même, alors que d'autres beaucoup plus récentes [1].

Un laser peut être continu ou pulsé, selon que sa puissance soit constante ou bien qu'elle prenne la forme d'impulsions pendant un certain laps de temps. Les impulsions lasers peuvent être classées en deux catégories [2]

- Impulsions courtes : milli, micro et nanoseconde
- Impulsions ultra-courtes : pico femto et attosecondes

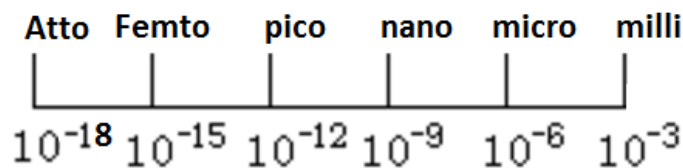


FIGURE 3 – Échelle temporelle des impulsions laser

Les lasers pulsés sont capables de délivrer de très hautes puissances, vu que leur énergie est émise sur de courts intervalles de temps (milli, micro, nano, pico, femto ou encore attosecondes), de plus cette puissance peut être focalisée sur des spots de quelques millimètres [3] voir quelques micromètres de diamètre [4].

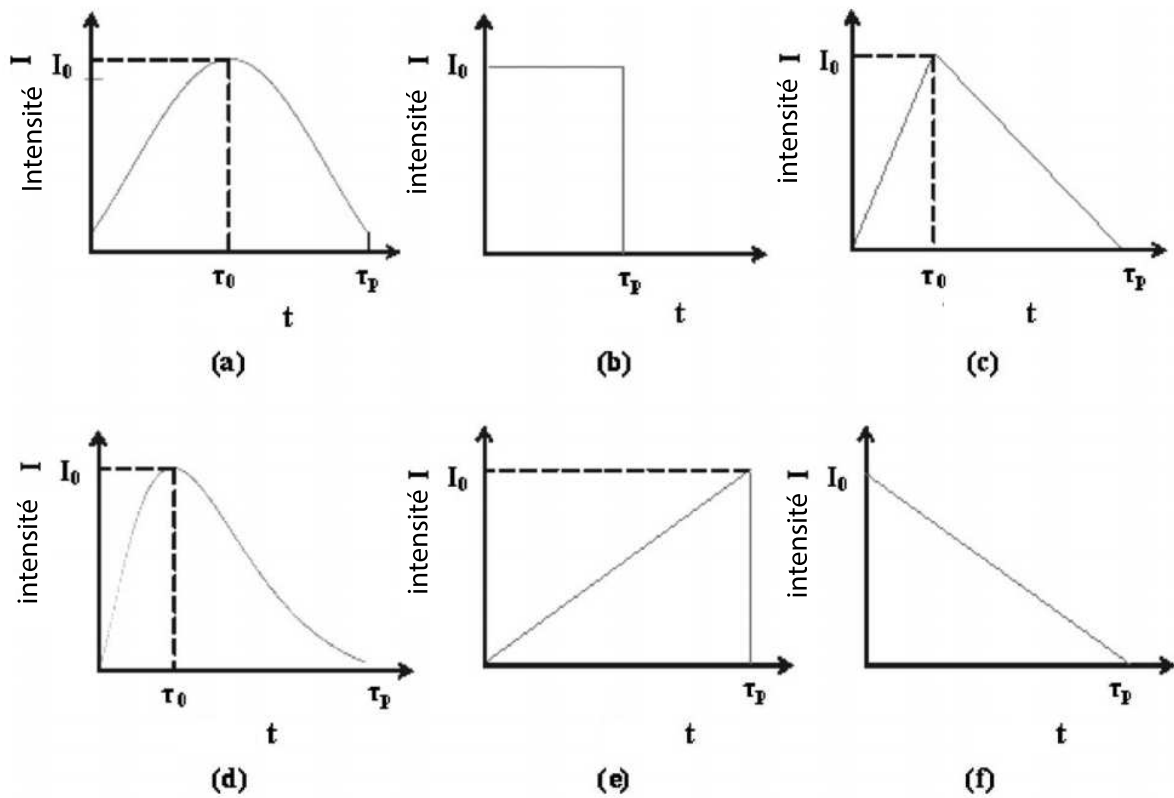


FIGURE 4 – Exemple d’impulsions laser [5] (a) impulsion Gaussienne, (b) impulsion carrée, (c) profil triangulaire, (d) impulsion régulière, (e) impulsion croissante, (f) impulsion décroissante

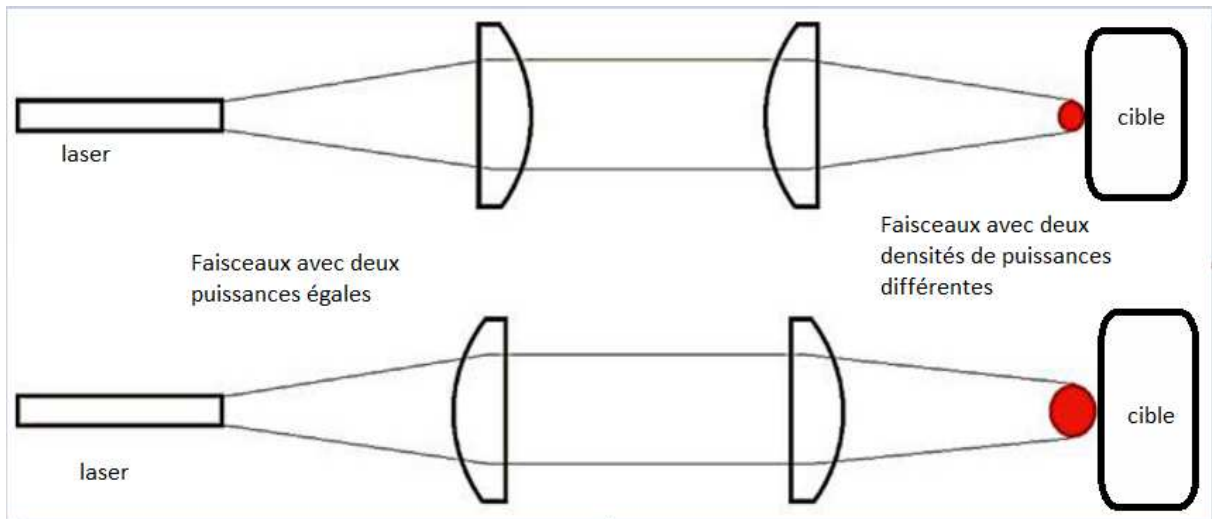


FIGURE 5 – Focalisation d’une impulsion laser

type de laser	longueur d'onde	durée du pulse	énergie/pulse
CO_2	10.6 μm	10 – 100 μs	0.1 – 5 J
CO_2	10.6 μm	200 ns	0.1 J
Er :YAG	2.94 μm	170 ns	25 mJ
Nd :YAG	1.06 μm	5 – 10 ns	1 – 3 J
Ruby	694.3 nm	0.2 – 10 ms	1 – 500 J
Ruby	694.3 nm	5 – 30 ns	1 – 50 J
Ruby	694.3 nm	10 ps	0.01 – 0.5 J
Nd :YAG	532.0 nm	4 – 8 ns	0.5 – 2 J
Nd :YAG	354.7 nm	4 – 8 ns	0.2 – 0.7 J
Laser N_2	337.1 nm	3 – 6 ns	0.1 – 0.6 mJ
XeCl Excimer	308 nm	20 – 30 ns	0.5 – 1 J
Nd :YAG	266 nm	3 – 5 ns	0.1 – 0.3 J
KrF Excimer	248 nm	25 – 35 ns	0.5 – 1 J
ArF Excimer	193 nm	8 – 15 ns	8 – 15 mJ

Tableau 1 – Exemple des laser pulsés les plus largement utilisés [6]

État plasma

Dès que les lasers ont été développés les scientifiques ont commencé à étudier leur utilisation potentielle dans la production de plasmas suite à leur interaction avec la matière. Une première observation était qu'un laser pulsé pouvait produire un petit plasma dans l'air.

De même que les états fondamentaux (solide, liquide et gazeux) sous lesquels se trouve la matière de notre environnement proche, le plasma est considéré comme étant le quatrième état de la matière. À l'état solide, les atomes sont fermement emprisonnés dans un réseau rigide. Si l'on chauffe une substance solide, les particules qui la constituent vont s'agiter de plus en plus. Au fur et à mesure que la température augmente la substance en question passe à l'état liquide puis gazeux. L'augmentation de la température au-delà de celle qui a permis le passage de la substance à l'état gazeux va faire que les molécules du gaz vont progressivement se briser et former un mélange d'atomes libres : le gaz moléculaire devient gaz d'atomes libres. À des températures plus élevées encore l'agitation thermique des atomes est tellement grande que de violentes collisions se produisent, les atomes peuvent alors être ionisés, ainsi le milieu sera constitué d'un mélange d'ions et d'électrons et d'espèces neutres, nommé plasma.

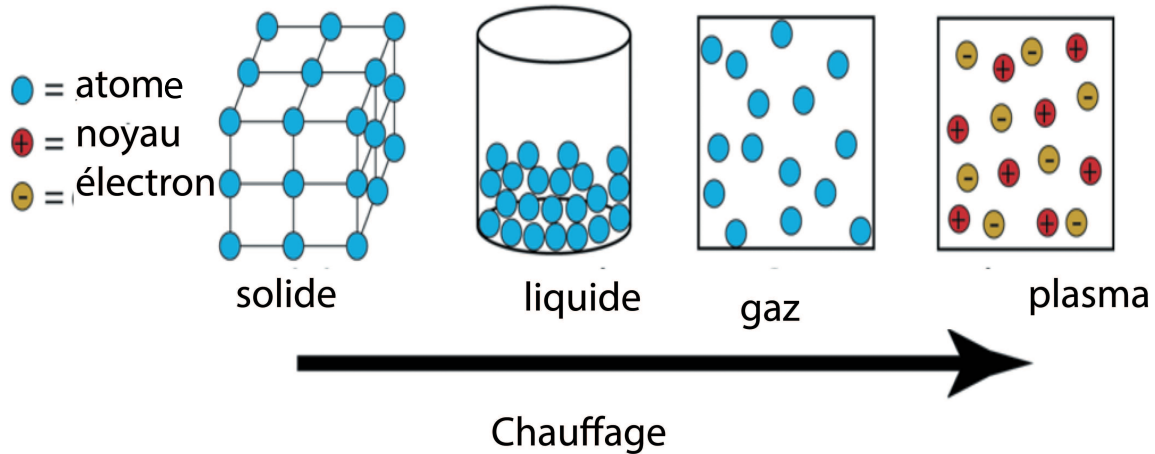


FIGURE 6 – États de la matière

On peut classer les plasmas selon leurs températures en deux grandes catégories :

1. Les plasmas froids qui peuvent à leur tour être classés en deux sous catégories :
 - les plasmas thermiques : également dits plasmas en équilibre thermique car les électrons, les ions et les neutres ont une température voisine de 10^4 à $3 \cdot 10^4$ K. Le milieu est partiellement ionisé.
 - les plasmas froids hors équilibre thermique : Les électrons ont une température supérieure à 10^4 K. Les particules lourdes neutres ou ioniques ont la même température.
2. Les plasmas chauds : un plasma est dit chaud si la température des électrons et des ions est supérieure à 10 millions de Kelvin. La densité électronique est supérieure à $10^{22} e/cm^3$. Ces plasmas sont en équilibre thermodynamique. A ces températures, le plasma est totalement ionisé, toutes les particules composant le plasma portent une charge. Contrairement aux plasmas froids où seuls les électrons ont assez d'énergie pour effectuer des réactions les ions des plasmas chauds sont suffisamment énergétiques pour influencer sur le comportement de celui-ci. Les plasmas chauds existent dans la nature, dans les étoiles : telles que le soleil, et sont produites sur terre dans les réacteurs nucléaires. Les collisions ions-ions sont celles qui caractérisent le plus les plasmas chauds et leurs applications.

Un plasma est soumis à deux tendances, une tendance au désordre due à l'agitation thermique et une tendance à l'organisation due à l'aspect collectif que peut manifester l'interaction Coulombienne. Ces deux tendances permettent au plasma de rester sous forme ionisée, tout en restant globalement neutre.

De nombreux processus sont susceptibles d'avoir lieu au sein du plasma en raison des diverses interactions entre les différentes espèces qui le composent notamment :

- L'émission du rayonnement de freinage (Bremsstrahlung) : ce processus correspond à l'émission d'un photon lorsqu'un électron libre du plasma est dévié suite à une collision avec un atome ou un ion du plasma.

- La recombinaison radiative : qui consiste en l'émission d'un rayonnement lors de la capture d'un électron par un ion
- L'émission spontanée : c'est le rayonnement émis lors de la transition d'un électron entre deux états dans un atome neutre ou un ion.
- L'ionisation : qui est l'extraction d'un ou plusieurs électrons à un atome ou une molécule. Dans les plasmas l'ionisation des atomes et ions se produit essentiellement par collisions entre électrons et atomes ou molécules. La photo ionisation intervient lorsque le plasma considéré est exposé à une source externe de rayonnement.
- absorption du rayonnement par Bremsstrahlung (rayonnement de freinage) inverse : qui est une collision inélastique entre un photon et un électron dans le champ d'un ion, dans cette réaction le photon disparaît et son énergie est essentiellement transférée à l'électron.

Ablation laser

L'interaction d'une impulsion laser avec une cible solide peut être essentiellement décrite par les étapes suivantes [7] :

1. Absorption de l'énergie du rayonnement par le matériau et augmentation de sa température.
2. La fusion et/ou évaporation d'une certaine quantité de matière de la cible
3. Interaction du rayonnement laser avec la matière évaporée, qui grâce à cette absorption peut devenir ionisée et passer à l'état plasma
4. L'expansion du panache plasma dans le milieu environnant

L'ensemble de ses étapes peut être résumé par la formation d'un plasma à partir de l'extraction d'une certaine quantité de matière de la cible irradiée par l'impulsion laser est communément appelé "ablation laser".

L'ablation laser en régime impulsif est un phénomène assez complexe dont les mécanismes ne sont jusqu'à présent pas totalement compris et maîtrisés [8,9]. Cette complexité est due au fait que les processus qui apparaissent durant l'interaction varient selon :

- les caractéristiques du rayonnement laser
- la nature de la cible
- et le milieu environnant

L'interaction du rayonnement laser avec un échantillon est considérablement modifiée par la présence de la matière émise de la surface. La matière éjectée exerce une haute pression sur la surface et modifie ses caractéristiques de vaporisation. Puisque la densité du flux du laser est très élevée, la matière éjectée peut être chauffée d'avantage par absorption du rayonnement incident.

Le plasma absorbant empêche la lumière d'atteindre la surface de l'échantillon. A la fin du pulse la matière éjectée devient tellement chaude qu'elle commence à émettre du rayonnement thermique. Une partie de cette radiation peut atteindre la surface de la cible provoquant d'avantage de vaporisation.

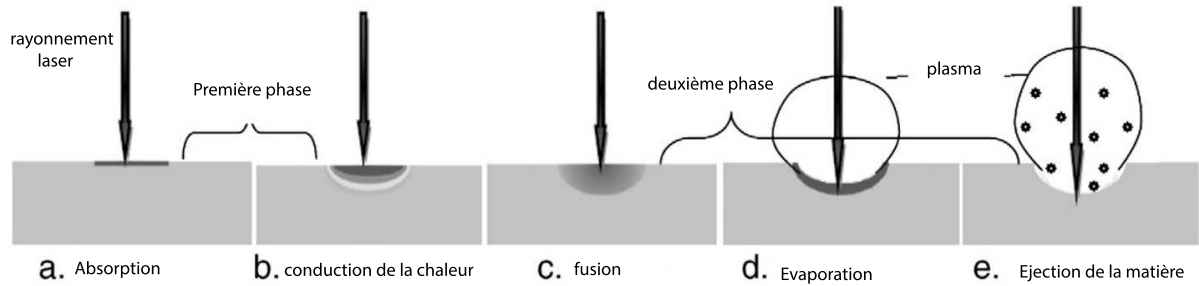


FIGURE 7 – Étapes de l'interaction laser-solide [10]

Les courtes impulsions, de très hautes puissances ne produisent pas beaucoup de vaporisation en revanche elles arrachent une petite quantité de matière de la surface, alors que les plus longues de moindre puissance produisent des trous étroits et profonds dans la cible.

Le plasma induit par des impulsions ultra-courtes n'est pas soumis à un chauffage additionnel par absorption du rayonnement laser comme c'est le cas des plasmas induits par des impulsions courtes. Ainsi le volume du plasma produit dans le premier cas est plus petit que dans le deuxième. En raison du chauffage additionnel du plasma produit par des impulsions courtes, celui-ci s'étend en direction du rayonnement incident.

Interêt de la modélisation

Puisque les applications des lasers se basent essentiellement sur leur interaction avec la matière, il est intéressant de développer des modèles physiques capables de décrire le comportement de la matière vis à vis des rayonnements lasers.

La recherche dans ce domaine est toujours d'actualité. Alors que beaucoup de modèles ont été développés dans ce sens, on ne sait toujours pas décrire exactement ce qui se passe lors de l'interaction laser-matière de manière à prédire ce qui en résulte et que ceci corresponde aux observations expérimentales.

La modélisation de l'interaction des impulsions laser avec la matière suscite ce très grand intérêt car la maîtrise et la compréhension de son aspect fondamental permettrait d'optimiser les paramètres de l'interaction pour un grand nombre d'applications technologiques telles que :

- La PLD (Pulsed Laser Deposition) une technique de dépôt de couches minces par ablation laser. Un faisceau laser est focalisé sur une cible placée dans une enceinte ultra-vide. Si les conditions de l'interaction le permettent une certaine quantité de matière est extraite de la cible et transformée en un "panache plasma". Grâce à son expansion ce panache contenant des espèces provenant de la cible va les transporter vers un substrat placé vis-à-vis de la cible

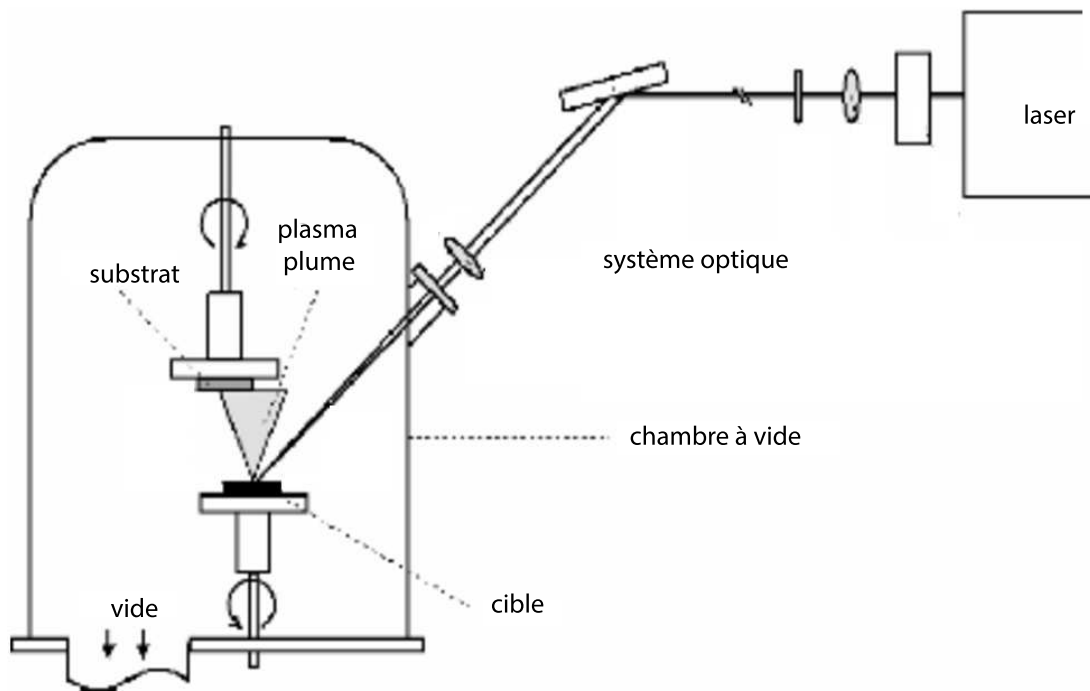


FIGURE 8 – Principe de la technique PLD [11]

- La LIBS (Laser induced breakdown spectroscopy) : une technique de microanalyse basée sur l'étude par spectroscopie d'émission d'un panache plasma créé par l'ablation d'une cible. Cette technique emploie un pulse laser à basse énergie (typiquement quelques dizaines jusqu'à quelques centaine de mJ) et une lentille de focalisation pour générer un plasma à partir de la vaporisation d'une certaine quantité de l'échantillon. Une portion de la lumière émise par le plasma est collectée et un spectromètre disperse la lumière émise par les espèces atomiques et ioniques excitées dans le plasma, un détecteur enregistre les signaux émis et les résultats sont ensuite affichés sur un micro-ordinateur grâce à un système électronique qui les digitalise.

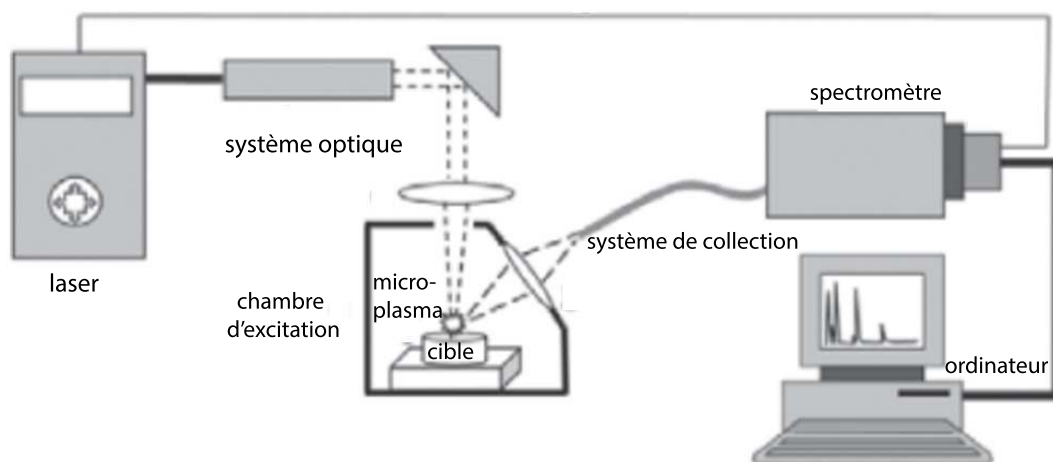


FIGURE 9 – Principe de la technique LIBS [12]

- La LA-ICP-MS : utilise le faisceau laser pour ablater de la matière en surface. La

matière ablatée est ensuite introduite dans une torche à plasma et analysée par spectrométrie de masse.

- La soudure par impulsion laser
- Le nano et micro usinage au laser
- Le traitement de surface par impulsions laser

Alors que les modèles développés pour des applications telles que la soudure, le traitement de surface ou encore l'usinage par laser, s'intéressent exclusivement aux mécanismes de l'interaction de l'impulsion avec la cible (absorption du rayonnement, changement de phase, ablation), les modèles dédiés à des applications telles que la PLD visent à décrire non seulement ce qui se passe au niveau de la cible mais également les différents processus qui régissent la dynamique de la vapeur formée au dessus de la surface de la cible ainsi que la formation du plasma et son expansion dans le milieu environnant. Pour des applications telles que la LIBS ou la LA-ICP-MS (dont le but final est l'analyse spectrochimique des échantillons) on cherche à développer des modèles qui permettent d'optimiser la qualité du signal émis par les espèces contenues dans les plasmas induits par laser, pour de meilleures performances analytiques.

Objectif du présent travail

Même si dans le cadre de notre travail de magistère nous avons également étudié les différents aspects de l'interaction, depuis les effets thermiques dans le matériau jusqu'à l'expansion de la vapeur et la formation du plasma, notre étude s'est faite dans le cadre de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local (ETL). Pour des raisons de simplicité cette hypothèse est largement admise [9, 13–19] néanmoins, il existe un bon nombre de travaux qui l'ont remise en question [20–24] mais qui se sont limité à l'étude du plasma avec des modèles 0D et sans se préoccuper de l'intégralité de l'interaction.

L'approche que nous adoptons, permet une étude globale de l'interaction, en couplant un modèle thermique unidimensionnel décrivant les effets thermiques dûs à l'absorption du rayonnement par la cible, avec un modèle hydrodynamique unidimensionnel hors équilibre, décrivant la formation et la dynamique du plasma induit par laser.

Notre modèle a été initialement développé afin de décrire l'interaction des impulsions laser nano et picoseconde avec les semiconducteurs. Il a été appliqué à l'étude de l'ablation laser du silicium cristallin sous les conditions de la PLD [7, 25, 26]. Nous l'avons fait évoluer d'abord pour qu'il puisse décrire l'interaction avec les métaux et ensuite pour qu'il prenne en compte la présence des espèces doublement ionisées dans le plasma induit par laser tout en considérant le déséquilibre entre les électrons et les espèces lourdes constituants le plasma.

Lorsque nous avons entamé ce travail de thèse nous nous sommes équitablement intéressé aux deux régimes, nano et picoseconde, cependant vu l'énormité du travail de modélisation qu'il fallait effectué pour chacun des deux régimes il nous fallait faire un choix. Dans l'état de l'art, nous mettons en évidence la complexité de la modélisation de l'interaction laser-matière en régime picoseconde. Nous nous sommes donc focalisé sur le régime nanoseconde qui en soit n'a pas été une tâche facile mais qui nous a permis de valider notre approche et d'apporter des contributions que nous présentons dans ce manuscrit

et qui se sont soldées par des publications internationales. Se consacrer à la modélisation de l'interaction laser-matière en régime picoseconde pourrait faire l'objet d'un sujet de thèse à part.

Le présent manuscrit est organisé comme suit :

- Le premier chapitre : est consacré à la présentation d'un état de l'art sur la modélisation de l'interaction laser matière en régime court et ultra-court.
- Le deuxième chapitre : est consacré à la présentation de notre modèle et notre outil numérique.
- Le dernier chapitre est enfin consacré à l'application de notre modèle sur l'étude de l'ablation laser du cuivre (Cu) et du titane (Ti) et la présentation et discussion de nos résultats de simulation.
- Nous terminons ce manuscrit par une conclusion générale et des perspectives.
- Quatre annexes présentent les publications internationales effectuées à partir de ces travaux de thèse.

Bibliographie

- [1] A.K. Ait oumeziane. Contribution à la modélisation de l'émission d'un plasma en équilibre type collisionnel-radiatif. Master's thesis, Université Abou Bekr Belkaid Tlemcen, 2012.
- [2] S. Nolte F. von Alvensleben A. Tünnermann B.N. Chichkov, C. Momma. Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids. *Appl. Phys.*, A(63), 1996.
- [3] HP. Ravindra. *Thermal modeling of laser drilling and cutting of engineering materials*. PhD thesis, Graduate College of the Oklahoma State University, 2005.
- [4] I. M. Popescu M. Stafe, C. Negutu. Combined experimental and theoretical investigation of multiple-nanosecond laser ablation of metals. *Journal of optoelectronics and advanced materials*, 8(3) :1180 – 1186, 2006.
- [5] Yaomin Lin ; Frank G.Shi. Minimizing of welding induced alignment distortion in butterfly laser module package, a study of laser pulse shape. *Optical engineering*, 46 :044302, 2007.
- [6] Surya N. Thakur Jagdish P. Singh. *laser induced breakdown spectroscopy*. Elsevier, 2007.
- [7] J.D. Parisse M. Sentis D.E.Zeitoun. Modeling and numerical simulation of laser matter interaction and ablation with 193 nanometer laser for nanosecond pulse. *International Journal of Numerical Methods for Heat and Fluid Flow*, 21 :73 – 94, 2011.
- [8] R.Fang D.Zhang Z.Li F.Yang L.Li X.Tan M.Sun. improved thermal model and its application in uv high -power pulsed laser ablation of metal target. *Elsevier.*, 2008.
- [9] A.Bogaerts Z.Chen R.Gijbels A.Vertes. laser ablation for analytical simpling, what can we learn from modeling? *Acta Part B Atom Spectrosc*, 58 :1867–1893, 2003.
- [10] N.A. Vasantgadkar U.V. Bhandarkar S.S. Joshi. A finite element model to predict the ablation depth in pulsed laser ablation. *Thin solid films*, 519 :1421–1430, 2010.
- [11] Ihsen Ben Mbarek. Elaboration et caractérisation physique des couches minces de tio₂ déposées par pulvérisation cathodique, 2009.

- [12] C. Pasquini J.Cortez L.M.C.Silva and F.B.Gonzago. laser induced breakdown spectroscopy. *J.Braz.Chem.Soc*, 18(3) :463–512, 2007.
- [13] A. Bogaerts Z.Chen D.Bleiner. Laser ablation of copper in different background gasses : comparative study between numerical modeling and experiments. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 21 :384–395, 2006.
- [14]
- [15] Z.Chen A. Bogaerts. Laser ablation of cu and plume expansion into 1 atm ambient gas. *Journal of applied physics*, 97 :063305, 2005.
- [16] A. Bogaerts Z.Chen. Nanosecond laser ablation of cu : modeling of the expansion in the background gas, and comparison with expansion in vacuum. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 19 :1169–1176, 2004.
- [17] A. Bogaerts Z.Chen. Effect of laser parameters on laser ablation and laser induced plasma formation : A numerical modeling investigation. *Spectrochimica Acta Part B*, 60 :1280–1307, 2005.
- [18] S.Mehrabian M.Aghaei S.H. Tavassoli. Effect of background gas pressure and laser pulse intensity on laser induced plasma radiation of copper samples. *Physics of Plasmas*, 17(043301), 2010.
- [19] M.Aghaei S.Mehrabian S.H. Tavassoli. Simulation of nanosecond pulsed laser ablation of copper samples : a focus on laser induced plasma radiation. *Journal of applied physics*, 104(053303), 2008.
- [20] L.D.Pietanza G.Colonna A.De Giacomo M.Capitelli. Kinetic processes for laser induced plasma diagnostic : A collisional-radiative model approach. *Spectrochimica Acta Part B*, 65 :616–626, 2010.
- [21] V.V.Nossov V.I.Mazhukin and I.Sumorov M.G.Nickiforov. Optical breakdown on aluminum vapor induced by ultraviolet laser radiation. *Journal of applied physics*, 93(1), 2003.
- [22] V.I.Mazhukin I.V.Gusev I.Smurov and G.Flamant. Laser-induced breakdown of metal vapor. *Microchemical journal*, 50(1) :413–433, 1994.
- [23] V.I.Mazhukin I.V.Gusev I.Smurov and G.Flamant. The influence of the electron structure of atoms shells on characteristics of optical breakdown in metal vapour. *Applied surface science*, 96(98) :82–88, 1995.
- [24] V.I.Mazhukin V.V. Nossov I.Smurov and G.Flamant. Analysis of nonequilibrium phenomena during interaction of laser radiation with metal vapors. *Surveys on Mathematics for industry*, 10 :45–82, 2001.
- [25] Jean-Denis Parisse. *Modélisation et simulation numérique de l'interaction laser-matière*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille I, 2000.
- [26] H.C.Le D.E.Zeitoun J.D.Parisse M.Sentis W.Marine. Modeling of gas dynamics for a laser generated plasma : Propagation into low pressure gases. *Physical Review E*, 2562(3) :4152–4161, 2009.

Chapitre 1

État de l'art

Sommaire

1.1	Modélisation de l'interaction laser-cible	29
1.1.1	Modèles basés sur l'équilibre	33
1.1.2	Modèles hors équilibre	43
1.2	Modélisation des plasmas induits par laser	44
1.2.1	Modèles basés sur l'équilibre thermique	47
1.2.2	Modèles basés sur le déséquilibre thermique	50
1.3	Conclusion	51
	Bibliographie	52

1.1 Modélisation de l'interaction laser-cible

Lors de l'interaction d'une impulsion laser avec une cible solide, son énergie est d'abord absorbée par les électrons ensuite diffusée au sein du matériau.

Soit l_T , l_{α_a} , w , e la longueur de diffusion de la chaleur dans l'échantillon, la longueur de pénétration du rayonnement dans la cible, le rayon du laser et l'épaisseur du matériau respectivement.

Quand l'épaisseur de diffusion de la chaleur dans l'échantillon est largement plus grande que la longueur de pénétration du rayonnement dans la cible et plus petite que le rayon du laser et l'épaisseur du matériau ($l_{\alpha_a} \ll l_T \ll w, e$) le flux de chaleur latéral due à l'absorption de l'énergie de l'impulsion par le matériau peut être négligé et la diffusion de la chaleur au sein de la cible peut être assimilée à un problème à une seule dimension [1]

l_{α_a} est l'inverse du coefficient d'absorption du matériau, et la profondeur de diffusion de la chaleur qui caractérise la distance sur laquelle la variation de la température se propage dans le matériau durant l'impulsion peut être estimée par [2] :

$$l_T = \sqrt{2\chi t} \quad (1.1)$$

t étant la durée de l'impulsion et χ la diffusivité thermique du matériau qui s'exprime comme suit :

$$\chi = \frac{\kappa}{\rho C_p} \quad (1.2)$$

Avec κ , ρ , C_p la conductivité thermique, la densité massique et la chaleur spécifique à pression constante du matériau.

En pratique, hormis quelques exceptions [3], cette condition est presque tout le temps satisfaite, ce qui fait que les effets thermiques dans les matériaux sont le plus souvent décrits par des modèles à une seule dimension [1, 4–9].

En plus de la dimension du problème de diffusion de la chaleur dans la cible, il est nécessaire de savoir selon les caractéristiques du rayonnement et la nature du matériau si un équilibre thermique peut exister entre les électrons et le réseau. C'est le temps de relaxation électrons-phonons qui permet de répondre à cette question.

Avoir une estimation des temps caractéristiques de relaxation permet, de savoir, en fonction de la durée de l'impulsion si un équilibre thermique entre les électrons et le réseau peut exister durant l'impulsion et ainsi choisir le modèle adéquat qui permet de décrire les effets thermiques induits dans le matériau dus à l'absorption du rayonnement.

Par exemple lors de l'interaction d'une impulsion laser avec un métal, son énergie électromagnétique est absorbée par les électrons libres de la bande de conduction sur une épaisseur de 10 nm [10], par inverse Bremsstrahlung. Cette absorption est suivit d'une relaxation des électrons, diffusion de la chaleur et transfert d'énergie au réseau dû au couplage électron-phonon. [11–13].

Alors que le temps de collisions électrons-électrons τ_e dans les métaux varie entre 10^{-14} et 10^{-12} s (10 fs- 1 ps), le temps de relaxation électrons-phonons τ_{e-ph} est quant à lui beaucoup plus long, ce qui est dû la grande différence de masse entre les électrons et les ions, ce temps qui dépend de la force de couplage électrons-ions varient entre 10^{-12} et 10^{-10} s [10].

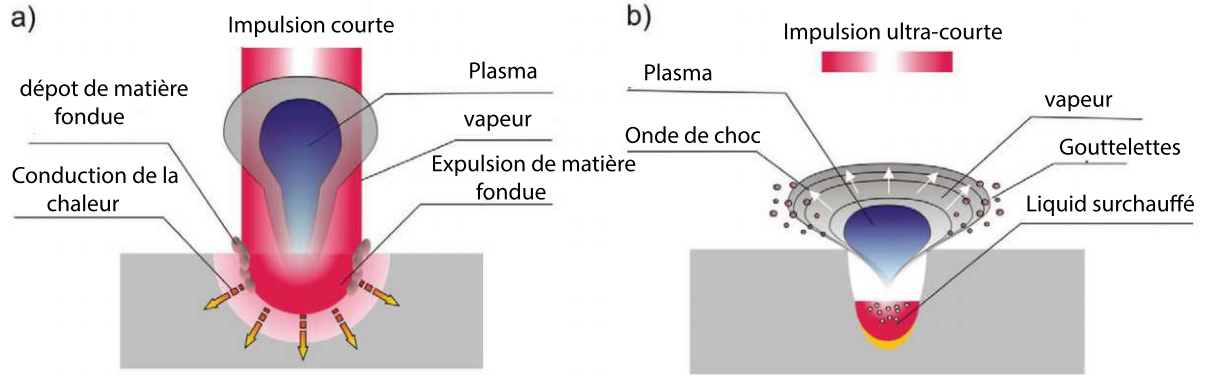


FIGURE 1.1 – Processus d’ablation laser en régime court et ultra court [14].

Il existe une grande différence entre les mécanismes qui gouvernent l’interaction laser-matière en régime court et ultra-court

1. Impulsions courtes "microseconde, nanoseconde"

Les impulsions sont largement plus grandes que les temps caractéristiques de relaxation, ceci implique que le transfert d’énergie entre les électrons et le réseau a largement le temps d’avoir lieu et par conséquent on peut considérer que l’équilibre thermique entre ces deux sous systèmes est toujours établi durant l’impulsion.

Ce qui se traduit par

$$T_e = T_i = T \quad (1.3)$$

T_e et T_i représentent la température électronique et celle des ions respectivement

Dans ce cas la variation de la température au sein de la cible peut être donnée au moyen d’une équation de la chaleur de forme générale :

$$\frac{\partial T(x, t)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[\frac{\kappa}{C_p \rho} \frac{\partial T(x, t)}{\partial x} \right] + S(x, t) \quad (1.4)$$

Avec κ , ρ , C_p , $S(x, t)$: la conductivité thermique, la densité, la chaleur spécifique à pression constante et le terme source.

En régime nanoseconde et pour des densités de puissance de l’ordre de $10^8 - 10^{11} \text{W/cm}^2$ les processus susceptibles d’apparaître durant l’ablation sont : la fusion, la sublimation, la vaporisation et l’ionisation. Si la densité de puissance du laser est suffisamment élevée, l’ablation non thermique est aussi importante et peut coexister avec ces mécanismes thermiques. Pour une impulsion nanoseconde avec des densités de puissances inférieures à 10^8W/cm^2 , le mécanisme dominant est la vaporisation thermique [15], la température de la surface du solide croit et une transition de phase bien définie a lieu, du solide au liquide, du liquide à la vapeur et de la vapeur au plasma. Quand la durée de l’impulsion est dans le régime nanoseconde, la dernière partie de l’énergie laser peut être absorbée par le plasma induit, ce processus est communément appelé plasma shielding ou écrantage plasma.

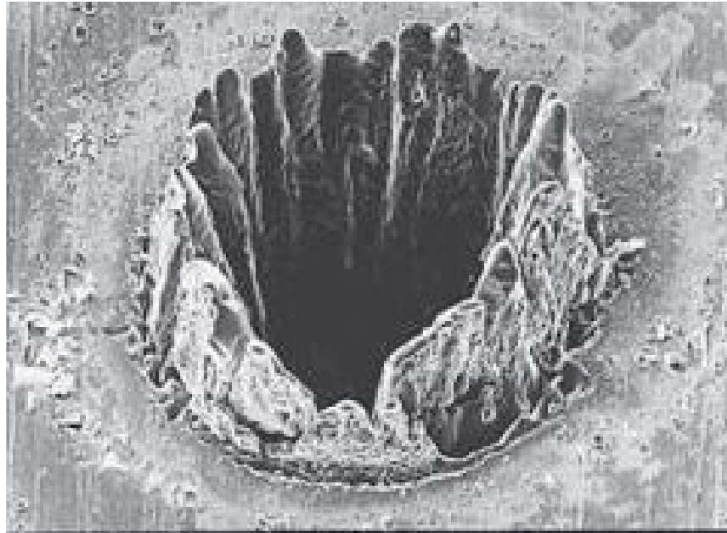


FIGURE 1.2 – Cratère formé par ablation laser d’une feuille épaisse en acier par une impulsion laser nanoseconde de 781 nm [16].

2. Impulsions ultra-courtes "pico et femtoseconde"

En régime ultra-court les impulsions sont beaucoup plus courtes que le temps caractéristiques de transfert d’énergie entre les électrons et le réseau. Durant l’impulsion l’énergie ne peut être instantanément transférée du gaz d’électrons au réseau d’ions ainsi l’équilibre thermique entre les deux sous systèmes électron- phonon n’est pas établi.

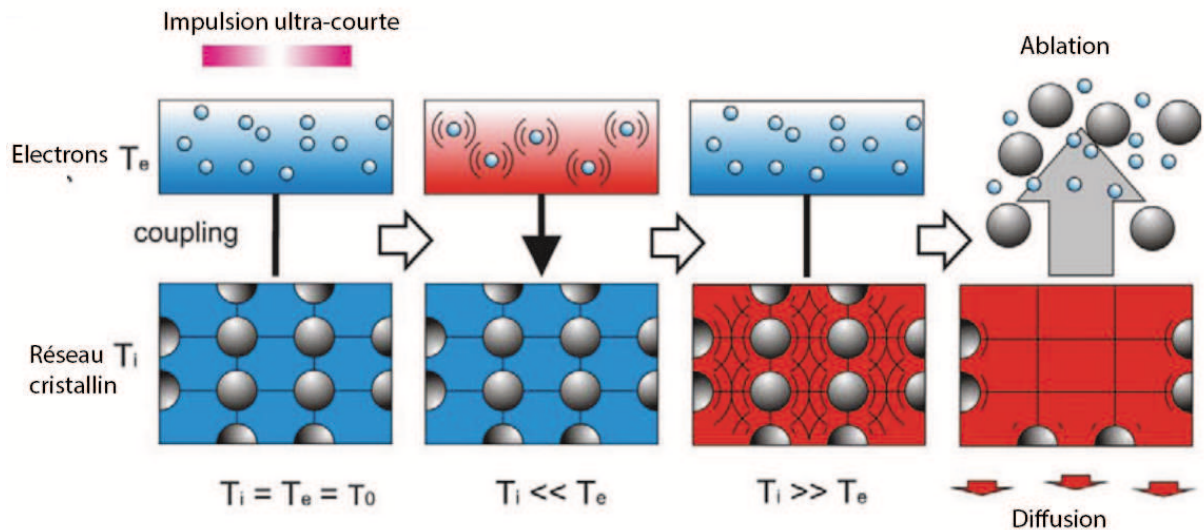


FIGURE 1.3 – Effets thermiques en régime ultra court [14].

Ainsi les modèles classiques purement thermiques qui décrivent l’ablation laser en régime nanoseconde ne sont plus valides. Le processus de diffusion de la chaleur doit être décrit par un modèle à deux températures [14]

$$C_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_e \frac{\partial T_e}{\partial x} \right) - G(T_e - T_i) + S \quad (1.5)$$

$$C_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = G(T_e - T_i) \quad (1.6)$$

Où C_e, C_i sont les capacités thermiques volumiques des électrons et du réseau, k_e : la conductivité thermique des électrons et G le coefficient de couplage électrons-phonon, qui est donnée par [13] :

$$G = C_e / \tau_{e-ph} \quad (1.7)$$

En régime picoseconde les impulsions peuvent être du même ordre de grandeur que les temps de relaxation électron-phonons. Dans ce cas la diffusion de la chaleur dans le matériau peut dans certains cas (que nous évoquerons plus tard) être modélisée au moyen de l'équation de la chaleur classique [17, 18].

Pour l'ablation laser en régime picoseconde le réseau peut fondre à travers des processus thermiques et non-thermiques, dépendant de la densité de puissance du laser. Les électrons sont éjectés de la surface de la cible durant l'impulsion, les électrons libres peuvent interagir avec l'air et absorber l'énergie du laser pour initier un plasma d'air pendant la durée du rayonnement. Le plasma d'air se forme avant que la cible se vaporise [19] [20]. Le plasma d'air au dessus de l'échantillon, absorbe une partie du rayonnement du laser incident. Contrairement à l'ablation laser en régime nanoseconde l'écrantage du rayonnement par le plasma n'est pas causé par l'absorption de la vapeur, en régime picoseconde cet écrantage est causé par le plasma d'air.

D'une manière générale, le processus d'ablation en régime ultra-court est très complexe, afin de mettre en évidence cette complexité, divers mécanismes physiques ont été proposés dans la littérature. Nous nous contentons d'en citer quelques un, notamment les phases d'explosion et de séparation, la fragmentation, le point critique la spallation, etc... [21].

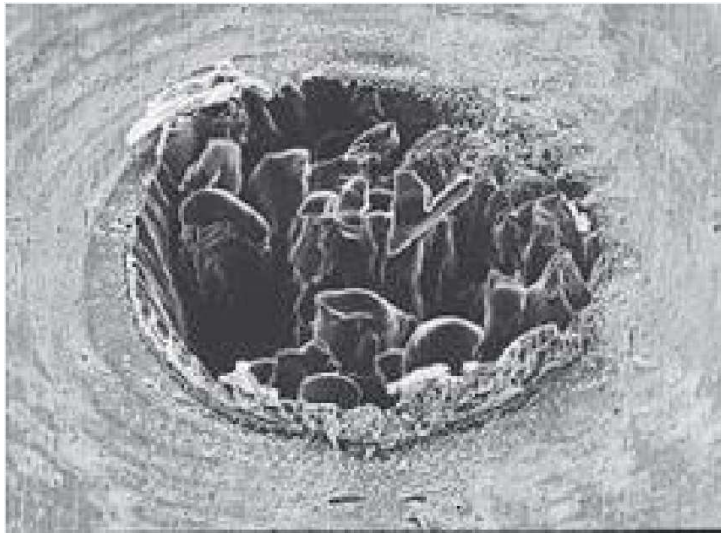


FIGURE 1.4 – Cratère formé par ablation laser d'une feuille épaisse en acier par une impulsion laser picoseconde de 781 nm [16].

1.1.1 Modèles basés sur l'équilibre

1.1.1.1 Approches analytiques

Un nombre considérable d'approches analytiques ont été développées pour étudier les effets thermiques dans des matériaux irradiés par des impulsions laser.

Ces modèles s'intéressent aux types d'interactions qui provoquent le chauffage, la fusion ou tout au plus l'évaporation de l'échantillon [22–31].

Leur but est de pouvoir, à travers une description assez simplifiée du problème de l'interaction laser-cible et en utilisant des méthodes analytiques pour résoudre l'équation de la chaleur, obtenir des expressions de

- la variation spatio-temporelle de la température dans les différentes phases du matériau
- les temps caractéristiques pour initier la fusion et l'évaporation de la surface de l'échantillon
- les profondeurs de fusion et d'ablation au niveau de la cible

Même si ces approches analytiques ont été appliquées en grande partie pour étudier l'interaction dans des régimes microsecondes, il est très important de les évoquer dans cet état de l'art car elles sont à l'origine de formules qui permettent d'estimer des grandeurs caractéristiques telles que la profondeur de diffusion de la chaleur (1.1) et des temps de fusion et d'évaporation en fonction des propriétés du matériau et des paramètres du rayonnement. L'estimation de ces grandeurs caractéristiques permet non seulement de définir la dimension du problème mais également de gérer les conditions aux limites et le changement de phases dans certaines approches numériques.

Ces approches sont d'une très grande utilité notamment pour des applications telles que la chirurgie, le découpage et le perçage par laser. L'estimation des temps de fusion et d'évaporation permet soit de contrôler ces processus ou les éviter si nécessaire.

L'absorption du rayonnement laser dans ces approches est considérée comme un processus purement surfacique, le terme source $S(x,t)$ de l'équation (1.4) est toujours considéré comme étant égale à zéro. L'équation de la chaleur dans ce cas s'écrit comme suit :

$$\frac{\partial^2 T_{sol}(x,t)}{\partial^2 x} - \frac{1}{\chi_{sol}} \frac{\partial T_{sol}(x,t)}{\partial t} = 0, 0 < x < \infty \quad (1.8)$$

et l'absorption de l'énergie de l'impulsion par la surface de la cible est exprimée par :

$$-k_{sol} \frac{\partial T_{sol}(x,t)}{\partial x} = (1 - R_{sol})I, x = 0 \quad (1.9)$$

T_{sol} , χ_{sol} sont la température et la diffusivité de la phase solide respectivement, cette dernière est donnée par l'équation (1.2). I , R_{sol} et k_{sol} : la densité de puissance du rayonnement, la réflectivité et la conductivité thermique du matériau en phase solide respectivement.

La cible est supposée suffisamment épaisse pour qu'à une distance très éloignée de sa surface, la conditions suivante soit valide :

$$T_{sol}(\infty, t) = T_a \quad (1.10)$$

Au début de l'interaction la cible est à température ambiante.

$$T_{sol}(x, 0) = T_a \quad (1.11)$$

Avec T_a : la température ambiante.

Dans le but d'étudier le chauffage d'une cible en aluminium (Al) par une impulsion laser, Hassan et al [22] sont parmi les premiers à avoir adopté une approche analytique qui permet de déterminer en fonction des paramètres du rayonnement ; la profondeur de diffusion de la chaleur dans le matériau ainsi que le temps nécessaire pour le début du processus de fusion.

$$\delta(t) = \sqrt{2\chi_{sol}t} \quad (1.12)$$

$$t_m = \frac{(T_f - T_a)^2 C_{p_{sol}} \rho_{sol} k_{sol}}{2(1 - R_{sol}) I^2} \quad (1.13)$$

où T_f : est la température de fusion du matériau.

$t, C_{p_{sol}}, \rho_{sol}$ sont le temps, la chaleur spécifique à pression constante et la masse volumique du matériau à l'état solide respectivement. Les expressions du temps de fusion varient en fonction du choix de la solution de l'équation de la chaleur. En optant pour des solutions différentes que celle de Hassan et al [22], Shen et al [23], Shehawy et al [24] ou encore Carslaw [25] ont obtenu des expressions du temps de fusion variant de quelques facteurs près :

$$t_m = \frac{2k_{sol}\rho_{sol}C_{p_{sol}}}{3} \left(\frac{T_f - T_a}{I(1 - R_{sol})} \right)^2 \quad (1.14)$$

$$t_m = \frac{3k_{sol}\rho_{sol}C_{p_{sol}}}{4} \left(\frac{T_f - T_a}{I(1 - R_{sol})} \right)^2 \quad (1.15)$$

$$t_m = \frac{\pi k_{sol}\rho_{sol}C_{p_{sol}}}{4} \left(\frac{T_f - T_a}{I(1 - R_{sol})} \right)^2 \quad (1.16)$$

Hassan et al [22] ont également examiné l'impact de la prise en compte de la variation en fonction de la température de l'absorptivité de la surface de l'échantillon sur les résultats obtenus et ceci en proposant une variation linéaire de la forme :

$$A = A_0 + A_1 T_s \quad (1.17)$$

Avec $A=1-R_{sol}$ et T_s la température de la surface de la cible. A_0 et A_1 sont l'absorptivité à température ambiante et la pente de la variation linéaire respectivement.

Cette étude leur a permis de conclure que la prise en compte de la variation en fonction de la température du coefficient d'absorption permet d'avoir des estimations plus précises des temps de fusion.

En plus d'avoir utilisé la même procédure analytique pour déterminer les temps de fusion et d'évaporation ainsi que les profondeurs ablatées en fonction de l'intensité du rayonnement, Shen et al [23] ont étendu cette approche pour prendre en compte le processus d'évaporation. Les formules qu'ils ont obtenues leur ont permis de dévaluer les temps relatifs au début de l'évaporation de plusieurs matériaux à savoir : l'aluminium (Al), l'argent (Au), le cuivre (Cu), le titane (Ti) et le quartz.

Après la fusion de la cible la même procédure analytique est adoptée en tenant compte de la présence des deux phases solide et liquide.

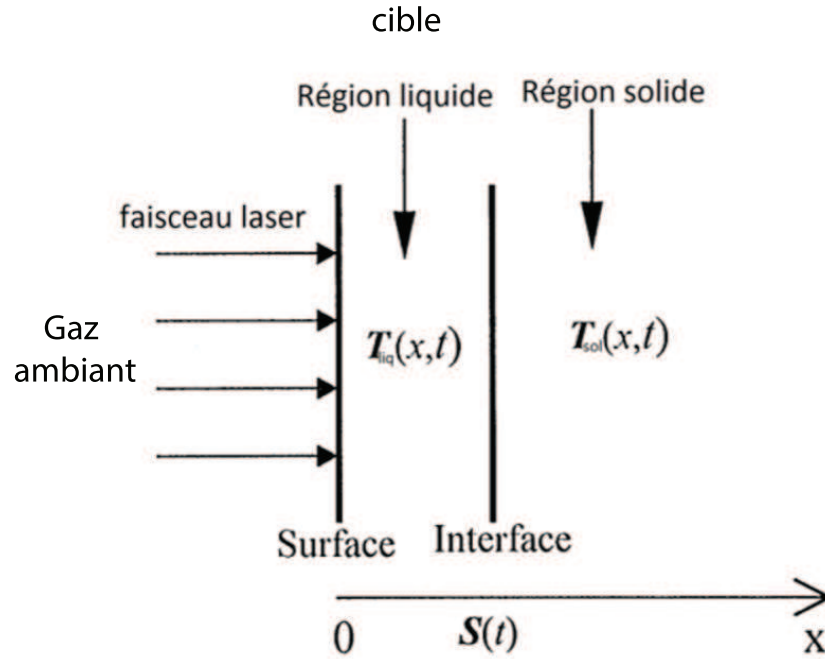


FIGURE 1.5 – Changement de phase dû à l'absorption de l'énergie du rayonnement laser.

Les équations de conduction de la chaleur dans les régions liquide et solide peuvent être décrite par [23,32]

$$\frac{\partial^2 T_{liq}(x,t)}{\partial^2 x} - \frac{1}{\chi_{liq}} \frac{\partial T_{liq}(x,t)}{\partial t} = 0, 0 \leq x \leq S(t) \quad (1.18)$$

$$\frac{\partial^2 T_{sol}(x,t)}{\partial^2 x} - \frac{1}{\chi_{sol}} \frac{\partial T_{sol}(x,t)}{\partial t} = 0, S(t) \leq x \leq \infty \quad (1.19)$$

Avec les conditions aux limites suivante :

$$k_{liq} \frac{\partial T_{liq}(x,t)}{\partial x} = (1 - R_{liq})I, x = 0 \quad (1.20)$$

$$T_{sol}(x,t) = T_{liq}(x,t) = T_f, x = S(t) \quad (1.21)$$

$$T_{sol}(x,t) = T_a, x \rightarrow \infty \quad (1.22)$$

T_{liq} et χ_{liq} sont la température et la diffusivité thermique de la phase liquide du matériau. $S(t)$ la position de l'interface solide/liquide.

k_{liq} et R_{liq} sont la conductivité thermique et la réflectivité de la phase liquide du matériau. Quand le solide fond, l'interface solide-liquide se déplace (dans la direction des $x \geq 0$). Dans ce cas la chaleur latente de fusion absorbée à l'interface durant la fusion est délivrée à l'interface grâce à l'apport en chaleur en $x = 0$.

En écrivant l'équation du bilan énergétique à l'interface [32] :

$$q_{sol} - q_{liq} = \rho L \frac{dS(t)}{dt} \quad (1.23)$$

q_{sol} et q_{liq} : sont respectivement les flux venant des phases solide et liquide.

$$\left[k_{sol} \frac{\partial T_{sol}}{\partial x} - k_{sol} \frac{\partial T_{liq}}{\partial x} \right]_{x=S(t)} = \rho L \frac{dS(t)}{dt} \quad (1.24)$$

Considérons maintenant les profils de températures suivant dans les phases solides et liquides respectivement : [23]

$$T_{liq} = T_{sol} \exp\left(-\frac{x}{\delta_{liq}(t)}\right) \quad (1.25)$$

$$T_{sol} = T_f \exp\left(\frac{-x - S(t)}{\delta_{sol}(t)}\right) \quad (1.26)$$

satisfesants (1.21)et(1.22)

$\delta_{liq}(t)$:profondeur de pénétration de la température dans la région liquide $\delta_{sol}(t)$:profondeur de pénétration de la température dans la région solide

A partir de ces équations, des expressions de la position de l'interface solide/liquide et du temps nécessaire pour initier le processus d'évaporation peuvent alors être obtenues :

$$S(t) = \frac{k_{liq}}{(1 - R_{liq})I} \left[\frac{2\chi_{liq}(1 - R_{liq})^2 I^2}{k_{liq}^2} t + C_0 \right]^{\frac{1}{2}} \ln\left(\frac{\left[\frac{2\chi_{liq}(1 - R_{liq})^2 I^2}{k_{liq}^2} t + C_0 \right]^{\frac{1}{2}}}{T_f}\right) \quad (1.27)$$

$$t_v = \frac{(T_v^2 - C_0)k_{liq}^2}{2((1 - R_{liq})I)^2 \chi_{liq}} \quad (1.28)$$

avec

$$C_0 = T_f^2 - \frac{\chi_{liq} k_{sol}^2 \beta_{liq}^2}{\chi_{sol} k_{liq}^2 (1 - R_{sol})^2} (T_f - T_a)^2 \quad (1.29)$$

En tenant compte de la variation temporelle de la densité de puissance de l'impulsion laser, ainsi que la variation en fonction de la température du coefficient d'absorption de la surface de la cible, El-Nicklawy et al [26] et plus récemment Abdel Ghany [33] ont repris la résolution analytique du problème de fusion d'une cible en aluminium dans le but d'obtenir des expressions de la variation spatio-temporelle de la température dans la cible ainsi que l'évolution de l'épaisseur liquifiée, pour des impulsions de 15, 30 et 50 10^{-5} s et des intensités de 1, 2 et 3 $10^{10} W/m^2$ pour El-Nicklawy et al et 16, 20, 30 ns et une intensité de 2 $10^{11} W/m^2$ pour Abdel Ghany. Une impulsion laser de type Ready [34] (1.30) a été choisi pour ces études.

$$g(t) = \begin{cases} \frac{(n+1)^{n+1} t}{n^n \tau} \left(1 - \frac{t}{\tau}\right)^n & \text{pour } 0 \leq t \leq \tau \\ 0 & \text{pour } t \leq \tau \end{cases} \quad (1.30)$$

τ étant la durée de l'impulsion

El Adawi et al [30] ont présenté une étude analytique basée sur la résolution de l'équation de la chaleur par les séries de Fourier. Cette étude a été réalisée dans le but d'examiner l'impact des propriétés des impulsions laser de type Ready sur les effets thermiques

qu'elles induisent sur une variété d'échantillons (4 métaux : Al, Cu, Ag, Au et 5 semi-conducteurs ;, sulfure de cadmium (CdS), germanium (Ge), silicium (Si) et le carbure de silicium (SiC). Les densité d'énergie et durées d'impulsions considérées dans cette étude sont $5 \cdot 10^{12}$ et $10^{13} W/m^2$ et 4.5 ; 5 et $7 \mu s$ respectivement. Des estimations des temps de fusion des matériaux en question ont pu être obtenues en fonction des paramètres du rayonnement considérés .

A fin d'étudier le problème d'évaporation d'un échantillon en aluminium (Al) par impulsion laser de type Ready et tout en tenant compte de la variation en fonction de la température du coefficient d'absorption de la surface irradiée, Abdel Ghany et al [31] ont eu recours à la transformée de Laplace pour résoudre leur modèle thermique. En plus d'avoir pu donner des expressions du champ de température dans la partie liquide et solide de la cible ainsi que la variation en fonction du temps de l'interface solide/liquide, une expression de la profondeur ablatée à également été obtenu.

El-Adawi et al [27] ont proposé une résolution analytique du problème du chauffage d'un échantillon de sélénure d'argent (Ag_2Se) avec une impulsion laser de profil temporel idéalement Gaussien, d'une largeur à mi-hauteur de $3.5 \mu s$ et un temps de $4 \mu s$ pour que l'intensité du rayonnement atteigne son maximum.

$$I(t) = I_0 \exp\left(-\frac{(t - \tau)^2}{2\zeta^2}\right) \quad (1.31)$$

I_0 , τ et ζ^2 sont l'intensité maximale du rayonnement incident, le temps au bout du quel l'intensité du rayonnement atteint son maximum et la largeur à mi-hauteur du profil respectivement. Les intensité de rayonnement considérées sont 0.5, 0.7, et $1 \cdot 10^8 W/m^2$. En appliquant le développement en séries de Fourier sur l'équation de la chaleur ils ont pu déterminer le champ de température dans la cible et le temps caractéristique pour initier le processus de fusion.

El-Adawi et al [28, 29] ont également adopté une approche analytique pour étudier le problème du chauffage par laser d'un système à deux couches, notamment aluminium/verre ; or/verre ; argent/verre et cuivre/verre avec une absorptivité de la surface du matériau, variable et constante respectivement. Le but de ses études est pareil que celui de Hassan et al [22], qui est la détermination des expressions exactes de la distribution de la température dans le système et celle du temps nécessaire pour que la surface de la cible atteigne la température de fusion.

Les approches analytiques restent valides pour modéliser les effets thermiques dans la cible quand les conditions de l'interaction permettent uniquement sa fusion et tout au plus l'évaporation son évaporation. Lorsque d'autres mécanismes sont pris en compte, notamment l'absorption en volume du rayonnement laser, de la variation non linéaire des propriétés thermique des matériaux en fonction de la température ou encore l'émission de radiation par la surface de la cible et la production d'électrons par photo et thermoémission, la résolution analytiques de ces modèles thermiques n'est alors plus possible.

De plus quand les conditions de l'interaction sont telles que les effets thermiques dans le matériau non seulement coexistent mais sont également influencés par la présence d'une vapeur et la formation d'un plasma au dessus de la surface de la cible, il devient impératif dans ce cas là de faire appel à des approches numériques.

1.1.1.2 Approches numériques

1.1.1.2.1 Terme source

L'absorption de l'énergie du rayonnement laser par la cible est considérée par les approches analytiques comme étant un phénomène purement surfacique. Cette approximation est faite pour des raisons de simplicité, pour que la résolution analytique des modèles thermiques soit possible.

Afin de correctement décrire la nature physique de l'interaction laser-cible il est nécessaire de tenir compte de la pénétration et l'absorption du rayonnement au sein de la cible et ceci au moyen du terme source $S(x,t)$ de l'équation de la chaleur (1.4) [35].

Ce terme tient compte du fait qu'une partie du rayonnement est réfléchié au niveau de la surface de la cible et la partie qui arrive à être absorbée est atténuée au sein du matériau suivant la lois de Beer-Lambert ce qui revient à écrire le terme source comme suit :

$$S_q(x, t) = [1 - R]\alpha I(t) \exp -\alpha x \quad (1.32)$$

Avec R et α la réflectivité et le coefficient d'absorption du matériau qui sont fonction de la longueur d'onde de l'impulsion, de la phase du matériau (solide/liquide) et/ou de sa température.

$I(t)$ le profile temporel de l'impulsion et x la distance au sein du matériau.

Quand un plasma est crée à partir de la matière ablatée, un processus communément appelée "plasma shielding" aura lieu. Le plasma shielding ou écrantage plasma signifie que le plasma une fois formé absorbera une certaine quantité du rayonnement laser et dans ce cas là l'énergie du rayonnement laser qui atteint la surface de la cible sera réduite.

L'absorption de l'énergie de l'impulsion laser au sein du plasma suit également la lois de Beer-Lambert, le terme source $S(x,t)$ dans ce cas là devient

$$S_q(x, t) = [1 - R]\alpha I(t) \exp(-\alpha x) \exp(-\alpha_{pl}X) \quad (1.33)$$

Avec α_{pl} le coefficient d'absorption du plasma et X la position au sein du plasma.

Nous parlerons plus en détails des processus d'absorption du rayonnement laser par le plasma et du coefficient α_{pl} dans la partie dédiée à la modélisation des plasmas induits par laser.

En plus du plasma shielding, la photoionisation du gaz environnant (selon sa nature) peut également jouer un rôle dans la diminution de la quantité d'énergie du rayonnement qui arrive à la surface de la cible [36], dans ce cas elle pourra être incluse dans le terme source avec la même formulation que celle du plasma shielding.

1.1.1.2.2 Propriétés du matériau

Dans la modélisation de l'interaction laser-cible, la nature du matériau est prise en compte à travers deux types de propriétés :

- Propriétés optiques : coefficient d'absorption, reflectivité
- Propriétés thermophysiques : Masse volumique, conductivité thermique et chaleur spécifique à pression constante.

Alors que dans la plus grande majorité des modèles thermiques [1, 4, 5, 9, 37, 39–41] les propriétés des cibles sont assimilées à des valeurs constantes qui varient en fonction de la phase du matériau et/ou en fonction de la longueur d’onde de l’impulsion, quelques travaux ce sont distingués par la prise en compte de la variation non-linéaire des propriétés du matériau en fonction de la température.

– Variation des propriétés optiques

A partir de la théorie classique de l’électromagnétisme et des équations de Maxwell, Li et al [6] ont présenté pour la première fois une démonstration qui leur a permis d’obtenir des expressions de la variation non-linéaire de l’absorptivité (1.34) et du coefficient d’absorption (1.35) des métaux en fonction de la température, qui sont donnés respectivement par :

$$\beta(T) = 2\sqrt{\frac{4\pi c\epsilon_0(1 + \alpha_T(T(x, t) - T_a))}{\lambda\sigma_0}} \quad (1.34)$$

$$\alpha_a(T) = \sqrt{\frac{4\pi\sigma_0}{\epsilon_0\lambda(1 + \alpha_T(T(x, t) - T_a))}} \quad (1.35)$$

Ils ont pu examiner l’impact de la prise en compte de la dépendance en température des propriétés optiques de la cible sur la profondeur de fusion d’une cible en cuivre en comparant les résultats de leur modèle thermique résolu avec un schéma en différences finies avec des résultats expérimentaux. Leurs calculs ont montrés que les résultats obtenus avec des propriétés optiques dépendantes de la températures sont les plus proches des résultats expérimentaux. A la base Li et al [6] se sont uniquement limité à la phase de fusion de la cible, mais Fang et al [5] ont étendu cette étude après la fusion et l’évaporation jusqu’à la formation du plasma. Ils ont en conclu l’importance de la prise en compte de la variation des propriétés optiques en fonction de la température sur les résultats obtenus en comparaison avec l’expérimental.

Vasantgadkar et al [3] ont proposé un modèle thermique résolu en éléments finis dédié à la prédiction des profondeurs ablatées par des impulsions laser sur des cibles de carbure de titane (TiC). Cette étude prend non seulement en compte la dépendance en température des propriétés optiques du matériau selon les équations (1.34) et (1.35) mais également la variation des propriétés thermiques à savoir la conductivité thermique et la chaleur spécifique à pression constante. Les températures obtenues dans le cas de propriétés optiques variables sont plus basses que celles calculées avec des propriétés optiques constantes. Ceci à été confirmé plus tard dans l’étude menée par Aitoumeziane et al [9] sur l’interaction d’impulsions laser naonsoconde dans les domaines UV-Vis-IR avec une cible en cuivre.

– Variation des propriétés thermiques

Dans le modèle qu’ils ont proposé pour l’étude de l’ablation d’une cible en aluminium par une impulsion laser d’une durée d’une microseconde à 350 nm, Rosen et al [42] ont pris en compte la variation en fonction de la température de la conductivité thermique du matériau mais uniquement dans sa phase liquide.

Parisse et al [43] dans leur modélisation de l’ablation laser du silicium en régime nanoseconde à 193 nm ont pris en compte la variation en fonction de la température de la conductivité thermique du matériau dans les phases solide et liquide.

Clair et al [7] quant à eux ont modélisé l’ablation laser d’une cible en cuivre par une impulsion d’une durée de 6 ns à 532 nm et ont pris en compte dans leur modèle thermique la variation en fonction de la température de la conductivité thermique et de la chaleur spécifique suivant dans les deux phases solide et liquide.

Dans la même optique Willis et al [18] ont présenté une étude sur l’ablation laser du nickel par une impulsion laser de 25 ps à 1064 nm. Leur modèle thermique tient compte de la variation en fonction de la température de la conductivité et de la chaleur spécifique du matériau.

1.1.1.2.3 Processus d’évaporation

Une fois le processus d’évaporation initié, de nombreux processus complexes fortement couplés apparaissent à la surface de la cible et à son voisinage immédiat. Au voisinage de la surface de la cible, les espèces éjectées atteignent un équilibre thermique translationnel après quelques collision sur une épaisseur de quelques libres parcours moyens. Cette couche de transition est appelée couche de Knudsen [44, 45].

Une fois le processus d’évaporation initié la vapeur atomique quitte la surface de la cible avec une vitesse qui suit une distribution Maxwellienne à une dimension [46]. Cette vitesse, également appelée vitesse de récession est donnée par l’équation de Hertz-Knudsen [10, 47].

$$v_a = v_{ev} = 0.32 \sqrt{\frac{M}{k_b T_s} \frac{P_s}{\rho}} \quad (1.36)$$

où P_s et T_s sont la température et la pression à la surface de la cible, M et ρ la masse molaire et volumique du matériau, k_b : la constante de Boltzmann.

L’impact du processus d’ablation sur les effets thermiques dans le matériau peut être pris en compte dans l’équation de la chaleur en l’écrivant comme suit : [1, 5, 9, 39, 48]

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} - v_a \frac{\partial T}{\partial x} \right) - \kappa \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} = S(x, t) \quad (1.37)$$

P_s la pression de la vapeur à la surface donnée par l’équation de Clausius Clapeyron

$$P_s = P_0 \exp\left[\frac{M \Delta H_v(T_b)}{k_b} \left(\frac{1}{T_b} - \frac{1}{T_s} \right) \right] \quad (1.38)$$

Stafe et al [49], ont développé un modèle photo-thermique dans le but d’évaluer le taux de matière ablatée dans le cas de multiples impulsions nanoseondes. Dans cette approche les phénomènes complexes associés à l’ablation laser notamment l’évaporation et le plasma shielding sont pris en compte sous forme de termes supplémentaires dans l’équation de la chaleur classique à travers (1.37) et (1.33). Ce modèle a été appliqué à l’aluminium et a pu être validé avec l’expérience. Cette étude s’est centrée sur la détermination du taux d’ablation d’une cible en aluminium avec un rayonnement laser d’une durée d’impulsion de 4.5 ns avec un taux de répétition de 10 Hz, une longueur d’onde de 532 nm et une

intensité maximale de $10^9 W/cm^2$.

Fang et al [5] ont subdivisé le problème d'interaction d'un rayonnement UV avec une cible en Fer en deux parties, avant et après la fusion de la cible. Le changement de phase à été géré en faisant des tests sur le temps de fusion, tels que estimés par Hassan et al [22]. Deux équations de la chaleur ont été utilisés pour décrire la diffusion de la chaleur dans les deux phase. Alors qu'avant la fusion, c'est l'équation de la chaleur classique qui est employé (1.4), après la fusion non seulement l'impact du processus d'ablation sur les effets thermiques dans le matériau est intégré dans l'équation de la chaleur (1.37) mais également le taux de l'écrantage plasma dans le terme source.

1.1.1.2.4 Conditions aux limites

Un modèle thermique ne peut être résolu qu'une fois ses conditions aux limites définies.

Dans le cas de l'interaction laser-cible, il est nécessaire de définir deux conditions aux limites, la première au niveau de la surface de la cible et la seconde à une certaine distance à l'intérieur du matériau (que nous définirons par la suite).

Dans cette section nous présentons un résumé des conditions aux limites les plus admises dans la modélisation de l'ablation laser.

1. A la surface de la cible

Cette condition permet de prendre en compte :

- les processus selon les quels le rayonnement interagit avec la cible au niveau de sa surface
- comment la vapeur et le plasma interagissent avec la cible
- le processus d'ablation (éjection de la matière au niveau de la surface)
- émission d'électrons primaires à partir de la surface de la cible

La majorité des modèles [9, 48, 50] de l'ablation laser supposent que le processus d'évaporation est à l'origine de la variation du flux de chaleur au niveau de la surface de la cible, ce qui se traduit par :

$$-\kappa \frac{\partial T}{\partial x} = \rho v_a \Delta H_v(T_v) \quad (1.39)$$

avec ΔH_v la chaleur latente d'évaporation et T_v la température d'évaporation. Rappelons que ρ et v_a sont la masse volumique de la cible et la vitesse d'ablation (récession)

En plus de l'évaporation, certains tiennent aussi compte de l'énergie requise pour la fusion de la cible [1]

$$-\kappa \frac{\partial T}{\partial x} = \rho v_a [\Delta H_f(T_f) + \Delta H_v(T_b)] \quad (1.40)$$

avec ΔH_f la chaleur latente de fusion et T_b la température d'ébullition du matériau.

En plus des flux d'énergies dus aux différents changements de phase du matériau, divers processus peuvent exister.

Stafe et al [49] par exemple tiennent compte des pertes par radiations et par conduction au niveau de la surface.

Fang et al [5] prennent en compte l'absorption du rayonnement laser au niveau de la surface de la cible,

$$-\kappa \frac{\partial T}{\partial x} = (1 - R)I_0(t) \quad (1.41)$$

avec R : la reflectivité de la surface du matériau et $I_0(t)$ l'intensité incidente du rayonnement. dans leur modèle cette condition est valable avant le début du processus de fusion.

Après la fusion, la condition à la surface de la cible tient compte de l'absorption du rayonnement par la surface du matériau, du plasma shielding ainsi que du processus d'ablation.

$$-\kappa \frac{\partial T}{\partial x} = -s\rho v_a \Delta H_v(T_b) + (1 - R)I_0(t) \exp(-\alpha_p l X) \quad (1.42)$$

Bogaerts et al [39], Aghei et al [8] et Clair et al [7] quant à eux tiennent compte du couplage avec le gaz et le plasma.

$$-\kappa \frac{\partial T}{\partial x} = -v_a[\rho \Delta H_f + \rho E + \rho v_a^2/2 + P] + (1 - R)I(t) \quad (1.43)$$

Avec E et P : l'énergie interne de la vapeur et la pression qu'elle exerce à la surface de la cible respectivement

Parisse et al [43] ont quant à eux opté pour une condition d'adiabacité au niveau de la surface de la cible dans les deux phases solide et liquide. Dans cette étude ce qui se passe au niveau de la surface de la cible n'est pas fixé à travers l'équation de Hertz-Knudsen (1.36) comme il est le cas des autres modèles, ce qui se passe au niveau de la surface est calculé au fur et à mesure. Nous aurons l'occasion de d'en parler plus en détail dans les chapitres suivants.

2. A l'intérieur de la cible

La détermination de la profondeur de diffusion de la chaleur au sein d'un matériau en fonction de ses propriétés thermophysiques et de la durée de l'impulsion laser (1.1) permet d'estimer la distance au bout de laquelle le matériau n'est plus affecté par les effets thermiques engendrés par l'absorption du rayonnement laser .

Selon qu'on choisisse de définir une condition à une épaisseur beaucoup plus grande ou de l'ordre de la profondeur de diffusion thermique on peut choisir l'une de ses conditions aux limites respectivement :

$$T(d, t) = T_0 \quad (1.44)$$

$$-\kappa \frac{\partial T}{\partial x} = 0 \quad (1.45)$$

1.1.2 Modèles hors équilibre

Rappelons que l'existence d'un équilibre thermique entre les électrons et le réseau dépend de la durée de l'impulsion et du temps caractéristique de relaxation électrons-phonons. Lorsque ce dernier est supérieur à la durée de l'impulsion, on fait appel à des modèles thermiques prenant en compte le déséquilibre thermique entre les électrons et le réseau afin de décrire l'interaction laser-cible.

Afin d'examiner l'effet de la longueur de l'impulsion laser sur le processus d'ablation Tatra et al [51] ont mené une étude sur l'interaction d'un rayonnement laser visible (532 nm) avec une cible de fer pour trois durées d'impulsions nano, pico et femtoseconde (60 ns, 10 ps, 170 fs). Le modèle qu'ils ont adopté est un modèle classique d'ablation laser, où les effets thermiques dans le matériaux sont décrits par l'équation de conduction de la chaleur sans prendre en compte le déséquilibre électrons-réseau. Cette étude a démontré que l'écrantage plasma peut être négligé dans le cas des impulsions pico et femtosecondes, alors que pour le cas nanoseconde il joue un rôle significatif et diminue considérablement la quantité de matière ablatée. Leur résultats ont également montré que l'écrantage plasma a aussi une très grande influence sur la forme du cratère formé. Ceci peut être expliqué par le fait que dans les régimes pico et femtosecondes, le processus d'évaporation ne débute qu'après la fin de l'impulsion. Les résultats qu'ils obtiennent dans le cas nanoseconde sont en excellent accord avec les résultats expérimentaux alors que pour le cas femtoseconde leur modèle donne une surestimation de la profondeur ablatée. Pour y remédier ils proposent l'utilisation d'un modèle à deux températures où le couplage électrons-phonon est pris en compte. Cette étude n'a pas été concluante en ce qui concerne l'interaction en régime picoseconde, ceci peut être expliqué par le fait que les impulsions picosecondes sont du même ordre de grandeur que les temps de relaxation des matériaux et ainsi l'emploi d'un modèle thermique à une seule température est capable dans certains cas de bien décrire l'interaction laser-cible [17, 18].

Dans la même optique et afin d'examiner l'impact de la durée d'impulsion sur le processus d'ablation Leitz et al [14] ont présenté une étude comparative de l'ablation d'une cible en fer par des impulsions laser micro, nano, pico et femtoseconde, 1064 nm (80 μ s, 10 ps), 532 nm (60 ns) et 800 nm (170 fs). Ce travail a permis de confirmer qu'en régime court l'interaction laser-cible est parfaitement décrite au moyen de modèles thermiques à une seule température. En régime femtoseconde, c'est les modèles thermiques à deux températures qui conviennent à l'étude de l'interaction laser-cible. Rien n'a été conclu en ce qui concerne les modèles adaptés pour l'étude de l'interaction laser-matière en régime picoseconde.

En plus d'avoir utilisé un modèle à deux températures pour modéliser les processus thermiques lors de l'interaction d'impulsions laser picosecondes 10 et 100 ps à 355 nm et 100 ps à 266 nm avec des métaux Itina [48] a pris en compte dans ces travaux le phénomène d'émission d'électrons libre à partir de la surface de la cible par deux processus à savoir la thermo et la photoémission. Dans le cas de la thermoémission l'énergie qui permet aux électrons de quitter la surface de la cible est due au chauffage de cette dernière, alors que dans le cas de la photoémission les électrons peuvent être émis après avoir absorbé un photon du rayonnement laser.

Après avoir passé en revue les contributions les plus importantes à la modélisation de

l'interaction laser-cible et des effets thermiques qui en découlent, nous allons maintenant passer à la modélisation des plasmas induits par laser.

1.2 Modélisation des plasmas induits par laser

La création du plasma se fait initialement par la production d'électrons primaires au sein de la vapeur. Ces électrons proviennent soit de la surface par thermo et photo-émission ou ils sont directement créés dans la vapeur par photionisation et ionisation thermique.

La photo-émission a lieu quand l'énergie du rayonnement laser est suffisante pour permettre l'extraction d'un électron à un atome soit depuis son état fondamental ou à partir d'un état excité intermédiaire.

L'ionisation thermique quant à elle est due aux collisions entre les électrons énergétiques avec les espèces lourdes.

Les électrons primaires gagnent d'avantage d'énergie en absorbant des photons du rayonnement laser par effet de Bremsstrahlung inverse. Ces électrons énergétiques pourront à leur tour ioniser des espèces lourdes par collision et ainsi le nombre d'électrons libres continuera à augmenter au sein du plasma. Ce processus de création d'électrons libres qui est appelé ionisation en cascade ou ionisation en avalanche continuera à avoir lieu pendant toute la durée de l'impulsion.

Une fois généré le plasma est maintenu grâce à divers processus collisionnels et radiatifs, dont les principaux sont présentés dans la figure [53].

L'énergie du rayonnement est transférée au plasma par la photionisation des espèces lourdes et le chauffage des électrons par inverse Bremsstrahlung. Les électrons chauffés sont responsables des processus collisionnel comme l'excitation et l'ionisation par impact électronique.

Le taux d'absorption du rayonnement par le plasma, que nous avons représenté par α_{pl} dans l'équation (1.33) est la somme de la contribution du taux d'absorption par inverse Bremsstrahlung et par photoionisation.

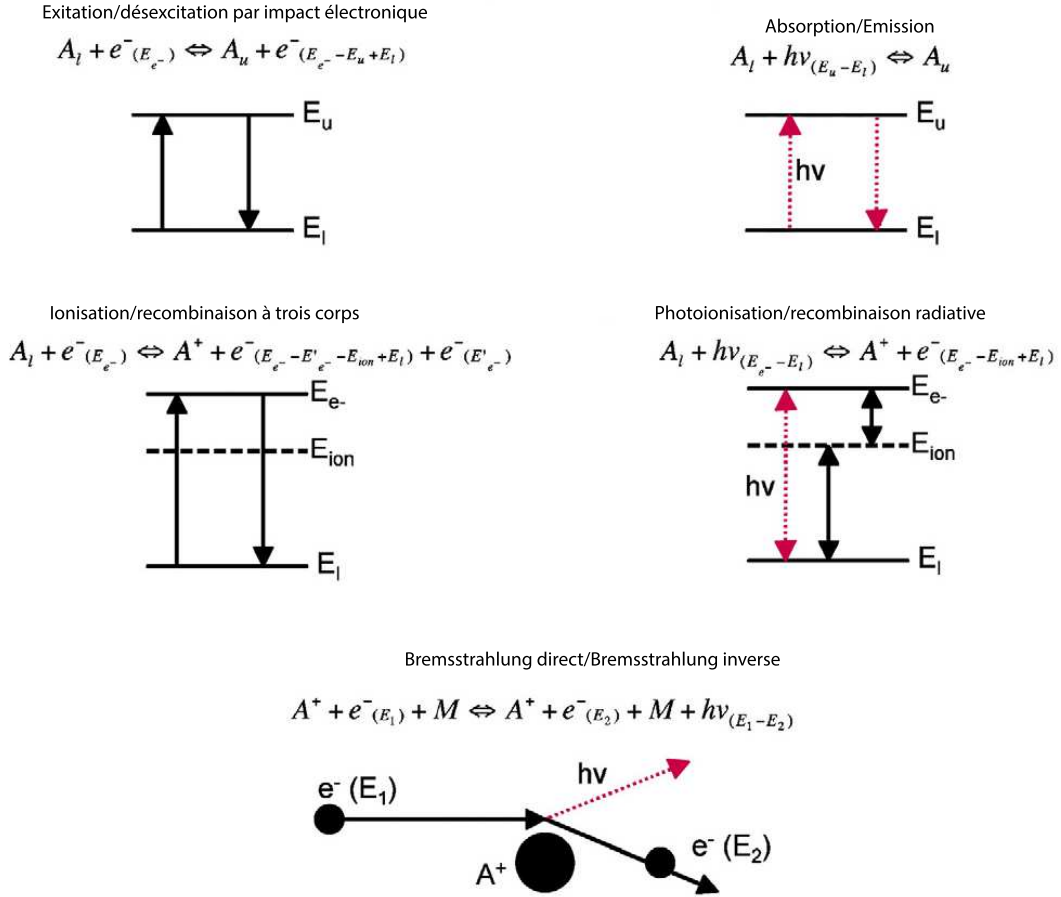


FIGURE 1.6 – Représentation simplifiée des principaux processus dans les plasmas induits par laser. [53].

On distingue deux types d'absorption par inverse Bremsstrahlung : l'absorption électron-neutre et l'absorption électron-ion. Il existe une grande variété de coefficients utilisés dans la littérature pour modéliser ces taux d'absorption, voici un résumé des coefficients les plus utilisés dans la littérature :

- Bremsstrahlung électron-neutre

Bogaerts et al [4]

$$\alpha_{e-n} = [1 - \exp(\frac{-hc}{\lambda k_b T})] \sigma_c n_e n_0 \quad (1.46)$$

Avec h : la constante de Planck, c : la célérité de la lumière, λ : la longueur d'onde du rayonnement, T : la température de la plume, k_b : la constante de Boltzmann, σ_c la section efficace d'absorption d'un photon par un électron, n_e la densité électronique et n_0 : la densité des espèces neutres.

Clair et al [7]

$$\alpha_{e-n} = \frac{\nu_{pe}^2}{\nu^2} \frac{\langle \nu_{en} \rangle}{\mu c} \quad (1.47)$$

Avec ν_{pe}^2 la fréquence plasma, μ : l'indice de réfraction, $\langle \nu_{en} \rangle$ la fréquence effec-

tive de collisions électrons-atomes, c : célérité de la lumière et ν la fréquence du laser.

Aghaei et al [54]

$$\alpha_{e-n} = \frac{e^2}{\pi m_e c \nu^2} \sqrt{\frac{8k_b T}{\pi m_e}} \sigma_c n_e n_0 \quad (1.48)$$

Avec e : la charge élémentaire, m_e : masse d'un électron Zel' dovitch [55] :

$$\alpha_{e-n} = 6.1 \cdot 10^{-29} \frac{\lambda^3}{\sqrt{T_e}} n_e n_0 \left[\frac{\pi}{15\sqrt{3}} \right] \left[\frac{2 \cdot I_H}{h\nu + T_e} \right] \quad (1.49)$$

Avec I_H : le potentiel d'ionisation de l'hydrogène et T_e la température des électrons dans la plume.

Frang et al [5]

$$\alpha_{e-n} = [1.25 \cdot 10^{-46} \lambda^3 T_e^{-0.5} \frac{n_0}{200} + n_e] n_e \quad (1.50)$$

– Bremsstrahlung électron-ion

Bogaerts et al [4] et Aghaei et al [54]

$$\alpha_{IB,e-i} = [1 - \exp(-\frac{hc}{\lambda k_b T})] \frac{4e^6 \lambda^3}{3hc^4 m_e} \sqrt{\frac{2\pi}{3m_e k_b T}} Z_i^2 n_i n_e \quad (1.51)$$

Avec n_i , Z_i la densité et la charge de l'ion i et ϵ_0 la perméabilité du vide.

Clair et al [7]

$$\alpha_{IB,e-i} = \frac{1}{(4\pi\epsilon_0)^3} \frac{4e^6 \lambda^3 n_e}{3hc^4 m_e} \sqrt{\frac{2\pi}{3m_e k_b T}} Z_i^2 n_i \quad (1.52)$$

Morel et al [56]

$$\alpha_{IB,e-i} = 1.2 \frac{1}{(4\pi\epsilon_0)^3} \frac{4e^6 \lambda^3}{3hc^4 m_e} \sqrt{\frac{2\pi}{3m_e k_b T}} Z_i^2 n_e \quad (1.53)$$

Thomann et al [57]

$$\alpha_{e-i} = 6.1 \cdot 10^{-29} \frac{\lambda^3}{\sqrt{k_b T_e}} n_e^2 \quad (1.54)$$

La section efficace de l'absorption du rayonnement laser par le plasma via le processus de photionisation des espèces lourdes est donné dans la plus-part des modèles par [5,55,57,58]

$$\alpha_{ph} = 7.910^{-18} I_H^{0.5} \frac{(E^+)^2}{h\nu^3} \quad (1.55)$$

Une fois le plasma formé il s'étendra en agissant comme un piston qui comprime le gaz environnant. La vitesse initiale d'expansion du plasma est supersonique et une onde

de choc sera formée et entraînée dans le milieu environnant. L'onde de choc se déplacera vers l'extérieur à une vitesse initiale égale à celle de la plume [53].

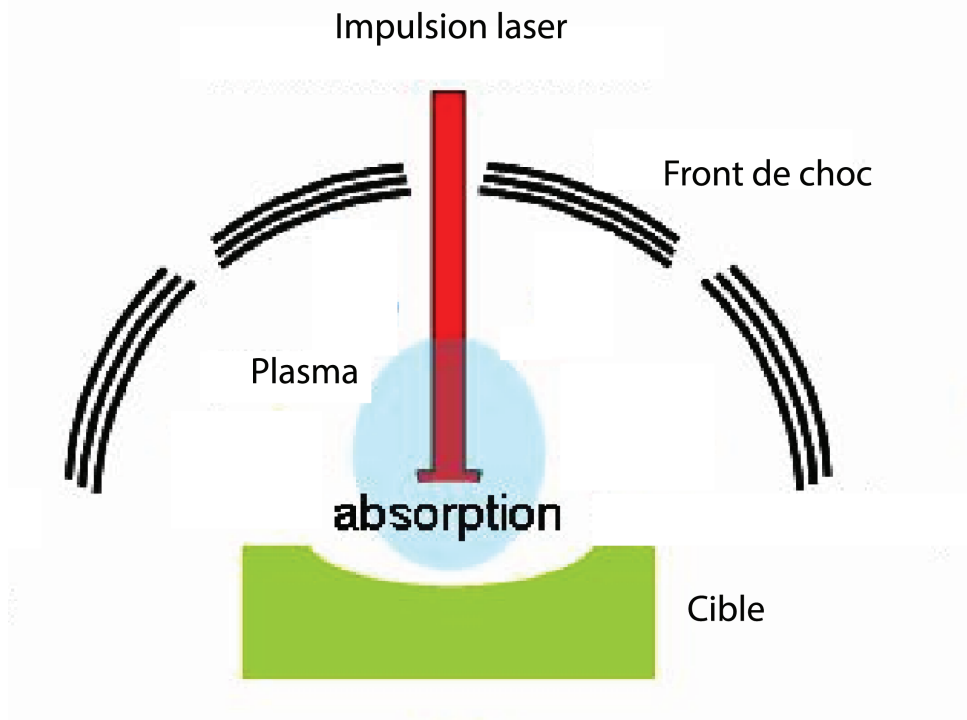


FIGURE 1.7 – Représentation simplifiée de l'expansion du plasma dans le milieu environnant [43].

Dans cette partie on présentent une étude bibliographique des modèles les plus pertinent des plasmas induits par laser.

1.2.1 Modèles basés sur l'équilibre thermique

Pour des applications telles que la PLD, l'étude de la dynamique du plasma est d'une très grande utilité. A cette fin de nombreux modèles hydrodynamiques basés sur la conservation de la masse, de l'énergie et de la quantité de mouvement du plasma ont été développés.

En plus des propriété du plasma, ces modèles tiennent également compte de la présence du milieu environnant et sont développés sous l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local.

On en distingue deux catégories, la première regroupe les modèles hydrodynamiques basés sur les équations d'Euler et la seconde regroupe des modèles basés sur les équations de Navier-Stokes. Alors que les modèles basés sur les équations d'Euler traite le plasma comme un fluide parfait, ceux basés sur les équations de Navier-Stokes tiennent compte de la viscosité du plasma et de sa conductivité thermique.

1.2.1.1 Équations d'Euler

Afin d'étudier théoriquement l'expansion dans le vide d'un plasma induit par un laser à rubis (694.3 nm) d'une durée d'impulsion de 30 ns et des densités d'énergies de 30

et 36 J/cm^2 , à partir d'une cible en cuivre, Vertes et al [59] ont présenté un modèle hydrodynamique (1.56 - 1.58) couplé à un modèle thermique. Le but de cette étude est de mettre en évidence l'importance des différents processus ayant lieu dans la plume en expansion pendant et après la fin de l'impulsion.

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{\partial(\rho v)}{\partial x} \quad (1.56)$$

$$\frac{\partial(\rho v)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}[p + \rho v^2] \quad (1.57)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}[\rho(E + \frac{v^2}{2})] = -\frac{\partial}{\partial x}[\rho v(E + \frac{P}{\rho} + \frac{v^2}{2})] + E_p \quad (1.58)$$

ρ , v , P , E , E_p sont la densité du plasma, sa vitesse d'expansion, sa pression, son énergie interne et le bilan sur l'énergie gagnée et perdue par le plasma respectivement.

Comme cette approche est basée sur l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local la formation du plasma qui est supposé contenir trois espèces (neutre Cu, une fois Cu^+ et deux fois ionisée Cu^{+2}) est décrite par les équations de Saha-Eggert (1.59 ; 1.60) accompagnée des équations de conservation de la matière et de la charge (1.61 ; 1.62) respectivement.

$$\frac{x_e x_{i1}}{x_0} = \frac{1}{n_{vap}} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{IP_1}{k_B T}\right) \quad (1.59)$$

$$\frac{x_e x_{i2}}{x_1} = \frac{1}{n_{vap}} \left(\frac{2\pi m_e k_B T}{h^2} \right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(-\frac{IP_2}{k_B T}\right) \quad (1.60)$$

$$x_0 + x_{i1} + x_{i2} = 1 \quad (1.61)$$

$$x_{i1} + 2x_{i2} = x_e \quad (1.62)$$

les x_e , x_0 , x_{i1} , x_{i2} , sont les fractions des électrons, des espèces neutres, une fois et deux fois ionisées...

IP_1 , IP_2 sont le premier et deuxième potentiel d'ionisation.

Bogaerts et al [4] ont repris le même modèle que Vertes et al [59] pour étudier l'ablation sous vide, d'une cible en cuivre par une impulsion laser de 10 ns à 266 nm avec une densité de puissance de 10^9 W/cm^2 .

Ce modèle leur a servi de base pour ensuite enchaîner les études sur l'ablation laser du cuivre dans divers milieux à différentes pressions.

Aghaei et al [54] ont présenté un modèle constitué de deux parties principales, la première décrivant les effets thermiques dans le matériau dus à son irradiation par le rayonnement laser et une partie hydrodynamique décrivant la formation et l'expansion du plasma dans le gaz environnant, couplées par des bilans de masse et d'énergie et des conditions sur la couche de Knudsen à l'interface vapeur/matériau. L'hypothèse de l'équilibre thermodynamique est admise et dans ce cas là des équations de Saha-Eggert sont utilisées pour étudier la formation du plasma et son absorption du rayonnement laser par photoionisation et par l'effet Bremsstrahlung inverse qui sont à l'origine du plasma

shielding. Les radiations émises par le plasma par effet Bremsstrahlung et par rayonnement du corps noir et raies spectrales sont aussi examinées. Cette étude a été faite pour une impulsion nanoseconde à trois différentes longueurs d'ondes 510, 516 et 521 nm. La radiation du corps noir est le processus le moins important comparé à celui produit par effet Bremsstrahlung et à ceux dues aux émissions de raies spectrales. L'émission due Bremsstrahlung est la plus dominante au premiers instants de formation du plasma après c'est l'émission des raies spectrales qui prend le relais. Ces résultats peuvent être utilisés pour prédire le temps et la position optimales de l'émission des raies spectrales pour des applications telles que la LIBS.

Mehrabian et al [8] ont étudié l'effet de la pression (100, 500 et 760 torr) du gaz environnant (He) et l'intensité du rayonnement (0.5, 0.7 et 1 GW/cm^2) sur les radiations émises par le plasma ainsi que les processus d'ablation. Pareil que le modèle de Bogaerts ou celui de Claire, celui-ci est un modèle couplé constitué de deux parties, la première modélisant les effets thermiques dans le matériau et les différents changements de phases au moyen de l'équation de la chaleur et la deuxième modélisant la dynamique de la plume au moyen d'équations hydrodynamiques. Les deux parties du modèle sont couplées au moyen de la condition sur la couche de Knudsen et d'un bilan de masse et d'énergie à l'interface entre la cible et la vapeur. L'étude de l'impact de la pression du gaz ambiant sur le rayonnement émis par le plasma a révélé que juste après la fin de l'impulsion les radiations émises par le plasma sont principalement dues au rayonnement de freinage (Bremsstrahlung). Les radiations dues aux raies spectrales du cuivre n'apparaissent que plus tard dans le temps. Alors que le rayonnement de freinage est dominant auprès de la surface du matériau, plus on s'éloigne de celle-ci plus il devient facile de détecter les raies spectrales émises par le cuivre. L'augmentation de la pression du gaz environnant entraîne le retardement de l'émission des raies spectrales du cuivre et leur éloignement de la surface de la cible.

1.2.1.2 Équations de Navier-Stokes

Bogaerts et al [37,40] ont développé un modèle décrivant l'ablation laser d'une cible en cuivre dans un gaz d'hélium à pression atmosphérique, ils ont effectué une comparaison avec leur ancien modèle [4] qui décrivait l'ablation laser du cuivre dans le vide. Le modèle hydrodynamique qu'ils ont utilisé a été mis à jour pour prendre en compte la présence du gaz ambiant à travers des équations de Navier-Stokes. Cette étude a permis de démontrer que la présence d'un gaz environnant ralentit l'expansion du plasma et le refroidit.

Chen et al [39] ont également étudié l'expansion d'un plasma de cuivre dans un milieu environnant constitué d'hélium à pression atmosphérique, en utilisant le même modèle que Bogaerts et al [37,40] avec en plus la prise en compte de l'ionisation du gaz ambiant. Cette étude a permis de déterminer l'importance des taux d'absorption du rayonnement laser par le plasma via inverse Bremsstrahlung et photoionisation et d'évaluer la dominance de l'un et de l'autre en fonction du temps et de la position dans la plume.

Comme un complément pour le travail de Chen et al [39], Bogaerts et al [41] ont étudié l'effet des paramètres du rayonnement (longueur d'onde, fluence, durée d'impulsion) sur l'ablation laser d'une cible en cuivre dans un gaz environnant constitué d'hélium à pression atmosphérique, tout en prenant en compte l'ionisation du gaz ambiant.

En adoptant la même approche que Chen et al [39], Bogaerts et al [37] ont étudié l’ablation laser d’une cible en cuivre dans divers milieux environnants à savoir, l’hélium, néon, argon et azote. L’objectif de l’étude a été de mettre en évidence l’impact du milieu environnant sur les différents changements de phase de la cible ainsi que sur la formation et l’expansion du plasma. Leur travaux ont démontré que le degré d’ionisation, la température et la densité du plasma ne sont que faiblement affectés par la présence du gaz environnant même si ce dernier a un faible potentiel d’ionisation. Le plasma shielding n’est à son tour que légèrement affecté par le gaz environnant par contre en ce qui concerne les profondeurs ablatées leur calculs ont révélés qu’elles sont beaucoup plus importantes dans le cas de l’hélium.

1.2.2 Modèles basés sur le déséquilibre thermique

1.2.2.1 Modèles 0D

Liu et al [60] ont étudié au moyen d’un modèle cinétique 0D la formation d’un plasma à partir du claquage d’une vapeur de silicium par une impulsion laser KrF (193 nm) de durée d’impulsion de 40 ns pour des fluences de $6 J/cm^2$ et $30 J/cm^2$. Ce modèle prend en considération le déséquilibre entre les électrons et les ions ainsi que l’absorption du rayonnement par inverse Bremsstrahlung, la photionisation des états excités et l’excitation et ionisation par impacte électronique. Cette étude a permis de calculer le temps au bout duquel le processus d’ionisation peut commencer. Ils ont utilisé un modèle thermique pour déterminer le temps nécessaire pour l’évaporation du solide. Ce modèle permet de calculer le temps de claquage à partir de la somme des temps d’évaporation et d’ionisation.

Pietanza et al [61] ont présenté un modèle collisionnel-radiatif 0D pour étudier un plasma métallique (aluminium) induit par laser sous des conditions expérimentales de la LIBS. Cette approche étudie l’importance et la hiérarchie des processus élémentaires ainsi que la déviation de ces plasmas de l’équilibre thermodynamique local. Le modèle a été validé en comparant les taux d’ionisation et d’excitation qu’il prédit à des valeurs expérimentales.

Afin d’étudier le claquage optique d’une vapeur métallique, Mazhukin et al [62] ont développé un modèle cinétique 0D hors équilibre pour décrire l’interaction d’une impulsion laser d’une intensité comprise entre 10^6 - $10^{10} W/cm^2$ à $1.06 \mu m$ avec une vapeur de cuivre. Cette étude prend en compte la présence dans le plasma induit par laser des espèces neutres Cu, une fois ionisés Cu^+ et deux fois ionisés, Cu^{2+} sujets à des processus cinétiques d’excitation/désexcitation et ionisation/recombinaison à trois corps. Cette étude a permis de démontrer l’importance de la prise en compte du déséquilibre thermodynamique dans l’étude de l’interaction des impulsions laser avec les vapeurs en cuivre. Le déséquilibre est présent car l’absorption de l’énergie du rayonnement par les électrons se fait plus rapidement que et l’échange d’énergie avec les particules lourdes. En utilisant la même approche, Mazhukin et al [63] ont examiné l’influence de la structure électronique des atomes sur les seuils d’allumage dans des vapeurs métalliques.

Mazhukin et al [58] examinent le claquage optique induit par un rayonnement laser ultraviolet dans une vapeur d’aluminium au moyen d’un modèle collisionnel-radiatif. Ce travail examine l’évolution d’un plasma hors-équilibre induit par un rayonnement laser ultraviolet et la variation des seuils de claquage en fonction de la longueur d’onde du

rayonnement. Les mécanismes de base de l'ionisation hors-équilibre sont examinés et les rôles des processus de photoexcitation et photoionisation sont mis en évidence. Les résultats sont en bon accord avec les résultats expérimentaux étudiant le claquage optique des vapeurs d'aluminium avec des lasers excimer dans les régimes nano et microseconde.

Morel et al [56] présentent un modèle collisionnel radiatif 0D hors équilibre, pour étudier les premiers instants de formation d'un plasma d'aluminium dans le vide, induit par une impulsion laser de 4 ns de durée à 532 nm avec une énergie de 65 mJ. Ce modèle compare l'importance du processus d'ionisation multiphotonique à celui du Bremsstrahlung inverse, ce dernier s'est révélé être négligeable devant l'ionisation multiphotonique à laquelle est attribué l'augmentation de la température des électrons.

1.2.2.2 Modèles 1D

Bulgakova et al [64] ont présenté une étude de l'interaction d'un plasma induit par laser avec le gaz environnant, avec un modèle hydrodynamique basé sur les équations d'Euler. Ce modèle a été développé pour décrire l'évolution spatiale et temporelle de la plume en expansion dans un gaz à une pression de quelques Pascal en tenant compte du déséquilibre thermique entre les électrons et les espèces lourdes. Cette étude a été appliquée à la déposition en couche mince d'un superconducteur $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ dans un milieu environnant composé d'oxygène.

Parisse et al [43] ont utilisé un modèle hydrodynamique basé sur les équations d'Euler pour simuler l'expansion d'un plasma de silicium induit par une impulsion nanoseconde à 193 nm, dans un gaz environnant constitué d'hélium ou d'argon, à pression variable, en prenant en compte le déséquilibre thermique entre les électrons et les espèces lourdes.

Bulgakova et al [36] analyse différents aspects des plasmas induits par laser hormis le plasma shielding. Cette étude prend en compte l'ionisation du gaz ambiant ainsi que le chauffage additionnel de la cible par les radiations émises par le plasma et le gaz environnant.

1.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présentés l'essentiel de ce qu'il faut savoir sur la physique de l'interaction laser-matière y compris les modèles les plus importants dans ce domaine. En ce qui concerne l'interaction d'une impulsion laser avec une cible solide, celle-ci est étudiée via des modèles thermiques basés sur l'équation de la chaleur. Ces modèles décrivent les différents mécanismes de l'absorption de l'énergie du rayonnement laser par la cible et les divers changements de phase qu'ils produisent. Il existe des différences notables entre l'ensemble des modèles thermiques présents dans la littérature, notamment dans la prise en compte de l'absorption en volume et la pénétration du rayonnement dans la cible, la variation ou non des propriétés optiques et/ou thermophysiques du matériau en fonction de la température et surtout les conditions aux limites considérées. Selon la durée de l'impulsion ces modèles prennent en compte le déséquilibre thermique entre les électrons et le réseau du matériau. Quand les conditions de l'interaction permettent la formation d'une vapeur et par la suite la création d'un plasma au-dessus de la surface de la cible, les modèles thermiques doivent être couplés à des modèles hydrodynamiques

ou cinétiques qui tiennent compte de l'absorption du rayonnement par le panache et son expansion dans le milieu environnant. La nature du milieu environnant ainsi que sa pression influent sur les résultats de l'interaction et doivent également être pris en compte. Bien que la majorité des modèles des plasmas induits par laser sont basés sur l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local où les électrons et les espèces lourdes sont supposés avoir la même température, nous avons évoqué la présence d'un certain nombre de contributions qui ont mis en évidence la nécessité de la prise en compte du déséquilibre entre les électrons et les espèces lourdes dans la modélisation des plasmas induits par laser. Deux principaux mécanismes sont responsables de l'absorption du rayonnement laser par le plasma à savoir la photoionisation et le Bremsstrahlung inverse. Il existe une large variété de coefficients qui permettent d'évaluer la contribution de l'effet de Bremsstrahlung inverse dans l'absorption du rayonnement par le plasma induit par laser. Il est à remarquer que tous les modèles qui existent dans la littérature n'utilisent pas nécessairement les mêmes.

Toutes ces différences font que jusqu'à présent il n'existe pas de modèle général capable de prendre en compte les différents aspects de l'interaction. La modélisation de l'ablation laser reste donc un domaine de recherche très actif ayant encore besoin de nouvelles contributions qui permettent de mieux comprendre sa phénoménologie. C'est ce que nous proposons de faire dans les deux chapitres suivants.

Bibliographie

- [1] I. M. Popescu M. Stafe, C. Negutu. Combined experimental and theoretical investigation of multiple-nanosecond laser ablation of metals. *Journal of optoelectronics and advanced materials*, 8(3) :1180 – 1186, 2006.
- [2] J. Lu Z. H. Shen, S. Y. Zhang and X. W. Ni. Mathematical modeling of laser induced heating and melting in solids. *Opt. Laser Technol*, 33 :533–537, 2001.
- [3] N.A. Vasantgadkar U.V. Bhandarkar S.S. Joshi. A finite element model to predict the ablation depth in pulsed laser ablation. *Thin solid films*, 519 :1421–1430, 2010.
- [4] A.Bogaerts Z.Chen R.Gijbels A.Vertes. laser ablation for analytical simpling, what can we learn from modeling? *Acta Part B Atom Spectrosc*, 58 :1867–1893, 2003.
- [5] R.Fang D.Zhang Z.Li F.Yang L.Li X.Tan M.Sun. improved thermal model and its application in uv high -power pulsed laser ablation of metal target. *Elsevier.*, 2008.
- [6] Z. Li L. Guan X. Tan R. Fang D. Hu G. Liu L. Li, D. Zhang. The investigation of optical characteristics of metal target in high power laser ablation. *Physical B*, 383 :194–201, 2006.
- [7] G. Clair D.L'Hermite. 1d modeling of nanosecond laser ablation of copper samples in argon at p=1 atm with a wavelength of 532 nm. *Journal of applied physics*, 110 :083307, 2011.
- [8] S.Mehrabian M.Aghaei S.H. Tavassoli. Effect of background gas pressure and laser pulse intensity on laser induced plasma radiation of copper samples. *Physics of Plasmas*, 17(043301), 2010.
- [9] A. Aitoumeziane B.Liani J.D. Parisse. Theoretical and numerical study of the interaction of a nanosecond laser pulse with a copper target for laser-induced breakdown spectroscopy applications. *J. Opt. Soc. Am. B*, 31(1) :53–61, 2014.
- [10] D.Bäuler. Laser processing and chemistry. 2011.

- [11] M.E. Fermann A. Galvanauskas G.Sucha. *Ultrafast lasers : Technology and applications*. Marcel Dekker, New York, 2003.
- [12] H. Jacobs S. Nolte, C. Momma, * B. Welleghausen A. Tünnermann B. N. Chichkov, and H. Welling. Ablation of metals by ultrashort laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B/Vol. 14, No. 10/October 1997*, 14(10), 1997.
- [13] O.Barthelemy M.Chaker B.L.Drogoff J.Margot M.Sabsabi S.Laville F.Vidal T.W.Johnson. Fluid modeling of the laser ablation depth as a function of the pulse duration for conductors. *Physical Review E*, 66 :066415, 2002.
- [14] Michael Schmidt Karl-Heinz Leitz, Benjamin Redlingshöfer Yvonne Regc Andreas Ottoa. Metal ablation with short and ultrashort laser pulses. *Physics Procedia 12, 12 :230–238*, 2011.
- [15] Surya N. Thakur Jagdish P. Singh. *laser induced breakdown spectroscopy*. Elsevier, 2007.
- [16] J.Javier Laserna José M.Vadillo. Laser-induced plasma spectroscopy : truly a surface analytical tool. *Spectrochimica Acta Part B*, 59 :147–161, 2004.
- [17] Guillaume Gallou. *Etude et optimisation de la spectroscopie sur plasma induit par laser pour le suivi en continu des polluants émis par les sources fixes*. PhD thesis, Ecole Polytechnique Palaiseau, 2010.
- [18] David A. Willis Xianfan Xu. Heat transfer and phase change during picosecond laser ablation of nickel. *international journal of heat and mass transfer*, 45 :3911–3918, 2002.
- [19] R.E.Russo X.L.Mao H.C.Liu J.H.Yoo and S.S.Mao. *Appl. Phys.A*, 69 :887, 1999.
- [20] S.S.Mao X.Mao R.Greif and R.E.Russo. *Appl. Phys. Letts*, 77 :2464, 2000.
- [21] Yug C.Shin Benxin Wu. A simple model for high fluence ultra-short pulsed laser metal ablation. *Applied surface science*, 253 :4079–4084, 2007.
- [22] A.F. Hassan N.M. El-Nicklawy M.K.El-Adawi A.A. Hemida. A general problem of pulse laser heating of a slab. *Optics and Laser Technology*, 25(3) :155–162, 1992.
- [23] Z.H.Shen S.Y.Zhang J.Lu X.W.Ni. Mathematical modeling of laser induced heating and melting in solids. *Optics and Laser Technology*, 33 :533–537, 2001.
- [24] E.F Shehawey M.K.El-Adawi. Heating a slab induced by a time dependent laser irradiation, an exact solution. *J.App.Phys*, 60(7) :2250–2255, 1986.
- [25] J.H Carlslaw J.C Jaeger. *Conduction of heat in solids*. Claredon, Oxford, 1959.
- [26] N.M. El-Nicklawy A.F.Hassan S.E.S Abd El-Ghany. On melting a semi-infinite target using a pulsed laser. *Optics and laser technology*, 32 :157–164, 2000.
- [27] M.K. El-Adawi H.A. Al-Fanakh. Laser heating of a finite silver selenide slab. *Optics and laser technology*, 49 :231–236, 2013.
- [28] M.K. El-Adawi M.A. Abdel-Naby S.A.Shalaby. Laser heating of a two-layer system with constant surface absorption : an exact solution. *International Journal of Mass and Heat transfer*, 38(5) :947–952, 1995.
- [29] M.K. El-Adawi S.A.Shalaby M.A. Abdel-Naby. Laser heating of a two-layer system with temperature dependent front surface absorptance. *Vacuum*, 46(1) :37–42, 1995.
- [30] M.K. El-Adawi S.A.Shalaby S.S.Mostafa M.F.Kotkati. Laser thermal response of a finite slab as a function of the laser pulse parameters. *Optics and laser technology*, 39 :424–429, 2007.

- [31] S.E.S Abd El-Ghany. A theoretical study of the evaporation induced by a pulsed laser in a finite slab. *Optics communications*, 282 :284–290, 2009.
- [32] M.Necati Özisik. *boundary value problems of heat conduction*. International text book company Scranton Pennsylvania, 1968.
- [33] S.E.S Abd El-Ghany. A theoretical study on the melting of a finite slab with a pulsed laser. *Optik*, 21 :890–897, 2011.
- [34] J.F.Ready. Effets due to absorption of laser radiation. *Journal of Applied Physics*, 36 :462, 1965.
- [35] Saleem Hashmi, editor. *Comprehensive materials processing*. Elsevier, 2014.
- [36] Nadezhda M. Bulgakova Alexei N. Panchenko Vladimir P. Zhukov Sergey I. Kudryashov Antonio Pereira Wladimir Marine Tomas Mocek Alexander V. Bulgakov. Impacts of ambient and ablation plasmas on short- and ultrashort-pulse laser processing of surfaces. *Micromachines*, 5, 2014.
- [37] A. Bogaerts Z.Chen D.Bleiner. Laser ablation of copper in different background gasses : comparative study between numerical modeling and experiments. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 21 :384–395, 2006.
- [38]
- [39] Z.Chen A. Bogaerts. Laser ablation of cu and plume expansion into 1 atm ambient gas. *Journal of applied physics*, 97 :063305, 2005.
- [40] A. Bogaerts Z.Chen. Nanosecond laser ablation of cu : modeling of the expansion in the background gas, and comparison with expansion in vacuum. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 19 :1169–1176, 2004.
- [41] A. Bogaerts Z.Chen. Effect of laser parameters on laser ablation and laser induced plasma formation : A numerical modeling investigation. *Spectrochimica Acta Part B*, 60 :1280–1307, 2005.
- [42] G. Kothandaraman A.N. Pirri D.I. Rosen, J. Mitteldorf and E.R. Pugh. Coupling of pulsed 0.35 micrometer laser radiation to aluminum alloys. *J. Appl. Phys*, 53(4) :3190, 1982.
- [43] J.D. Parisse M. Sentis D.E.Zeitoun. Modeling and numerical simulation of laser matter interaction and ablation with 193 nanometer laser for nanosecond pulse. *International Journal of Numerical Methods for Heat and Fluid Flow*, 21 :73 – 94, 2011.
- [44] V.Alexiades D.Autrique. Enthalpy model for heating, melting and vaporization in laser ablation. *Electronic Journal of differential equations*, 19(1-14), 2010.
- [45] Nouari Chaoui. *Ablation laser d’oxydes : apport de la spectrométrie de masse à la compréhension des mécanismes délaboration de films minces*. PhD thesis, Université de Metz, 1998.
- [46] R.Kelly. On the dual role of the knudsen layer and unsteady, adiabatic expansion in pulse sputtering phenomena. *J. Chem. Phys*, 92 :5047–5056., 1990.
- [47] A. Peterlongo A.Miotello R. Kelly. *Phys Rev E*, 50(161), 1996.
- [48] Tatiana Itina. Etudes des mécanismes d’interaction d’un laser impulsif avec des matériaux : application à la synthèse de nano agrégats, 2011.
- [49] M. Stafe C. Negutu I.M.Pospescu. Combined experimental and theoretical investigation of multiple-nanosecond laser ablation of metals. *journal of optoelectronics and advanced materials*, 8(3) :1180–1186, 2006.

- [50] N.M. Bulgakova A.B. Evtushenko Y.G. Shukhov S.IKudryashov A.V. Bulgakov. Role of laser-induced plasma in ultradeep drilling of materials by nanosecond laser pulses. *App. Surf. Sci*, 257 :10876–10882, 2011.
- [51] Andreas Otto Stefan Tatra, Rodrigo Gómez Vázquez. Computational study on the effect of the pulse length on laser ablation processes. *Lasers in Manufacturing Conference*, 2015.
- [52] M. Dell’Aglío S. Legnaioli E. Tognoni V. Palleschi N. Omenetto G. Cristoforetti, A. De Giacomo. Local thermodynamic equilibrium in laser-induced breakdown spectroscopy : Beyond the mcwhirter criterion. *Spectrochimica Acta Part B*, 65 :86–95, 2010.
- [53] R.Gaudisuo S.Amoruso O. De Pascale A. De Giacomo, M. Dell’Aglío. Effects of background environment on formation, evolution and emission spectra of laser-induced plasmas. *Spectrochimica Acta Part B*, 78 :1–9, 2012.
- [54] M.Aghaei S.Mehrabian S.H. Tavassoli. Simulation of nanosecond pulsed laser ablation of copper samples : a focus on laser induced plasma radiation. *Journal of applied physics*, 104(053303), 2008.
- [55] Ya. B. Zel’dovitch and Yu. P. Raizer. *Physics of Shock Waves and High Temperature Hydrodynamics Phenomena*. 1966.
- [56] V. Morel A.Bultel B.G.Chéron. Modeling of thermal and chemical non-equilibrium in a laser-induced aluminum plasma by means of a collisional-radiative model. *Spectrochim.Acta.B*, 65 :830–841, 2010.
- [57] C. Boulmer-Leborgne A.L. Thomann and B. Dubreuil. A contribution to the understanding of the plasma ignition mechanism above a metal target under uv laser irradiation. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 6 :298–306, 1997.
- [58] V.V.Nossov V.I.Mazhukin and I.Sumorov M.G.Nickiforov. Optical breakdown on aluminum vapor induced by ultraviolet laser radiation. *Journal of applied physics*, 93(1), 2003.
- [59] A.Vertes L.Balazs, R.Gijbels. Expansion of laser-generated plumes near the plasma ignition threshold. *Anal. Chem*, 63 :314–320, 1991.
- [60] C.L. Liu J.N. Leboeuf R.F.Wood D.B.Geohegan. Vapor breakdown during ablation by nanosecond laser pulses. *Mat.Res.Soc.Symp.Proc.Vol.388*, page 388, 1995.
- [61] L.D.Pietanza G.Colonna A.De Giacomo M.Capitelli. Kinetic processes for laser induced plasma diagnostic : A collisional-radiative model approach. *Spectrochimica Acta Part B*, 65 :616–626, 2010.
- [62] V.I.Mazhukin I.V.Gusev I.Smurov and G.Flamant. Laser-induced breakdown of metal vapor. *Microchemical journal*, 50(1) :413–433, 1994.
- [63] V.I.Mazhukin I.V.Gusev I.Smurov and G.Flamant. The influence of the electron structure of atoms shells on characteristi of optical breakdown in metal vapour. *Applied surface science*, 96(98) :82–88, 1995.
- [64] A.V. Bulgakov and N.M. Bulgakova. Dynamics of laser induced plume expansion into an ambient gas during film deposition. *J. Phys. D : Appl. Phys*, 28 :1710–1718, 1995.
- [65] H.C.Le D.E.Zeitoun J.D.Parisse M.Sentis W.Marine. Modeling of gas dynamics for a laser generated plasma : Propagation into low pressure gases. *Physical Review E*, 2562(3) :4152–4161, 2009.

Modélisation

Sommaire

2.1	Introduction	57
2.2	Interaction laser-cible	57
2.2.1	Hypothèses	57
2.2.2	Modèle	58
2.2.3	Méthode numérique	60
2.3	Chauffage de la plume et formation du plasma	61
2.3.1	Hypothèses :	61
2.3.2	Modèle	63
2.3.3	Méthode numérique	74
2.4	Conclusion	75
	Bibliographie	75

2.1 Introduction

Rappelons que lorsqu'un solide est irradié par une impulsion laser, l'énergie d'agitation thermique de ses électrons libres augmente au fur et à mesure qu'ils absorbent l'énergie électromagnétique véhiculée par le rayonnement. Cette énergie acquise par les électrons est ensuite transmise au réseau. Selon la durée de l'impulsion, et le temps caractéristique de relaxation électron-phonon du matériau, un équilibre thermique peut ou ne pas s'établir entre les électrons et le réseau cristallin du matériau [1].

Si l'énergie absorbée est suffisante pour permettre de rompre les liaisons interatomique du réseau, la zone thermiquement affectée par le rayonnement pourra fondre et ainsi subir un changement de phase.

Quand l'énergie du rayonnement excède un certain seuil, la matière s'évapore et le processus d'ablation débute. En absorbant l'énergie du rayonnement laser et à partir d'un certain seuil aussi, un plasma pourra être créé au dessus de la surface du matériau.

Une fois créée, le plasma réduit la quantité du rayonnement qui atteint la surface de la cible, en absorbant un certain taux de l'énergie incidente, ce processus est communément appelé "écranage plasma" (plasma shielding) [2-4]. L'absorption du rayonnement par le plasma se fait principalement au moyen de la photoionisation et du Bremsstrahlung inverse [3]. L'expansion du plasma dans un gaz environnant pourrait éventuellement provoquer des ondes de choc [5].

Nous consacrons ce chapitre à la présentation de notre modèle mathématique dédié à la description de ces différentes phases de l'interaction d'une impulsion laser avec des cibles métalliques.

Le type d'approche que nous allons présenter a été initialement développé par Parisse et al [5, 6] dans le cadre de leurs études sur l'interaction d'impulsions laser ultraviolettes nanosecondes avec du silicium cristallin et son application pour le dépôt des couches minces par impulsions laser (PLD : pulsed laser deposition). Nous avons modifié ce modèle pour qu'il s'adapte au cas des métaux et nous l'avons amélioré de telle sorte qu'il puisse prendre en compte, la présence des espèces doublement ionisées dans le plasma.

2.2 Interaction laser-cible

Avant de présenter les équations sur les quelles notre modèle thermique est basé, nous définissons d'abord les diverses hypothèses que nous avons admises, concernant notre système, y compris les caractéristiques du rayonnement, les propriétés du rayonnement et la manière dont ce dernier se comporte vis-à-vis de l'impulsion et du plasma formé au dessus de sa surface.

2.2.1 Hypothèses

Les Hypothèses qui régissent la partie de notre modèle décrivant l'interaction de la cible avec l'impulsion laser sont les suivantes :

1. Les caractéristiques du rayonnement et les propriétés thermophysiques du matériau sont supposées vérifier la condition de validité d'une approche unidimensionnelle.
2. Les durées des impulsions sont largement plus grandes que les temps caractéristiques de relaxation des matériaux, un équilibre thermique entre les électrons et le réseau est donc supposé être présent.

3. Les propriétés thermophysiques du matériau dépendent uniquement de sa phase.
4. Les propriétés optiques du matériau dépendent uniquement de la longueur d'onde du rayonnement.
5. L'absorption du rayonnement par la cible à lieu non seulement en surface mais également en volume de la cible.
6. La vitesse de récession n'est pas fixée, ce qui se passe après l'évaporation de la cible est géré par la deuxième partie du modèle.
7. L'interaction plasma-cible n'est pas prise en compte.

2.2.2 Modèle

A fin de décrire les effets thermiques qui résultent de l'absorption de l'impulsion laser par la cible, à savoir la conduction de la chaleur et les divers changements de phases susceptibles d'avoir lieu durant l'interaction, nous utilisons une formulation enthalpique unidimensionnelle de l'équation de la chaleur qui peut être écrite comme suit [6] :

$$\frac{\partial H}{\partial t} = \frac{\partial(\kappa \frac{\partial T}{\partial x})}{\partial x} + S_q \quad (2.1)$$

où H , T , κ représentent l'enthalpie, la température et la conductivité thermique du matériau. x et t sont la position au sein de la cible à partir de la surface et le temps.

L'enthalpie H est définie par $H = \rho C_p T$ avec ρ et C_p la densité massique et la chaleur spécifique à pression constante du matériau respectivement.

Le terme source S_q représente le chauffage induit par le laser et est donné par :

$$S_q = \alpha_0 I(x, t) \quad (2.2)$$

où α_0 est le coefficient d'absorption du matériau et $I(x, t)$ l'intensité du rayonnement transmise dans la cible à une distance x de sa surface au temps t .

L'équation (2.1) qui est valide aussi bien dans la phase solide que liquide du matériau, obéit aux conditions aux limites suivantes :

A l'instant initial

$$T(t = 0s) = 300K \quad (2.3)$$

A la surface du matériau

$$\left(\frac{\partial T}{\partial x}\right)_{x=0} = 0 \quad (2.4)$$

A travers cette condition nous traduisons l'absence de flux d'énergie ou de particules au niveau de la surface, du moins jusqu'à ce que l'évaporation débute.

Au delà d'une certaine distance x_f que nous prenons suffisamment grande par rapport à la profondeur de diffusion de la chaleur dans le matériau, ce dernier n'est plus affecté par les effets thermiques dues à l'absorption du rayonnement, ce qui se traduit par la condition aux limites suivante :

$$T(x_f) = 300K \quad (2.5)$$

L'absorption du rayonnement laser par la cible qui est représentée par le terme source S_q , dépend du coefficient d'absorption du matériau et de l'intensité du rayonnement transmise au sein de la cible. L'évolution de cette dernière à une profondeur x et à un temps t est donnée par la loi de Beer-Lambert [7]

$$I(x, t) = (1 - R).I_0(t).e^{-\alpha_0.x} \quad (2.6)$$

Avec R la reflectivité du matériau et $I_0(t)$ le profil temporel de l'impulsion.

Dans la plus part des travaux sur la modélisation de l'interaction laser-matière la variation temporelle de la densité de puissance de l'impulsion laser est considérée comme étant idéalement Gaussienne [2, 3, 5, 8–15, 29]. Le profil que nous avons donc considéré pour notre étude est donné comme suit :

$$I_0(t) = I_0 \exp\left(-\frac{(t - \tau_p)^2}{2\zeta^2}\right) \quad (2.7)$$

I_0 , τ_p et ζ^2 sont l'intensité maximale du rayonnement incident, le temps au bout duquel l'intensité du rayonnement atteint son maximum et la largeur à mi-hauteur du profil respectivement.

Travailler avec des enthalpies au lieu des températures nous permet de ne pas avoir de difficultés à gérer les divers changements de phases qui apparaissent durant l'interaction du rayonnement laser avec la cible (fusion, évaporation). Pour ce faire nous travaillons avec un diagramme de phase (2.2) qui nous permet de déterminer la température de la cible (solide/liquide/gaz) à partir de son enthalpie.

La température d'ébullition qui dépend de la pression du gaz au dessus de la surface de la cible, elle est donnée par l'équation de Clausius-Clapeyron :

$$T_{eb} = \left(\frac{1}{T_0} - \frac{\ln \frac{P_S}{P_0}}{\Delta h} \right) \quad (2.8)$$

où T_0 , P_0 , P_S et Δh représentent la température d'ébullition à pression atmosphérique, la pression atmosphérique, la pression de la vapeur exercée à la surface de la cible et la chaleur latente de vaporisation respectivement.

Grâce à ce modèle d'interaction laser-matière, nous pouvons simuler la première phase du processus d'ablation laser. Pour faire le lien avec la deuxième phase qui correspond à la création du plasma, il ne nous reste plus qu'à déterminer le débit massique de matière ablatée :

$$\dot{m} = \rho_{liq} \left(\frac{dx}{dt} \right)_{evap} \quad (2.9)$$

où $\left(\frac{dx}{dt} \right)_{evap}$ est la variation en fonction du temps de la profondeur ablatée et ρ_{liq} la densité du liquide au niveau de la surface de la cible.

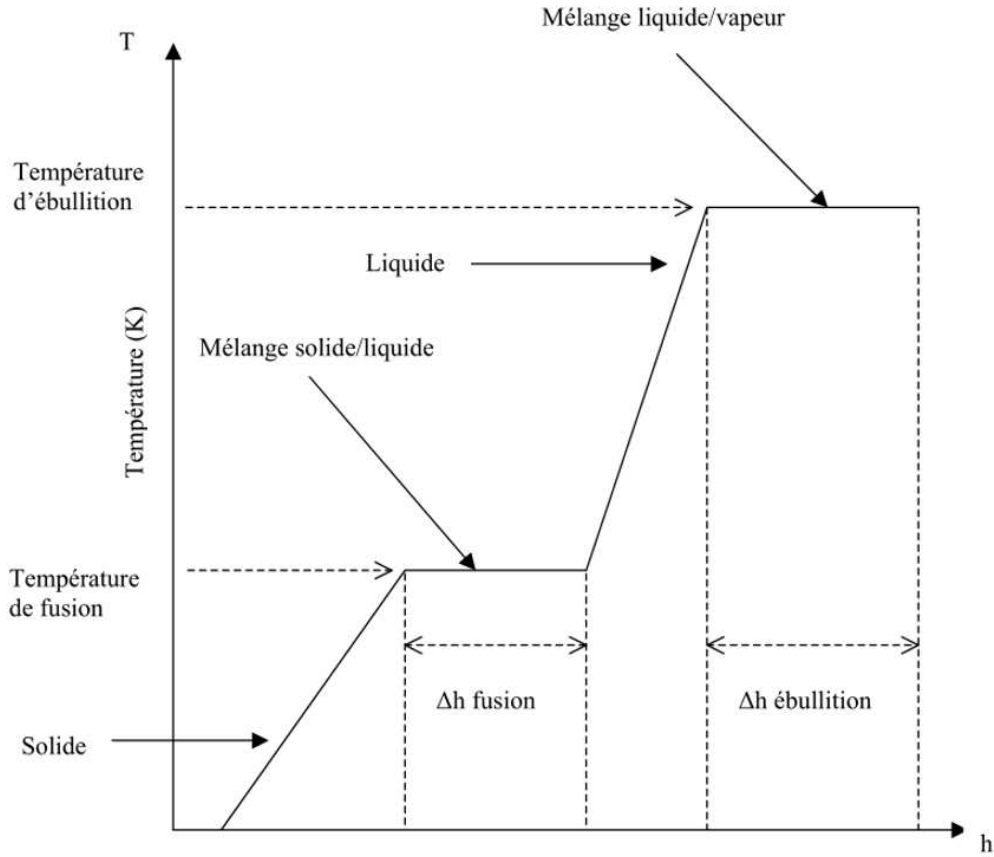


FIGURE 2.1 – Diagramme d'état d'un corps pur [6]

2.2.3 Méthode numérique

Afin de résoudre notre modèle thermique, nous utilisons :

- Pour la discrétisation spatiale : un schéma aux différences finies centré d'ordre 2.
- Pour la discrétisation temporelle : un schéma explicite à l'ordre 1.

Les dérivées partielles sont discrétisées comme suit :

$$\frac{\partial U}{\partial x} = \left(\frac{1}{\Delta x_i} - \frac{1}{\Delta x_{i+1}} \right) U_i + \frac{1}{\Delta x_i + \Delta x_{i+1}} \left(\frac{\Delta x_i}{\Delta x_{i+1}} U_{i+1} - \frac{\Delta x_{i+1}}{\Delta x_i} U_{i-1} \right) \quad (2.10)$$

$$\frac{\partial^2 U}{\partial x^2} = \frac{2}{\Delta x_i + \Delta x_{i+1}} \left(\frac{U_{i+1}}{\Delta x_{i+1}} + \frac{U_i}{\Delta x_i} \right) - \frac{2}{\Delta x_i \Delta x_{i+1}} U_i \quad (2.11)$$

La discrétisation temporelle en un point i du maillage à un instant $t + \Delta t$ s'effectue comme suit :

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{U_i^{t+\Delta t} - U_i^t}{\Delta t} \quad (2.12)$$

Le critère de stabilité à respecter pour déterminer le pas de temps est donné par :

$$\frac{\Delta t}{\Delta x^2} \leq \frac{1}{2\chi} \quad (2.13)$$

Rappelons que χ est la diffusivité thermique du matériau et est donnée par l'équation (1.2).

Nous choisissons la taille et le pas d'espace de notre domaine en tenant compte de la longueur caractéristique de pénétration du laser dans la cible (l_{α_0} qui rappelons le est l'inverse du coefficient d'absorption du matériau) et de la longueur de diffusion de la chaleur dans le matériau (l_T). Le pas d'espace est choisi inférieur ou égale à l_{α_0} ($\Delta x = 10^{-6} \text{ cm}$), tandis que la taille totale de notre domaine est prise supérieure à (l_T) ($5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$) et ceci pour que la condition (2.5) soit valide.

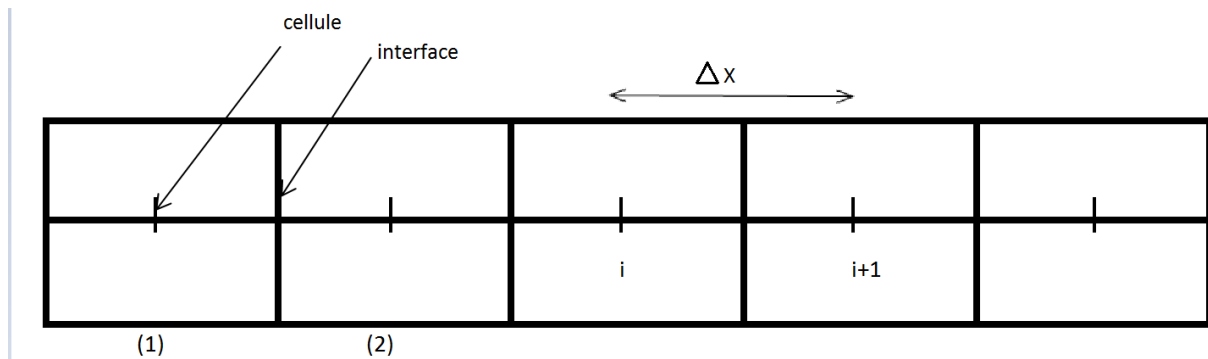


FIGURE 2.2 – Discrétisation spatiale [6]

2.3 Chauffage de la plume et formation du plasma

La matière évaporée qui se forme au dessus de la surface de la cible absorbera un certain taux de l'énergie résultante de l'impulsion laser, si cette dernière est suffisante la vapeur peut devenir ionisée, et un plasma pourra alors être formé. Le plasma induit, absorbera à son tour une partie de l'énergie du rayonnement incident et aura tendance à s'étendre en direction de celui-ci perpendiculairement à la surface de la cible.

Avant de présenter les équations qui régissent le chauffage de la plume, la formation du plasma et son expansion dans le milieu environnant, nous énumérons les différentes hypothèses sur lesquelles se base notre description du problème, notamment la manière dont le plasma est formé et les caractéristiques du fluide qui le représente.

2.3.1 Hypothèses :

1. Les électrons primaires sont formés au sein de la vapeur par photoionisation et ionisation par impact électronique des espèces lourdes à partir d'un état intermédiaire excité.
2. Le plasma est assimilé à un fluide
 - Continu
 - Compressible
 - Non visqueux
3. L'écoulement du fluide est
 - unidimensionnel
 - instationnaire

- non soumis aux forces de pesanteur
4. Le plasma est assimilé à un mélange gazeux constitué tout au plus de six espèces
 - A : espèces neutres
 - A^* : espèces neutres excitées
 - A^+ : espèces une fois ionisés
 - A^{2+} : espèces deux fois ionisés
 - e^- : électrons libres
 - G_e : gaz environnant.
 5. Chaque constituant du mélange gazeux est supposé suivre la loi des gaz parfaits.
 6. Les constituant du mélange vérifient la lois de quasi-neutralité.
 7. Il existe un déséquilibre thermique entre les électrons et les espèces lourdes.

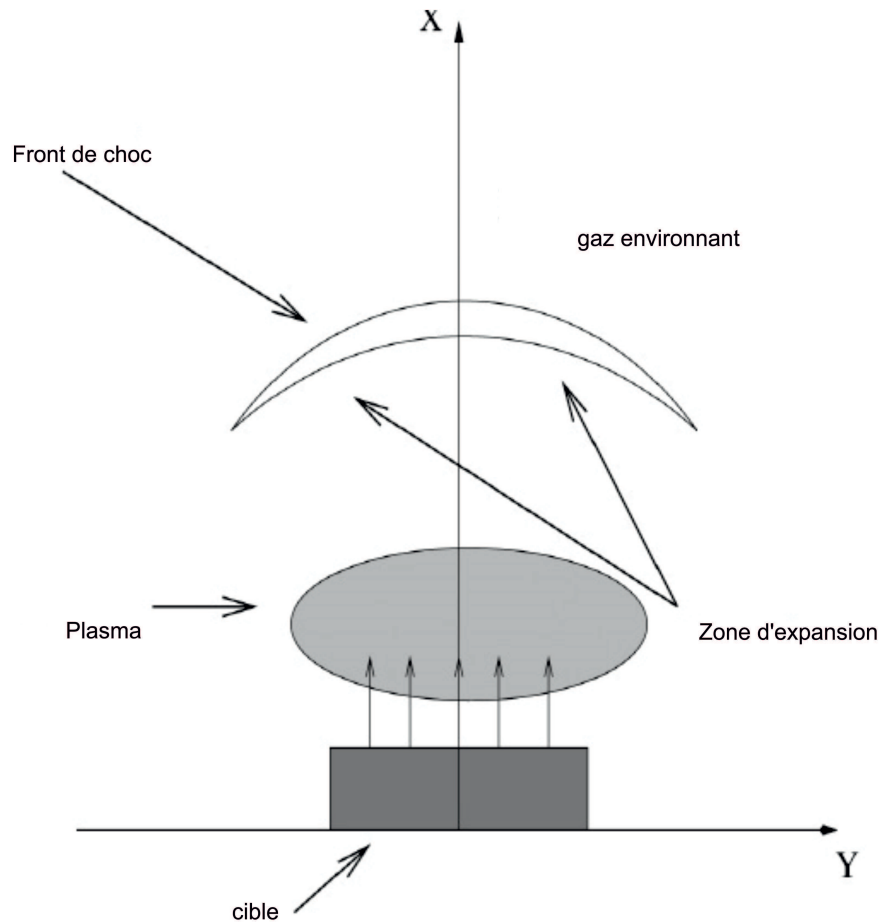


FIGURE 2.3 – Schéma représentatif de l'expansion du plasma dans le milieu environnant [5]

L'hypothèse 1D est valide car nous étudions seulement l'évolution de la plume à court terme. La distance sur laquelle s'étend le plasma suivant l'axe des x durant cet intervalle

est très petite comparée avec le rayon du spot de l'impulsion, qui varie entre 0.05 et 2 mm [16]. Si nous étendons notre étude au delà de l'intervalle temporel auquel nous limitons dans nos simulations, l'expansion du plasma ne pourra plus être assimilée à phénomène unidimensionnel. Afin de correctement la décrire nous devrions alors coupler cette partie de notre modèle à une autre de dimension supérieure (minimum 2D) [17, 18].

2.3.2 Modèle

Dans cette section nous présentons les différentes équations de la partie de notre modèle consacrée à la description de la formation et l'expansion du plasma dans un gaz ambiant.

2.3.2.1 Équations hydrodynamiques

L'évolution du plasma est gouvernée par des équations d'Euler qui expriment la conservation de masse (2.14), de quantité de mouvement (2.15) et d'énergie (2.16) [5, 19].

Ces équations s'écrivent comme suit :

- L'équation de conservation de la matière :

$$\frac{\partial \rho_i}{\partial t} + \frac{\partial \rho_i u}{\partial x} = \omega_i \quad (2.14)$$

- L'équation de conservation de la quantité de mouvement

$$\frac{\partial \rho u}{\partial t} + \frac{\partial (\rho u u + P)}{\partial x} = 0 \quad (2.15)$$

- L'équation de conservation de l'énergie des particules lourdes :

$$\frac{\partial E}{\partial t} + \frac{\partial (uE + uP_i)}{\partial x} = \omega_E \quad (2.16)$$

- L'équation de conservation de l'énergie des électrons :

$$\frac{\partial E_e}{\partial t} + \frac{\partial (uE_e)}{\partial x} = \omega_{E_e} - P_e \frac{\partial u}{\partial x} \quad (2.17)$$

ρ_i étant la densité partielle de l'espèce i . Dans un premier temps nous nous intéressons à un plasma qui contient cinq espèces avec $i=1 : A$, $i=2 : A^*$, $i=3 : A^+$, $i=4 : G_e$, $i=5 : e^-$.

u , P , P_i , P_e , E et E_e sont la vitesse de la plume, la pression du mélange gazeux, la pression partielle de l'espèce i , la pression électronique, l'énergie des espèces lourdes et l'énergie électronique respectivement.

ω_i , ω_E et ω_{E_e} représentent le terme source de l'espèce i , le terme source de l'énergie des espèces lourdes et le terme source de l'énergie électronique respectivement.

x est la position sur laquelle la plume s'étend dans le gaz environnant et le temps au bout duquel la plume se trouve à la position x .

Puisque chaque espèce contenue dans le plasma est supposée suivre la lois des gaz parfaits, sa pression partielle est donnée par :

$$P_i = \rho_i \frac{\mathfrak{R}}{\mathcal{M}_i} T \quad (2.18)$$

pour les espèces lourdes (i variant de 1 jusqu'à 4) et par :

$$P_e = \rho_e \frac{\mathfrak{R}}{\mathcal{M}_e} T_e \quad (2.19)$$

pour les électrons.

Avec \mathcal{M}_i la masse molaire de l'espèce i et \mathfrak{R} , la constante des gaz parfaits. Notons que $\mathcal{M}_1 = \mathcal{M}_2 = \mathcal{M}_3 = \mathcal{M}$

La température T des espèces lourdes est déterminée à partir de leur énergie qui s'écrit comme suit :

$$E = \sum_{i=1:3} \rho_i (C_v + \frac{1}{2}u^2 + H_i) \quad (2.20)$$

La température T_e des électrons est déduite à partir de leur énergie qui s'écrit comme suit :

$$E_e = \frac{\rho_e}{2} (3 \frac{\mathfrak{R}}{\mathcal{M}_e} + u^2) \quad (2.21)$$

Avec C_v et H_i la chaleur spécifique massique à volume constant associée à la translation de l'espèce i et l'enthalpie massique de formation de l'espèce i .

La pression de l'ensemble des espèces lourdes est donc :

$$P_l = \sum_{i=1:4} \rho_i \frac{\mathfrak{R}}{\mathcal{M}_i} T \quad (2.22)$$

et la pression totale du mélange gazeux est :

$$P = P_l + P_e \quad (2.23)$$

L'équation (2.23) assure la cohésion de l'ensemble du système d'équations hydrodynamiques.

Grâce à l'hypothèse de quasi-neutralité, qui assure la conservation de la charge nous pouvons écrire :

$$\rho_e = \mathcal{M}_e \frac{Z_4 \rho_4}{\mathcal{M}_4} \quad (2.24)$$

Z_4 représente la charge électrique de l'espèce ionisée dans ce cas là il est égale à 1.

La condition de quasi-neutralité permet de réduire le nombre d'équations de continuité à résoudre.

Dans notre modèle, nous tenons compte de la présence du déséquilibre thermique entre les électrons et le reste des espèces lourdes, cependant aux premiers instants de

formation de la vapeur, cette dernière est supposée être en équilibre thermique [20], ainsi les équations de Boltzmann (2.25) et de Saha (2.26) sont utilisées pour évaluer les densités des espèces présentes dans la vapeur y compris les électrons primaires.

$$\frac{x_n}{x_m} = \frac{g_n}{g_m} \exp\left(\frac{E_m - E_n}{k_b T}\right) \quad (2.25)$$

$$\frac{x_e x_j}{x_{j-1}} = \frac{1}{\rho_{vap}} \left(\frac{2\pi m_e k_b T}{h^2}\right)^{\frac{3}{2}} \exp\left(\frac{E_j^+}{k_b T}\right) \quad (2.26)$$

avec $x_n ; x_m, g_m ; g_n$ et $E_m ; E_n$ sont les taux de population, poids statistiques et énergies des niveaux excités n et m , respectivement.

$x_e ; x_j ; x_{j-1}, \rho_{vap}, E_j^+$ sont les taux des électrons, espèce j et $j-1$ fois ionisées présents dans la vapeur, la densité de la vapeur et le jeme potentiel d'ionisation, respectivement.

T, k_b, m_e et h sont la température de la vapeur, la constante de Boltzmann, la masse des électrons et la constante de Planck.

Avant le début de l'évaporation de la cible, au niveau de la surface le flux de chaleur est nul, la pression P est égale à la pression atmosphérique et la vitesse u est égale à zero. Après le début de l'évaporation la condition à l'interface cible/gaz environnant doit être changée. Dans ce cas la vapeur émerge de la surface. Afin de traiter ce problème un bilan de masse, quantité de mouvement et d'énergie doit être fait au niveau de la première maille du domaine gazeux [5].

2.3.2.2 Termes sources des équations hydrodynamiques

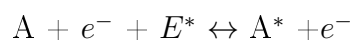
Rappelons que dans un premier temps nous nous intéressons à la modélisation de la création et l'évolution d'un plasma contenant cinq espèces ($i=1 : A, i=2 : A^*, i=3 : A^+, i=4 : Ge, i=5 : e^-$). Toute grandeur faisant référence à $i=5$ sera notée d'une manière générale avec un indice e .

Les termes sources ω_i, ω_E et ω_{E_e} des équations (2.14),(2.16) et (2.17) respectivement, doivent tenir compte des différents processus qui gouvernent la formation, la disparition ainsi que la coexistence de ces différentes espèces dans l'ensemble du plasma.

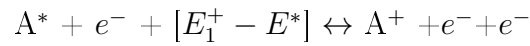
Afin de choisir les processus collisionnels et radiatifs pertinents pour notre étude, nous nous sommes inspiré du modèle cinétique développé par Rosen et al [21]. Plus particulièrement, les termes sources qui apparaissent dans l'équation (2.14) sont calculés en utilisant l'approche de Zeldovitch [22].

Les processus que nous avons retenu pour notre modèle sont les suivants :

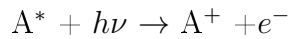
- L'excitation par impact électronique des espèces neutres



- L'ionisation par impact électronique des espèces excitées



- La photoionisation des espèces excitées



- L'absorption du rayonnement laser par inverse Bremsstrahlung.

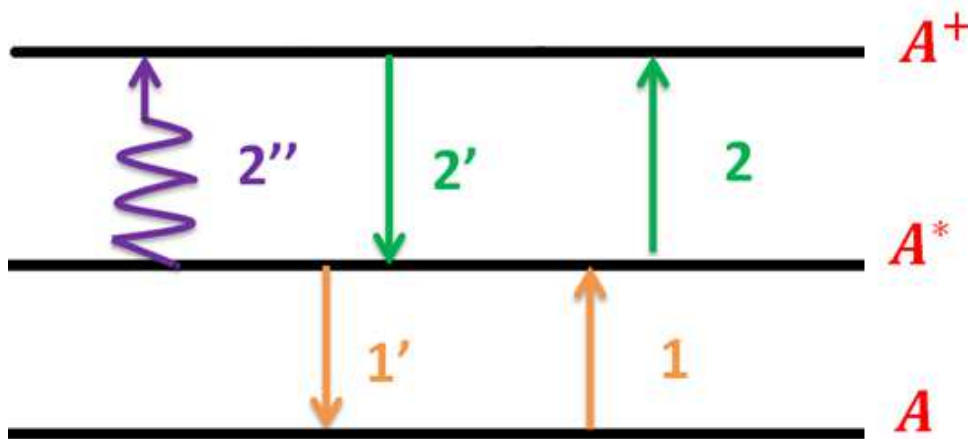


FIGURE 2.4 – Schéma représentatif des différentes réactions prises en compte dans notre modèle à cinq espèces.

Avec E^* l'énergie requise pour exciter l'atome A vers l'état A^* , E_1^+ le premier potentiel d'ionisation de l'atome A et $h\nu$: l'énergie du rayonnement laser.

1 et 1' indiquent les processus d'excitation et de desexcitation par impact électronique à partir du niveau fondamental pour le processus direct et à partir du niveau excité pour le processus inverse respectivement. 2, 2', 2'' représentent l'ionisation par impact électronique de l'état excité, la recombinaison à trois corps de l'espèce une fois ionisée et la photoionisation de l'état excité respectivement .

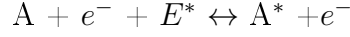
L'état excité A^* est un état intermédiaire qui joue un rôle très important après la formation de la vapeur et les premiers instants de création du plasma. Il est très important de noter que le choix de l'état intermédiaire excité A^* doit se faire sur la base de l'énergie $h\nu$ du rayonnement de telle sorte que la photoionisation puisse avoir lieu.

Il en est de même pour l'ionisation de l'état excité par impact électronique. Pour que ce processus puisse avoir lieu, il faut que les électrons du plasma aient une énergie qui soit au minimum égale à l'écart entre l'état excité et le premier potentiel d'ionisation. L'énergie qu'acquiert les électrons du plasma dépend exclusivement de l'énergie du rayonnement laser.

Les processus que nous venons de citer peuvent être classés sous deux grandes catégories *des processus collisionnels* et *des processus radiatifs*, dans ce qui suit nous présentons la manière avec laquelle la contribution de ces différents processus est prise en compte dans notre modèle.

2.3.2.3 Processus collisionnels

1. Excitation par impact électroniques :



Ce processus est caractérisé par un échange d'énergie entre les électrons et des atomes lourds à l'état fondamental et excités.

Pour que la transition de l'atome neutre de son état fondamental A vers l'état excité A^* , il est nécessaire que les électrons aient une énergie qui soit au moins égale à l'énergie d'excitation des atomes neutres A vers l'état excité A^* .

Durant le processus direct, les électrons énergétiques qui rentrent en collision avec les atomes neutres, leur cèdent de l'énergie, leur permettant de passer à un état excité A^* .

Durant le processus inverse les particules excitées reviennent à leur état fondamental en cédant de l'énergie aux électrons.

les taux de production pour les processus directs et inverses dans ce cas sont données par les relations suivantes [21]

$$K_{f-e} = 6 \cdot 10^{-12} \cdot \sqrt{T_e} \left(2 + \frac{E^*}{k_b T_e} \right) \frac{\rho_1 \rho_e \cdot \mathcal{N}^2}{\mathcal{M}_1 \mathcal{M}_e} \exp\left(-\frac{E^*}{k_b T_e}\right) [g/cm^3 \cdot s] \quad (2.27)$$

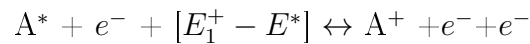
$$K_{e-f} = 1.8 \cdot 10^{-11} \cdot \sqrt{T_e} \left(2 + \frac{E^*}{k_b T_e} \right) \frac{\rho_2 \rho_e \cdot \mathcal{N}^2}{\mathcal{M}_2 \mathcal{M}_e} [g/cm^3 \cdot s] \quad (2.28)$$

Avec \mathcal{N} le nombre d'Avogadro

Connaissant les taux de production nous pouvons déterminer l'énergie associée au processus d'excitation par impact électronique qu'on exprime comme suit :

$$E_{imp} = (K_{e-f} - K_{f-e}) E^* \quad (2.29)$$

2. Ionisation par impact électronique des espèces excitées :



Ce processus est caractérisé par un échange d'énergie entre des électrons et des espèces lourdes excitées et ionisées.

Cet échange d'énergie se solde durant le processus direct par la création d'électrons libres et la formation d'espèces une fois ionisées à partir de l'état excité, et leur disparition durant le processus inverse.

Les taux de production direct et inverse de ces réactions sont donnés par les relations suivantes [21]

$$K_{e-i} = 2.2 \cdot 10^{-10} \sqrt{T_e} \left(\frac{I_H}{E^+} \right)^2 \frac{\rho_2 \rho_e \mathcal{N}^2}{\mathcal{M}_2 \mathcal{M}_e} \exp\left(-\frac{E^+}{k_b T_e}\right) [g/cm^3 \cdot s] \quad (2.30)$$

$$K_{i-e} = \frac{10^{-25}}{T_e} \left(\frac{I_H}{E^+} \right)^2 \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^3 [g/cm^3 \cdot s] \quad (2.31)$$

Avec I_H le potentiel d'ionisation de l'atome d'hydrogène il est égale à 13.6 eV

Le taux d'énergie d'ionisation de l'état excité par impact électronique est donnée par :

$$E_{ioni} = \frac{2}{3} K_{i-e} e^{rec} \left(\frac{\mathcal{M}_e}{\mathcal{N}} \right)^3 - K_{i-e} E^+ \left(\frac{\mathcal{M}_2 \mathcal{M}_e}{\mathcal{N}^2} \right) \quad (2.32)$$

e^{rec} : désigne l'énergie gagnée par les électrons durant la recombinaison à trois corps, elle est donnée par [22, 23]

$$\begin{aligned} e^{rec} &= 4.3 \cdot 10^{-4} E^+ \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^{\frac{1}{3}} T_e^{\frac{1}{2}} \text{ si } k_b T_e \leq e^{rec} \leq e^{star} \\ &= 3.1 \cdot 10^{-4} E^+ \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^{\frac{1}{6}} T_e^{\frac{1}{12}} \text{ si } e^{rec} \geq e^{star} \\ &= E^+ \text{ si } e^{rec} \geq E^+ \\ &= k_b T_e \text{ si } e^{rec} \leq k_b T_e, \end{aligned}$$

Avec $e^{star} = \frac{1}{2} k_b T_e \left(\frac{2e^+}{k_b T_e} \right)^{\frac{1}{3}}$.

Le taux d'énergie échangée entre les électrons et les particules lourdes est donnée par :

$$E_{ech} = \frac{3}{2} \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right) k \frac{T_e - T}{\tau} \quad (2.33)$$

Avec :

$$\tau = \frac{7 \cdot 10^3 \cdot T_e^{1.5}}{\ln \Lambda \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)} \quad (2.34)$$

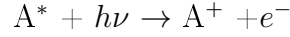
$$\Lambda = \frac{3 \cdot (k_b T_e)^{1.5}}{2 \cdot (4\pi)^{0.5} e^3 \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^{0.5}} \quad (2.35)$$

τ étant le temps de relaxation des électrons et Λ représente le nombre d'électrons dans la sphère de Debye.

2.3.2.4 Processus radiatifs

Le plasma induit par laser absorbe l'énergie de celui-ci au moyen de la photoionisation et du Bremsstrahlung inverse. Connaître le taux d'absorption dû à chacun de ces processus permet d'évaluer le taux de l'écrantage du laser par le plasma.

1. Photoionisation de l'état excité :



Durant ce processus le rayonnement laser fourni de l'énergie aux espèce excitées. Cette énergie absorbée permet la création d'ions et d'électrons libres.

La section efficace de ce processus de photoionisation est donnée par [21, 22] :

$$\sigma_{ph} = 7.910^{-18} \cdot \left(\frac{I_H}{E^+}\right)^{0.5} \left(\frac{E^+}{h\nu}\right)^3 [cm^{-2}] \quad (2.36)$$

Le taux d'ionisation du à ce processus est donné par

$$K_{ph} = \sigma_{ph} \left(\frac{\rho_3 \mathcal{N}}{\mathcal{M}_3}\right) I(x, t) [g/cm^3 \cdot s] \quad (2.37)$$

avec $I(x, t)$: l'intensité du rayonnement laser à une position x dans la plume à un instant t donné.

l'énergie de photoionisation de l'état excité

$$E_{ph} = K_{ph} I(x, t) (h\nu - E_1^+) \frac{\mathcal{M}_3}{\mathcal{N}} \quad (2.38)$$

2. Absorption du rayonnement par inverse Bremsstrahlung :

La transmission de l'intensité du rayonnement à travers la matière ablatée suit également la loi de Beer-Lambert :

$$I(x, t) = I_0(t) \cdot e^{-\alpha \cdot x}, \quad (2.39)$$

I_0 étant l'intensité incidente du rayonnement et α le coefficient d'absorption du rayonnement par inverse Bremsstrahlung.

$$\alpha = \alpha_{e-n} + \alpha_{e-i} \quad (2.40)$$

Ce coefficient prend en compte l'absorption électron-neutre et l'absorption électron-ion. Le coefficient électron-ion domine une fois que le plasma est crée, mais la prise en compte du coefficient électron-neutre est nécessaire afin de décrire correctement

l'allumage du plasma.

Il existe dans la littérature une très grande variété de coefficients d'inverse Bremsstrahlung. Nous en avons testés plusieurs avant de trouver le bon couple de coefficient qui nous ont permis d'avoir des résultats en bon accord avec des résultats expérimentaux.

Les coefficients d'absorption par inverse Bremsstrahlung que nous avons retenu pour notre modèle sont donnés par les relations suivantes :

- Le coefficients d'inverse Bremsstrahlung électron-ion [24] :

$$\alpha_{e-i}[A^+] = (Z_1)^2 \times 6.1 \times 10^{-29} \frac{\lambda^3}{\sqrt{k_b T_e}} \left(\frac{\rho_3 \rho_e}{\mathcal{M}_\ominus \mathcal{M}_e} \right) \mathcal{N}^2 (\text{cm}^{-1}), \quad (2.41)$$

où Z_1 est la charge de l'ion A^+ qui dans ce cas là égale à 1

- Le coefficient d'inverse Bremsstrahlung électron-neutre [22] :

$$\alpha_{e-n}[A] = 6.1 \times 10^{-29} \frac{\lambda^3}{\sqrt{T_e}} \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right) \left(\frac{\rho_1 \mathcal{N}}{\mathcal{M}_1} \right) \left[\frac{\pi}{15\sqrt{3}} \right] \left[\frac{2.I_H}{h\nu + T_e} \right] (\text{cm}^{-1}), \quad (2.42)$$

L'énergie absorbée par une maille du domaine gazeux par effet de Bremsstrahlung inverse est donnée par :

$$E_{IB} = \alpha.I_{abs} \quad (2.43)$$

I_{abs} est l'intensité du rayonnement absorbée par une maille du domaine gazeux et est donnée par

$$I_{abs} = I(x, t) - I(x + \Delta x, t) \quad (2.44)$$

A fin de prendre en compte le fait qu'à haute température les particules peuvent émettre des photons, le coefficient d'absorption doit être multiplié par un facteur de correction qui prenne en compte la contribution du phénomène d'émission stimulée, ce dernier a été introduit par Rosen et al [21] et est donné par :

$$C_{ES} = 1 - \exp \left(-\frac{h\nu}{k_b T_e} \right) \quad (2.45)$$

$$I_{abs} = I_{abs} C_{ES} \quad (2.46)$$

Après avoir défini tous les paramètres qui servent à décrire et évaluer l'effet de chaque processus intervenant dans la formation et le maintien du plasma et des différentes espèces dont il est composé, nous passons maintenant à la présentation des différents termes sources des équations (2.14), (2.16) et (2.17) respectivement :

– Termes sources des équations de conservation de la matière :

$$\omega_i \begin{cases} \omega_1 = K_{e-f} - K_{f-e} \\ \omega_2 = -K_{e-f} + K_{f-e} - K_{ph} - K_{e-i} + K_{i-e} \\ \omega_4 = 0. \\ \omega_5 = K_{ph} + K_{e-i} - K_{i-e} \end{cases} \quad (2.47)$$

– Termes sources des équations de conservation de l'énergie :

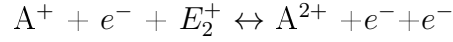
$$\omega_E/\omega_{E_e} \begin{cases} \omega_E = E_{ech} \\ \omega_{E_e} = E_{IB} - E_{ech} + E_{ioni} + E_{ph} + E_{imp} \end{cases} . \quad (2.48)$$

2.3.2.5 Création des espèces doublement ionisées

Selon les conditions de l'interaction, à savoir les paramètres du rayonnement laser et la nature du matériau, il est possible que les plasmas formés puissent contenir des espèces doublement ionisées. Dans ce cas là la prise en compte des processus de création de ces espèces ainsi que leur évolution dans le plasma doivent être intégrés dans le modèle.

Dans la littérature, les modèles hydrodynamiques décrivant les plasmas induits par laser contenant des espèces doublement ionisées, sont à notre connaissance tous basés sur l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local [2, 3, 8–15, 25]. A l'exception des travaux de Mazhukin et al [20, 26] qui sont des approches purement cinétiques 0D mais qui tiennent compte non seulement du déséquilibre thermique entre les électrons et les espèces lourdes du plasma dont celles doublement ionisées.

Dans notre modèle, les espèces doublement ionisées sont susceptibles d'être formées à partir de l'ionisation par impact électronique des espèces une fois ionisées.



Le plasma contiendra dans ce cas là six espèces qui seront notées de manière générale comme suit : ($i=1 : A$, $i=2 : A^*$, $i=3 : A^+$, $i=4 : A^{2+}$, $i=5 : Ge$, $i=6 : e^-$). Toute grandeur faisant référence à $i=6$ sera notée d'une manière avec un indice e .

E_2^+ représente l'énergie requise pour ioniser l'espèce A^+ et A^{2+} fait référence à l'atome deux fois ionisé.

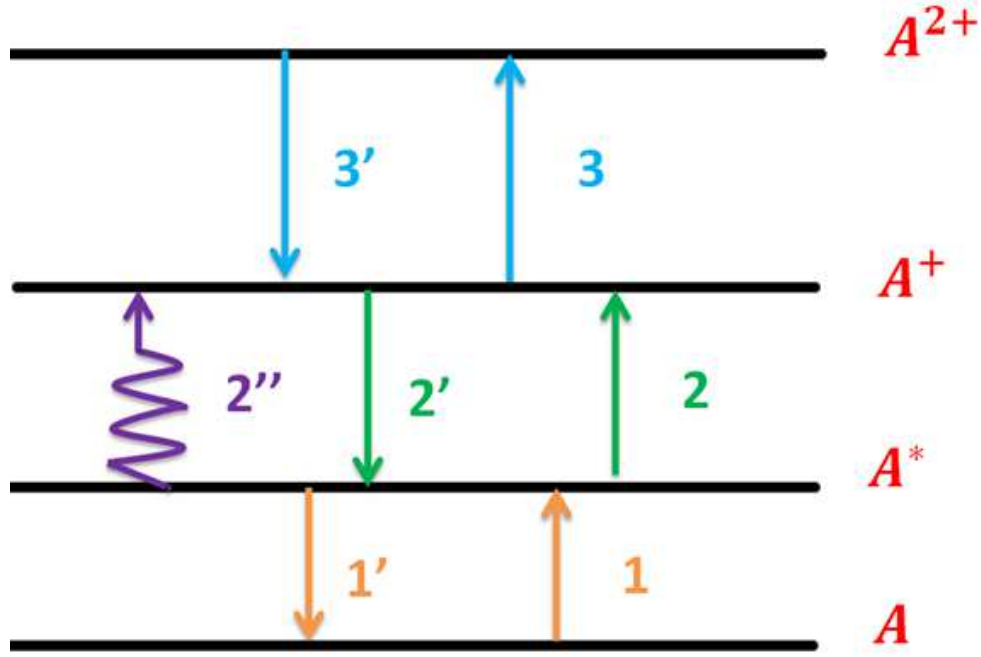


FIGURE 2.5 – Schéma représentatif des différentes réactions prises en compte dans notre modèle à six espèces.

1 et 1' indiquent les processus d'excitation et de desexcitation par impacte électronique à partir du niveau fondamental pour le processus direct et à partir du niveau excité pour le processus inverse respectivement. 2, 2', 2'' représentent l'ionisation par impact électronique, la recombinaison à trois corps et la photoionisation de l'état excité respectivement. 3 et 3' représentent l'ionisation par impacte électronique à partir de l'état ionisé et la recombinaison à trois corps de l'espèce une fois ionisée respectivement.

En cas de présence d'espèce deux fois ionisées la condition de quasi-neutralité exprimée par l'équation (2.24) devient :

$$\rho_e = (\rho_3 + 2\rho_4)(\mathcal{M}_e/\mathcal{M}), \quad (2.49)$$

Il est nécessaire de tenir compte de la présence des espèces deux fois ionisées dans l'expression de l'énergie des espèces lourdes, l'équation (2.20) devient alors :

$$E = \sum_{i=1:4} \rho_i (C_v + \frac{1}{2}u^2 + h_i) \quad (2.50)$$

Les taux de production direct et inverse de ce processus seront donnés par :

$$K'_{e-i} = 2.2 \cdot 10^{-10} \sqrt{T_e} \left(\frac{I_H}{E_2^+} \right)^2 \frac{\rho_3 \rho_e \mathcal{N}^2}{\mathcal{M}_3 \mathcal{M}_e} \exp\left(-\frac{E_2^+}{k_b T_e}\right) [g/cm^3.s] \quad (2.51)$$

$$K'_{i-e} = \frac{10^{-25}}{T_e} \left(\frac{I_H}{E_2^+} \right)^2 \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^3 [g/cm^3.s] \quad (2.52)$$

L'énergie d'ionisation par impact électronique de l'espèce une fois ionisée est donnée par :

$$E'_{ioni} = \frac{2}{3} K'_{i-e} e^{rec'} \left(\frac{\mathcal{M}_e}{\mathcal{N}} \right)^3 - K'_{i-e} E_2^+ \left(\frac{\mathcal{M}_3 \mathcal{M}_e}{\mathcal{N}^2} \right) \quad (2.53)$$

$e^{rec'}$: désigne l'énergie gagnée par les électrons durant le processus inverse de l'ionisation des espèces une fois ionisées par impacte électronique, par analogie à celle de l'ionisation des espèces excitées par impacte elle est donnée par :

$$\begin{aligned} e^{rec'} &= 4.3.10^{-4} E_2^+ \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^{\frac{1}{3}} T_e^{\frac{1}{2}} \text{ si } k_b T_e \leq e^{rec'} \leq e^{star'} \\ &= 3.1.10^{-4} E_2^+ \left(\frac{\rho_e \mathcal{N}}{\mathcal{M}_e} \right)^{\frac{1}{6}} T_e^{\frac{1}{12}} \text{ si } e^{rec'} \geq e^{star'} \\ &= E_2^+ \text{ si } e^{rec'} \geq E_2^+ \\ &= k_b T_e \text{ si } e^{rec'} \leq k_b T_e, \end{aligned}$$

$$\text{Avec } e^{star'} = \frac{1}{2} k_b T_e \left(\frac{2 E_2^+}{k_b T_e} \right)^{\frac{1}{3}}.$$

Le coefficient qui traduit la contribution des espèces doublement ionisées à l'absorption du rayonnement laser par inverse Bremsstrahlung est donné par :

$$\alpha_{e-i}[A^{2+}] = (Z_2)^2 \times 6.1 \times 10^{-29} \frac{\lambda^3}{\sqrt{k_b T_e}} \left(\frac{\rho_4 \rho_e}{\mathcal{M} \mathcal{M}_e} \right) \mathcal{N}^2 (\text{cm}^{-1}), \quad (2.54)$$

Z_2 qui représente la charge électrique de l'espèce deux fois ionisée est égale à deux.

Il est nécessaire de tenir compte de la contribution des ions deux fois ionisés dans l'absorption de l'énergie du rayonnement par effet de Bremsstrahlung inverse dont le coefficient total d'absorption devient alors :

$$\alpha' = \alpha_{e-n} + \alpha_{e-i}[A^+] + \alpha_{e-i}[A^{2+}] \quad (2.55)$$

L'énergie absorbée par le plasma par effet Bremsstrahlung inverse devient alors :

$$E_{IB}' = \alpha' . I_{abs} \quad (2.56)$$

Il ne nous reste plus maintenant qu'à définir les nouveaux termes sources des équations hydrodynamiques qui tiennent comptes de la présence des ions deux fois ionisés :

– Termes sources des équations de conservation de la matière :

$$\omega_i \begin{cases} \omega_1 = K_{e-f} - K_{f-e} \\ \omega_2 = K_{f-e} - K_{e-f} - K_{ph} - K_{e-i} + K_{i-e} \\ \omega_3 = -K_{e-i}' + K_{i-e}' + K_{e-i} - K_{i-e} \\ \omega_5 = 0 \\ \omega_6 = K_{ph} + K_{e-i} - K_{i-e} + K_{e-i}' - K_{i-e}' \end{cases} \quad (2.57)$$

– Termes sources des équations de conservation de l'énergie :

$$\omega_E/\omega_{E_e} \left\{ \begin{array}{l} \omega_E = E_{ech} \\ \omega_{E_e} = E_{IB}' - E_{ech} + E_{ioni} + E_{ioni}' + E_{ph} + E_{imp} \end{array} \right. . \quad (2.58)$$

En raison de la contribution des espèces doublement ionisées dans l'absorption du rayonnement laser par effet Bremsstrahlung inverse, le taux de l'énergie laser écrantée par le plasma devrait être plus important dans ce cas. Nous examinerons ce point plus en détail lorsque nous présenterons nos résultats de simulation.

2.3.3 Méthode numérique

Afin de résoudre notre modèle hydrodynamique nous avons eu recours à l'algorithme LCPFCT (Flux Corrected Transport algorithm for Solving Generalized Continuity Equations) développé et mis à jour par Boris et al [27, 28]. Cet algorithme explicite est basé sur un schéma aux différences finies associé à des méthodes générales de correction de flux. Ce schéma numérique est précis à l'ordre 2 en temps et 4 en espace. L'avantage de ce schéma est qu'il est robuste, il peut donc traiter de forts gradients tout en respectant les gradients les plus faibles. Il a été testé pour simuler une grande variété d'écoulements subsonique et supersoniques [29–31] ainsi que sur des problèmes de type plasma laser [32].

Étant donné que l'algorithme LCPFCT est basé sur un schéma numérique explicite, sa stabilité doit être assurée au moyen du critère de Courant Friedrichs-Lewy

$$\Delta t = C_{FL} \min \left(\frac{\Delta x}{|u| + a} \right) \quad (2.59)$$

$|u|$, a et C_{FL} sont la norme de la vitesse, la célérité du son local et un facteur multiplicatif respectivement.

En raison des forts gradients de masse, de pression, de vitesse et de termes sources nous fixons C_{FL} de 0.001. Pour nos simulations nous utilisons un maillage uniforme avec un pas d'espace de 10^{-4} cm et un pas de temps de 10^{-14} s. Afin d'éviter tout problème de couplage, nous utilisons le même pas de temps pour résoudre la partie thermique et hydrodynamique de notre modèle.

L'algorithme LCPFCT qui est implémenté en tant que sous-routine sous FORTRAN sert à résoudre des équations de continuité généralisées de la forme :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{1}{r^{\alpha-1}} \frac{\partial}{\partial r} (r^{\alpha-1} \rho u) - \frac{1}{r^{\alpha-1}} \frac{\partial}{\partial r} (r^{\alpha-1} D_1) + C_2 \frac{\partial D_2}{\partial r} + D_3 \quad (2.60)$$

La sous-routine est reliée à d'autres sous-routines auxiliaires qui définissent le maillage, les facteurs dépendants de la vitesse, les divers termes sources et les conditions aux limites. Elle se caractérise par sa capacité à gérer les termes sources de l'équation (2.60) ie D_1 D_2 D_3 et la prise en compte de diverses géométries qui peuvent être sélectionnées au moyen de la variation du nombre entier α . Pour $\alpha=1$ s'il s'agit d'une géométrie cartésienne ou plane, $\alpha=2, 3$ si le problème a une géométrie cylindrique ou sphérique respectivement.

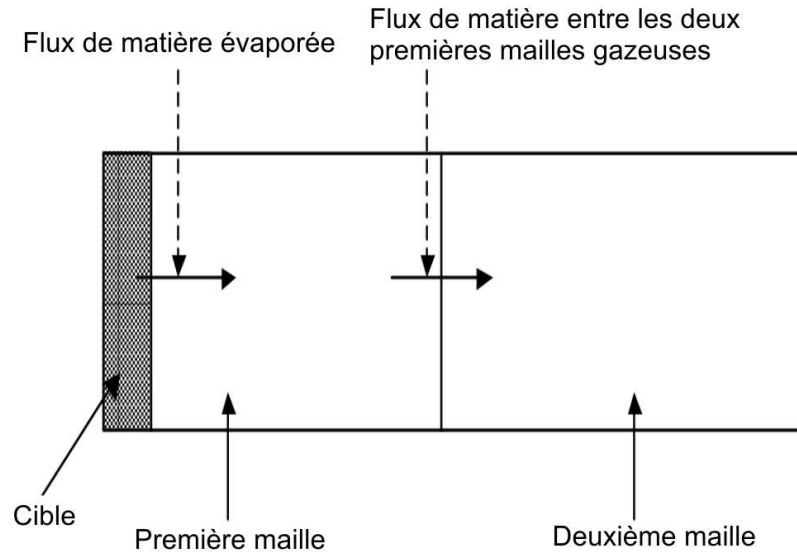


FIGURE 2.6 – Représentation du régime d’ablation [6]

2.4 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté notre approche de modélisation décrivant globalement l’ablation laser d’un métal, depuis les effets thermiques et les différents changement de phases dus à l’absorption du rayonnement par la cible jusqu’à la formation et l’expansion du plasma dans le gaz environnant.

Notre approche présente de nombreux avantages par rapport aux divers modèles présents dans la littérature, plus particulièrement la prise en compte du déséquilibre thermique dans le plasma et la présence d’espèces doublement ionisées dans le cadre d’un modèle hydrodynamique.

Les résultats de simulation que nous avons pu obtenir grâce à notre modèle seront présentés dans le chapitre suivant.

Bibliographie

- [1] Michael Schmidt Karl-Heinz Leitza, Benjamin Redlingshöfera Yvonne Regc Andreas Ottoa. Metal ablation with short and ultrashort laser pulses. *Physics Procedia* 12, 12 :230–238, 2011.
- [2] A.Bogaerts Z.Chen R.Gijbels A.Vertes. laser ablation for analytical simpling, what can we learn from modeling? *Acta Part B Atom Spectrosc*, 58 :1867–1893, 2003.
- [3] R.Fang D.Zhang Z.Li F.Yang L.Li X.Tan M.Sun. improved thermal model and its application in uv high -power pulsed laser ablation of metal target. *Elsevier.*, 2008.

- [4] Zhihua-Li Sipu-Hou Boming-Yu Li Guan Xinyu-Tan Li Li Duanming-Zhang, DanLiu. A new model of pulsed laser ablation and plasma shielding. *Physica B, Elsevier.*, 2005.
- [5] J.D. Parisse M. Sentis D.E.Zeitoun. Modeling and numerical simulation of laser matter interaction and ablation with 193 nanometer laser for nanosecond pulse. *International Journal of Numerical Methods for Heat and Fluid Flow*, 21 :73 – 94, 2011.
- [6] Jean-Denis Parisse. *Modélisation et simulation numérique de l'interaction laser-matière*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille I, 2000.
- [7] H. Van Driel. Kinetics of high density plasmas generated in si by 1.06 and 0.53 micrometer picosecond laser pulses. *Physical review B.*, 35 :8166, 1986.
- [8] A. Bogaerts Z.Chen D.Bleiner. Laser ablation of copper in different background gasses : comparative study b numerical modeling and experiments. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 21 :384–395, 2006.
- [9] A. Bogaerts Z.Chen D.Bleiner. Laser ablation of copper in different background gasses : comparative study b numerical modeling and experiments. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 21 :384–395, 2006.
- [10] Z.Chen A. Bogaerts. Laser ablation of cu and plume expansion into 1 atm ambient gas. *Journal of applied physics*, 97 :063305, 2005.
- [11] A. Bogaerts Z.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 :1169–1176, 2004.
- [12] A. Bogaerts Z.Chen. Effect of laser parameters on laser ablation and laser induced plasma formation : A numerical modeling investigation. *Spectrochimica Acta Part B*, 60 :1280–1307, 2005.
- [13] I. M. Popescu M. Stafe, C. Negutu. Combined experimental and theoretical investigation of multiple-nanosecond laser ablation of metals. *Journal of optoelectronics and advanced materials*, 8(3) :1180 – 1186, 2006.
- [14] M.Aghaei S.Mehrabian S.H. Tavassoli. Simulation of nanosecond pulsed laser ablation of copper samples : a focus on laser induced plasma radiation. *Journal of applied physics*, 104(053303), 2008.
- [15] S.Mehrabian M.Aghaei S.H. Tavassoli. Effect of background gas pressure and laser pulse intensity on laser induced plasma radiation of copper samples. *Physics of Plasmas*, 17(043301), 2010.
- [16] HP. Ravindra. *Thermal modeling of laser drilling and cutting of engineering materials*. PhD thesis, Graduate College of the Oklahoma State University, 2005.
- [17] T.E.Itina F.Vidal P.Delaporte M.Sentis. Numerical study of ultra-short laser ablation of metals and of laser plume dynamics. *Appl.Phys.A*, pages 1–4, 2004.
- [18] Yun Zhou Sha Tao, Benxin Wu and Gary J. Cheng. The investigation of plasma produced by intense nanosecond laser ablation in vacuum under external magnetic field using a two-stage model. *Journal of Manufacturing Science and Engineering*, 135, 2013.
- [19] J.H. Lee. Basic governing equations for the flight regime of aeroassisted orbital transfer vehicles. *Materials Research Society Symposium Proceeding*, 388 :133.

- [20] V.V.Nossov V.I.Mazhukin and I.Sumorov M.G.Nickiforov. Optical breakdown on aluminum vapor induced by ultraviolet laser radiation. *Journal of applied physics*, 93(1), 2003.
- [21] G. Kothandaraman A.N. Pirri D.I. Rosen, J. Mitteldorf and E.R. Pugh. Coupling of pulsed 0.35 micrometer laser radiation to aluminum alloys. *J. Appl. Phys*, 53(4) :3190, 1982.
- [22] Ya. B. Zel'dovitch and Yu. P. Raizer. *Physics of Shock Waves and High Temperature Hydrodynamics Phenomena*. 1966.
- [23] A.V. Bulgakov and N.M. Bulgakova. Dynamics of laser induced plume expansion into an ambient gas during film deposition. *J. Phys. D : Appl. Phys*, 28 :1710–1718, 1995.
- [24] C. Boulmer-Leborgne A.L. Thomann and B. Dubreuil. A contribution to the understanding of the plasma ignition mechanism above a metal target under uv laser irradiation. *Plasma Sources Sci. Technol.*, 6 :298–306, 1997.
- [25] G. Clair D.L'Hermitte. 1d modeling of nanosecond laser ablation of copper samples in argon at p=1 atm with a wavelength of 532 nm. *Journal of applied physics*, 110 :083307, 2011.
- [26] V.I.Mazhukin I.V.Gusev I.Smurov and G.Flamant. Laser-induced breakdown of metal vapor. *Microchemical journal*, 50(1) :413–433, 1994.
- [27] E.S.Oran J.P.Boris. A flux corrected transport algorithm for solving generalized continuity equations, 1993.
- [28] E.S.Oran J.P.Boris. *Numerical simulation of reactive flow*. 1987.
- [29] H.C.Le D.E.Zeitoun J.D.Parisse M.Sentis W.Marine. Modeling of gas dynamics for a laser generated plasma : Propagation into low pressure gases. *Physical Review E*, 2562(3) :4152–4161, 2009.
- [30] J. Vuillon. *Modélisation et simulation numérique des écoulements confinés Euleriens instationnaires*. PhD thesis, Université de Provence, 1994.
- [31] J.P. Boris F.F. Grinstein E.S. Oran R.L. Kolbe. Nrl memorandum report, 1993.
- [32] K. Amic A.Lebhot J.D.Prisse. Laser sustained plasma in sonic nozzle for fast atom beam. *Journal of thermodynamic*, 21(4) :763–771, 2007.

Grandeurs[Unités]	Definition
$H[\text{erg cm}^{-3}]$	Enthalpie
$t[\text{s}], x[\text{cm}]$	temps, position
$\lambda[\text{erg s}^{-1} \text{cm}^{-1}]$	Conductivité thermique
$T[\text{K}]$	Température
$\alpha_0[\text{cm}^{-1}], \alpha[\text{cm}^{-1}]$	Coefficient d'absorption, coefficient de Bremsstrahlung inverse
$I(x,t)[\text{erg s}^{-1} \text{cm}^{-2}]$	Intensité transmise du rayonnement
$\rho[\text{g cm}^{-3}], \omega_i[\text{g cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Densité de masse, terme source massique
$u[\text{cm s}^{-1}]$	Vitesse de la plume
$P[\text{g cm}^{-1} \text{s}^{-2} \text{ (Barye=0.1 Pa)}]$	Pression
$E[\text{erg cm}^{-3}], \omega_E [\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Energie des espèces lourdes, terme source de l'énergie des espèces lourdes
$E_e[\text{erg cm}^{-3}], \omega_{E_e} [\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Énergie électronique, terme source de l'énergie électronique
$K_{f-e}[\text{g cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Coefficient du taux d'excitation par impacte électronique
$K_{e-f}[\text{g cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Coefficient du taux de désexcitation par impacte électronique
$K_{e-i}[\text{g cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Coefficient du taux d'ionisation par impacte électronique
$K_{i-e}[\text{g cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Coefficient du taux de recombinaison à trois corps
$K_{ph}[\text{g cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Coefficient du taux de photoionisation
$E_{ech}[\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Taux d'échange d'énergie entre les électrons et les particules lourdes
$E_{IB}[\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Taux d'énergie absorbée par Bremsstrahlung inverse
$E_{ioni}[\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Taux d'énergie absorbée par ionisation par impacte électronique
$E_{ph}[\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Taux d'énergie due processus de photoionisation
$E_{imp}[\text{erg cm}^{-3} \text{s}^{-1}]$	Taux d'énergie due au processus d'excitation par impacte électronique

Tableau 2.1 – Résumé des principaux termes de notre modèle et de leurs unités respectives

Chapitre 3

Résultats et discussions

Sommaire

3.1	Introduction	80
3.2	Interaction d'une impulsion laser avec une cible en cuivre	80
3.2.1	Validation du modèle thermique 1D	80
3.2.2	Processus pris en compte dans le modèle hydrodynamique	82
3.2.3	Résultats	84
3.3	Interaction d'une impulsion laser avec une cible en titane	129
3.3.1	Validation de l'approche 1D	129
3.3.2	Processus pris en compte	131
3.3.3	Seuil d'allumage et validation	132
3.3.4	Seuils de fusion et d'évaporation	134
3.3.5	Écrantage plasma	134
3.3.6	Profondeurs ablatées	137
3.3.7	Déséquilibre thermique dans le plasma	138
3.3.8	Dynamique et expansion du plasma	140
3.3.9	Comparaison avec le cuivre	143
3.4	Conclusion	146
	Bibliographie	146

3.1 Introduction

Dans le présent chapitre qui est consacré à la présentation et la discussion de nos résultats de simulation nous nous intéressons en premier lieu à l'interaction d'impulsions laser dans le rayonnement ultraviolet avec le cuivre. Ce dernier est un matériau dont les propriétés thermophysiques et optiques sont bien connues et dont l'ablation laser a largement été étudiée dans la littérature, mais toujours dans le cadre de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local [1–6]. L'un des objectifs de ce travail est justement de remettre en question cette hypothèse et de mettre en évidence l'importance de la prise en compte du déséquilibre électronique dans les plasmas métalliques induits par laser.

En plus du cuivre, nous nous intéressons également au titane, qui est un matériau largement utilisé dans de nombreuses applications technologiques basées sur l'interaction laser-matière, mais dont l'ablation laser est très peu étudiée [7].

Dans tout ce qui suit nous avons utilisé notre modèle (présenté dans le chapitre précédent) pour étudier l'intégralité du processus d'ablation de nos cibles métalliques (le cuivre et le titane) par trois impulsions lasers dans le rayonnement ultraviolet ArF (193 nm, 8 ns), KrF (248 nm, 21 ns) et XeF (351 nm, 17 ns). Ces types de rayonnements ont été utilisés pour la détermination expérimentale [7] et théorique [8] de seuils d'allumage plasmas.

Le seuils d'allumage plasma, appelé aussi seuil de claquage optique de la vapeur formée au dessus de la surface de la cible, est défini comme étant l'énergie minimale du rayonnement à partir de laquelle apparaissent des mécanismes de chauffage et d'excitation non-linéaires qui sont à l'origine d'un taux d'ionisation plus élevé que celui qu'on prédit au moyen de l'équation de Saha [7]. Avant d'entamer notre étude nous procédons d'abord - et pour chaque cas que nous traitons - à la détermination des seuils d'allumage, qui nous servent comme moyen de valider notre approche.

3.2 Interaction d'une impulsion laser avec une cible en cuivre

3.2.1 Validation du modèle thermique 1D

Rappelons que, si l'épaisseur de diffusion de la chaleur dans l'échantillon est largement plus grande que l'épaisseur de pénétration du rayonnement dans la cible et plus petite que le rayon du laser et l'épaisseur du matériau ($l_{\alpha} \ll l_T \ll w, e$) le flux de chaleur latéral dû à l'absorption de l'énergie de l'impulsion par le matériau peut être négligé et la diffusion de la chaleur au sein de la cible peut être assimilée à un phénomène à une seule dimension [9].

Avant d'entamer nos calculs nous avons d'abord vérifié la validité de cette approximation au moyen des propriétés du matériau (tableau 3.1) et des paramètres des impulsions que nous utilisons.

Dans le tableau (3.2), nous présentons les valeurs de la profondeur de pénétration du rayonnement et la longueur de diffusion de la chaleur dans le cuivre pour les trois impulsions laser ArF (193 nm, 8 ns), KrF (248 nm, 21 ns) et XeF (351 nm, 17 ns).

Étant données ces valeurs et puisqu'en pratique, le rayon du faisceau laser varie entre 0.05 et 2 mm [10] et que dans notre cas nous supposons avoir affaire à une cible suffisamment épaisse, nous sommes en mesure de confirmer la validité de notre modèle thermique 1D pour décrire la partie interaction laser-cible du processus d'ablation dans le cas du cuivre.

Paramètre	Cuivre solide	Cuivre liquide
Chaleur spécifique, C_p ($J g^{-1}K^{-1}$)	4.2×10^6	4.94×10^6
Densité volumique, ρ (gcm^{-3})	8.96	8
Conductivité thermique, κ ($ergs^{-1}cm^{-1}K^{-1}$)	3.8×10^7	1.7×10^7
Enthalpie Δh (Jg^{-1})	fusion 204	évaporation 4796.5
Réflexivité, R	(193 nm) 0.3 (248 nm) 0.35 (351 nm) 0.5	(193 nm) 0.3 (248 nm) 0.35 (351 nm) 0.5
Coefficient d'absorption, α (cm^{-1})	(193 nm) $9.5 \cdot 10^5$ (248 nm) $8.9 \cdot 10^5$ (351 nm) $6.5 \cdot 10^5$	(193 nm) $9.5 \cdot 10^5$ (248 nm) $8.9 \cdot 10^5$ (193 nm) $6.5 \cdot 10^5$

Tableau 3.1 – Propriétés du cuivre utilisées dans nos simulations.

λ (nm)/ τ (ns)	l_{α_a} (cm) (Cu solide)	l_T (cm) (Cu solide)	l_{α_a} (cm) (Cu liquide)	l_{α_a} (cm) (Cu liquide)
193/8	$1.05 \cdot 10^{-6}$	$1.26 \cdot 10^{-4}$	$1.05 \cdot 10^{-6}$	$8.29 \cdot 10^{-5}$
248/21	$1.12 \cdot 10^{-6}$	$2.070 \cdot 10^{-4}$	$1.12 \cdot 10^{-6}$	$1.34 \cdot 10^{-4}$
248/30		$1.78 \cdot 10^{-4}$		$1.6 \cdot 10^{-4}$
351/17	$1.54 \cdot 10^{-6}$	$1.86 \cdot 10^{-4}$	$1.54 \cdot 10^{-6}$	$1.2 \cdot 10^{-4}$

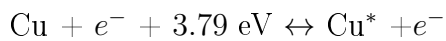
Tableau 3.2 – Profondeur de pénétration et longueur de diffusion de la chaleur dans le cuivre sous nos conditions de simulation.

3.2.2 Processus pris en compte dans le modèle hydrodynamique

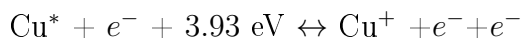
3.2.2.1 Modèle hydrodynamique à cinq espèces

En premier lieu, dans la partie hydrodynamique de notre modèle qui décrit le chauffage de la vapeur, la formation et l'évolution du plasma, nous avons mené notre étude en prenant en compte uniquement la présence de cinq espèces dans la plume, à savoir : Cu, Cu*, Cu⁺, He, e. Dans ce cas, les processus qui gouvernent l'évolution du mélange gazeux sont les suivants :

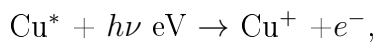
- Excitation/désexcitation par impacte électronique



- ionization de l'état excité par impacte électronique



- Photoionisation de l'état excité



Avec $h\nu = 6.4 \text{ eV}$ pour un rayonnement laser de longueur d'onde de 193 nm

5 eV pour un rayonnement laser de longueur d'onde de 248 nm

et 3.5 eV pour un rayonnement laser de longueur d'onde de 351 nm

- L'absorption du rayonnement par Bremsstrahlung inverse.

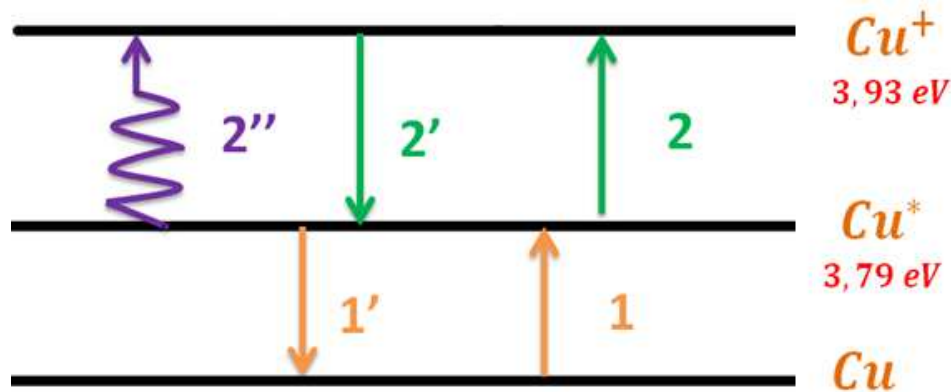


FIGURE 3.1 – Schéma représentatif des différents processus et niveaux énergétiques pris en compte dans notre modèle à cinq espèces dans le cas du cuivre.

1 et 1' indiquent les processus d'excitation et de désexcitation par impacte électronique à partir du niveau fondamental Cu pour le processus direct et à partir du niveau excité Cu* pour le processus inverse respectivement. 2, 2', 2'' représentent l'ionisation par impact électronique de l'état excité Cu*, la recombinaison à trois corps de l'espèce une fois ionisée Cu⁺ et la photoionisation de l'état excité respectivement.

Le niveau intermédiaire Cu^* sert à initialiser la formation du plasma. Le choix du niveau excité 3.79 eV se justifie par rapport aux énergies des impulsions laser afin que le processus de photoionisation puisse avoir lieu, en particulier pour 193 nm et 248 nm.

3.2.2.2 Modèle hydrodynamique à six espèces

Afin d'examiner l'impact de la formation des espèces doublement ionisées sur les différents aspects du processus d'ablation du cuivre, nous avons pris en compte leur présence dans notre modèle hydrodynamique. Le chauffage de la plume et la formation du plasma sont dans ce cas là gouvernés par les processus représentés par la figure (3.2) :

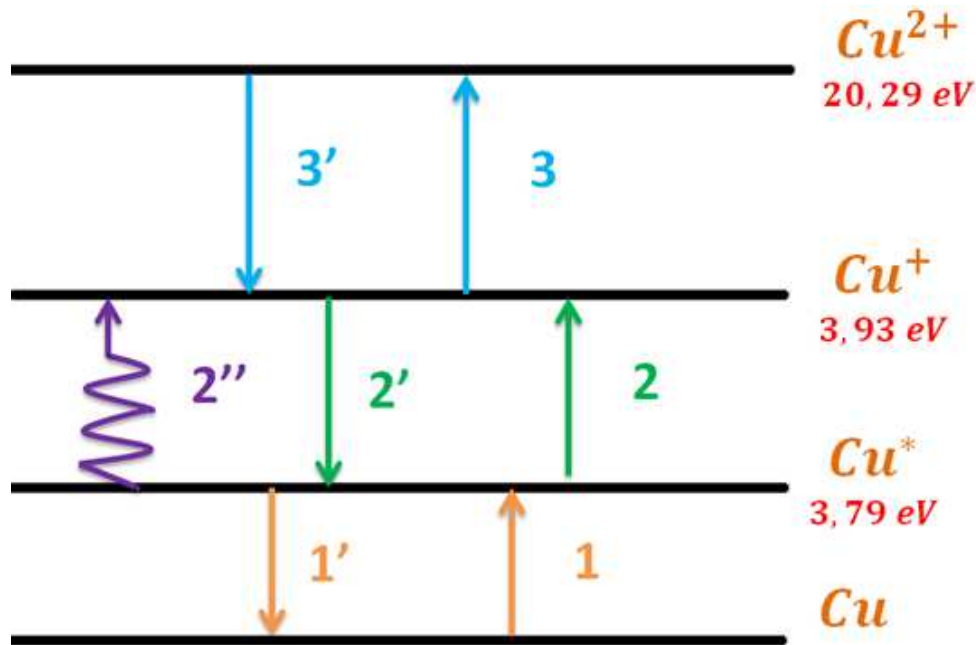
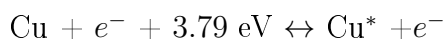


FIGURE 3.2 – Schéma représentatif des différents processus et niveaux énergétiques pris en compte dans notre modèle à six espèces dans le cas du cuivre

1 et 1' indiquent les processus d'excitation et de desexcitation par impacte électronique à partir du niveau fondamental pour le processus direct et à partir du niveau excité pour le processus inverse respectivement. 2, 2', 2'' représentent l'ionisation par impact électronique, la recombinaison à trois corps et la photoionisation de l'état excité respectivement. 3 et 3' représentent l'ionisation par impacte électronique à partir de l'état ionisé et la recombinaison à trois corps de l'espèce une fois ionisée respectivement.

Ces processus sont résumés comme suit :

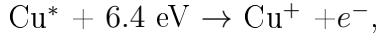
- Excitation/désexcitation par impact électronique



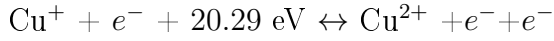
- ionization de l'état excité par impact électronique



- Photoionisation de l'état excité



- ionisation par impact électronique des espèces une fois ionisées



- Bremsstrahlung inverse

Rappelons que dans notre modèle nous ne tenons pas compte de la présence d'états excités pour les espèces une fois ionisées car comme nous l'avons expliqué auparavant, le seul état excité au quel nous faisons appel ie Cu^* sert uniquement à amorcer la formation du plasma.

3.2.3 Résultats

3.2.3.1 Modèle hydrodynamique à cinq espèces

3.2.3.1.1 Calcul des seuils d'allumage et validation

Avant d'entamer notre étude nous avons commencé par valider notre approche en calculant les seuils d'allumage plasma à partir de la matière évaporée au dessus de la surface de la cible et ceci pour les mêmes conditions expérimentales et théoriques que Clarke et al [7] et Dyer [8] respectivement.

Longueur d'onde (nm)	Durée d'impulsion (ns)	Pression du milieu environnant
193	8	Ablation sous vide
248	21	
	30	
355	17	

Tableau 3.3 – Condition expérimentales et théoriques de Clarke et al [7] et Dyer [8]

Le tableau (3.3) présente les conditions expérimentales et théorique d'interaction laser-cuivre, de Clarke et al et Dyer [7,8].

Afin d'être le plus proche possible de la condition d'ablation sous vide admise par Clarke et al [7] et Dyer [8], nous avons fixé la pression de notre gaz environnant à 10 Pa comme nous l'avons fait précédemment dans le cas du cuivre.

Dans le tableau (3.4) nous présentons les données expérimentales de Clarke et al [7], les calculs théoriques de Dyer [8] ainsi que les seuils d'allumage prédits par notre modèle.

La comparaison des résultats montre un bien meilleur accord entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques.

On peut tout de même constater que plus la longueur d'onde de l'impulsion est grande plus l'écart entre nos seuils et les seuils expérimentaux devient important. Ceci peut être en partie lié à l'écart qui existe entre le niveau intermédiaire excité et l'énergie de l'impulsion. Plus cet écart est grand plus notre modèle devient moins précis au niveau du calcul des seuils d'allumage, néanmoins pour une même longueur d'onde et une durée d'impulsion plus longue la précision augmente (cas de 248 nm).

λ (nm)	τ (ns)	F_{exp} (J/cm^2)	F_{theo} (J/cm^2) (erreur relative%)	F_{num} (J/cm^2) (erreur relative%)
193	8	1	>0	0.84 (16%)
248	21	1.26	3.024 (140%)	1.7 (35%)
	30	3	3.6 (20%)	2.3 (23%)
351	17	1.21	3.34 (176%)	1.9 (57%)

Tableau 3.4 – Comparaison de nos seuil d'allumage plasma avec des seuils expérimentaux et théoriques déterminés sous les mêmes conditions pour des cibles en cuivre, en supposant l'interaction avoir lieu dans le vide [7,8], F_{exp} , F_{theo} , F_{num} représentent les seuils expérimentaux, théoriques et numériques respectivement

3.2.3.1.2 Effet de la pression sur les seuils d'allumages

Après avoir validé notre approche via le calcul des seuils d'allumage, nous présentons dans le tableau (3.5) des résultats sur l'impact de la pression atmosphérique sur les seuils d'allumage. Bien que les seuils ne varient pas considérablement en fonction de la pression, ils sont néanmoins légèrement plus élevés à pression atmosphérique. Cette variation est plus importante pour une longueur d'onde de 351 nm que pour les deux autres. Ce qui veut dire que plus courte est la longueur d'onde plus les seuils d'allumages sont moins affectés par la pression du gaz environnant. Il est aussi important de signaler que pour une longueur d'onde donnée, plus longue est la durée de l'impulsion plus grand est l'impact de la pression atmosphérique sur les seuils d'allumage.

λ (nm)	τ (ns)	10 Pa (J/cm^2)	Pression at- mosphérique (J/cm^2)
193	8	0.842	1
248	21	1.7	2
	30	2.3	2.9
355	17	1.9	2.3

Tableau 3.5 – Effet de la pression atmosphérique sur le seuil d’allumage plasma

Tous les résultats que nous allons présentés par la suite ont été calculé à pression atmosphérique, ce qui est le cas de nombreuses applications telles que la technique LIBS [11]

3.2.3.1.3 Seuils de fusion et d’évaporation

Nous présentons dans le tableau (3.6) les seuils de fusion et d’évaporation calculés à pression atmosphérique pour les mêmes paramètres de rayonnement que Clarke et al [7].

Ces résultats indiquent que les seuils de fusion et d’évaporation sont plus bas pour la plus courtes des longueurs d’ondes et que pour une longueur d’onde donnée, les seuils sont plus grands pour une durée d’impulsion plus longue.

Afin de pouvoir étudier l’impact de la longueur d’onde et de la durée d’impulsion sur les seuils de fusion et d’évaporation, nous présentons dans la figure (3.3) des seuils calculés pour deux durées d’impulsion (8 et 17 ns) pour chacune des trois longueurs d’ondes (193, 248 et 351 nm).

Pour une longueur d’onde donnée les seuils sont plus élevé lorsque la durée de l’impulsion est plus longue, ceci car la densité d’énergie est délivrée sur un intervalle de temps plus long ce qui fait que la densité de puissance (densité d’énergie par unité de temps $I(t)$) avec laquelle on irradie le matériau est moindre. Pour une durée d’impulsion donnée, les seuils sont les plus bas pour la plus courte longueur d’onde car le rayonnement dans ce cas là est plus énergétique ce qui fait que moins d’apport d’énergie est requis pour initier les processus de changement de phase.

En plus du tableau (3.5) où nous avons présenté des seuils d’allumage plasma à pression atmosphérique pour les même paramètres de rayonnement que Clarke et al [7], nous présentons dans la figure (3.4) la variation des seuils d’allumage pour les trois longueurs d’ondes 193, 248 et 351 nm pour deux durées d’impulsions 8 et 17 ns. De même que pour les seuils de fusion et d’évaporation, ces résultats montres que les seuils augmentent en fonction de la longueur d’onde et de la durée d’impulsion.

λ (nm)	τ (ns)	Fusion (J/cm^2)	Évaporation (J/cm^2)
193	8	0.4	0.6
248	21	0.7	1.35
	30	1.15	1.9
355	17	0.7	1.1

Tableau 3.6 – Seuils de fusion et d'évaporation pour une cible en cuivre

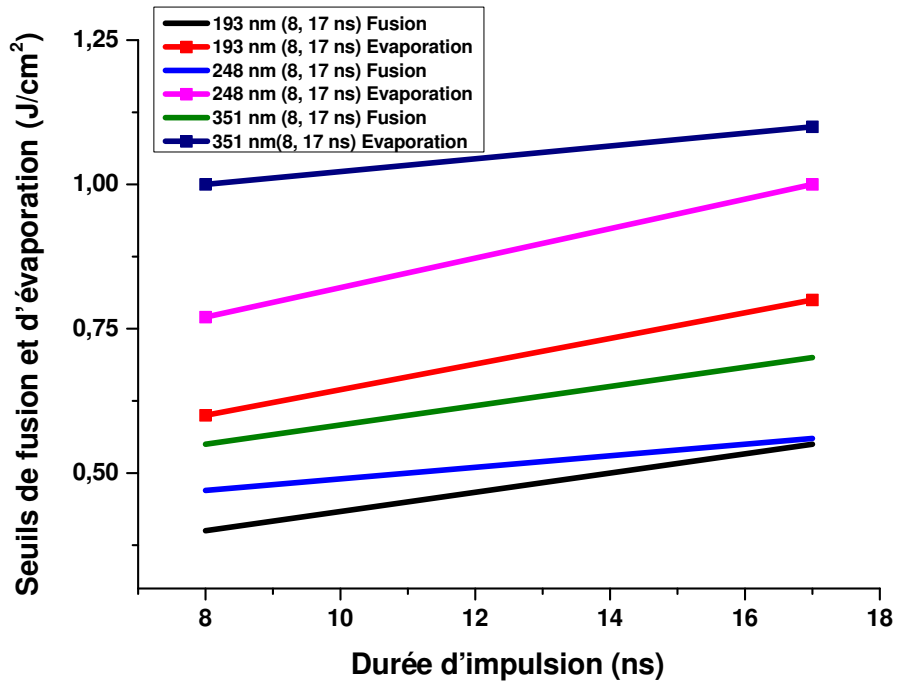


FIGURE 3.3 – Variation des seuils de fusion et d'évaporation en fonction de la durée d'impulsion pour chacune des trois longueurs d'onde 193, 248 et 351 nm.

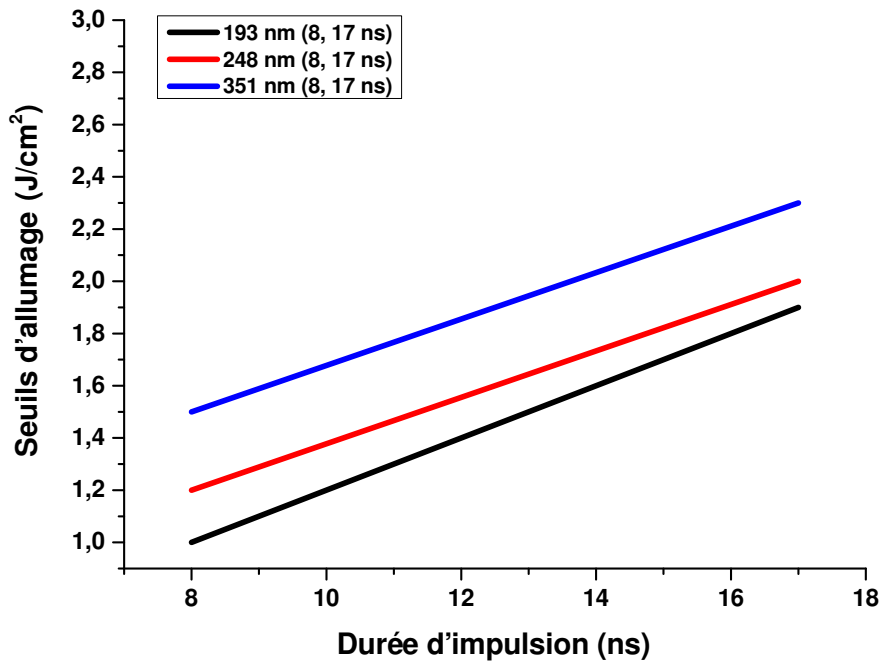


FIGURE 3.4 – Variation des seuils de d’allumage en fonction de la durée d’impulsion pour chacune des trois longueurs d’ondes 193, 248 et 351 nm.

3.2.3.1.4 Écrantage plasma

Les figures (3.5)-(3.8) représentent la variation temporelle de l’intensité du rayonnement laser arrivant à la surface de la cible après son passage à travers la plume, pour des impulsions de 193 nm (8ns), 248 nm (20 et 30 ns) et 351 nm (17 ns).

I_0 et I_t représentent l’intensités initiale du rayonnement et l’intensité du rayonnement transmise à la surface de la cible à travers le plasma formé au dessus de sa surface respectivement.

Pour chacune des trois longueurs d’ondes, nous avons étudié l’absorption du rayonnement laser par le plasma pour quatre différentes densités d’énergie.

Afin de déterminer le taux de l’écrantage plasma, nous évaluons la surface comprise entre les deux courbes $I_0(t)$ et $I_t(t)$ et ceci à partir de la différence entre l’intégrale de chacune.

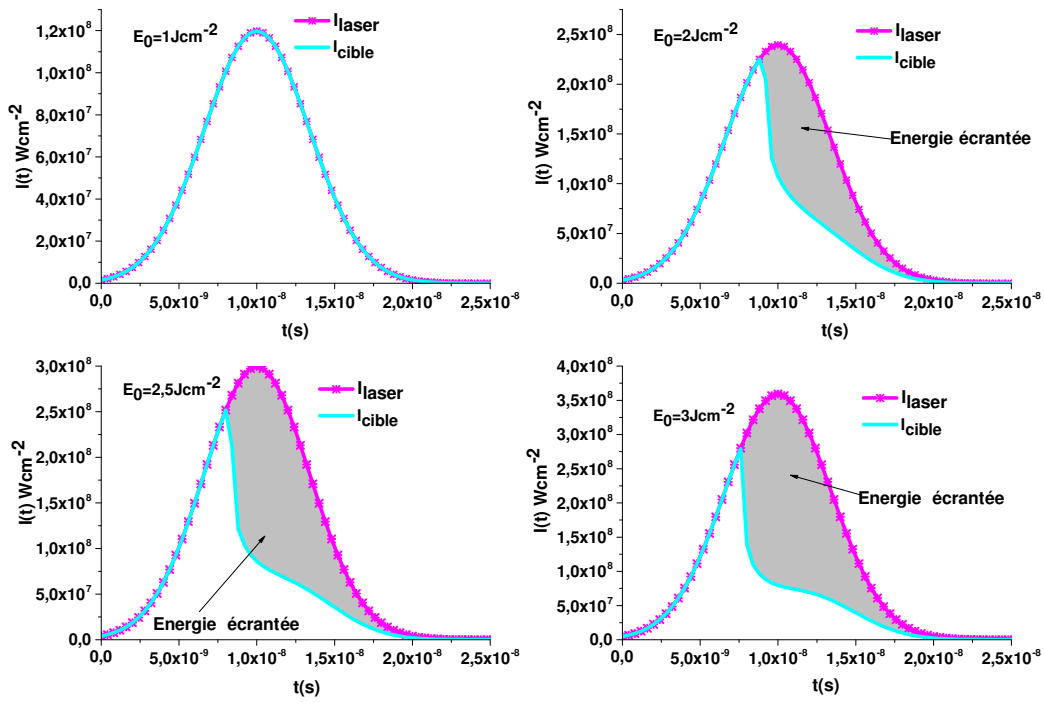


FIGURE 3.5 – Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 8 ns à 193 nm

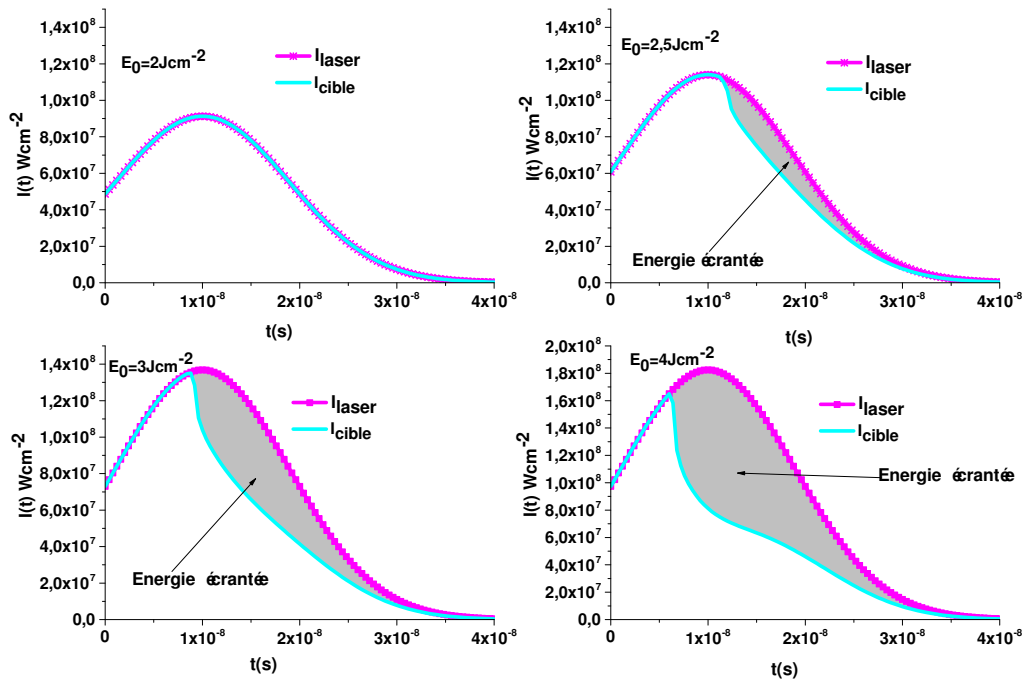


FIGURE 3.6 – Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 20 ns et 248 nm.

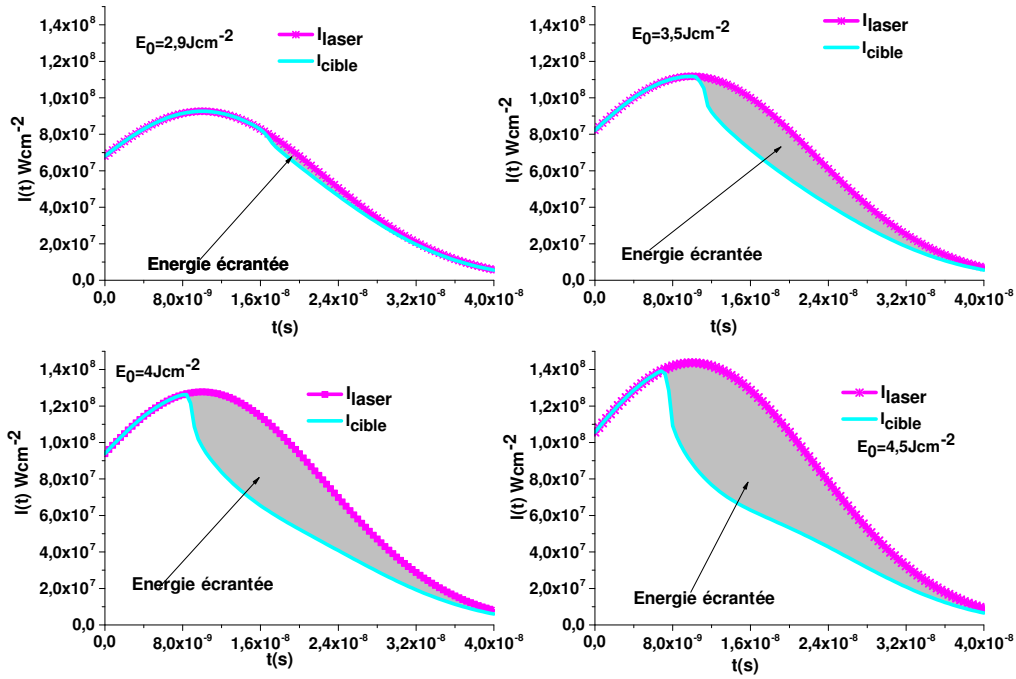


FIGURE 3.7 – Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 30 ns et 248 nm.

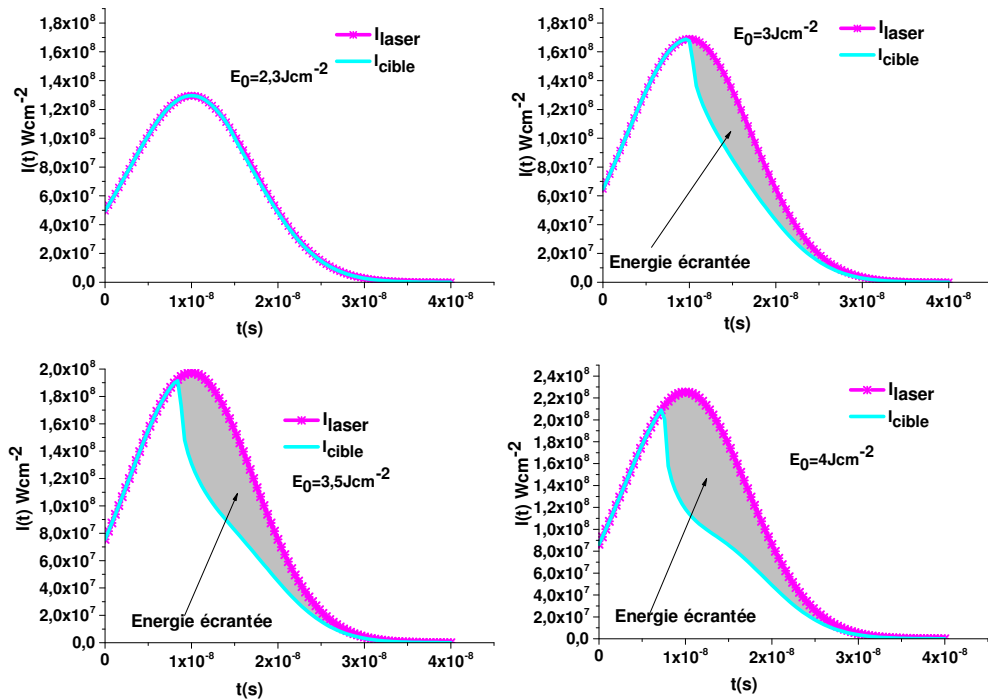


FIGURE 3.8 – Effet de l'écrantage plasma, pour une impulsion de 17 ns et 351 nm.

La figure (3.9) représente la variation du temps relatif au début du processus d'écrantage pour chacune des trois longueurs d'onde 193, 248 et 351 nm.

Ces résultats montrent que le début d'écrantage, dépend de la densité d'énergie de l'impulsion. L'écrantage met moins de temps à débiter lorsque la densité d'énergie du rayonnement est élevée. La comparaison entre les temps du début d'écrantage pour chacune des longueurs d'onde, montre que l'absorption du rayonnement par le plasma débute plutôt lorsque la longueur d'onde de ce dernier est courte. Pour une longueur d'onde donnée le processus d'écrantage débute plus tôt lorsque la durée d'impulsion est courte.

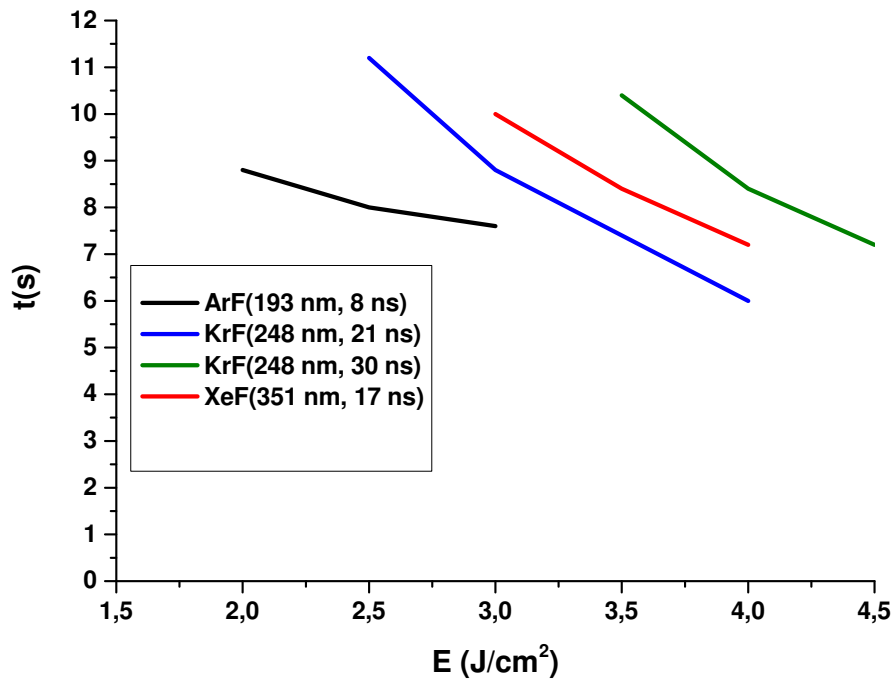


FIGURE 3.9 – Variation du temps relatif au début du processus d'écrantage en fonction de la densité d'énergie pour les trois différentes longueurs d'onde (193, 248 et 351 nm)

Afin de mieux voir l'effet de la longueur d'onde, la densité d'énergie et la durée d'impulsion sur la quantité du rayonnement absorbé par le plasma, nous présentons dans le tableau (3.7) des taux d'écrantage du rayonnement pour chacune des trois longueurs d'ondes 193, 248 et 351 nm et leur durées d'impulsion respectives. La variation des taux d'écrantage en fonction de la densité d'énergie pour chacune des trois longueurs d'onde est représentée dans la figure (3.10).

Aux alentours du seuil d'allumage l'effet d'écrantage du rayonnement par le plasma est absent pour 193 nm et très faible pour 248 et 351 nm. Ceci s'explique par le fait qu'au seuil il y a à peine suffisamment d'énergie pour permettre la formation du plasma. La raison pour laquelle l'effet d'écrantage apparaît aux seuils pour 248 et 351 nm est que dans ces cas là notre modèle prédit des seuils d'allumage avec des erreurs plus élevées que dans le cas d'un rayonnement de 193 nm. Le taux d'écrantage augmente lorsque la densité d'énergie du rayonnement est élevée et que la longueur d'onde et la durée d'impulsion sont courtes.

λ (nm) (τ ns)	Densité d'énergie (J/cm ²)	taux d'écrantage %
193 nm (8ns)	1	0
	2	60.66
	2.5	72.35
	4	82.98
248 nm (21ns)	2	0.044
	2.5	19.71
	3	38.174
	4	58.17
248 nm (30ns)	2.9	6.0637
	3.5	25.7
	4	38.41
	4.5	47.33
351 nm (17ns)	2.3	2
	3	29.73
	3.5	42.66
	4	51.02

Tableau 3.7 – Taux d'écrantage plasma en fonction de la longueur d'onde, la durée de l'impulsion et des densités d'énergie

Pour une même densité d'énergie, l'écrantage plasma croit en fonction de la densité de puissance (densité d'énergie par unité de temps $I(t)$) du rayonnement, comme le montre la figure (3.11) qui représente Variation du taux d'écrantage plasma en fonction de la densité de puissance du rayonnement pour une densité d'énergie incidente de 4J/cm². Pour un rayonnement de 193 nm et une durée d'impulsion de 8ns le matériau reçoit une densité de puissance de 5×10^8 W/cm². Cette densité de puissance est égale à 1.9×10^8 W/cm² pour un rayonnement de 248 nm et une durée d'impulsion de 21 ns et 1.3×10^8 W/cm² pour 248 nm, 30ns et 2.3×10^8 W/cm² pour 351 nm et 17 ns. Bien que la densité de puissance pour un rayonnement de 351 nm, 17 ns est supérieure à celle du 248 nm, 21 ns, le taux d'écrantage est quant à lui plus bas de 7.15%. Ceci peut encore une fois être expliqué par le fait que notre modèle donne des résultats moins précis pour un rayonnement de 351 nm qui sont dû au choix du niveau intermédiaire excité qui ne permet pas au processus de photoionisation d'avoir lieu dans pour une impulsion de cette longueur d'onde.

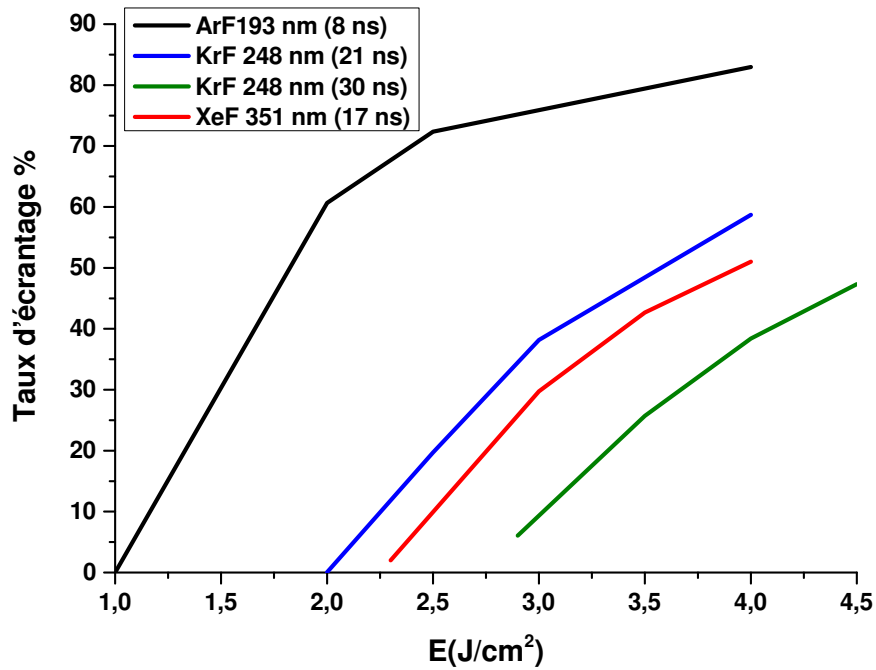


FIGURE 3.10 – Écrantage plasma en fonction de la densité d'énergie du rayonnement.

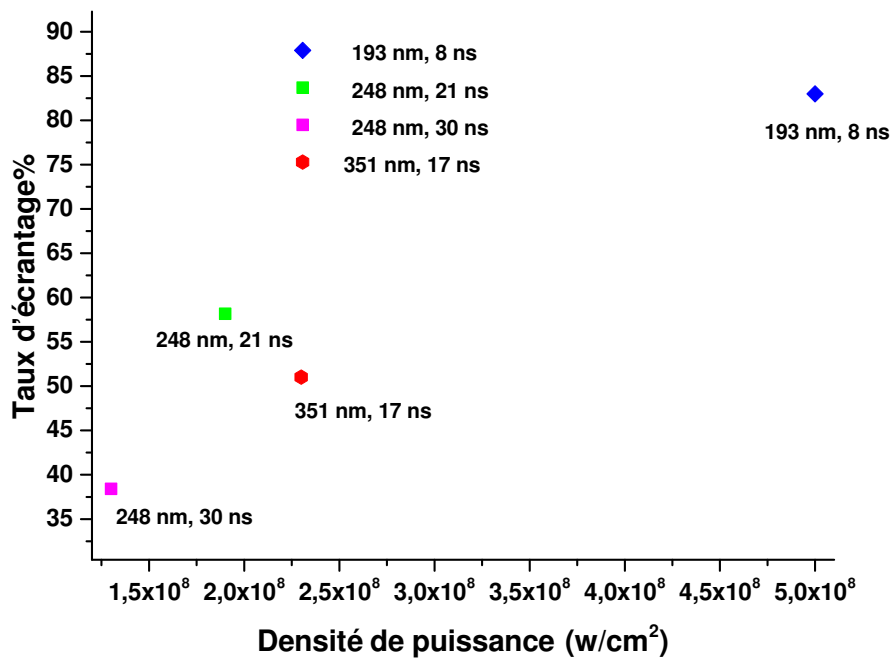


FIGURE 3.11 – Écrantage plasma en fonction de la densité de puissance du rayonnement pour une densité d'énergie incidente de 4J/cm²

3.2.3.1.5 Profondeurs ablatées

Tout d'abord rappelons que nous calculons la profondeur ablatée à partir du nombre de mailles évaporée à chaque instant t .

Les figures (3.12-3.15) montrent la variation temporelle de la profondeur ablatée pour des rayonnements laser de 193 nm (8 ns), 248 nm (20 et 30 ns) et 351 nm (17 ns) respectivement à quatre différentes densités d'énergies.

A partir de ces résultats nous avons pu extraire les temps relatifs au début et à la fin du processus d'ablation ainsi que la valeur maximale de la profondeur ablatée pour différentes densités d'énergie et ceci pour chacun des trois rayonnements et leurs durées d'impulsions respectifs. Toutes ces données ont été regroupées dans le tableau (3.8) et la variation des temps du début et de la fin de l'ablation en fonction de la densité d'énergie du rayonnement est représentée dans la figure (3.16).

L'analyse de ces résultats montrent que le processus d'ablation débute plutôt lorsque

- la densité d'énergie du rayonnement est élevée
- la longueur d'onde est courte
- la durée d'impulsion est courte

A partir de la figure (3.17) nous pouvons comparer les temps relatifs au début et à la fin du processus d'ablation avec ceux du début de l'effet d'écrantage. Nous pouvons constater que le processus d'ablation s'arrête immédiatement après le début de l'effet d'écrantage. Ceci signifie que l'absorption du rayonnement par le plasma formé au dessus de la surface de la cible bloque le processus d'ablation et dans ce cas là la quantité du rayonnement qui arrive à atteindre la surface de la cible ne suffit plus pour que l'ablation puisse continuer d'avoir lieu.

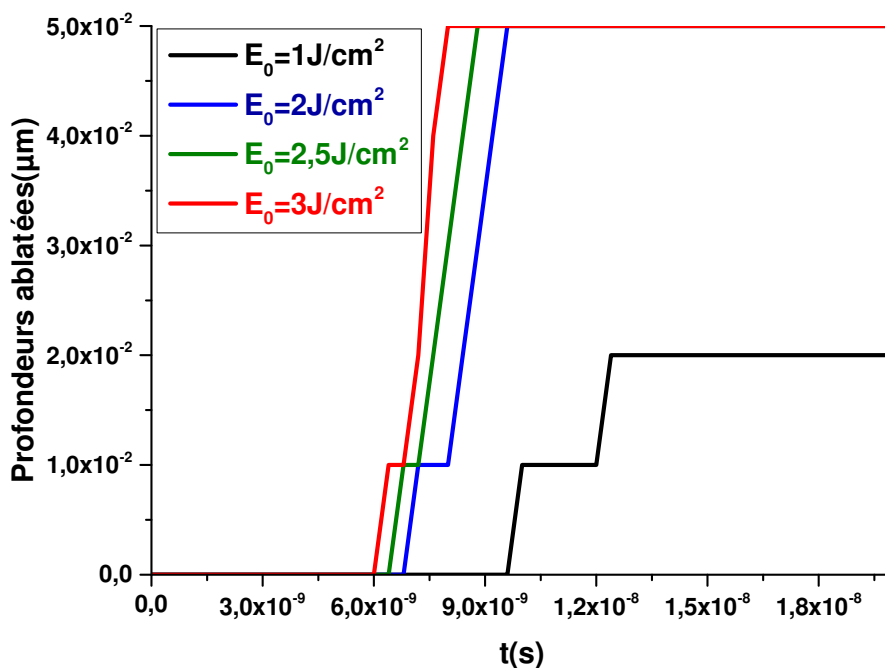


FIGURE 3.12 – Profondeur ablatée pour une impulsion de 8 ns et 193 nm.

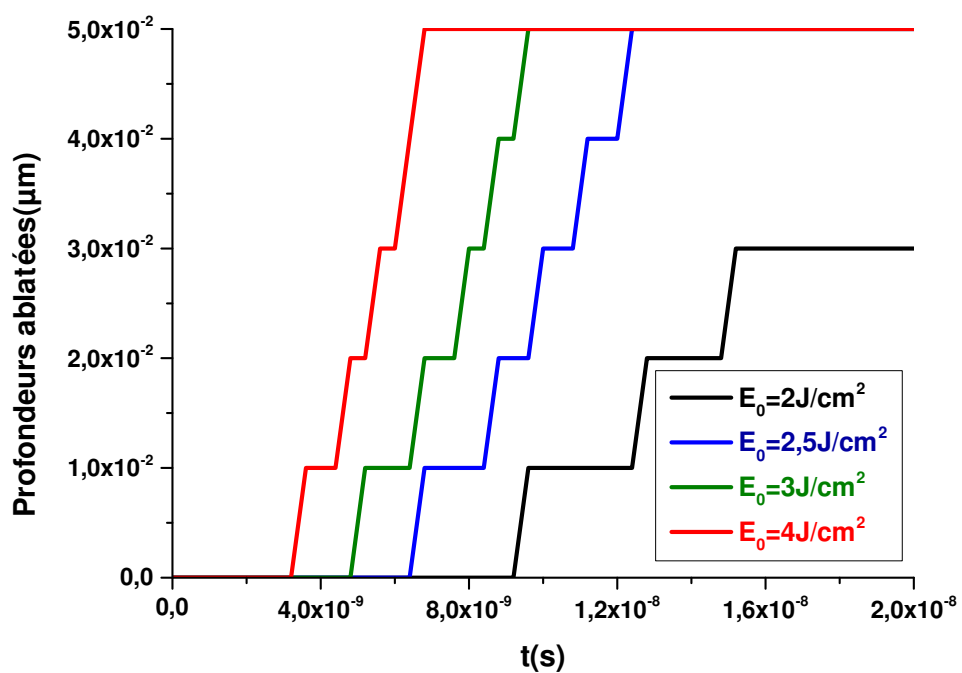


FIGURE 3.13 – Profondeur ablatée pour une impulsion de 21 ns et 248 nm.

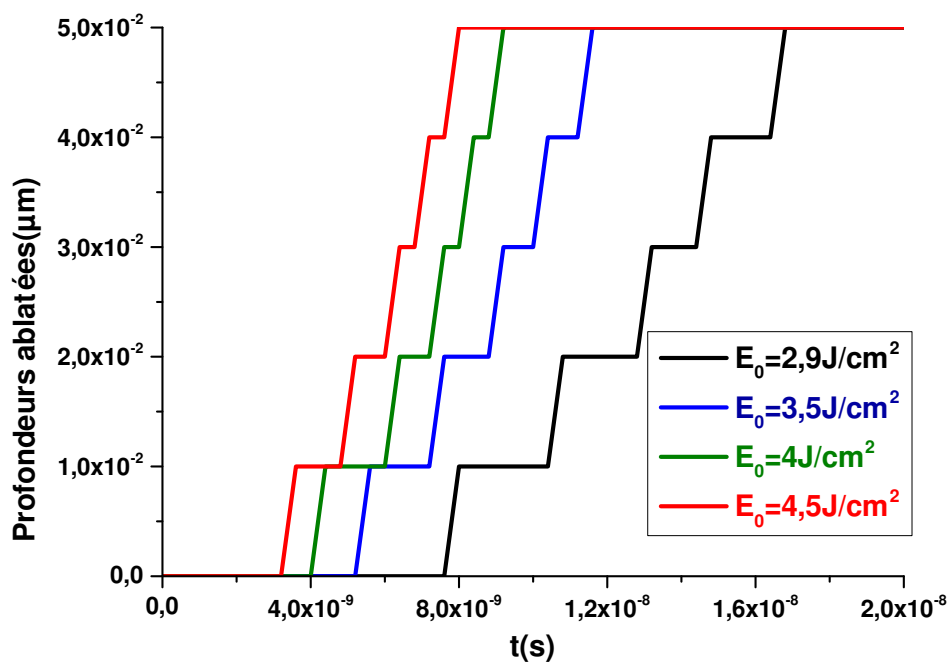


FIGURE 3.14 – Profondeur ablatée pour une impulsion de 30 ns et 248 nm.

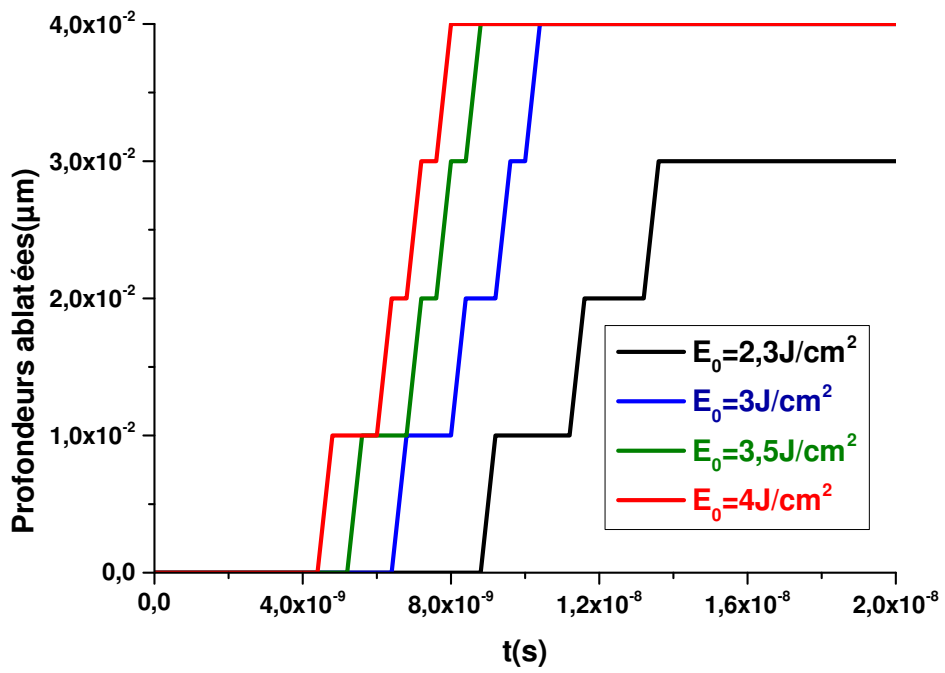


FIGURE 3.15 – Profondeur ablatée pour une impulsion de 17 ns et 351 nm

λ (nm) / τ (ns)	193 / 8			
densité d'énergie (J/cm ²)	1	2	2.5	3
t_1 (ns)	9.8	7.2	6.7	6.4
t_2 (ns)	12.5	7.5	7	6
profondeur ablatée (μ m)	0.02	0.05	0.05	0.05
λ (nm) / τ (ns)	248 / 21			
densité d'énergie (J/cm ²)	2	2.5	3	4
t_1 (ns)	9.2	6.4	4.8	3.2
t_2 (ns)	15.2	12.4	9.6	6.8
profondeur ablatée (μ m)	0.03	0.05	0.05	0.05
λ (nm) / τ (ns)	248 / 30			
densité d'énergie (J/cm ²)	2.9	3.5	4	4.5
t_1 (ns)	7.6	5.2	4	3.2
t_2 (ns)	16.8	11.6	9.2	8
profondeur ablatée (μ m)	0.05	0.05	0.05	0.05
λ (nm) / τ (ns)	351 / 17			
densité d'énergie (J/cm ²)	2.3	3	3.5	4
t_1 (ns)	9	6	5	4
t_2 (ns)	16	10	8	7
profondeur ablatée (μ m)	0.03	0.04	0.04	0.04

Tableau 3.8 – Profondeurs ablatée pour chacune des trois longueurs d'ondes et des durées d'impulsions qui leur correspondent 193 nm (8 ns), 248 (30 ns) and 351 nm (17 ns) pour différentes densités d'énergies, t_1 et t_2 sont les temps correspondants au début et à la fin du processus d'ablation respectivement.

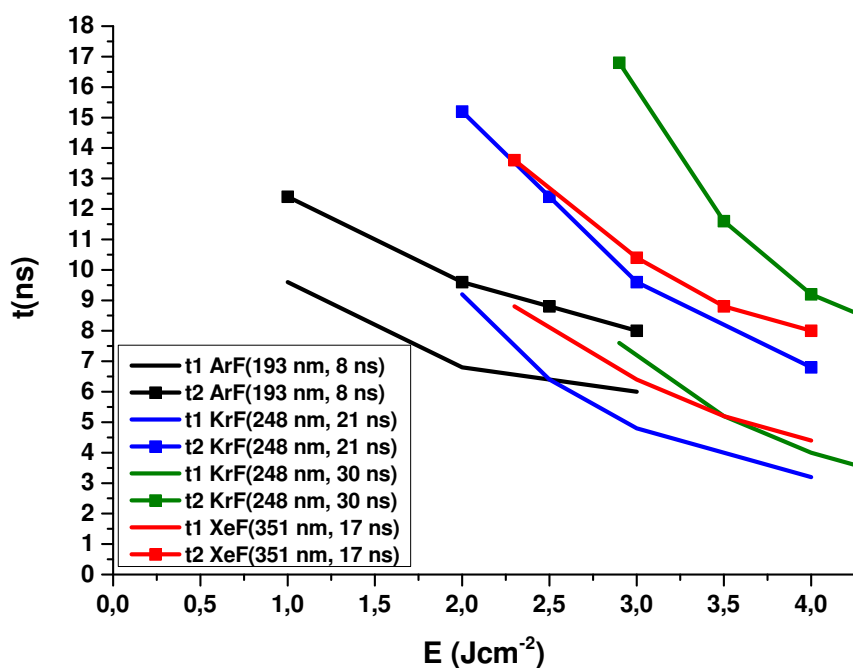


FIGURE 3.16 – Variation des temps du début et de la fin du processus d'ablation en fonction de la densité d'énergie du rayonnement.

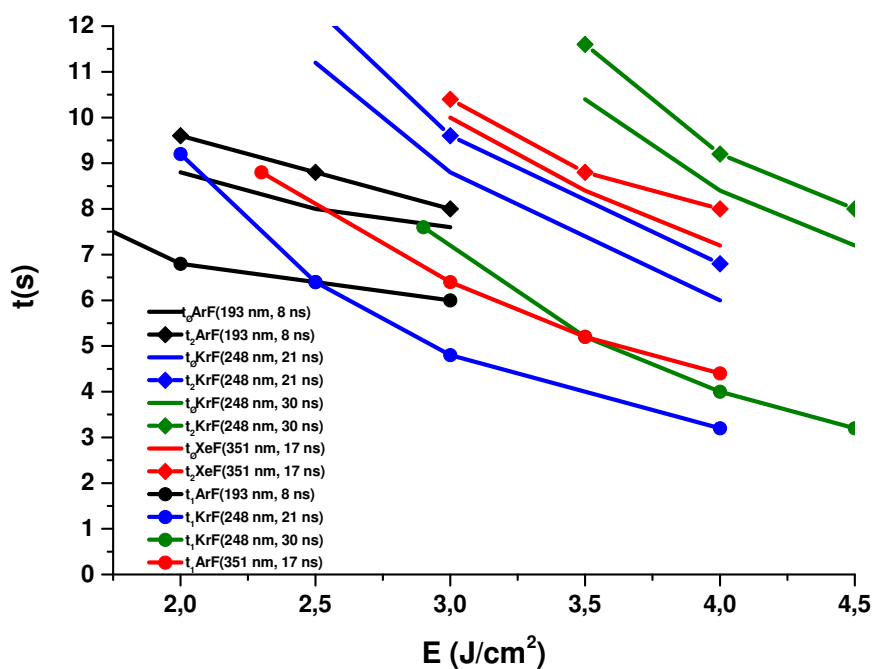


FIGURE 3.17 – Comparaison entre le temps du début et de la fin du processus d'ablation et le temps relatif au début du processus d'écrantage.

3.2.3.1.6 Déséquilibre thermique dans le plasma

La création du plasma se fait grâce aux électrons primaires qui sont d'abord formé dans la vapeur. Ces électrons absorbent l'énergie du rayonnement par inverse Bremsstrahlung, ce gain d'énergie leur permet en interagissant avec les espèces lourdes de créer d'avantage d'électrons libres, ce qui se traduit par l'augmentation de la température des lourds lors de cet échange d'énergie.

Les figures (3.18)-(3.21) représentent la comparaison entre l'évolution en fonction du temps de la température électronique et celle des espèces lourdes, au niveau de la première maille du domaine gazeux.

Ces résultats montrent que le déséquilibre électronique est plus prononcé au seuil d'allumage. Ceci est dû au fait que, l'énergie du seuil d'allumage permet la création d'électrons au sein de la plume, mais ne leur permet pas d'acquérir suffisamment d'énergie à transmettre aux espèces lourdes lors des processus collisionnels.

Pour des densités d'énergie supérieures aux seuils d'allumage et après que l'intensité de l'impulsion atteigne son maximum, les deux températures se rejoignent ce qui indique qu'un équilibre s'installe entre les électrons et les particules lourdes.

La figure (3.22) permet d'étudier la variation du temps au bout duquel l'équilibre s'installe entre les électrons et les espèces lourdes en fonction de la densité d'énergie du rayonnement. Ces résultats montrent que pour une longueur d'onde et une durée d'impulsion données, ce temps est d'autant plus court que la densité d'énergie du rayonnement est élevée. Nous pouvons également voir que l'équilibre a tendance à s'établir rapidement lorsque la longueur d'onde et la durée d'impulsion sont courtes. Les temps relatifs à l'établissement de l'équilibre sont plus courts dans le cas d'un rayonnement de 351 nm et une durée d'impulsion de 17 ns comparés aux cas 248 nm, 20 et 30 ns. Ceci s'explique par la densité de puissance (densité d'énergie par unité de temps $I(t)$) qui est plus élevée pour un rayonnement de 351 nm.

La figure (3.23), permet de comparer le déséquilibre électronique dans la première maille du domaine gazeux pour deux rayonnements le (193 nm, 8 ns) et le (351 nm, 17 ns) à une densité d'énergie de $3\text{J}/\text{cm}^2$. Il est clair que le déséquilibre est plus important pour un rayonnement de 351 nm. Alors que les températures électroniques sont du même ordre de grandeur pour les deux longueurs d'ondes, la température des espèces lourdes est beaucoup plus élevée dans le cas du rayonnement de 193 nm. Ceci car pour la plus courte longueur d'onde le rayonnement est plus énergétique, en plus l'impulsion dans ce cas est plus courte ce qui fait que la densité de puissance du rayonnement est plus importante. Ainsi les électrons acquièrent plus d'énergie ce qui favorisent les processus collisionnel durant lesquels cette énergie est transférée aux espèces lourdes.

La figure (3.24) permet d'étudier l'importance du déséquilibre électronique dans la plume ainsi que son expansion. Au sein de la plume la température électronique est plus élevée que celle des lourds, même après que l'intensité du rayonnement aie atteint sa valeur maximale et ce quelque soit la longueur d'onde de l'impulsion (193 ou 351 nm), ce déséquilibre reste présent jusqu'au niveau du front de choc où les deux températures baissent soudainement jusqu'à s'annuler. La position du front de choc pour chacun des rayonnements permet de voir comment la dynamique et l'expansion de la plume sont in-

fluencées par les paramètres des impulsions. Les plumes avec les plus hautes températures sont accélérés au plus loin de la surface de la cible.

Pour les densités d'énergie considérées dans ce travail et qui permettent l'ablation et l'expansion du plasma dans le milieu environnant, les températures calculées par notre modèles sont en bon accord avec les températures des plasmas induits par laser pour des conditions d'interaction telles que celles de la LIBS [11, 12].

Dans le tableau (3.9) nous résumons les valeurs maximales de la température électronique et celle des espèces lourdes dans la première maille du domaine gazeux pour chaque longueur d'onde pour différentes densités d'énergies.

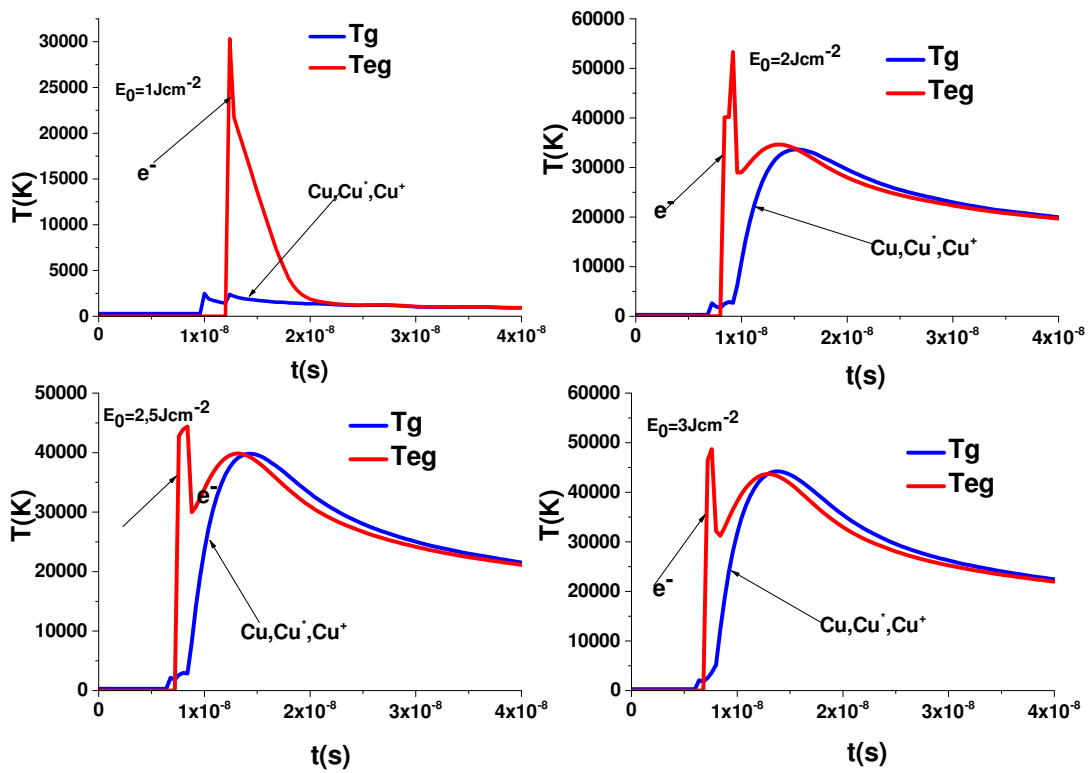


FIGURE 3.18 – Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour une impulsion de 193 nm (8 ns).

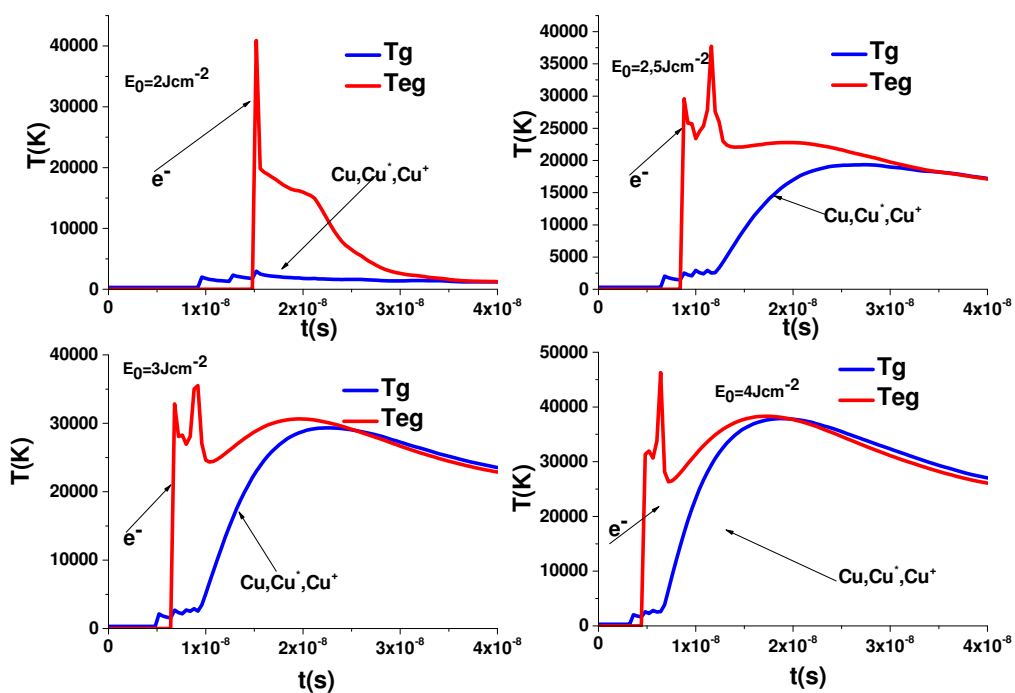


FIGURE 3.19 – Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour impulsion de 248 nm (20 ns).

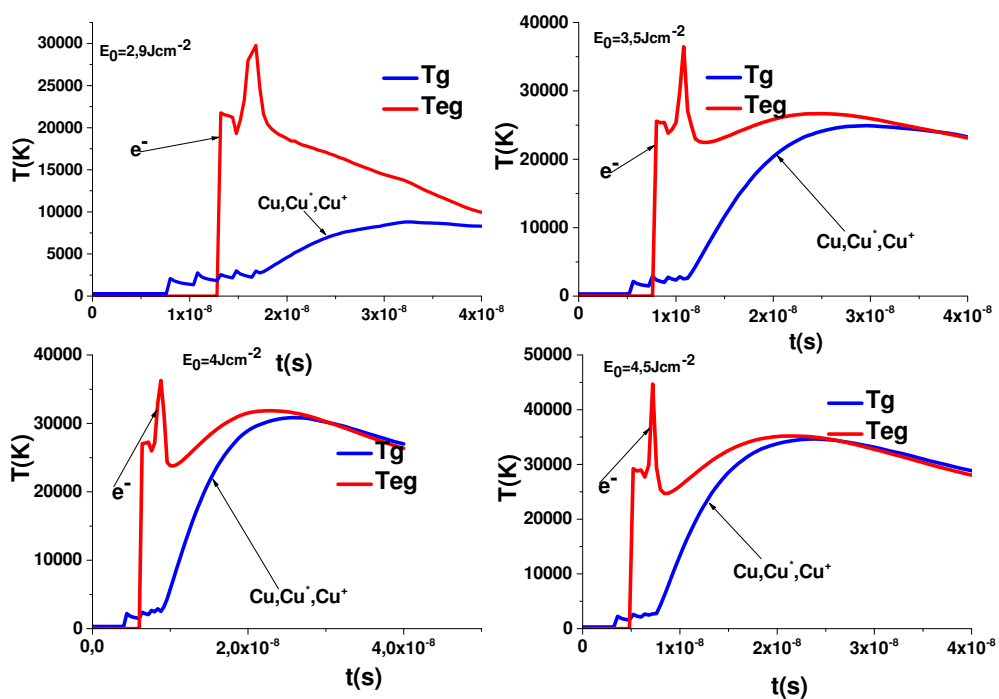


FIGURE 3.20 – Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour une impulsion de 248 nm (30 ns).

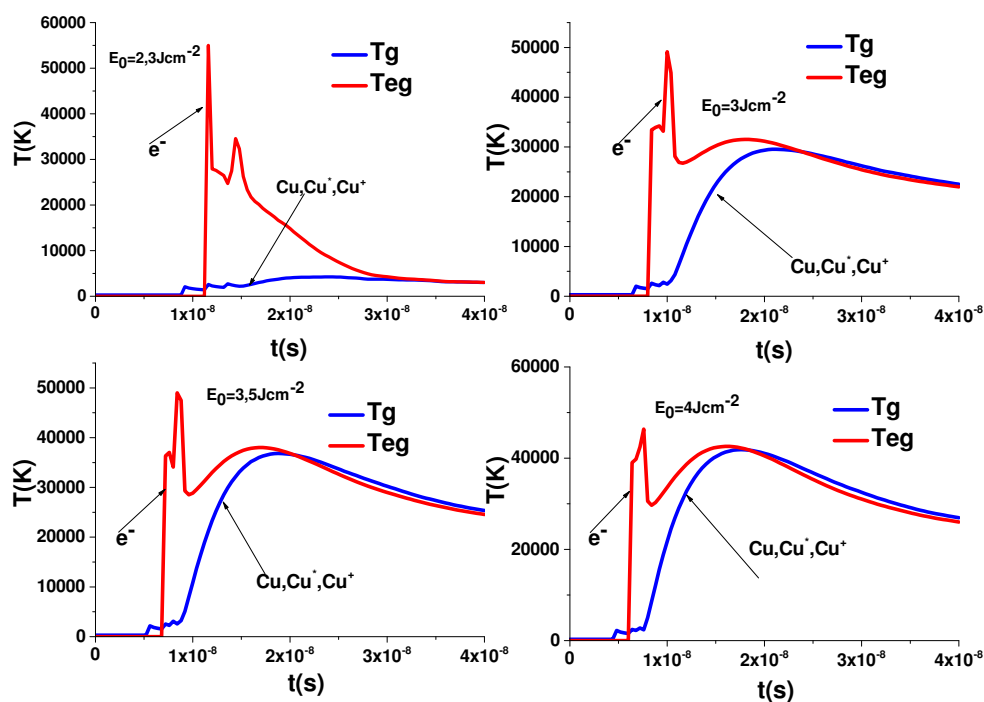


FIGURE 3.21 – Température des électrons et des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour une impulsion de 351 nm (17 ns).

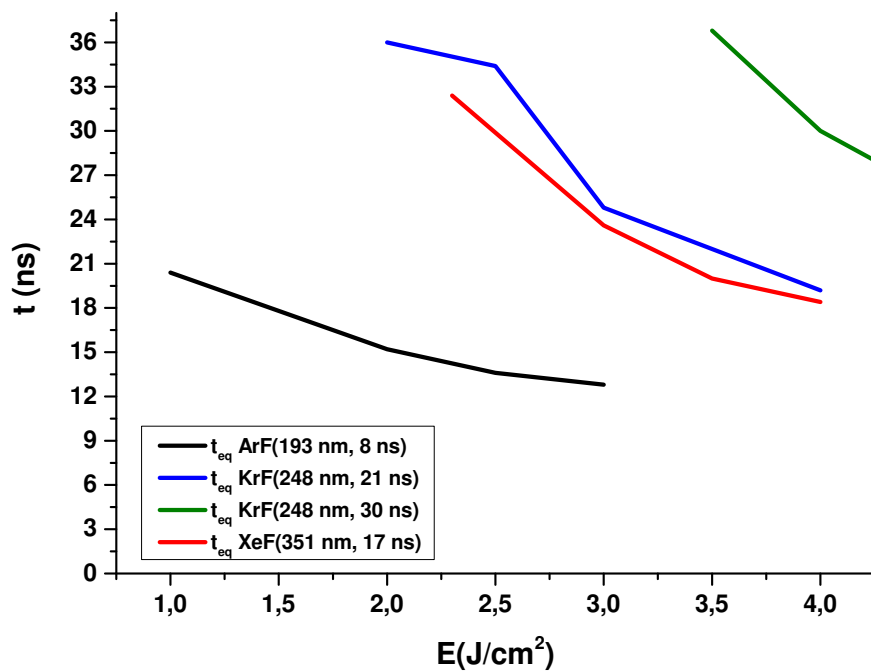


FIGURE 3.22 – Variation du temps d'équilibre en fonction de la densité d'énergie.

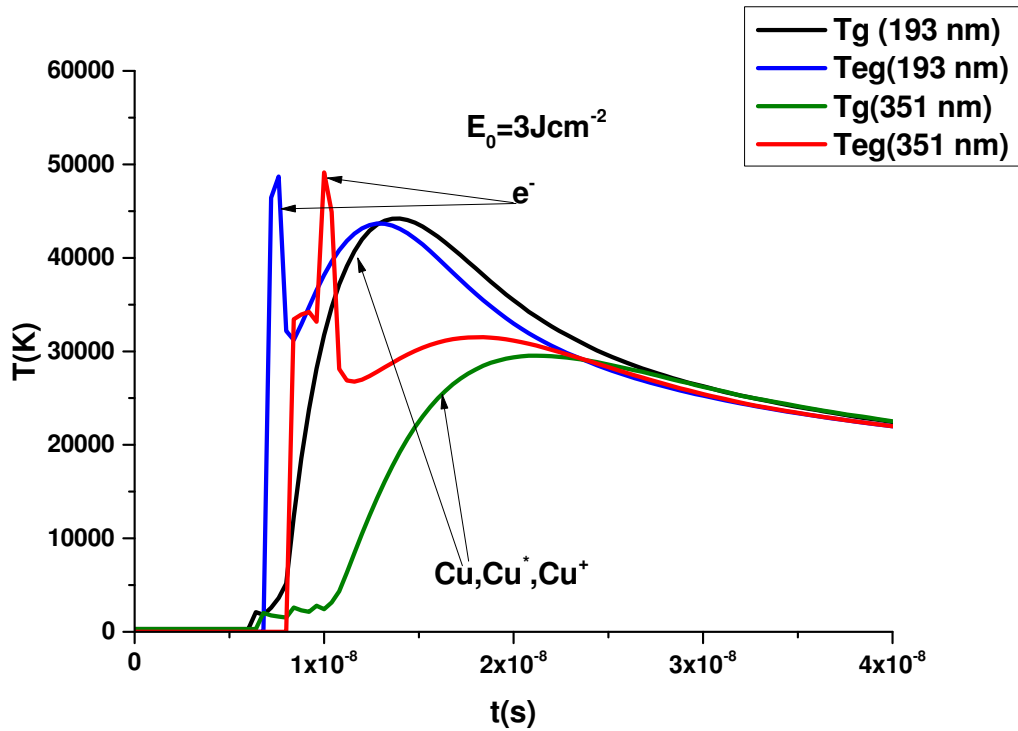


FIGURE 3.23 – Température des électrons et des espèces lourdes dans la plume pour des impulsions de 193 nm (8 ns) et 351 nm (17 ns), à 3 J/cm^2 .

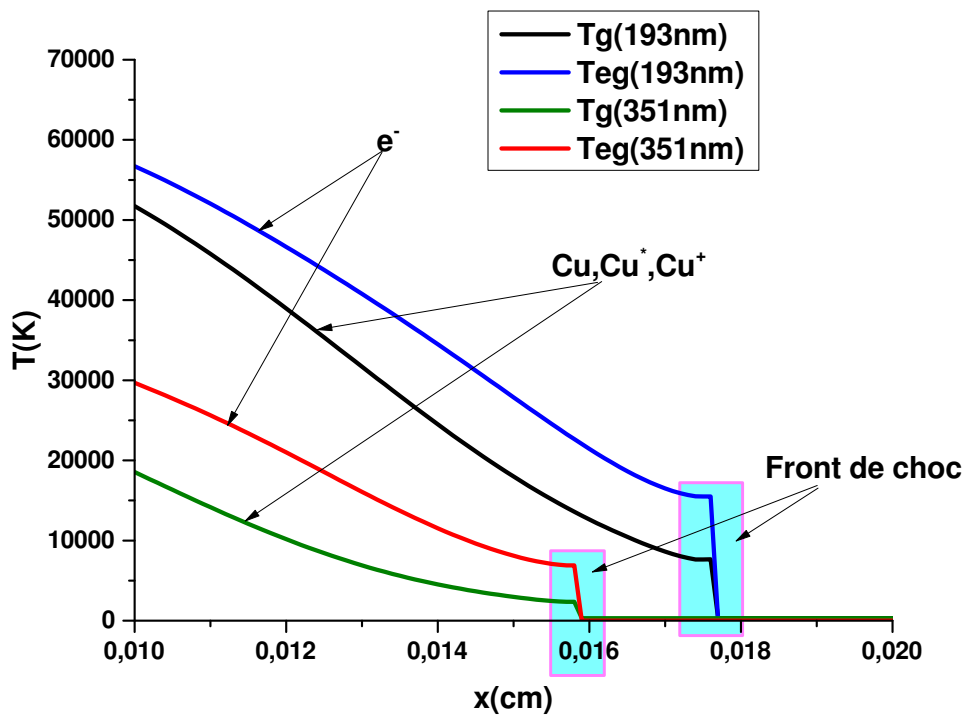


FIGURE 3.24 – Température électronique et des espèces lourdes dans la plume pour des impulsions de 193 nm (8 ns) et 351 nm (17 ns), pour 4 J/cm^2 à 14 ns.

λ (nm) / τ (ns)	193 / 8			
Densité d'énergie (J/cm^2)	1	2	2.5	3
Teg_{max} (K)	3×10^4	4.7×10^4	4.2×10^4	4.8×10^4
t(s)	12	10	8	8
Tg_{max} (K)	10^3	3.2×10^4	4×10^4	4.3×10^4
t_{max} (s)	10	15	15	15
λ (nm) / τ (ns)	248 / 21			
Densité d'énergie (J/cm^2)	2	2.5	3	4
Teg_{max} (K)	4×10^4	3.8×10^4	3.5×10^4	4.6×10^4
t_{max} (s)	15	12	9	7
Tg_{max} (K)	10^4	2×10^4	3×10^4	4×10^4
t_{max} (s)	15	25	21	18
λ (nm) / τ (ns)	248 / 30			
Densité d'énergie (J/cm^2)	2.3	3	3.4	4
Teg_{max} (K)	3×10^4	3.8×10^4	3.8×10^4	4.6×10^4
t_{max} (s)	15	10	9	8
Tg_{max} (K)	10^4	2.5×10^4	3×10^4	3.8×10^4
t_{max} (s)	30	25	20	20
λ (nm) / τ (ns)	351 / 17			
Densité d'énergie (J/cm^2)	1	2.5	3	4
Teg_{max} (K)	5.8×10^4	5×10^4	5×10^4	4.3×10^4
t_{max} (s)	11	10	9	8
Tg_{max} (K)	10^4	2.6×10^4	3.8×10^4	4×10^4
t_{max} (s)	25	20	18	18

Tableau 3.9 – Températures maximales des espèces lourdes et des électrons à la première maille du domaine gazeux, pour chacune des longueurs d'ondes et durées d'impulsions suivantes 193 nm (8 ns), 248 (21, 30 ns) and 351 nm (17 ns), Tg an Teg sont la température des espèces lourdes et des électrons respectivement.

3.2.3.1.7 Dynamique et expansion du plasma

Afin d'étudier le comportement du plasma en expansion, nous présentons la variation spatiale à des temps successifs de sa pression (3.25), sa vitesse d'expansion (3.26) et les densités des différentes espèces qu'il contient (3.27-3.29) ainsi que celle du gaz environnant. Nous nous limitons au cas d'une impulsion de longueur d'onde de 193 nm et de durée de 8 ns.

La figure (3.25) représente la variation spatiale de la pression du plasma à différents instants, pendant et après la fin de l'impulsion, celle-ci dépend clairement de l'énergie du rayonnement, qui plus elle est élevée plus les valeurs de la pression dans la plume sont importantes. Près de la surface du matériau, la pression de la plume est plus élevée, sa valeur diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la surface en direction du rayonnement incident. Cette chute de pression correspond à l'augmentation de la vitesse de la plume, qui se traduit par son expansion rapide dans le milieu environnant et la formation d'une onde de choc.

Il est important de noter qu'une onde de choc peut seulement être présente dans une atmosphère ambiante. En comparaison avec l'expansion sous vide, l'expansion dans un gaz ambiant est un processus beaucoup plus compliqué qui implique la décélération, l'atténuation, la thermalisation et la recombinaison des espèces ablatées et la formation d'une onde de choc [13].

La figure (3.26) représente la variation de la vitesse de la plume. Ces résultats montrent que les hautes densités d'énergies sont à l'origine d'une expansion beaucoup plus rapide et très éloignée de la surface de la cible, l'expansion a lieu pendant et après la fin de l'impulsion. Après la fin de l'impulsion, même si la plume continue son expansion loin de la surface de la cible, arrivée à une certaine distance, la vitesse s'annule brusquement au niveau du front de choc et l'expansion s'arrête. Le déplacement du front de choc peut être facilement suivi à chaque instant car celui-ci correspond justement à la position où la vitesse devient soudainement égale à zéro.

L'étude de la variation spatiale des densités des diverses espèces présentes dans le plasma, montre que les impulsions ayant les plus grandes densités d'énergie permettent la formation d'un nombre plus important d'espèces excitées et une fois ionisées, ceci est une conséquence directe de l'absorption du rayonnement laser par inverse Bremsstrahlung et l'ionisation en avalanche dont l'impacte croît en fonction de la densité d'énergie de l'impulsion.

Les espèces neutres sont très largement concentrées près de la surface du matériau leur densité diminue avec le temps après la fin de l'impulsion et dans les zones de la plume les plus éloignées de la surface du matériau, ceci est dû à l'absorption de l'énergie du rayonnement par la vapeur et la formation d'électrons libres, d'espèces excitées et une fois ionisées.

En ce qui concerne le gaz ambiant, celui-ci est poussé loin de la surface du matériau par la plume en expansion. Alors que près de la surface de la cible le gaz ambiant a la plus faible densité, celle-ci atteint des valeurs maximales au niveau du front de choc, après lequel elle redevient égale à celle de l'hélium à pression atmosphérique.

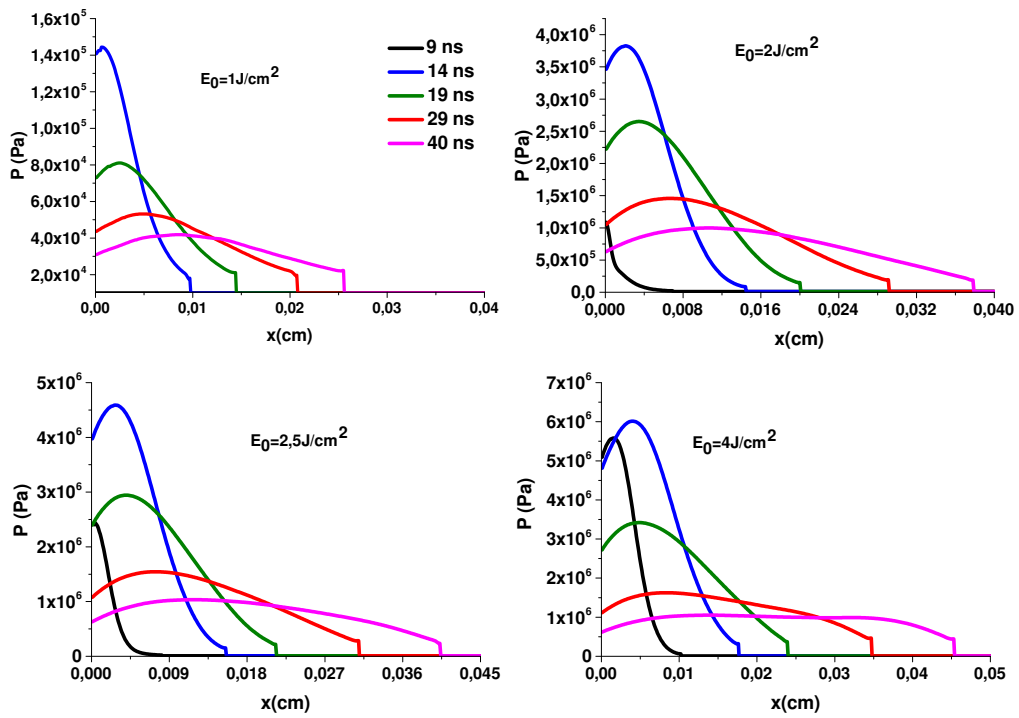


FIGURE 3.25 – Pression de la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.

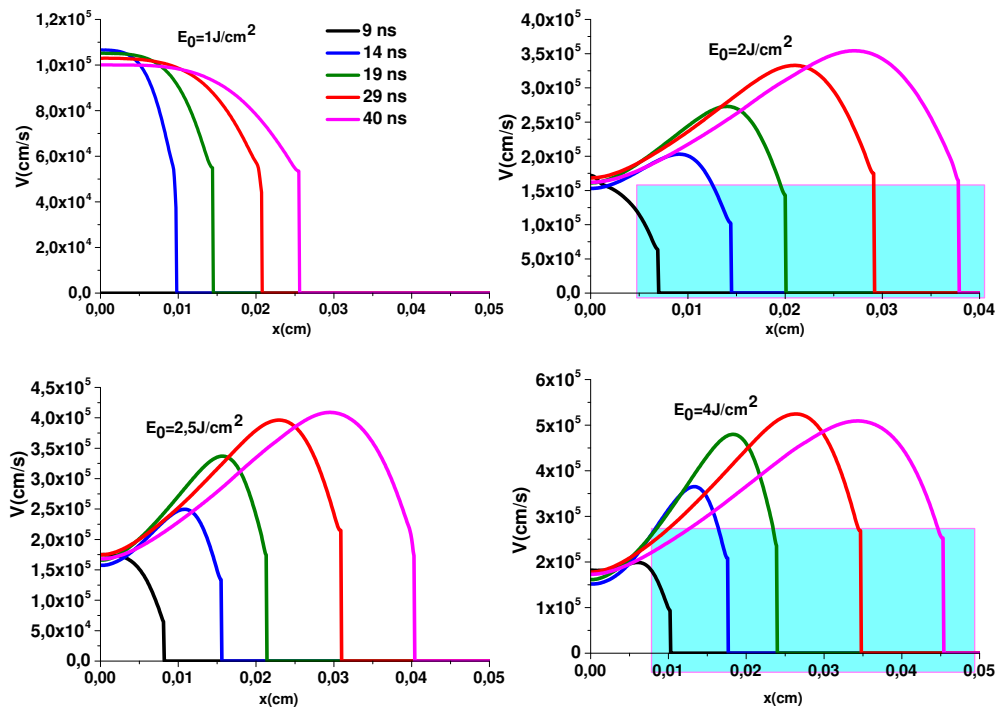


FIGURE 3.26 – Vitesse de la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.

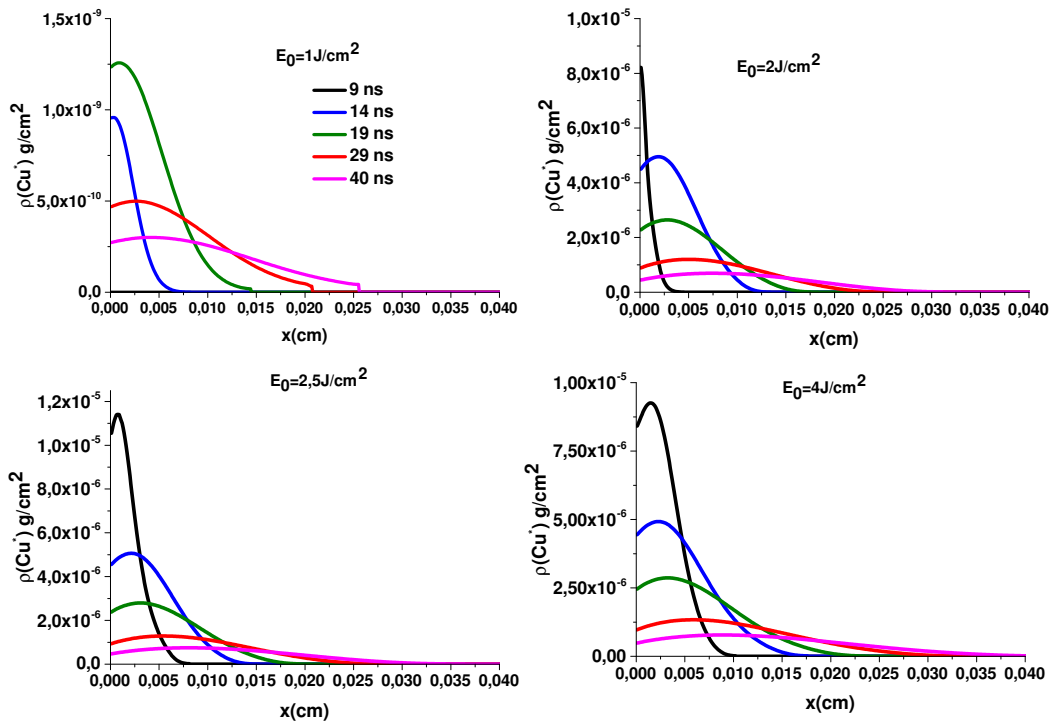


FIGURE 3.27 – Densité des espèces excitées dans la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.

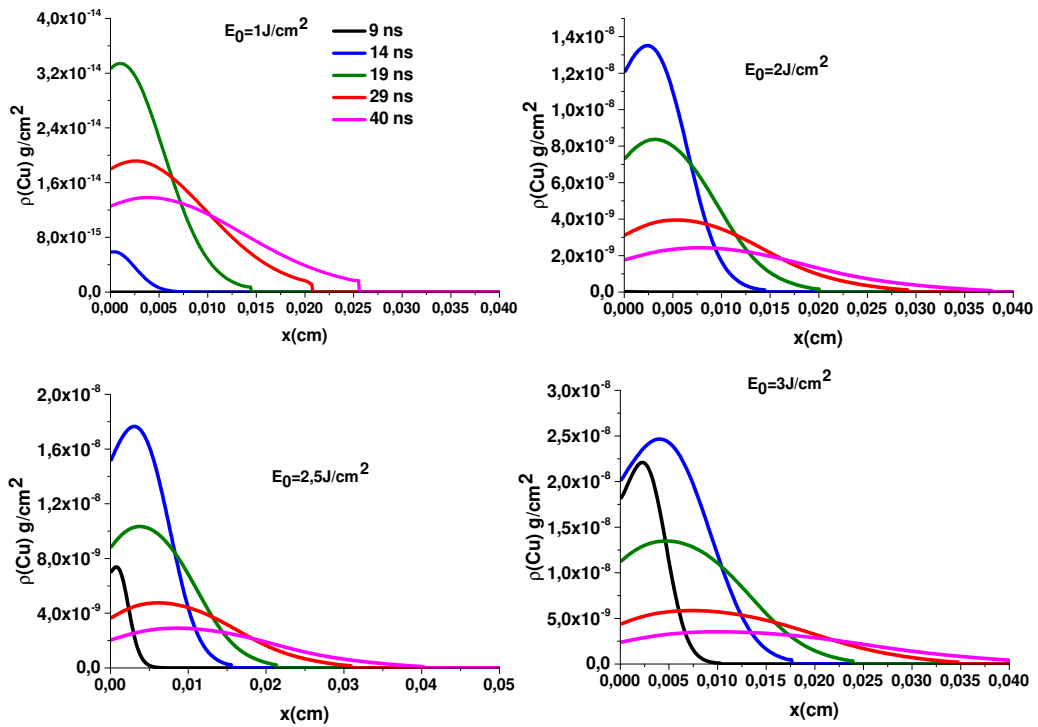


FIGURE 3.28 – Densité des espèces neutres dans la plume pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.

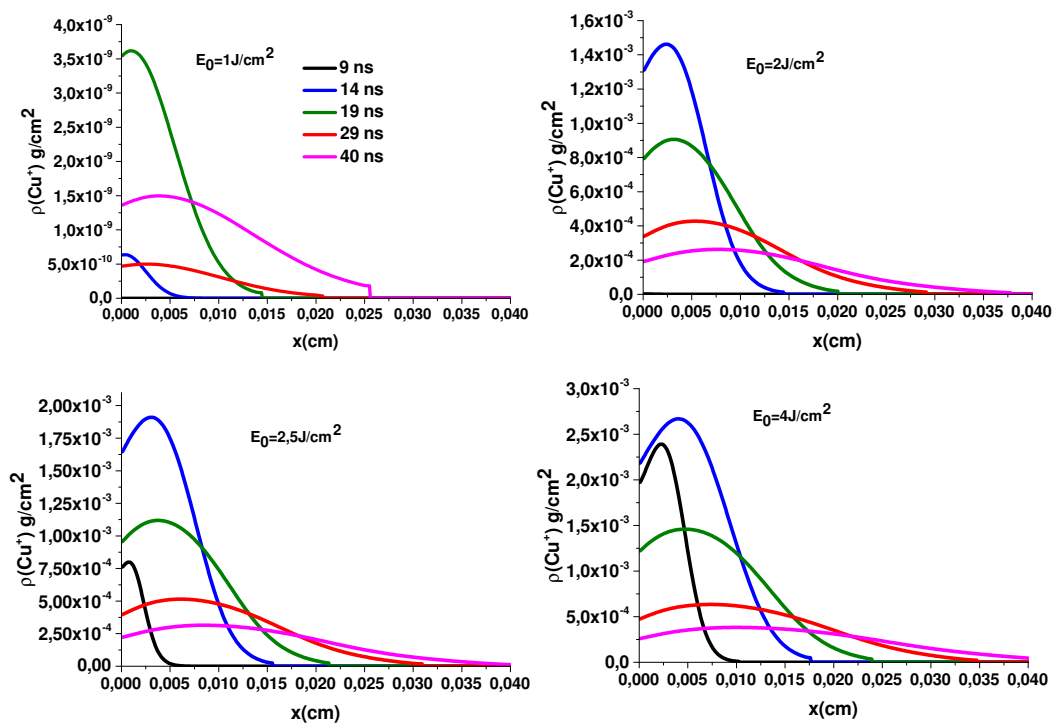


FIGURE 3.29 – Densité des espèces une fois ionisées pour une impulsion de 193 nm (8 ns) à différents instants.

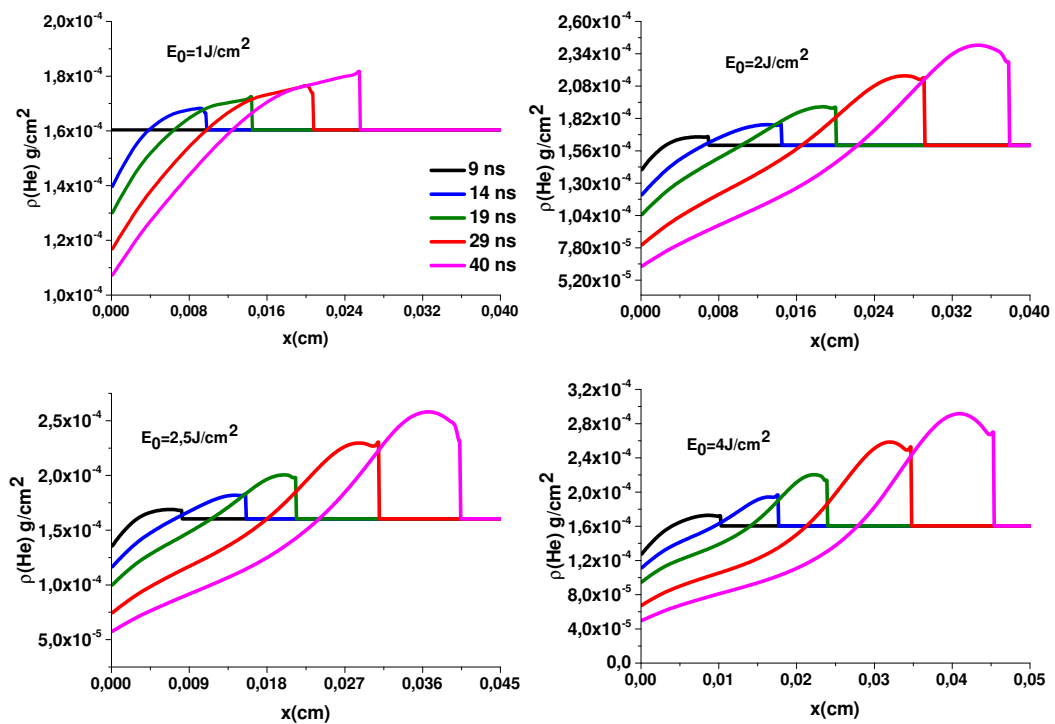


FIGURE 3.30 – Densité du gaz environnant pour une impulsion de de 193 nm (8 ns) à différents instants.

Les résultats présentés jusqu'à présent qui nous ont permis de valider notre modèle et d'étudier d'une manière globale l'interaction d'une cible en cuivre avec des impulsions laser nanoseconde dans le rayonnement ultraviolet, ont été calculés en prenant en compte uniquement la présence de cinq espèces dans la partie hydrodynamique de notre modèle. Dans la section suivante nous allons mettre en évidence l'impact de la formation d'espèces doublement ionisées sur l'ablation laser d'une cible en cuivre.

3.2.3.2 Modèle hydrodynamique à six espèces

Afin d'étudier l'effet de la présence d'espèces doublement ionisées sur le processus d'ablation y compris la dynamique du plasma induit par laser, nous avons considéré une impulsion laser d'une longueur d'onde de 193 nm avec un profil temporel idéalement Gaussien d'une largeur à mi-hauteur de 8 ns. L'interaction de l'impulsion avec la cible en cuivre a lieu dans un gaz environnant constitué d'hélium à pression atmosphérique. L'intégralité de l'interaction a été simulée à savoir les effets thermiques dans le matériau ainsi que la formation et expansion du plasma dans le milieu environnant. Dans ce qui suit "cas 1" fait référence aux résultats calculés en utilisant notre modèle de base où les équations hydrodynamiques ne tiennent compte que de la présence de cinq espèces dans le plasma, à savoir Cu, Cu*, Cu⁺, e⁻ et He, et dont les principaux résultats ont été présentés dans la section précédente, alors que "Cas 2" fait référence à la nouvelle version de notre modèle, développée pour prendre en considération la formation d'espèces doublement ionisées. Nous présentons des résultats pour des densités d'énergies de 2 et 3 J/cm²

3.2.3.2.1 Seuil d'allumage plasma et validation

Avant d'examiner l'effet de la présence des espèces deux fois ionisées sur la cible et la dynamique du plasma induit par laser, nous nous sommes d'abord intéressés au seuil d'allumage afin de voir s'il est affecté par la présence de la nouvelle espèce.

Le calcul du seuil d'allumage plasma avec le modèle à six espèces, sous les conditions décrites plus haut, donne exactement la même valeur que celle obtenue dans le cas précédent, où seules les espèces une fois ionisées sont prises en compte et qui est égale à 1 J/cm². Ce calcul nous permet encore une fois de valider notre approche en comparaison avec les travaux expérimentaux et théoriques de Clarke et al [7] et Dyer [8] respectivement. Le seuil d'allumage n'est pas affecté par la présence de l'espèce supplémentaire car cette densité d'énergie ne permet pas aux électrons d'acquérir suffisamment d'énergie pour permettre au processus d'ionisation par impacte électronique des espèces une fois ionisées d'avoir lieu.

La figure (3.31) présente la comparaison du déséquilibre thermique obtenu avec les deux modèles au seuil d'allumage. Comme il a été montré précédemment le seuil d'allumage est indépendant du modèle choisi et il débute après 13.2 ns du début de l'impulsion dans les deux cas. Les températures des électrons et celles des espèces lourdes varient de la même manière, à l'exception de la valeur des maximums, où l'écart entre les deux cas devient remarquable. Pour que le plasma se forme et soit temporairement maintenu, les électrons dans le modèle à six espèces vont apporter plus d'énergie pour favoriser la formation des espèces doublement ionisées d'avoir lieu, bien qu'au seuil cette énergie reste

relativement faible.

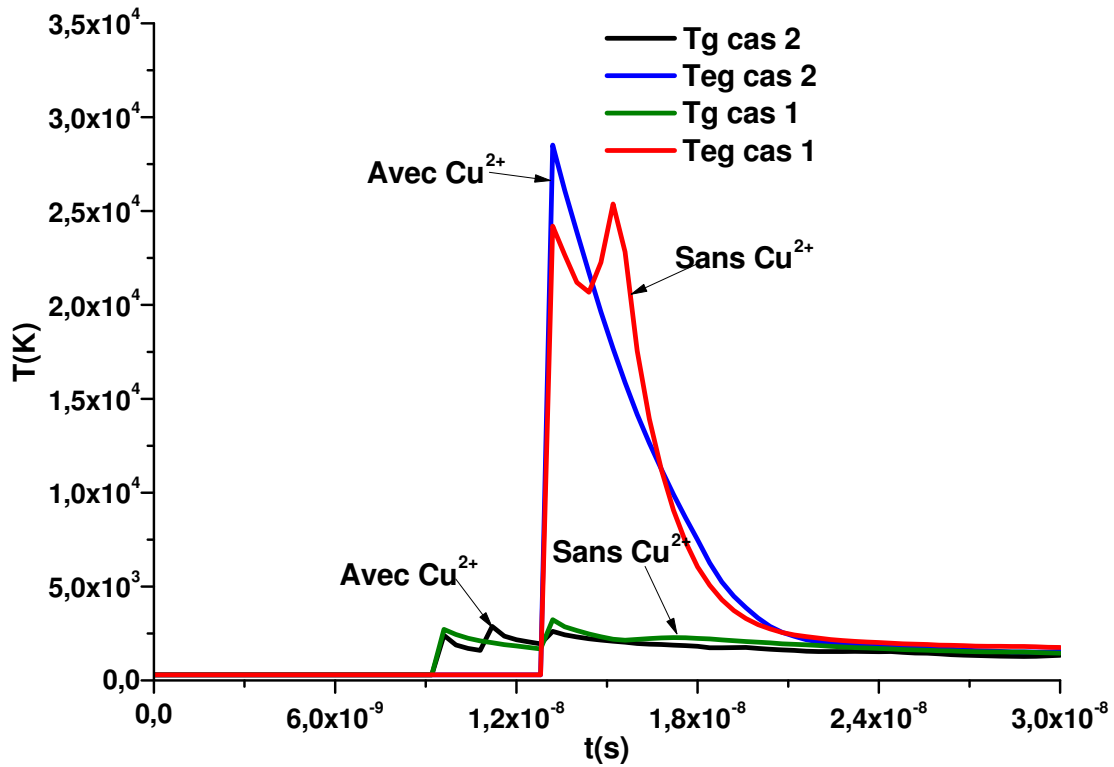


FIGURE 3.31 – Températures des électrons et des espèces lourdes au seuil d’allumage plasma à la première maille du domaine gazeux

3.2.3.2.2 Profondeur ablatée et écrantage plasma

Les figures (3.32) et (3.33) présentent la variation en fonction du temps de la profondeur ablatée et de l’écrantage plasma pour deux densités d’énergies 2 J/cm^2 et 3 J/cm^2 . Ces résultats sont très importants car ils permettent de comprendre la manière dont la cible est affectée par la présence des espèces doublement ionisées dans le plasma formé au dessus de sa surface.

On peut voir que la valeur maximale de la profondeur ablatée pour les deux densités d’énergie est de $0.05 \mu\text{m}$, mais que le processus d’ablation débute après 7.2 ns pour 2 J/cm^2 et 6.4 ns pour 3 J/cm^2 . La profondeur ablatée et le temps qui caractérise le début du processus d’ablation ne sont pas affectés par la présence des espèces doublement ionisées et ceci quelque soit la densité d’énergie de l’impulsion laser.

Afin d’examiner comment la quantité d’énergie qui arrive à la surface du matériau est affectée par la présence des espèces doublement ionisées, nous avons calculé le taux de variation de l’effet de l’écrantage plasma entre le modèle à cinq espèces et celui à six espèces pour deux densités d’énergie 2 J/cm^2 et 3 J/cm^2 . les résultats obtenus sont 4% et 6% respectivement. Bien que l’effet de l’écrantage plasma varie entre les deux cas, le temps relatif au début du processus d’ablation et la valeur maximale de la profondeur ablatée restent quant à eux constants, ceci car le processus d’ablation débute et s’arrête avant que les ions doublement chargés ne soient formés. L’augmentation du taux de l’écrantage plasma par la présence des espèces doublement ionisées peut être attribué à leur contribution dans l’absorption du rayonnement laser par l’effet de Bremsstrahlung

inverse.

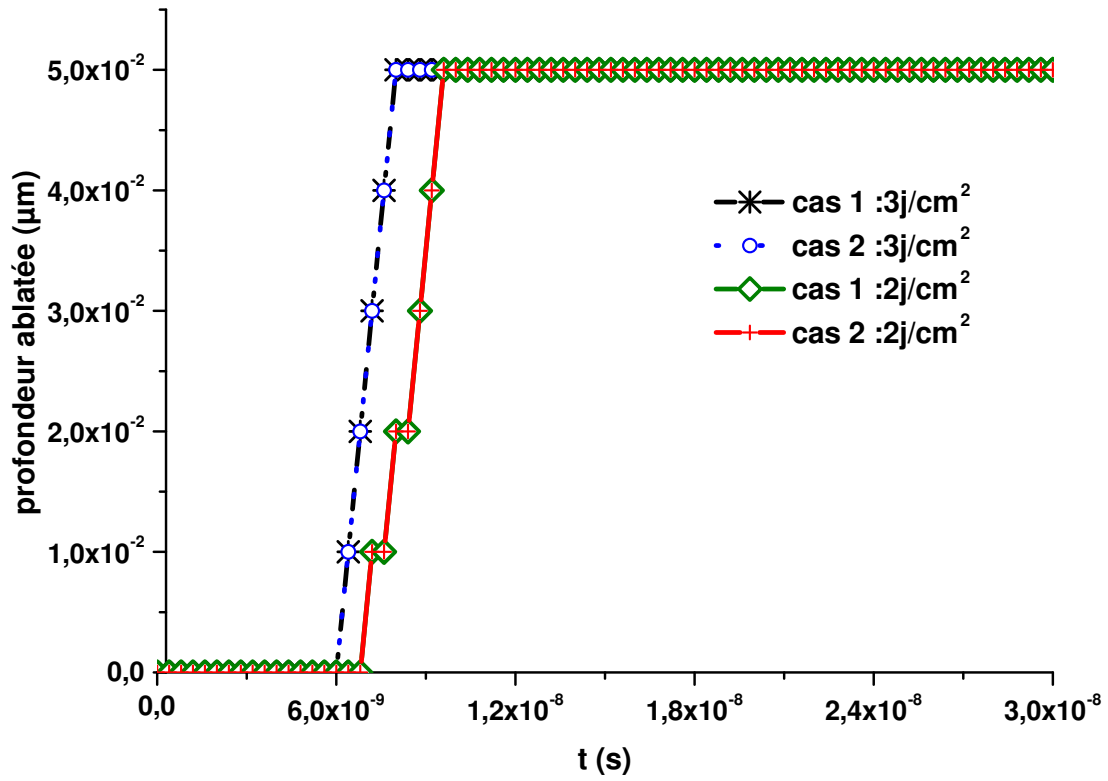


FIGURE 3.32 – Profondeurs ablatées pour des densités d'énergies de 2 and 3 J/cm^2

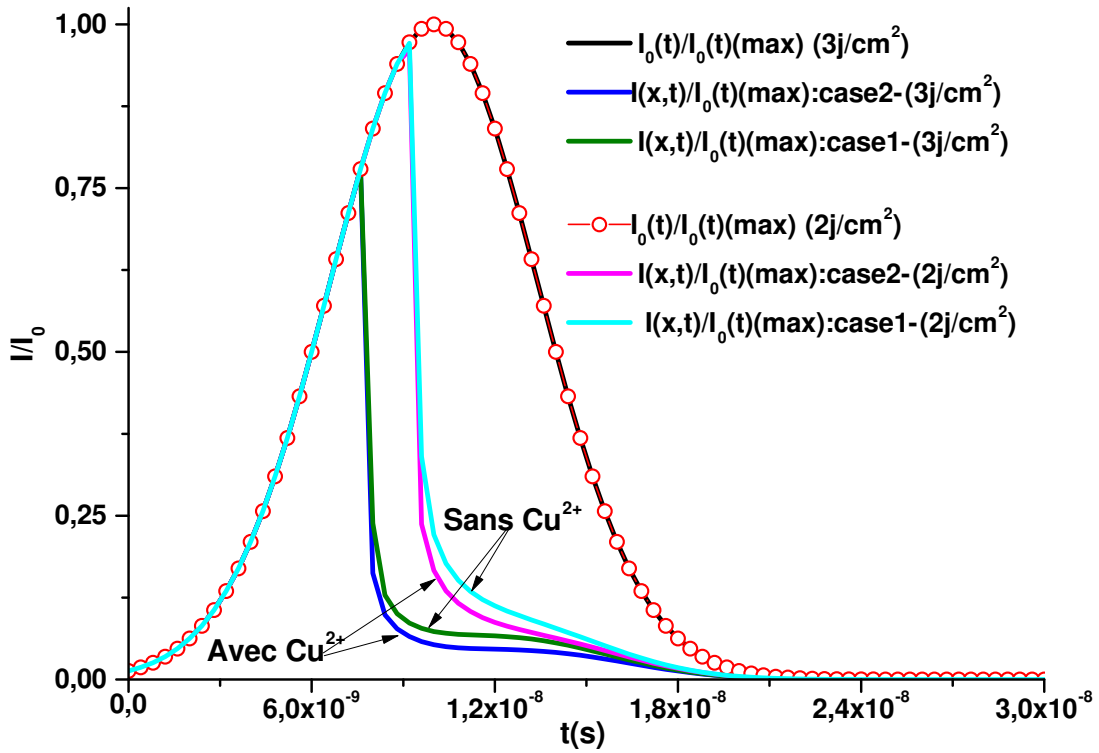


FIGURE 3.33 – Effet de l'écrantage plasma pour des densités d'énergies de 2 and 3 J/cm^2

3.2.3.2.3 Formation et expansion du plasma

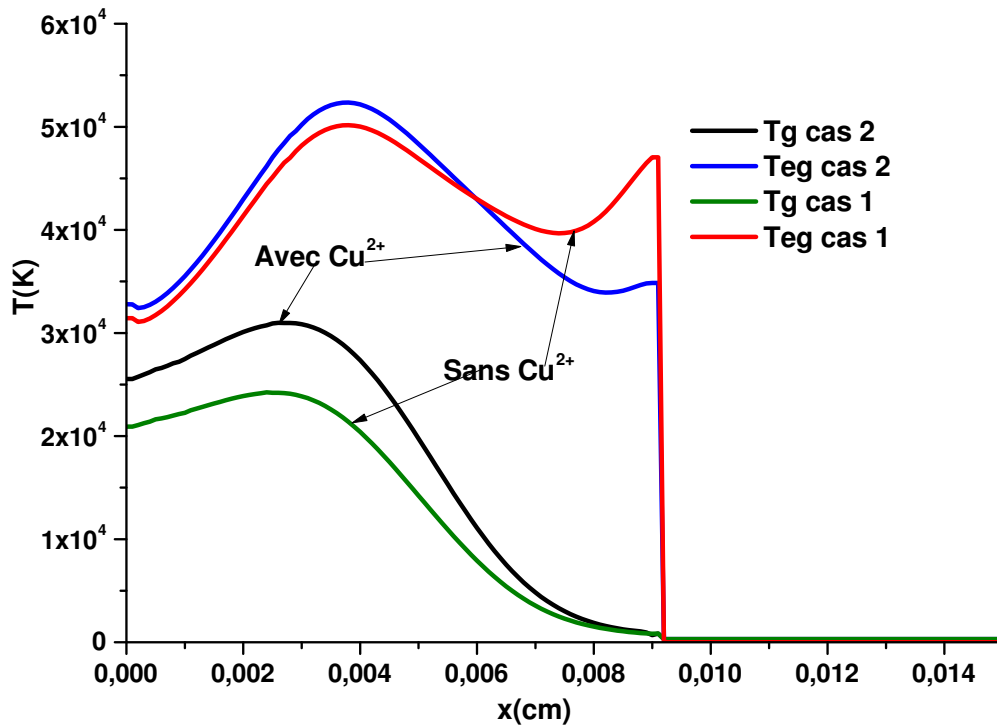


FIGURE 3.34 – Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à un temps $t = 9 \text{ ns}$

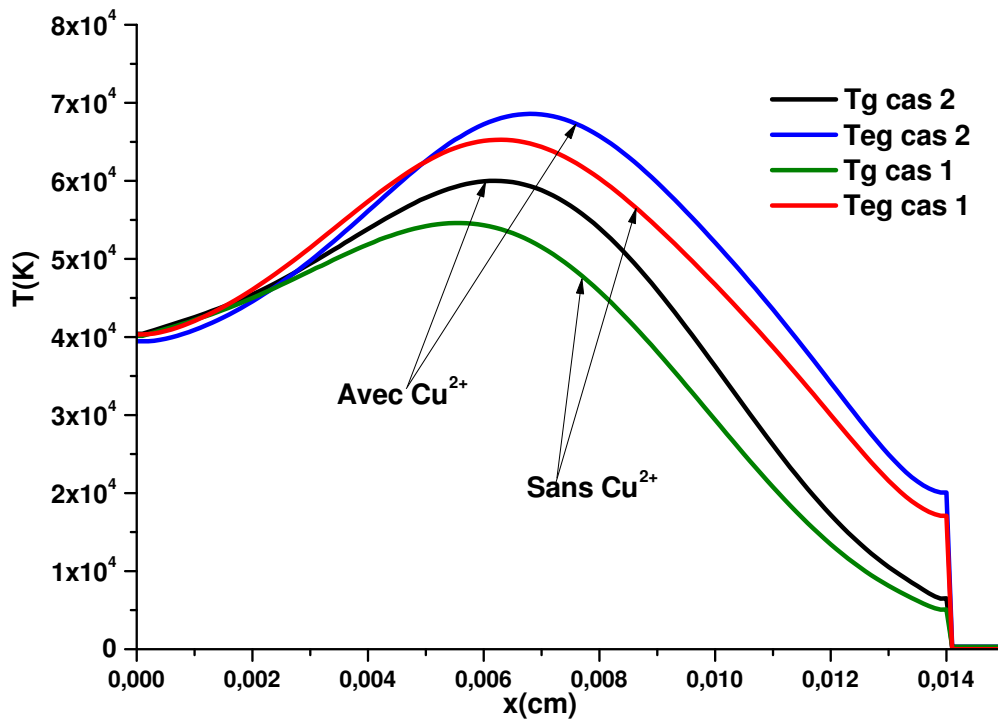


FIGURE 3.35 – Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à un temps $t = 12 \text{ ns}$

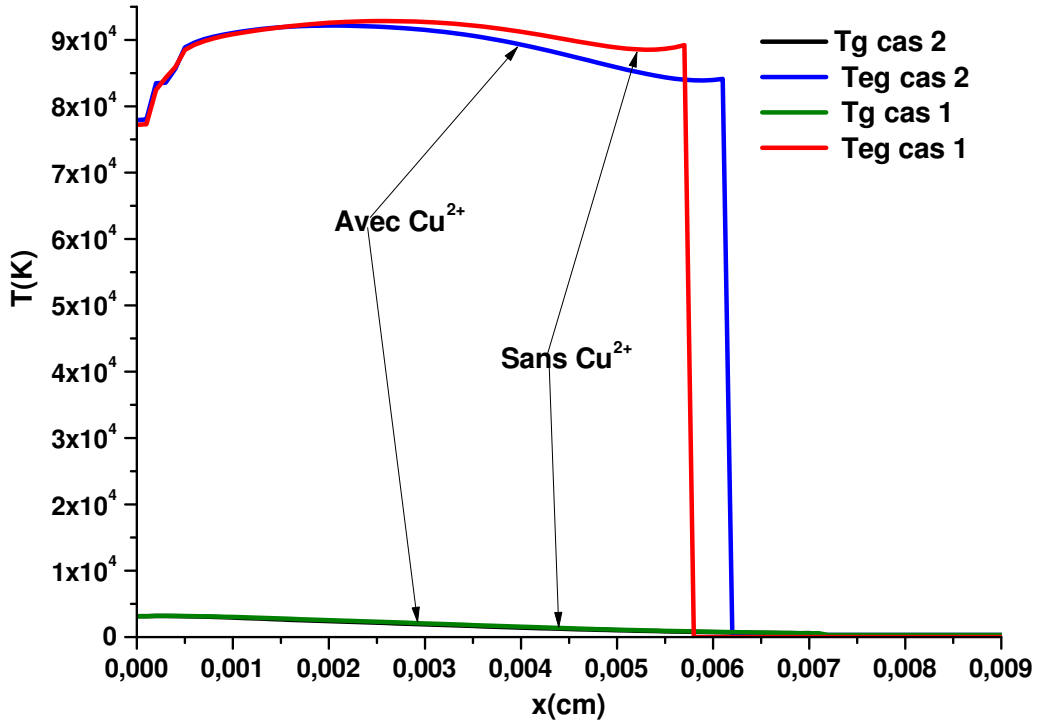


FIGURE 3.36 – Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à un temps $t = 9 \text{ ns}$

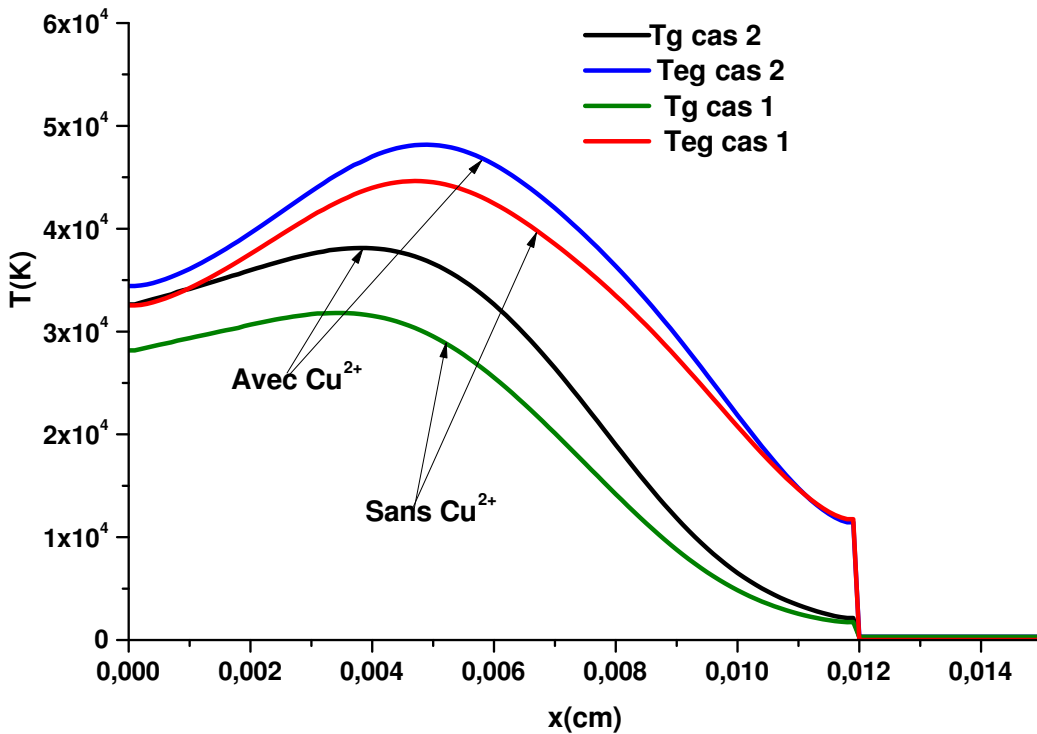


FIGURE 3.37 – Variation spatiale de la température des électrons et des particules lourdes dans la plume pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à un temps $t = 12 \text{ ns}$

Afin d'examiner l'effet de la présence des espèces doublement ionisées sur la dynamique du plasma induit par laser nous présentons dans les figures (3.34 - 3.37) des comparaisons

entre la variation des températures électronique et des espèces lourdes avec et sans Cu^{2+} pour des densités de rayonnement de 2 J/cm^2 et 3 J/cm^2 à 9 et 12 ns après le début de l'impulsion.

- A $t=9$ ns et pour les deux densités d'énergies considérées les températures électroniques des cas avec et sans Cu^{2+} ont des profils assez similaires. Pour un rayonnement laser d'une densité d'énergie de 3 J/cm^2 , il existe un écart assez important entre les températures des espèces lourdes du cas sans Cu^{2+} et celui avec Cu^{2+} , cet écart est insignifiant pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 . En l'absence des espèces doublement ionisées et pour les deux densités d'énergies 2 J/cm^2 et 3 J/cm^2 , on remarque une soudaine augmentation de la température électronique, au niveau du front de choc, ceci n'a lieu qu'à des temps relativement proche du début l'allumage. Nous en discuterons d'avantage par la suite.
- A $t=12$ ns et une densité d'énergie de 3 J/cm^2 l'écart entre les températures électronique devient un peu plus important par rapport à $t=9$ ns, alors que celui entre les températures des espèces lourdes se réduit. Pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 l'écart entre les températures électroniques et celles des espèces lourdes avec et sans la présence de Cu^{2+} devient plus important en comparaison à $t=9$ ns.

Ainsi, le déséquilibre thermique entre les électrons et les particules lourdes en présence des espèces doublement ionisées dans le plasma induit par laser doit être pris en compte dans la modélisation de l'ablation laser en régime nanoseconde. Ceci a déjà été mis en évidence par les travaux de Mazhukin et al [14, 15] sur les plasmas de cuivre, mais dans le cadre de modèles cinétiques 0D où la présence des atomes deux fois ionisés ainsi que le déséquilibre thermique sont pris en compte.

Les figures (3.38 - 3.41) montrent la variation spatiale de la vitesse de la plume en expansion dans le gaz environnant constitué d'hélium.

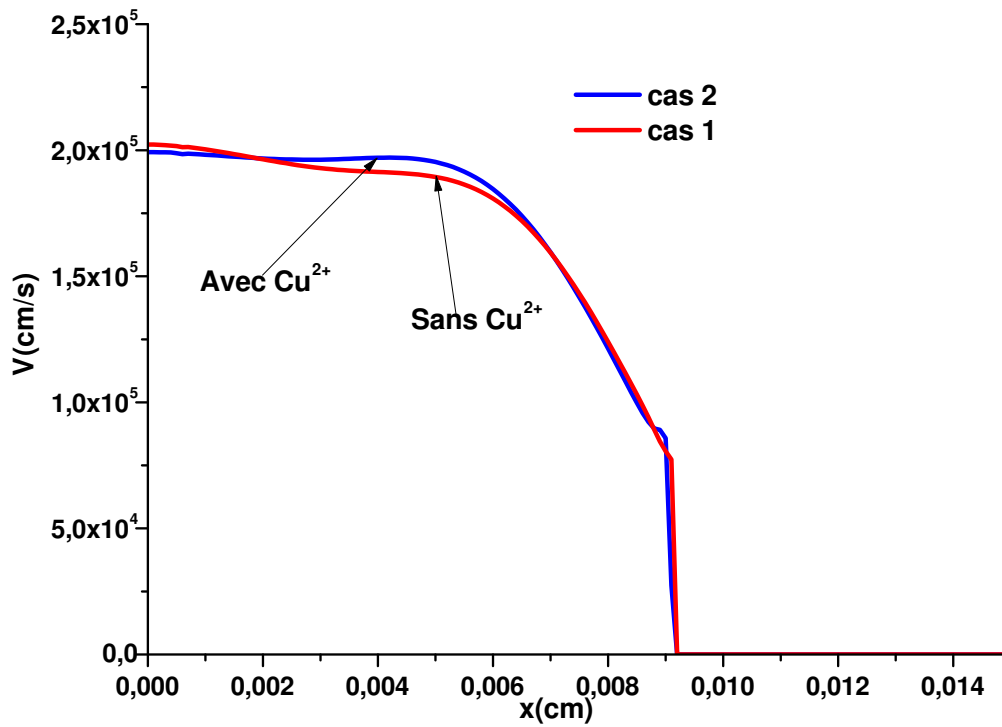


FIGURE 3.38 – Variation spatiale de la vitesse d’expansion de la plume à $t = 9$ ns pour une densité d’énergie de 3 J/cm^2

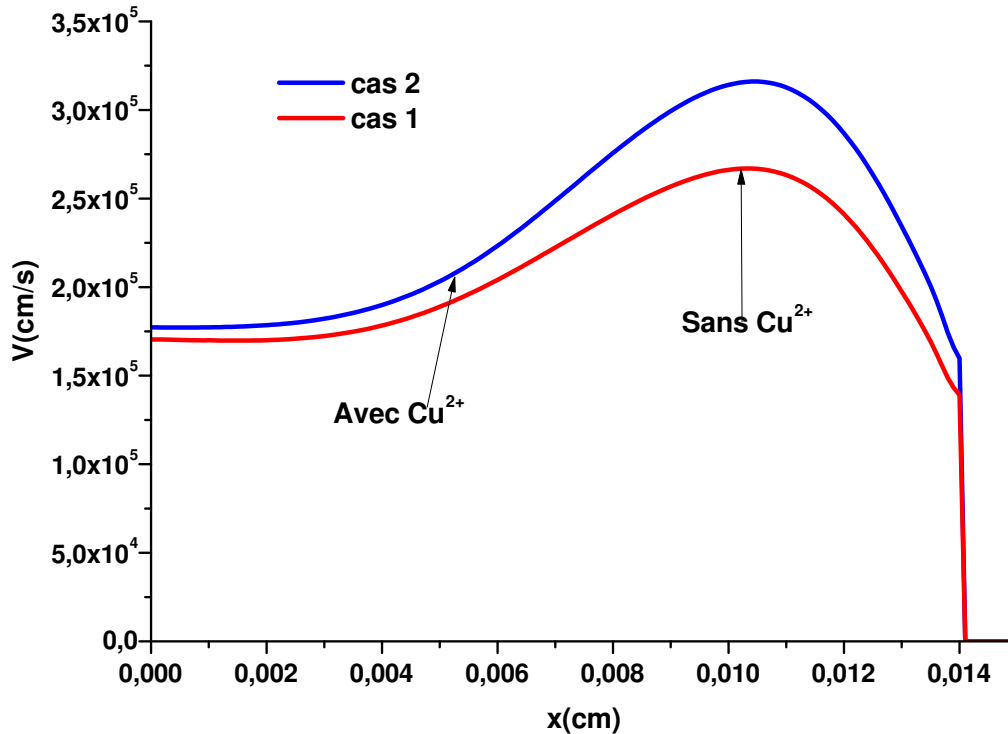


FIGURE 3.39 – Variation spatiale de la vitesse d’expansion de la plume à $t = 12$ ns pour une densité d’énergie de 3 J/cm^2

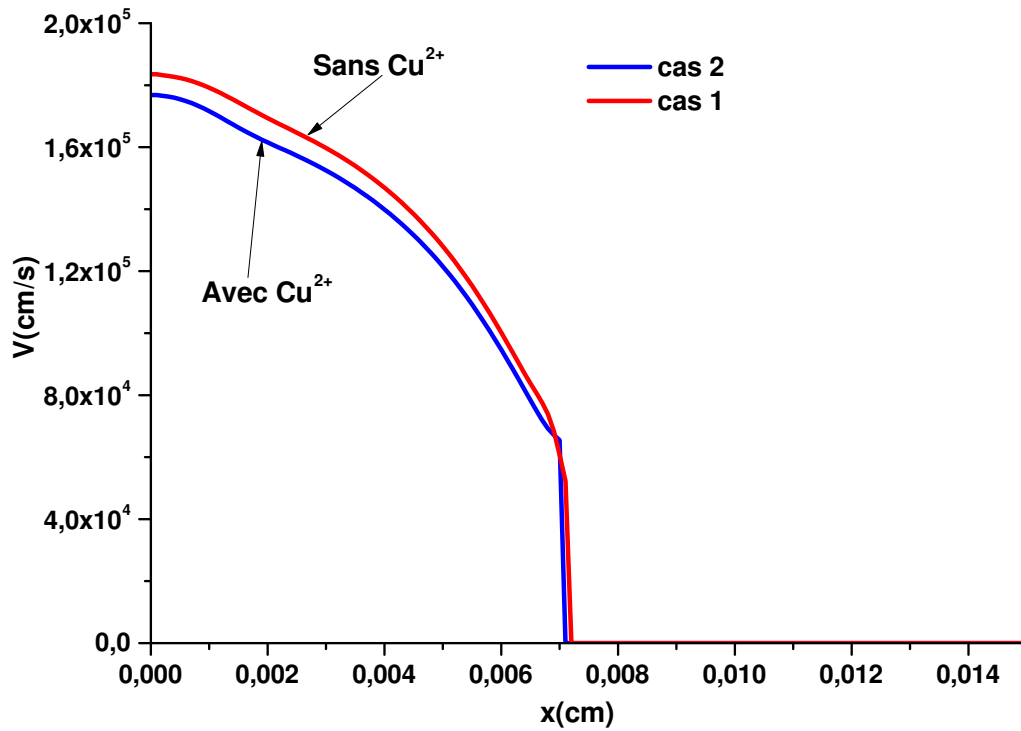


FIGURE 3.40 – Variation spatiale de la vitesse d’expansion de la plume à $t = 9$ ns pour une densité d’énergie de 2 J/cm^2

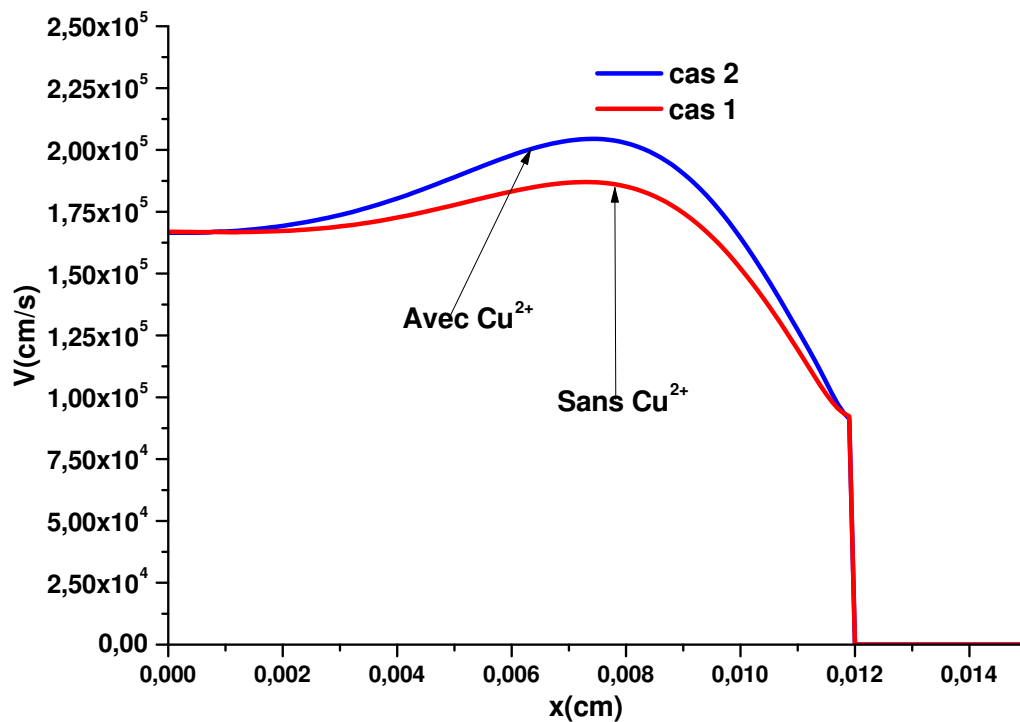


FIGURE 3.41 – Variation spatiale de la vitesse d’expansion de la plume à $t = 12$ ns pour une densité d’énergie de 2 J/cm^2

- A $t=9$ ns et avant que l’intensité du rayonnement n’atteigne son maximum, la vitesse de la plume avec les deux modèles varie quasiment de la même manière. Ceci

car 9 ns est très proche du temps d'allumage qui reste le même pour les deux cas, à ce moment là l'absorption du rayonnement laser par inverse Bremsstrahlung due aux Cu^{2+} n'est pas encore importante. Ainsi aux alentours du temps d'allumage il n'y a pas de grand écart entre la variation de la vitesse d'expansion de la plume dans les deux cas car Cu^{2+} n'affecte pas les premiers instants de formation du plasma.

- A $t=12$ ns après que l'intensité du rayonnement n'atteigne son maximum, l'écart entre la variation de la vitesse avec et sans la présence du Cu^{2+} devient plus notable. La vitesse dans le cas 2 est la plus élevée. La contribution des espèces doublement ionisées dans l'absorption du rayonnement laser par inverse Bremsstrahlung est alors très importante, ce qui peut d'ailleurs être confirmé par la figure (3.33) qui montre la variation de l'effet de l'écrantage plasma. Ainsi en présence des espèces doublement ionisées la plume absorbe plus d'énergie ce qui se traduit par une expansion plus rapide.
- Quand la présence des espèces doublement ionisées est prise en compte et pour une densité d'énergie de $2\text{J}/\text{cm}^2$ la plume traverse le milieu environnant avec un nombre de Mach de 1.73 à $t=9$ ns et 2 à $t=12$ ns. En l'absence des Cu^{2+} la plume traverse le milieu environnant avec un nombre de Mach de 1.8 et 1.85 à $t=9$ et 12 ns respectivement.
- Pour une densité d'énergie de $3\text{ J}/\text{cm}^2$ et en présence de Cu^{2+} la plume traverse le milieu environnant avec un nombre de Mach de 1.95 à $t=9$ ns et 3.10 à $t=12$ ns. Quand les espèces doublement ionisées ne sont pas prises en compte les nombres de Mach de la plume en expansion sont 1.98 et 2.61 à $t=9$ et 12 ns respectivement.

Densité d'énergie (J/cm^2)	Temps (s)	Nombre de Mach modèle à 5 espèces	Nombre de Mach modèle à 6 espèces
2 J/cm^2	9 ns	1.8	1.73
	12 ns	1.85	2
3 J/cm^2	9 ns	1.98	1.95
	12 ns	2.61	3.1

Tableau 3.10 – Récapitulatif des taux de variation du nombre de Mach pour les différents cas étudiés

Le tableau (3.10) montre que quelque soit la densité d'énergie du rayonnement, l'augmentation du nombre de Mach entre 9 et 12 ns est plus importante avec le modèle à six espèces comparés aux résultats obtenus pour le modèle à cinq espèces. L'expansion rapide de la plume à partir de la surface de la cible en direction du rayonnement incident produit une onde de choc supersonique dans le gaz environnant. A $t=9$ ns l'onde de choc est moins intense en présence des espèces doublement ionisées, l'inverse est vrai à $t=12$ ns.

L'étude de la variation des densités des espèces présente dans la plume, avec et sans la

présence des espèces doublement ionisées, montre que les espèces neutres dominent près de la surface du matériau, leurs densités diminuent avec le temps après la fin de l'impulsion et au fur et à mesure qu'on s'éloigne de la surface de la cible. Ceci est dû à l'augmentation au cours du temps de l'absorption de l'impulsion par la vapeur du cuivre conduisant à la création d'électrons libres, d'espèces excités ainsi qu'une fois et deux fois ionisées. Les espèces les plus légères sont accélérées loin de la surface du matériau principalement grâce à l'énergie absorbée par le plasma par effet de Bremsstrahlung inverse.

Les figures (3.42 - 3.44) permettent de comparer la variation des diverses espèces présentes dans la plume entre un modèle à six espèces et un modèle un cinq espèces, pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à 9 ns . Ces résultats montrent qu'à peu près 1.5 fois plus de Cu^+ que de Cu^{2+} est formé dans le plasma (9×10^{-4} et $6.2 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$, respectivement). Dans le cas où les espèces doublement ionisées ne sont pas prise en compte la densité maximale du Cu^+ est à peu près égale à $1.65 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^3$.

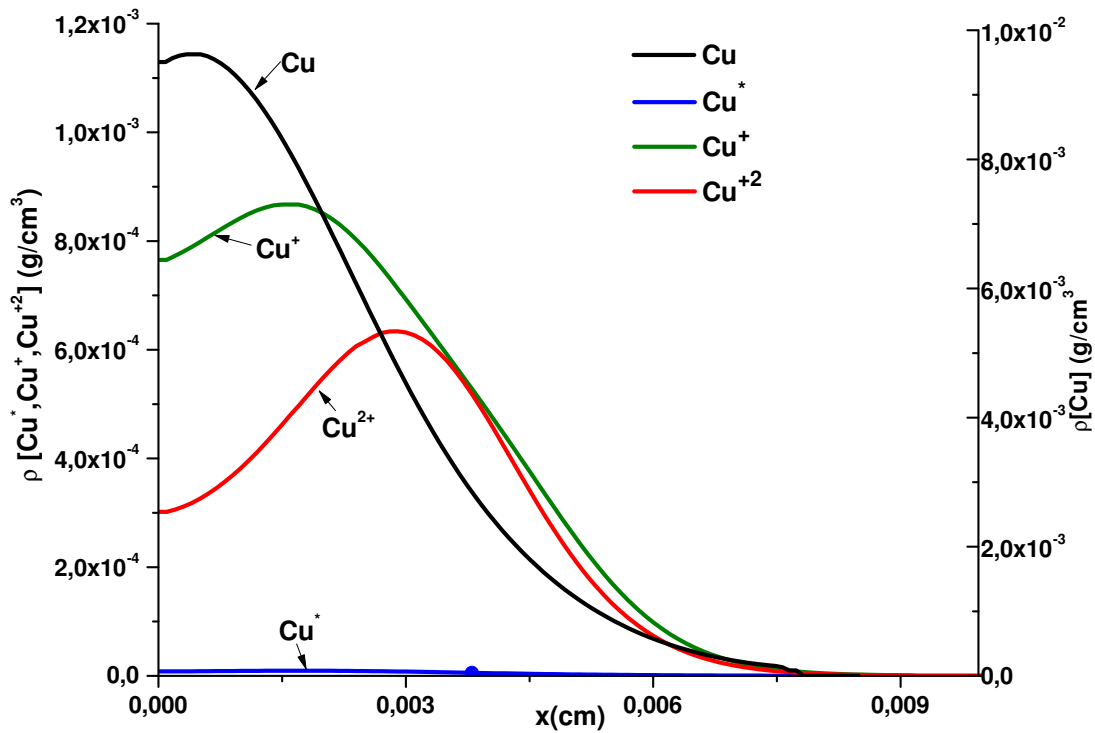


FIGURE 3.42 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$

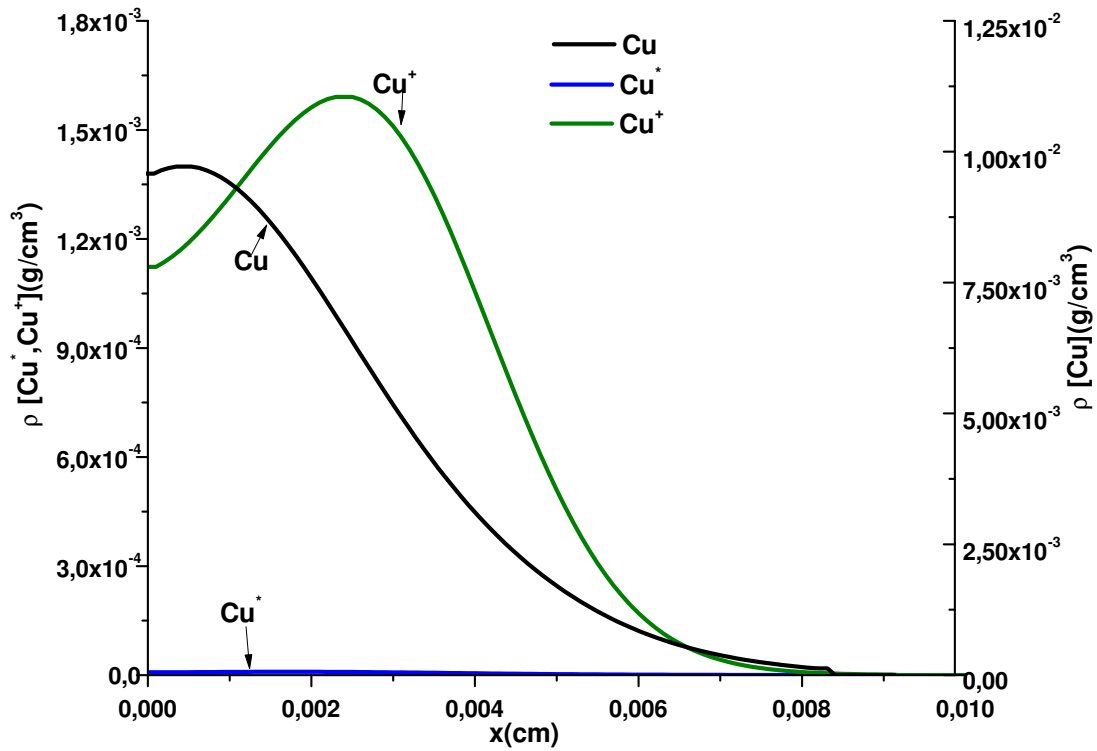


FIGURE 3.43 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$

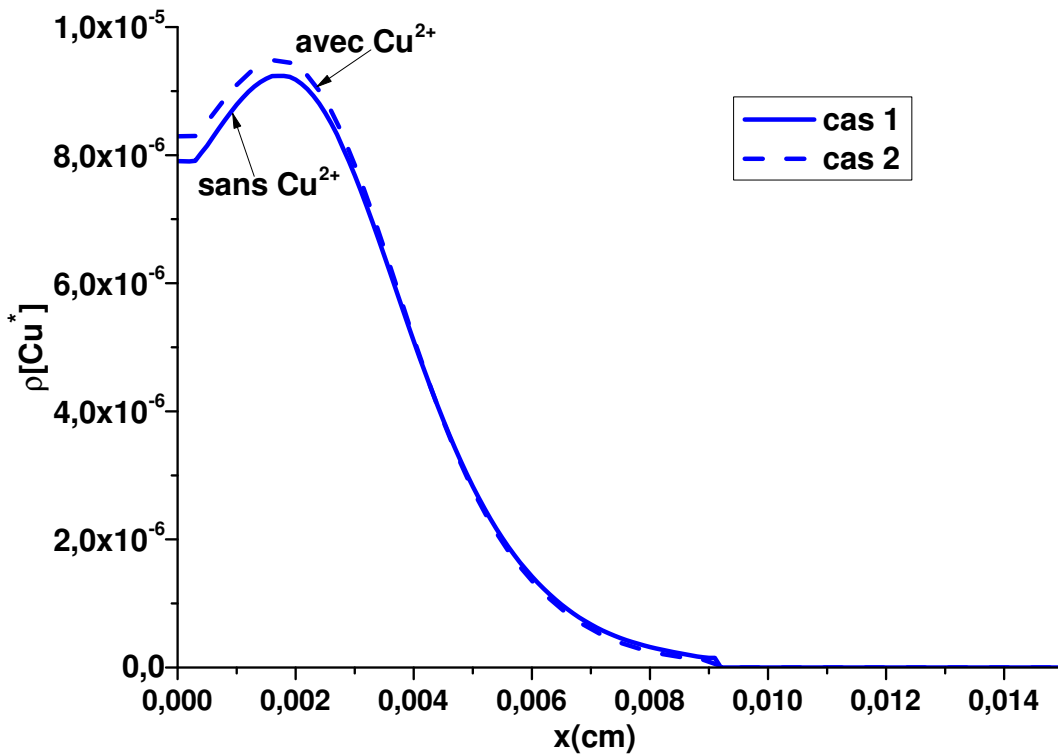


FIGURE 3.44 – Zoom sur la densité des espèces excités dans les deux cas (avec et sans Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$

Les figures (3.45 - 3.47) permettent de comparer la variation des diverses espèces présentes dans la plume entre un modèle à six espèces et un modèle un cinq espèces, pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à 12 ns . Ces résultats montrent qu'il y a trois fois plus de Cu^{2+} que de Cu^+ dans le plasma (1.25×10^{-3} et $4.2 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$, respectivement), alors que quand les espèces doublement ionisées ne sont pas prises en compte la densité maximale du Cu^+ est à peu près égale à $2.6 \times 10^{-3} \text{ g/cm}^3$.

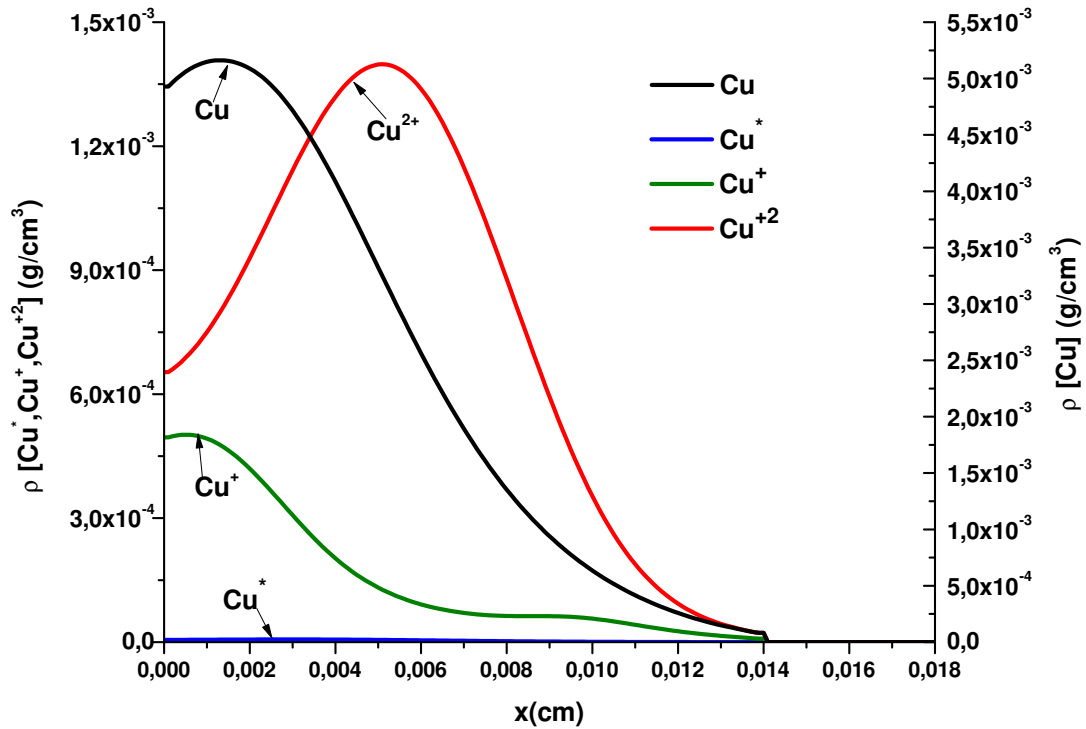


FIGURE 3.45 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$

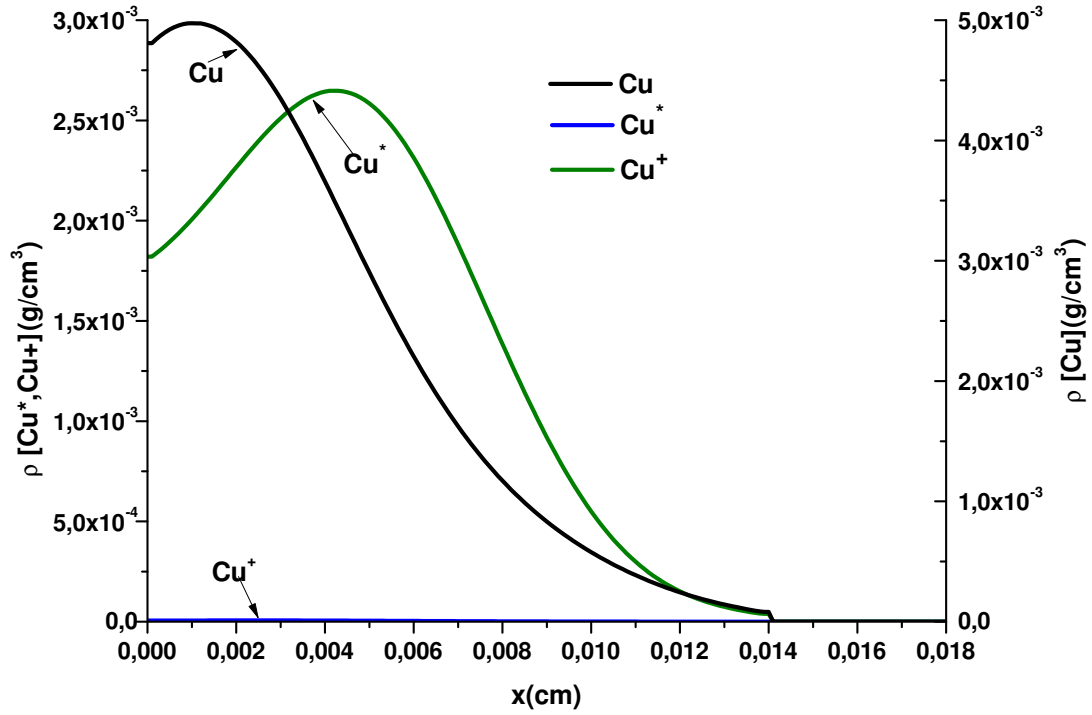


FIGURE 3.46 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 laser fluence at $t = 12 \text{ ns}$

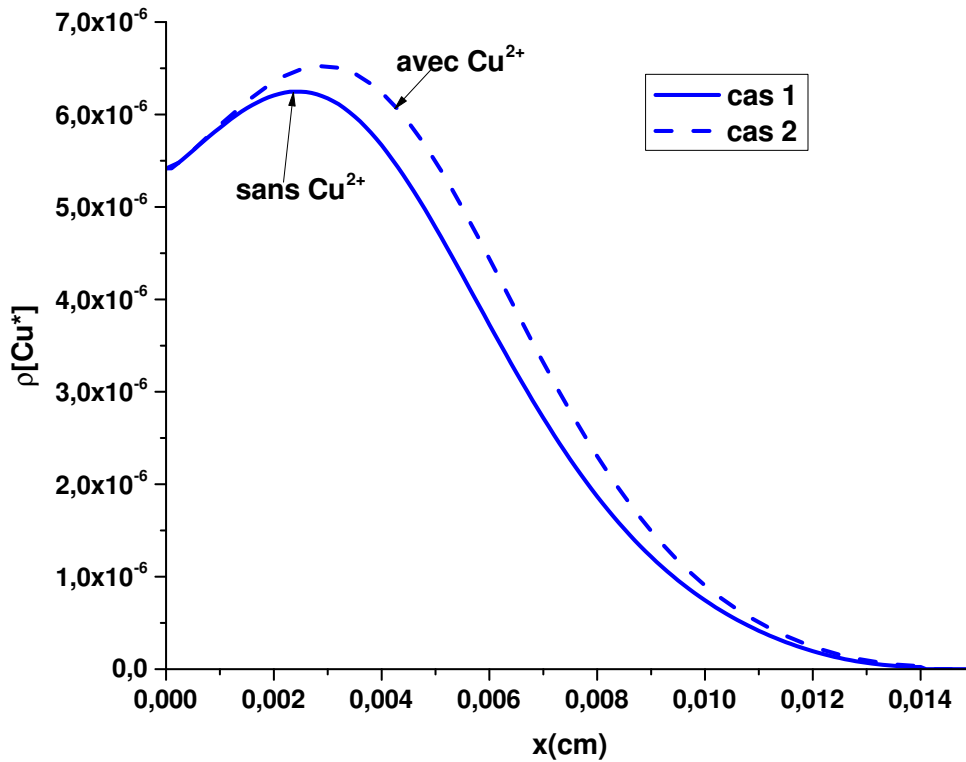


FIGURE 3.47 – Zoom sur la densité des espèces excitées dans les deux cas (avec et sans la présence du Cu^{2+}) pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$

Les figures (3.48 - 3.50) permettent de comparer la variation des diverses espèces présentes dans la plume entre un modèle à six espèces et un modèle un cinq espèces, pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à 9 ns . En cas de la présence des espèces doublement ionisées, la quantité du Cu^{2+} formée dans le plasma est 2.5 fois plus grande que celle du Cu^+ (0.9×10^{-7} et $6.2 \times 10^{-9} \text{ g/cm}^3$, respectivement). La quantité du Cu^* est plus importante que celle du Cu^+ et du Cu^{2+} avec une densité maximale de $1.5 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^3$ car dans ce cas là et quand les espèces doublement ionisées sont prises en compte on est proche du temps d'allumage et des premiers instants de formation du plasma. Quand Cu^{2+} n'est pas pris en compte, les densités maximales de Cu^* et Cu^+ sont approximativement 4.8×10^{-7} et $1.5 \times 10^{-6} \text{ g/cm}^3$, respectivement. La quantité des espèces neutres reste la même, que les espèces doublement ionisées soient prises en compte ou non.

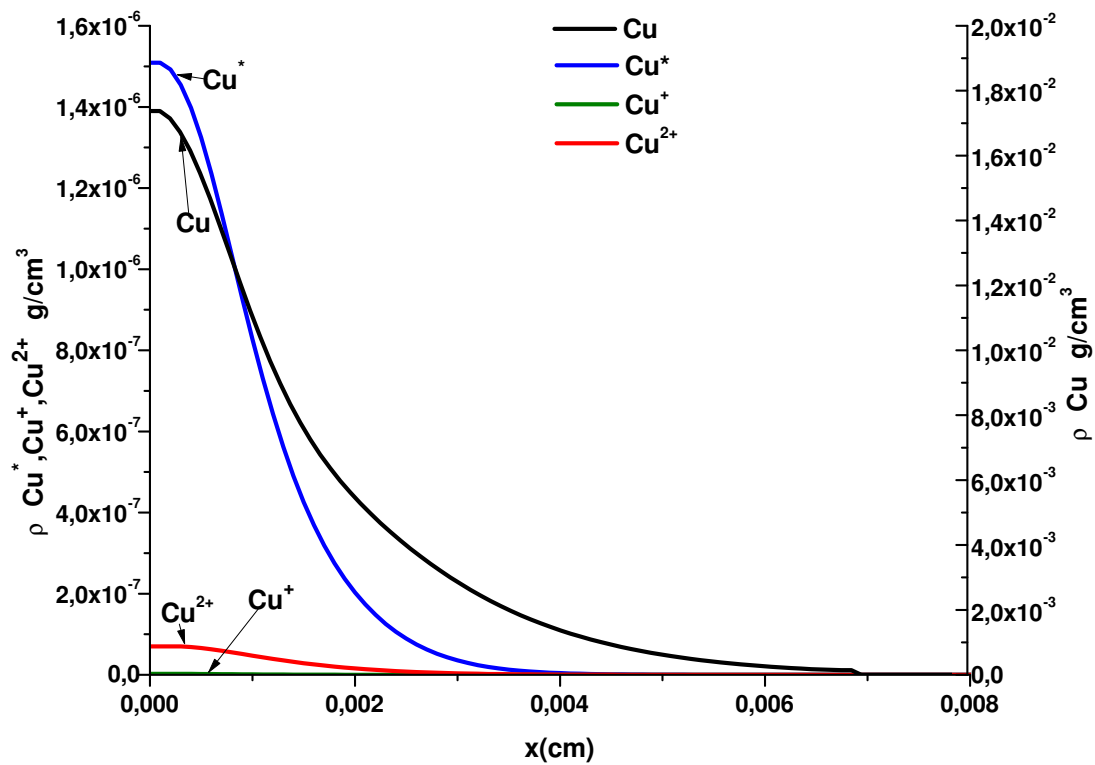


FIGURE 3.48 – 1Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$

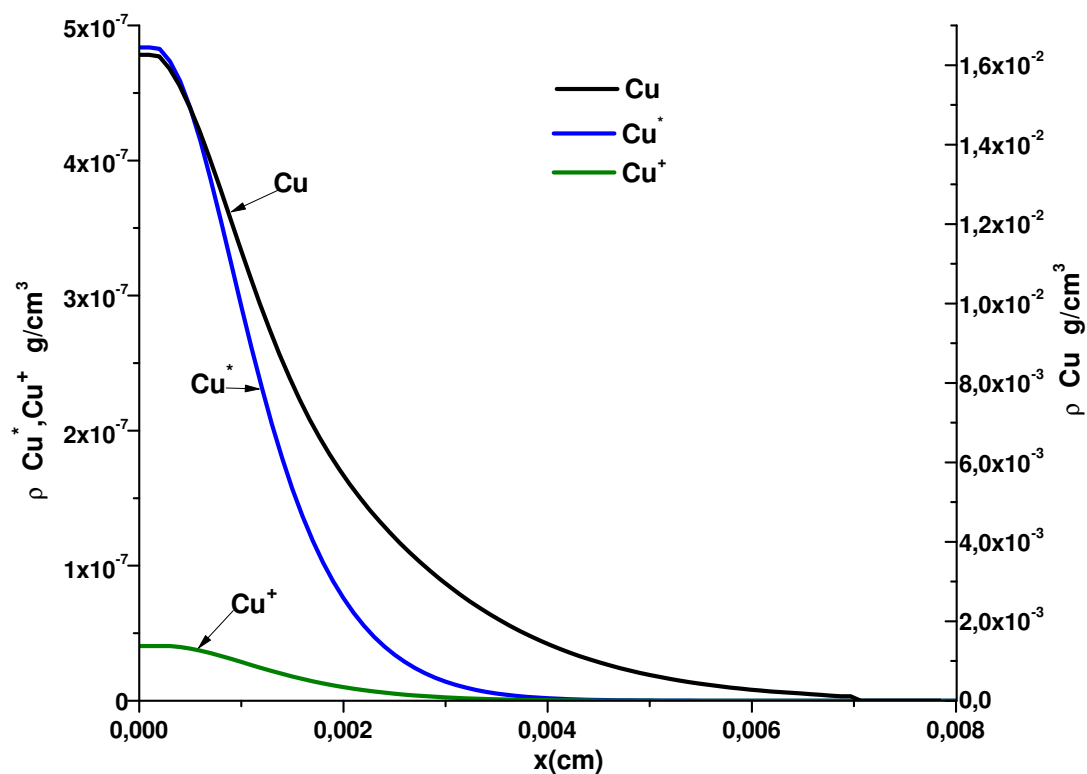


FIGURE 3.49 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$

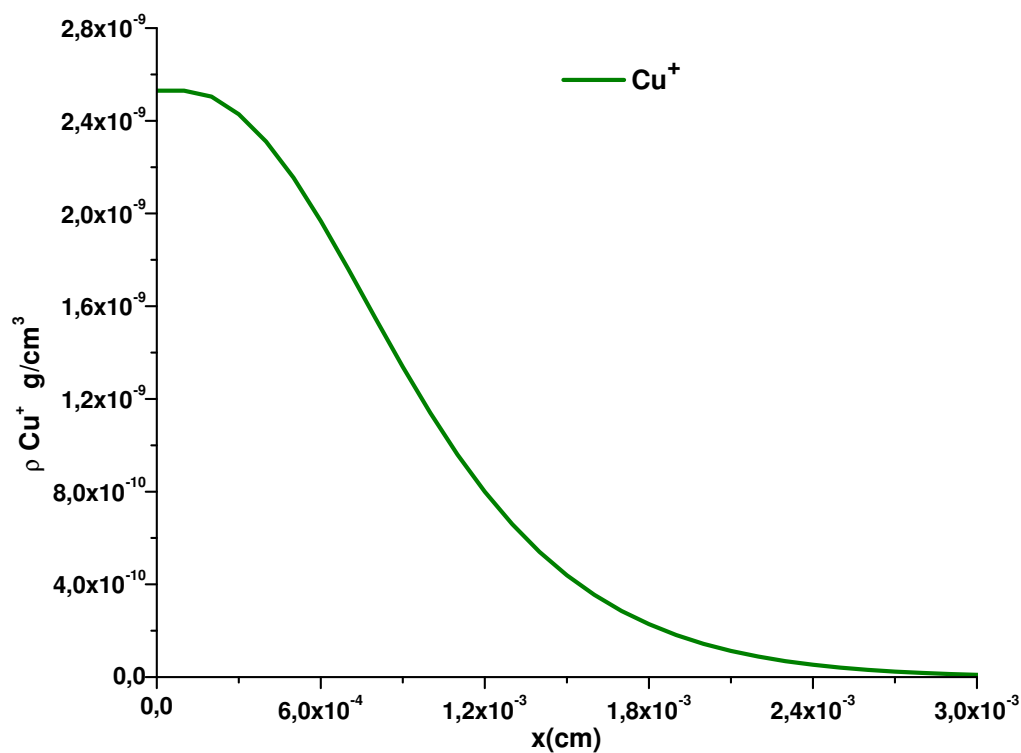


FIGURE 3.50 – Zoom sur la variation de la densité des espèces une fois ionisées présentes dans le plasma contenant du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$

Les figures (3.51 - 3.53) permettent de comparer la variation des diverses espèces présentes dans la plume entre un modèle à six espèces et un modèle un cinq espèces, pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à 12 ns . Ces résultats montrent qu'il y a toujours plus de Cu^{2+} que de Cu^+ 8.6×10^{-4} et $7 \times 10^{-4} \text{ g/cm}^3$, respectivement, mais l'écart entre les deux est beaucoup moins important qu'à $t = 9 \text{ ns}$. Quand les espèces doublement ionisées ne sont pas prises en compte Cu^+ a une densité maximale de 0.0016 g/cm^3 . La quantité des espèces neutres et excitées reste la même avec et sans la présence du Cu^{2+} 0.0064 et $6.5 \times 10^{-7} \text{ g/cm}^3$ respectivement.

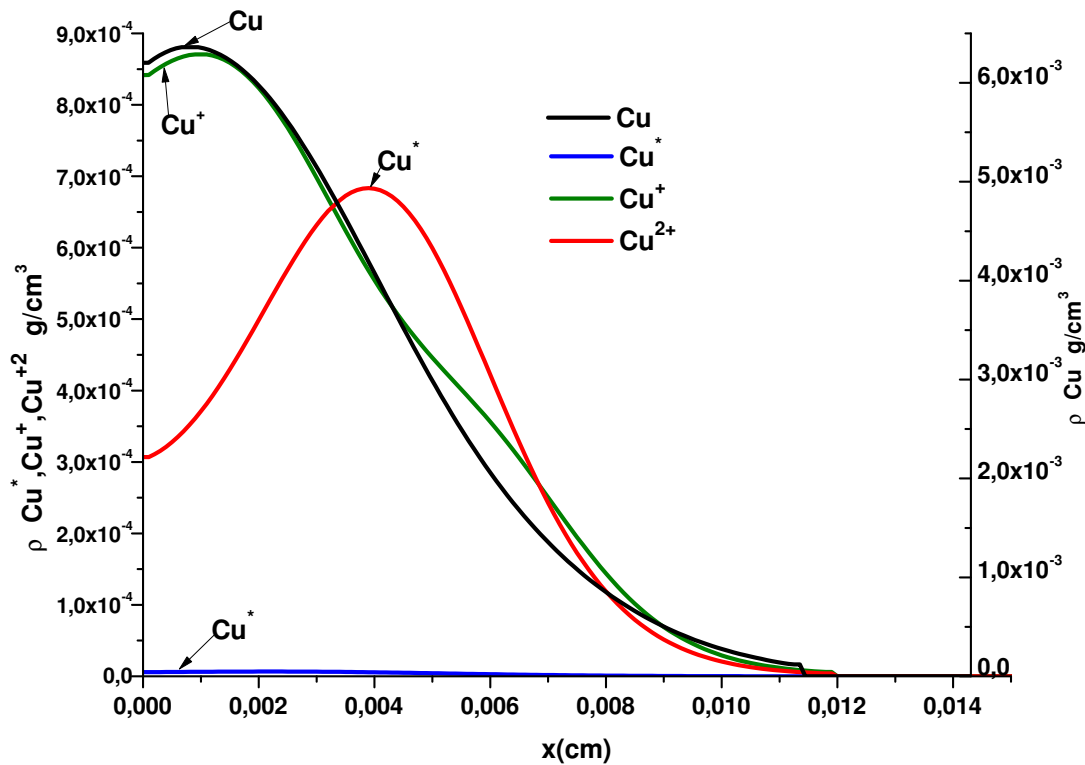


FIGURE 3.51 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma avec la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$

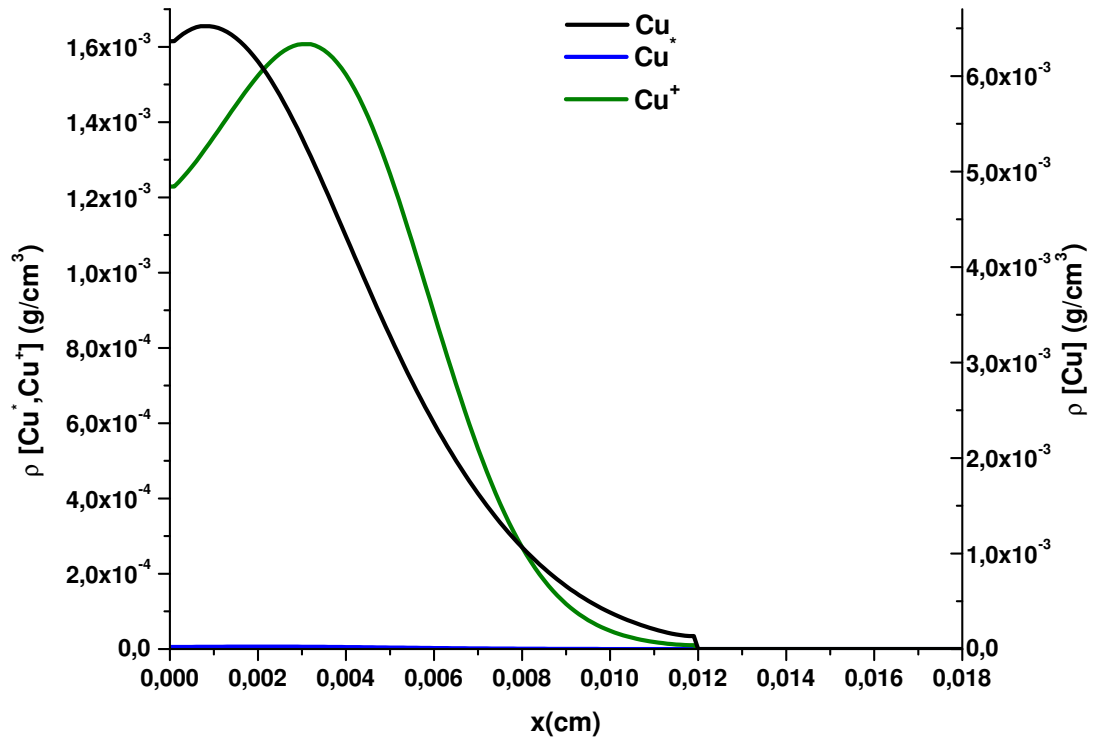


FIGURE 3.52 – Variation spatiale des densités des différentes espèces présentes dans le plasma sans la prise en compte du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$.

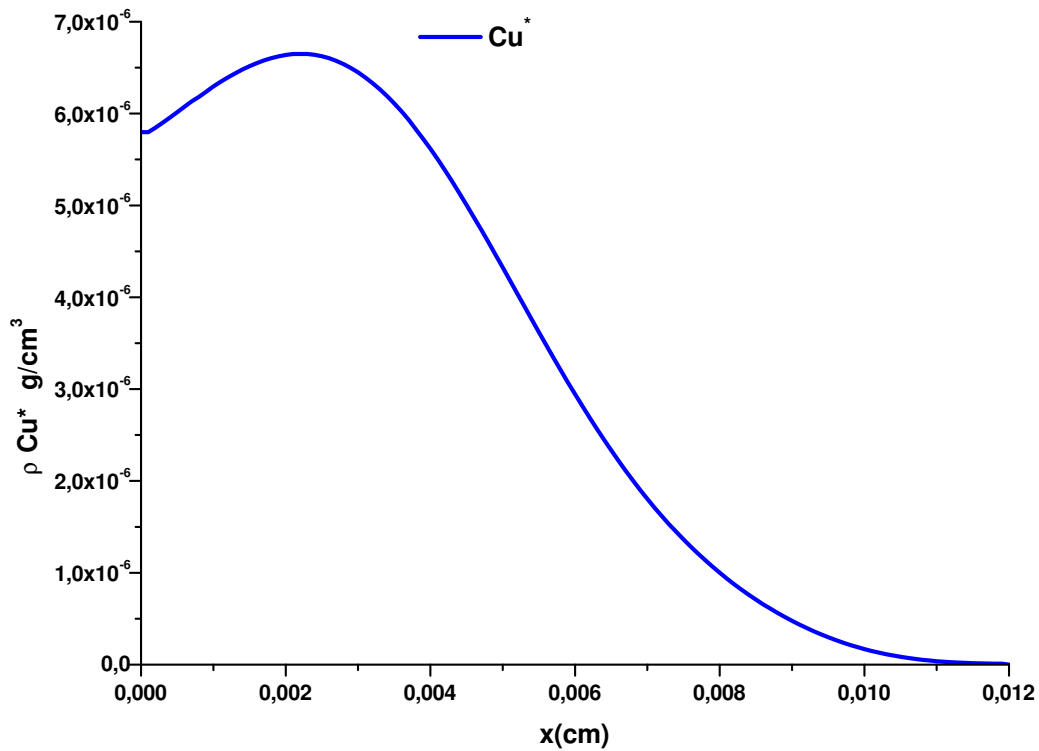


FIGURE 3.53 – Zoom sur la variation de la densité des espèces excitées présentes dans le plasma contenant du Cu^{2+} pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 à $t = 12 \text{ ns}$

Dans le tableau 3.11) nous résumons les densités maximales des espèces présentes dans la plume pour les deux modèles à cinq et six espèces, pour les deux densités d'énergies 2 et 3 J/cm² à 9 et 12 ns. La densité des espèces une fois ionisé est toujours inférieur dans le cas d'un modèle à six espèces. Les quantités des espèces chargées sont toujours plus élevée à 12 ns. La quantité d'espèces deux fois ionisées est toujours inférieure à celle des espèces une fois chargées sauf dans le cas de d'une densité d'énergie de 2J/cm² à t= 9 ns. Dans tous les cas précédents les quantités des espèces excitées et neutres restent relativement constantes, ce qui confirme que le Cu* est seulement un état intermédiaire, uniquement nécessaire pour initier la formation du plasma. Puisque la quatité de matière initialement ablatée à partir de la quelle le plasma est formée et le taux des espèces neutres reste inchangé, le taux d'absorption du rayonnement par inverse Bremsstrahlung électron-neutre ne varie pas non plus.

Densité d'énergie (J/cm ²)/temps	Cu	Cu*	Cu ⁺	Cu ²⁺	Modèle
2 J/cm ² / 9 ns	0.0162	1.5·10 ⁻⁶	4.8·10 ⁻⁷	/	5 espèces
	0.0173	1.5·10 ⁻⁶	6.2·10 ⁻⁹	0.9·10 ⁻⁷	6 espèces
2 J/cm ² / 12 ns	0.0064	6.5·10 ⁻⁷	1.6·10 ⁻³	/	5 espèces
	0.0064	6.5·10 ⁻⁷	7.4·10 ⁻⁴	8.6·10 ⁻⁴	6 espèces
3 J/cm ² / 9 ns	0.0097	9.23·10 ⁻⁶	1.65·10 ⁻³	/	5 espèces
	0.0096	9.47·10 ⁻⁶	9·10 ⁻⁴	6.2·10 ⁻⁴	6 espèces
3 J/cm ² / 12 ns	0.0049	6.25·10 ⁻⁶	2.6·10 ⁻³	/	5 espèces
	0.0051	6.5·10 ⁻⁶	4.2·10 ⁻⁴	1.25·10 ⁻³	6 espèces

Tableau 3.11 – Valeurs maximales des diverses espèces présentes dans la plume.

Les figures (3.54) et (3.55) montrent la variation spatiale du taux d'ionisation du plasma induit par laser pour deux densités d'énergie 2 J/cm² et 3 J/cm² à 9 et 12 ns avec et sans la présence des espèces doublement ionisées.

Rappelons que

- Pour les deux densités d'énergie le taux d'ionisation augmente à t= 12 ns, à ce temps on se situe après que l'effet du plasma shielding devient important et que l'intensité du rayonnement atteint son maximum.
- Pour une densité d'énergie de 2 J/cm² à t= 9 ns les taux d'ionisation sont très faibles (un maximum de 4.5×10^{-6} en présence des espèces doublement ionisées et 2.6×10^{-6} en l'absence des espèces doublement ionisées. Les taux d'ionisation sont beaucoup plus importants à 12 ns (0.24 et 0.26 respectivement). En revanche pour

une densité d'énergie de 3 J/cm^3 les taux sont plus importants quand les espèces doublement ionisées ne sont pas prises en compte. Ce qui est justifiable car l'excès d'énergie qui sert à produire les Cu^{2+} est utilisée pour créer d'avantage de Cu^+ .

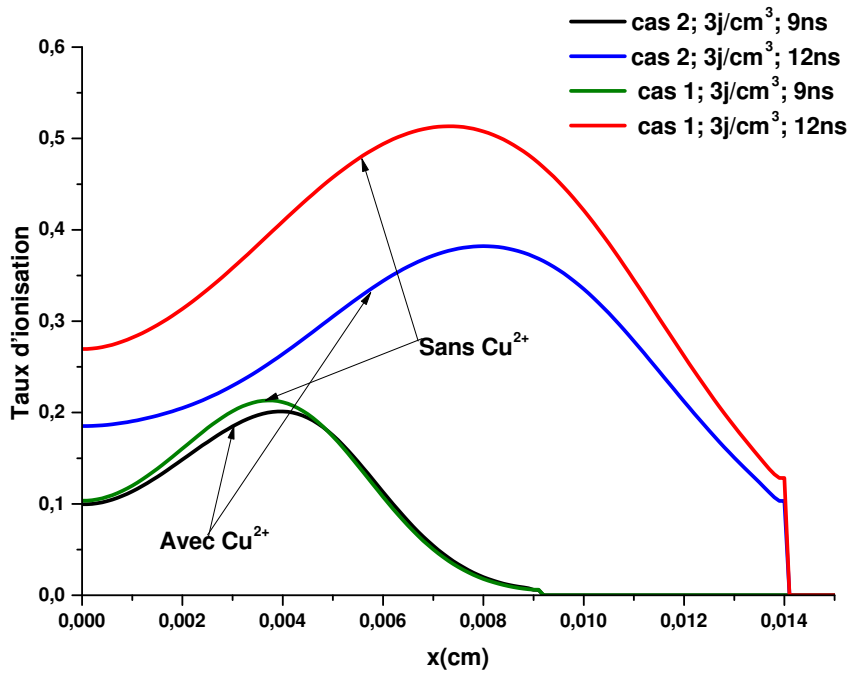


FIGURE 3.54 – Variation spatiale du taux d'ionisation pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 pour les deux cas à $t = 9$ et 12 ns

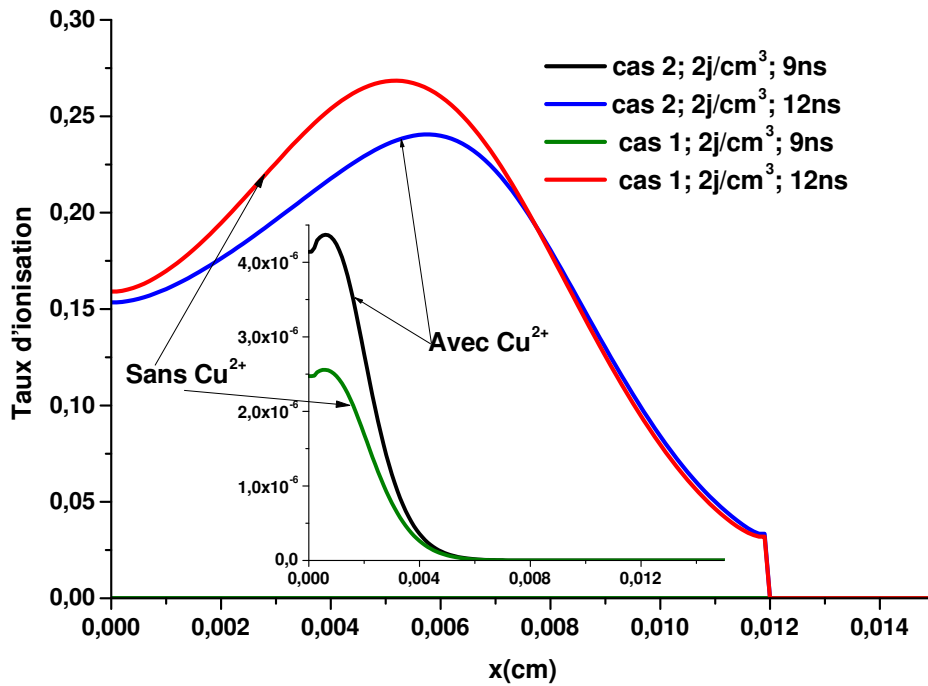


FIGURE 3.55 – Variation spatiale du taux d'ionisation pour une densité d'énergie de 2 J/cm^2 pour les deux cas à $t = 9$ et 12 ns

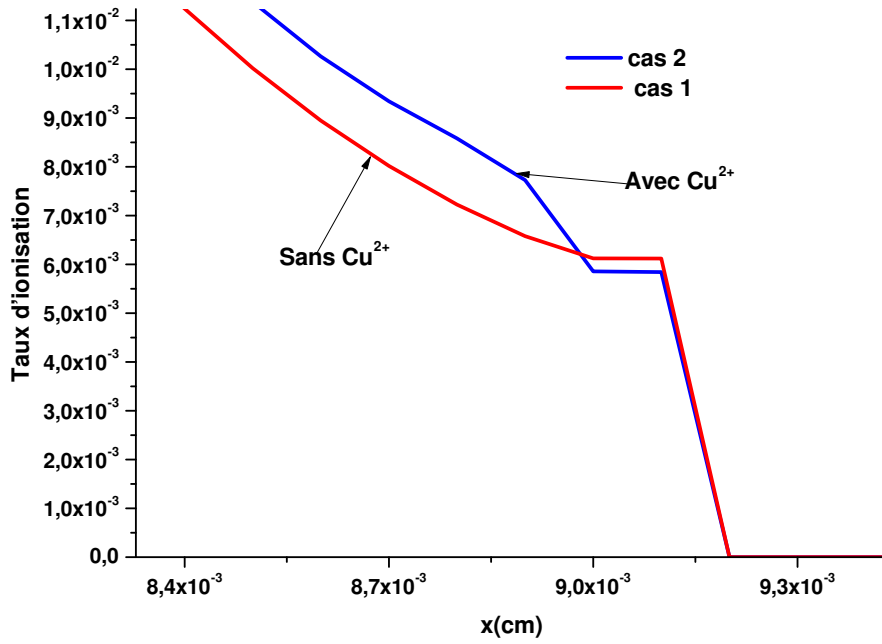


FIGURE 3.56 – Zoom sur le taux d'ionisation près du front de choc pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$, avec et sans la prise en compte des espèces doublement ionisées.

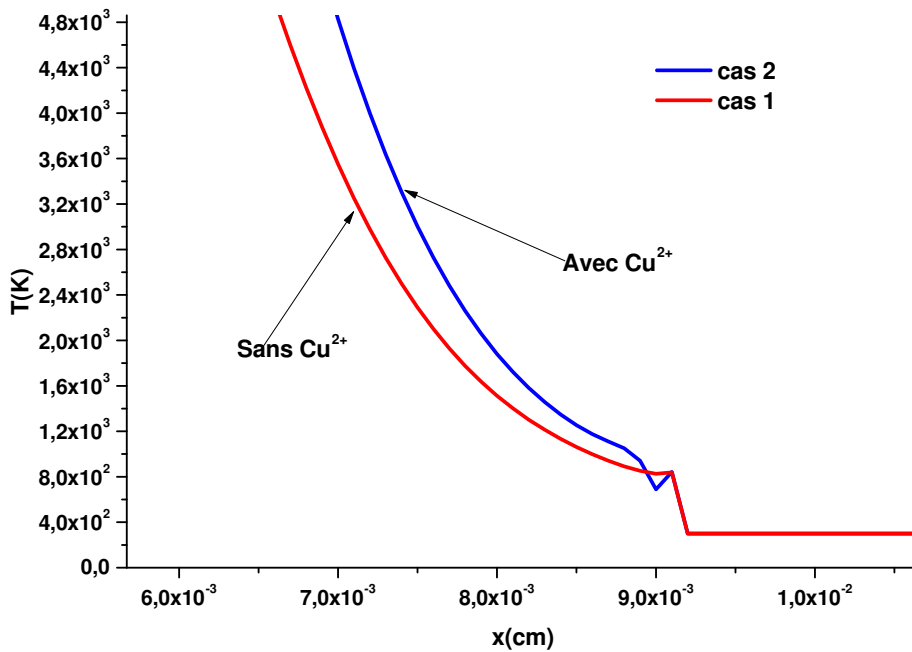


FIGURE 3.57 – Zoom sur la température des espèces lourdes près du front de choc pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9 \text{ ns}$, avec et sans la prise en compte de la présence des espèces doublement ionisées.

Les figures (3.56) et (3.57) représentent un zoom sur la variation du taux d'ionisation et de la température des particules lourdes pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 , aux alentours du front de choc, avec et sans la prise en compte de la présence des espèces

doublément ionisées à $t = 9$ ns. Nous présentons afin de tenter d'expliquer la soudaine augmentation de la température électronique (figure 3.34) dans le cas où Cu^{2+} ne sont pas prises en compte. Cette augmentation peut être expliquée par la présence d'un excès d'énergie qu'on ne retrouve pas dans le "cas 2" car elle sert justement à la production des espèces doublément ionisées par impact électronique. Cet excès d'énergie se reflète dans l'augmentation aussi bien de l'intensité de l'onde de choc que du taux d'ionisation.

La figure (3.59) montre comment le gaz environnant (l'hélium dans notre cas) est affecté par l'expansion du plasma contenant des espèces doublément ionisées en comparaison avec le cas où ces dernières ne sont pas prises en compte. Le gaz ambiant est poussé loin de la surface de la cible par la plume en expansion. Alors que de faibles densités du gaz environnant sont présentes près de la surface du matériau, des densités maximales apparaissent au niveau du front de choc après lequel le gaz environnant reprend sa densité initiale. Alors qu'à $t = 9$ ns le gaz environnant n'est pas affecté par la présence des espèces doublément ionisées, à $t = 12$ ns, après que l'intensité du rayonnement laser atteigne son maximum, la densité du gaz environnant est plus élevée dans le cas de prise en compte du Cu^{2+} . Dans tout les cas précédents, la distance sur laquelle le gaz environnant est poussé par la plume en expansion loin de la surface de la cible reste constante.

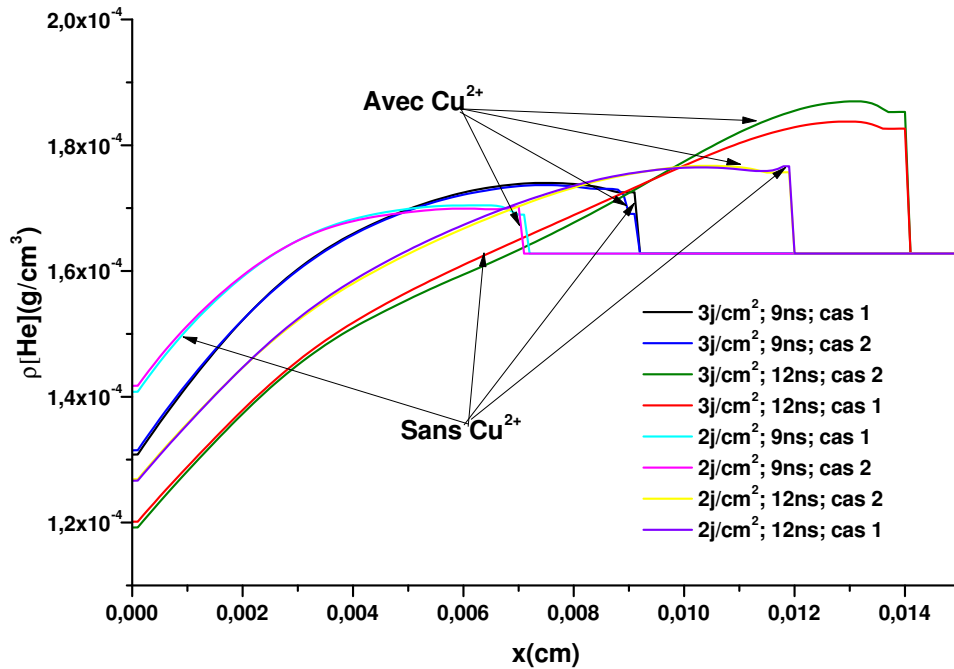


FIGURE 3.58 – Variation spatiale de la densité du gaz ambiant pour une densité d'énergie de 3 J/cm^2 à $t = 9$ et 12 ns

3.3 Interaction d'une impulsion laser avec une cible en titane

3.3.1 Validation de l'approche 1D

Ce chapitre présente l'étude de l'interaction d'une impulsion laser avec une cible en titane. Cette étude a été réalisée en gardant les mêmes caractéristiques du rayonnement

laser celle utilisée avec une cible en cuivre. Le tableau (3.13) présente les propriétés du titane qui ont été prise en compte pour les calculs.

Rappelons qu'un modèle thermique 1D n'est valide que lorsque l'épaisseur de diffusion de la chaleur dans l'échantillon est largement plus grande que l'épaisseur de pénétration du rayonnement dans la cible et plus petite que le rayon du laser et l'épaisseur du matériau ($l_{\alpha_a} \ll l_T \ll w, e$). Dans ce cas là le flux de chaleur latéral dû à l'absorption de l'énergie de l'impulsion par le matériau peut être négligé et la diffusion de la chaleur au sein de la cible peut être assimilée à un phénomène à une seule dimension [9]. Sachant que nous considérons une cible suffisamment épaisse (un domaine d'étude de $5 \cdot 10^{-4}$ cm) et qu'en pratique le rayon du faisceau laser varie entre 0.05 et 2 mm, les résultats présentés dans le tableau () permettent de valider notre modèle 1D pour l'étude de l'interaction laser-cible dans le cas du titane et ceci pour les mêmes rayonnements considérés pour l'étude menée sur une cible en cuivre.

paramètres	Titane solide	Titane liquide
Chaleur spécifique, C_p ($J g^{-1}K^{-1}$)	0.52	0.74
Densité volumique, ρ ($g cm^{-3}$)	4.5	4.11
Conductivité thermique κ ($W m^{-1}K^{-1}$)	22	33
Δh (J/g)	fusion : 365	évaporation : 8893
Températures (K)	fusion : 1933	évaporation : 3560
Réflexivité, R	0.24(193 nm) (248 nm)0.23 (351 nm)0.44	0.24(193 nm) (248 nm)0.23 (351 nm)0.44
Coefficient d'absorption α (cm^{-1})	(193 nm) $10.72 \cdot 10^5$ (248 nm) $9.22 \cdot 10^5$ (351 nm) $10 \cdot 10^5$	(193 nm) $10.72 \cdot 10^5$ (248 nm) $9.22 \cdot 10^5$ (193 nm) $10.72 \cdot 10^5$

Tableau 3.12 – Propriétés du titane utilisées dans nos simulations.

$\lambda(\text{nm})/\tau(\text{ns})$	l_{α_a} (cm) (Ti solide)	$l_T(\text{cm})$ (Ti solide)	l_{α_a} (cm) (Ti liquide)	l_{α_a} (cm) (Ti liquide)
193/8	$9.3 \cdot 10^{-7}$	$3.87 \cdot 10^{-5}$	$9.3 \cdot 10^{-7}$	$4.13 \cdot 10^{-5}$
248/21	$1.08 \cdot 10^{-6}$	$6.28 \cdot 10^{-5}$	$1.8 \cdot 10^{-6}$	$6.70 \cdot 10^{-5}$
351/17	10^{-6}	$5.65 \cdot 10^{-5}$	10^{-6}	$6.03 \cdot 10^{-5}$

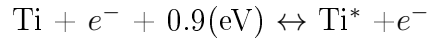
Tableau 3.13 – Profondeur de pénétration et longueur de diffusion de la chaleur dans le titane sous nos conditions de simulation.

3.3.2 Processus pris en compte

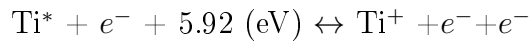
Le plasma induit par laser est un mélange gazeux qui évolue dans gaz environnant constitué d'hélium(He) et qui contient des espèces neutres (Ti), excitées (Ti*), une fois ionisées (Ti⁺), et des électrons (e⁻).

Les processus pris en compte dans notre modèle hydronynamique sont :

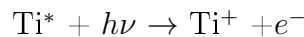
- L'excitation / désexcitation par impact électronique



- Ionisation /recombinaison de l'état excité par impact électronique :



- Photoionisation de l'état excité



Avec $h\nu = 6.4 \text{ eV}$ pour un rayonnement laser de longueur d'onde de 193 nm

5 eV pour un rayonnement laser de longueur d'onde de 248 nm

et 3.5 eV pour un rayonnement laser de longueur d'onde de 351 nm

- L'absorption du rayonnement par Bremsstrahlung inverse.

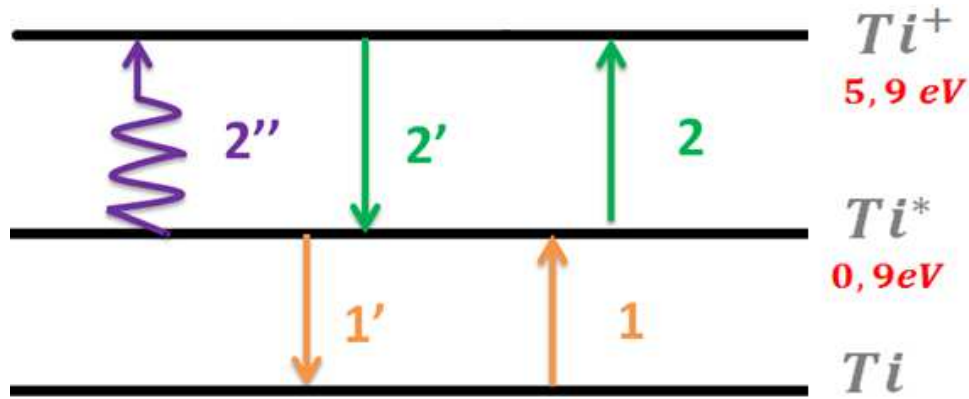


FIGURE 3.59 – Schéma représentatif des différentes réactions prises en compte dans notre modèle à cinq espèces.

1 et 1' indiquent les processus d'excitation et de desexcitation par impacte électronique à partir du niveau fondamental Ti pour le processus direct et à partir du niveau excité Ti^* pour le processus inverse respectivement. 2, 2', 2'' représentent l'ionisation par impact électronique, la recombinaison à trois corps de l'espèce une fois ionisée Ti^+ et la photoionisation de l'état excité respectivement.

3.3.3 Seuil d'allumage et validation

Afin de valider notre approche pour l'étude de l'ablation laser d'une cible en titane, le même modèle que pour le cuivre a été utilisé pour déterminer des seuils d'allumage plasma sous les conditions expérimentales et théoriques de Clarke et al [7] et Dyer et al [8] respectivement.

Afin de procéder à la validation, nous avons fixé la pression du gaz environnant à 10 Pa, pour nous rapprocher autant que possible de la condition d'ablation sous vide admise par Clarke et al et Dyer et al [7,8].

Dans le tableau (3.14) nous présentons une comparaison entre nos seuil d'allumage plasma calculés par notre modèle et les seuils expérimentaux de Clarke et théorique de Dyer.

Il est claire que les seuils obtenus par la présente étude sont proches des seuils expérimentaux, ce qui montre l'efficacité du modèle utilisé et la pertinence des processus pris en compte.

λ	τ	Exp	Théo(Erreur%)	Num(Erreur%)
193 nm	8 ns	0.8J/cm ²	>0	0.6J/cm ² (25)
248 nm	21 ns	1.365J/cm ²	0.525J/cm ² (61)	0.95J/cm ² (30)
355 nm	17 ns	1.496J/cm ²	0.935J/cm ² (37.5)	0.96J/cm ² (35)

Tableau 3.14 – Comparaison des seuils d’allumage plasma calculés par notre modèle avec des seuils expérimentaux en supposant que l’interaction a lieu sous vide. [7,8] λ , τ , Exp, Théo, Num sont la longueur d’onde du rayonnement, la durée de l’impulsion, les seuils expérimentaux, les seuils théoriques et nos seuils numériques respectivement

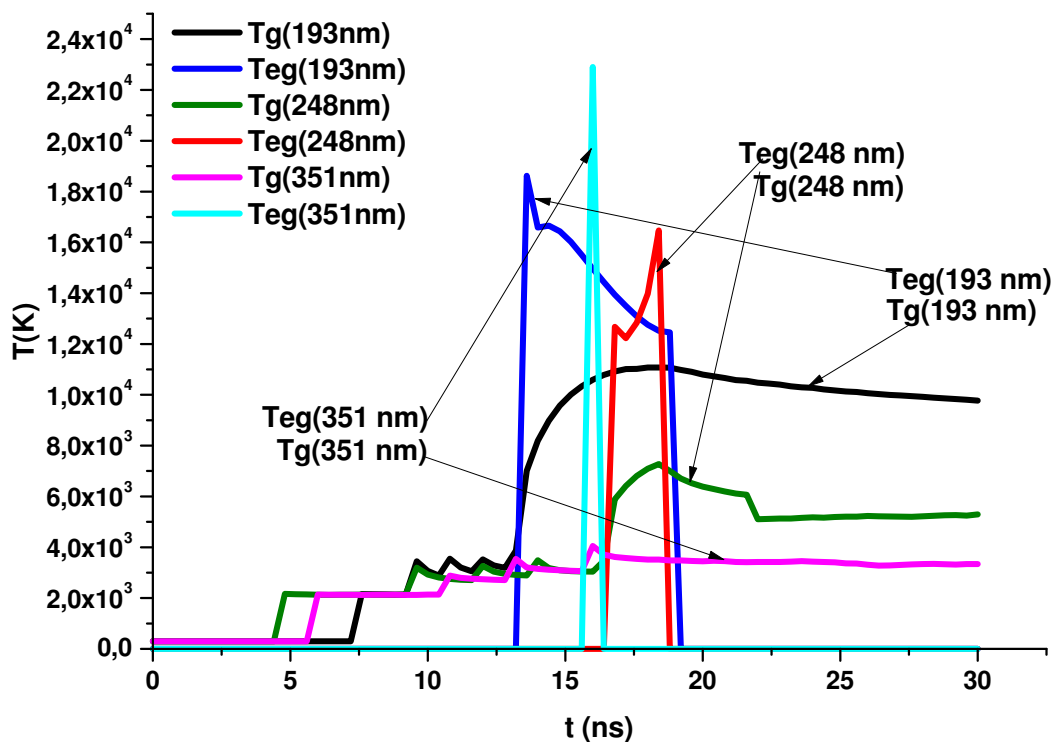


FIGURE 3.60 – Températures des électrons et des particules lourdes au seuil d’allumage du plasma pour trois longueurs d’ondes 193, 248 et 351 nm à la première cellule du domaine gazeux. T_{eg} et T_g représentent la température électronique et la température des particules lourdes respectivement

La figure (3.60) montre la variation de la température des électrons et celle des espèces lourdes au seuil d’allumage pour trois longueurs d’ondes 193, 248, 351 nm. A 193 nm le plasma s’allume avec une température électronique de 18000 K alors qu’à 248 et 351 nm il s’allume à 13000 K et 23000 K respectivement. Pour une longueur d’onde de 193 nm, le plasma est créé et maintenu, et l’échange d’énergie entre les électrons et les particules

lourdes est visible à travers le temps. A 248 nm le plasma est maintenu pendant seulement 5 ns après l'allumage alors qu'à 351 nm le plasma disparaît aussitôt qu'il s'est formé. Ceci est dû au processus de photoionisation dont la contribution pour le maintien du plasma dépend de l'énergie de l'impulsion.

Cette validation étant faite, nous pouvons maintenant passer à l'étude de l'ablation laser d'une cible en titane par des impulsions lasers nanosecondes ultraviolettes.

3.3.4 Seuils de fusion et d'évaporation

Les seuils de fusion et d'évaporation du titane que nous présentons dans le tableau (3.15), ont été calculés avec les mêmes conditions que ceux employés pour le calcul des seuils d'allumage du plasma.

Longueur d'onde (nm)	Durée d'impulsion (ns)	Fusion (J/cm^2)	Evaporation (J/cm^2)
193	8	0.11	0.13
248	21	0.2	0.21
355	17	0.23	0.25

Tableau 3.15 – Seuils de fusion et évaporation d'une cible en titane

3.3.5 Écrantage plasma

Afin de mettre en évidence l'effet de l'écrantage plasma, nous présentons les deux figures (3.61) et (3.63). La première représente la variation de l'écrantage plasma pour un rayonnement laser d'une longueur d'onde de 193 nm et d'une durée d'impulsion de 8 ns pour quatre différentes densités d'énergies, quant à la seconde, elle illustre l'importance de l'effet de l'écrantage plasma pour trois différentes longueurs d'ondes 193 nm, 248 et 351 nm pour une densité d'énergie de 2.5 J/cm^2 .

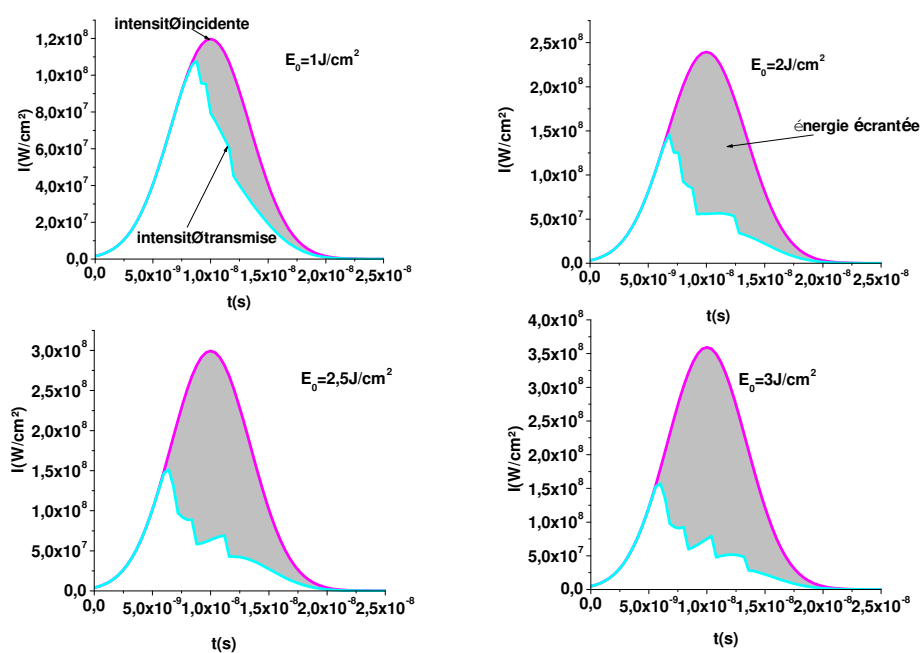


FIGURE 3.61 – Variation de l’effet de l’écrantage plasma pour une impulsion laser de durée de 8 ns et quatre densités d’énergie 1, 2, 2.5 et 3 J/cm²

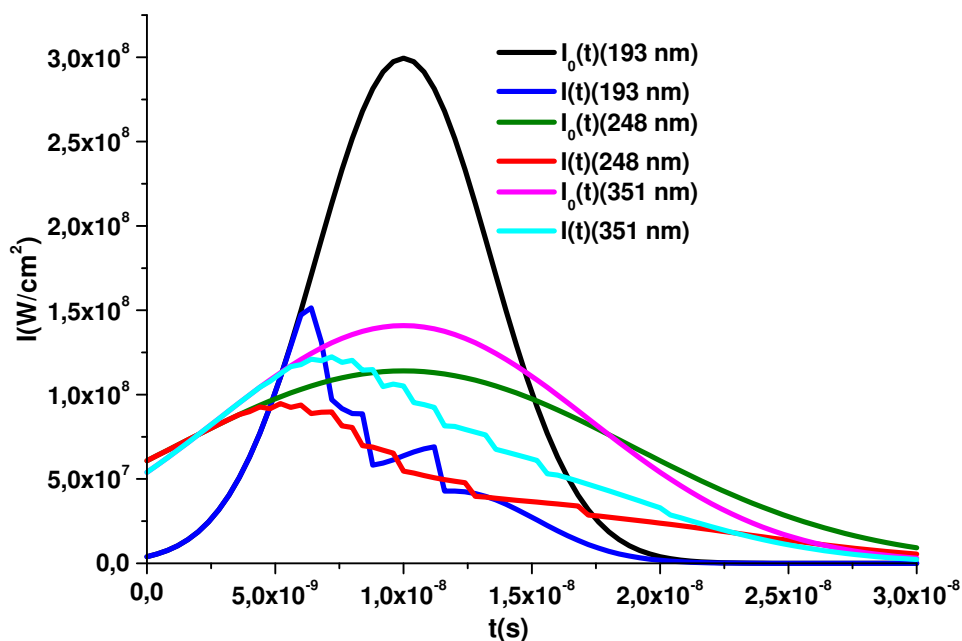


FIGURE 3.62 – Comparaison entre l’effet du plasma shielding de trois longueurs d’ondes 193, 248 et 351 nm pour une densité d’énergie de 2.5 J/cm²

La figure (3.61) montre que pour une densité d’énergie de 1 J/cm² en moyenne 24% de

l'énergie du rayonnement est absorbée par le plasma induit par laser et empêchée donc d'atteindre la surface de la cible. Pour les autres densités d'énergie 2 J/cm², 2.5 J/cm² et 3 J/cm², en moyenne 55%, 61.5 % et 67% du rayonnement laser sont absorbée par le plasma respectivement.

L'analyse de la figure (3.63) permet de déterminer les taux de l'énergie du rayonnement absorbée par le plasma dans le cas des longueurs d'onde 193 nm, 248 nm et 351 nm qui sont 61.5 %, 38% et 33% sont respectivement. L'effet d'écrantage plasma est plus important pour les courtes longueurs d'ondes car les photons des courtes longueurs d'ondes sont plus énergétiques, et sont donc beaucoup plus absorbés par le plasma avant d'atteindre la cible, notamment à travers le processus de photoionisation.

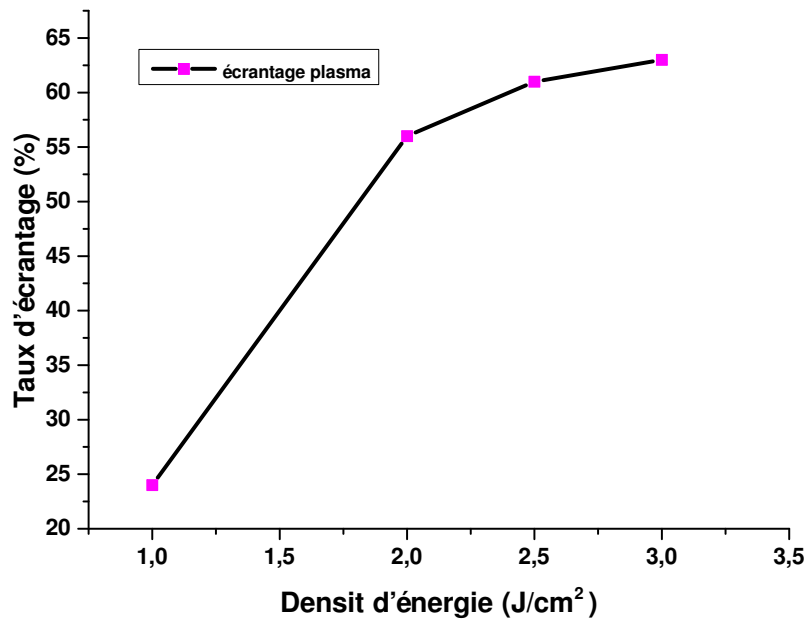


FIGURE 3.63 – Variation du taux d'écrantage plasma en fonction de la densité d'énergie pour un rayonnement de 193 nm et une durée d'impulsion de 8 ns

Les oscillations observées dans les figures (3.61) et (3.63) sont du à un régime d'auto-régulation [8] qui peut être justifié comme suit : quand l'absorption du rayonnement laser par le plasma devient importante la quantité du rayonnement qui atteint la cible diminue. Ainsi le taux de particules qui quittent la cible par évaporation se trouve également diminué, et les densités des espèces ionisées et neutre diminuent aussi à leur tour. Ceci mène à la réduction de l'absorption de l'énergie de l'impulsion par le plasma ce qui fait augmenter la quantité du rayonnement qui atteint la surface de la cible. Ceci est observée quand le taux du plasma shielding diminue. Quand la quantité du rayonnement qui arrive jusqu'au matériau devient importante, plus de particule ont tendance à quitter la cible dû au processus d'évaporation ainsi le nombre d'espèces neutres et ionisées sera augmenté. Ceci est observée quand le taux du plasma shielding est en hausse. Cette alternance de chauffage et de refroidissement du plasma et du matériau se manifeste sous forme d'oscillations causées par l'effet du plasma shielding.

3.3.6 Profondeurs ablatées

Les figures (3.64) et (3.65) représentent les variations temporelles des profondeurs ablatées dans le cas de rayonnements laser de 193 et 248 nm. Nous pouvons voir que la profondeur ablatée dans le cas d'une longueur d'onde de 248 nm et d'une densité d'énergie de 3 J/cm^2 est beaucoup plus importante que dans le cas d'une longueur d'onde de 193 nm pour la même densité d'énergie. $0.12 \mu\text{m}$ contre $0.08 \mu\text{m}$. Ceci est une conséquence directe de l'effet de l'écrantage plasma. Comme nous l'avons déjà expliqué, plus la longueur d'onde est grande plus le taux du plasma shielding est réduit, ainsi beaucoup plus d'énergie du rayonnement arrive à atteindre la cible ce qui fait que d'avantage de matière peut être extraite.

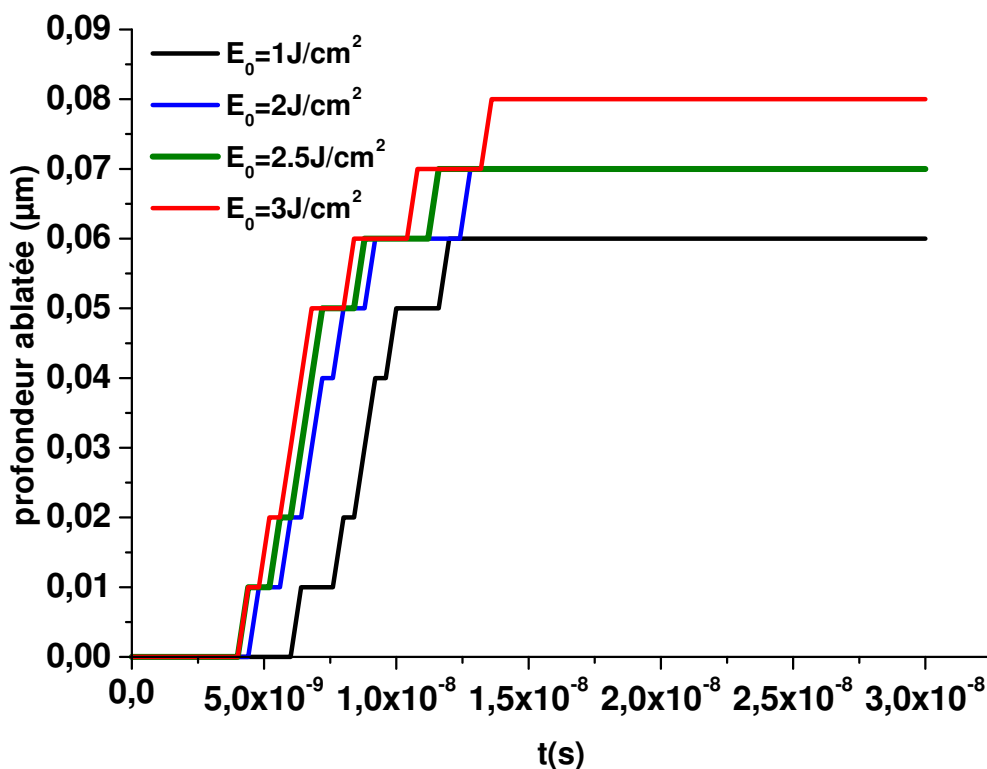


FIGURE 3.64 – Variation temporelle de la profondeur ablatée par une impulsion de 193 nm (8 ns).

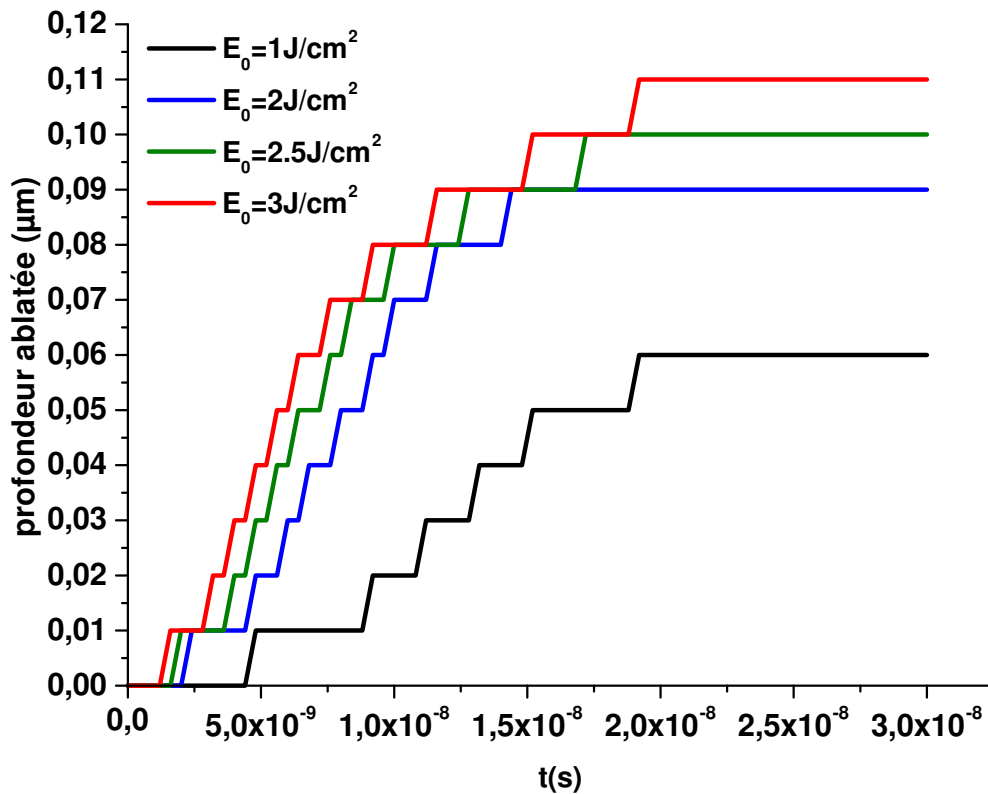


FIGURE 3.65 – Variation temporelle de la profondeur d’ablation par une impulsion 248 nm (8 ns).

3.3.7 Déséquilibre thermique dans le plasma

Les figures (3.66) et (3.67) représentent les variations de la température électronique et celle des espèces lourdes dans la première maille du domaine gazeux et dans toute la plume respectivement pour des impulsions laser de durée de 8 ns (193 nm) et de 17 ns (351 nm) pour une densité d’énergie de 2.5 J/cm².

Pour une longueur d’onde de 193 nm le premier pic de température est de 64 000 K et le deuxième à 45 000 K. La température des espèces lourdes augmente jusqu’à ce qu’elle coïncide avec la température électronique avec un pic de 55 000 K. Pour une longueur d’onde de 351 nm la température électronique atteint un maximum de 35 000 K alors que celle des particules lourdes augmente jusqu’à atteindre une valeur maximale de 34 000 K. Le déséquilibre électronique est beaucoup plus prononcé dans un plasma induit par une impulsion laser de courte longueur d’onde à cause du processus de Bremsstrahlung inverse, il est également encore plus important aux premiers instants de formation du plasma car les électrons doivent d’abord être formé et acquérir suffisamment d’énergie pour qu’ils puissent en échanger avec les espèces lourdes grâce aux processus collisionnels. L’effet du déséquilibre est réduit après la fin de l’impulsion car le plasma rentre en phase de thermalisation.

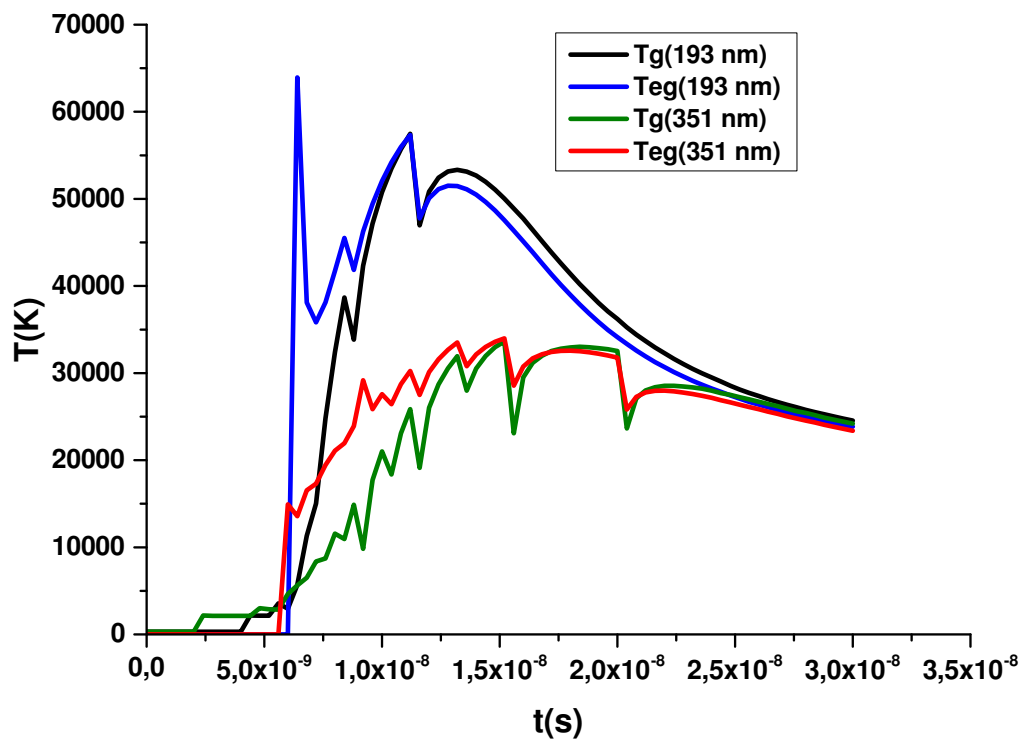


FIGURE 3.66 – Comparaison entre la température des électrons et celles des espèces lourdes à la première maille du domaine gazeux pour des rayonnements de longueurs d’ondes de 193 et 351 nm et une densité d’énergie de 2.5 J/cm^2 , T_g et T_{eg} représentent les températures des particules lourdes et des électrons respectivement.

Les oscillations observées dans la figure (3.66) apparaissent car la première maille du domaine gazeux se situe là où la matière nouvellement ablatée qui est sous la forme d’une vapeur froide, est en contact avec le plasma préexistant.

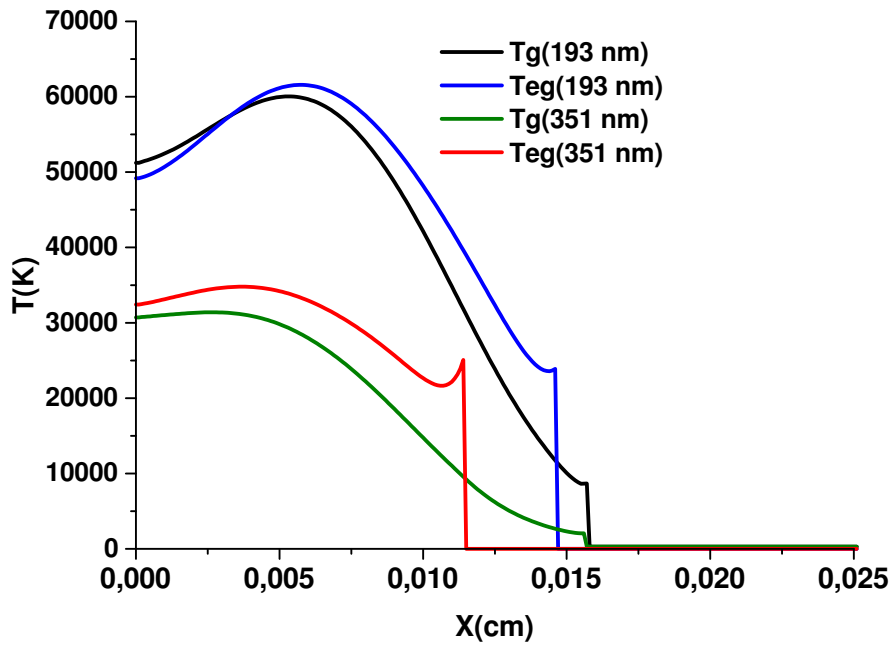


FIGURE 3.67 – Variation spatiale du déséquilibre électronique dans la plume pour des impulsions de durées de 8 ns (193 nm) et 17 ns (351 nm) et une densité d'énergie de 2.5 J/cm^2 à 14 ns. T_g et T_{eg} représentent les températures des particules lourdes et des électrons respectivement.

3.3.8 Dynamique et expansion du plasma

Après avoir étudié le déséquilibre électronique dans le plasma de titane, nous allons nous intéresser à ses variables caractéristiques à savoir sa pression (3.68), sa vitesses (3.69) et les densités des différentes espèces qui le composent y compris le gaz environnant (3.70).

La figure (3.68) représente la variation spatiale de la pression dans la plume à différents instants pendant et après la fin de l'impulsion pour une impulsion laser de 8 ns de durée et d'une longueur d'onde de 193 nm. La pression dans la plume dépend de l'énergie du rayonnement. Plus grande est l'énergie du rayonnement plus importante est la pression dans la plume. La pression de la vapeur est la plus élevée près de la surface de la cible et diminue rapidement dans le reste de la plume en expansion qui s'étend en direction du rayonnement incident.

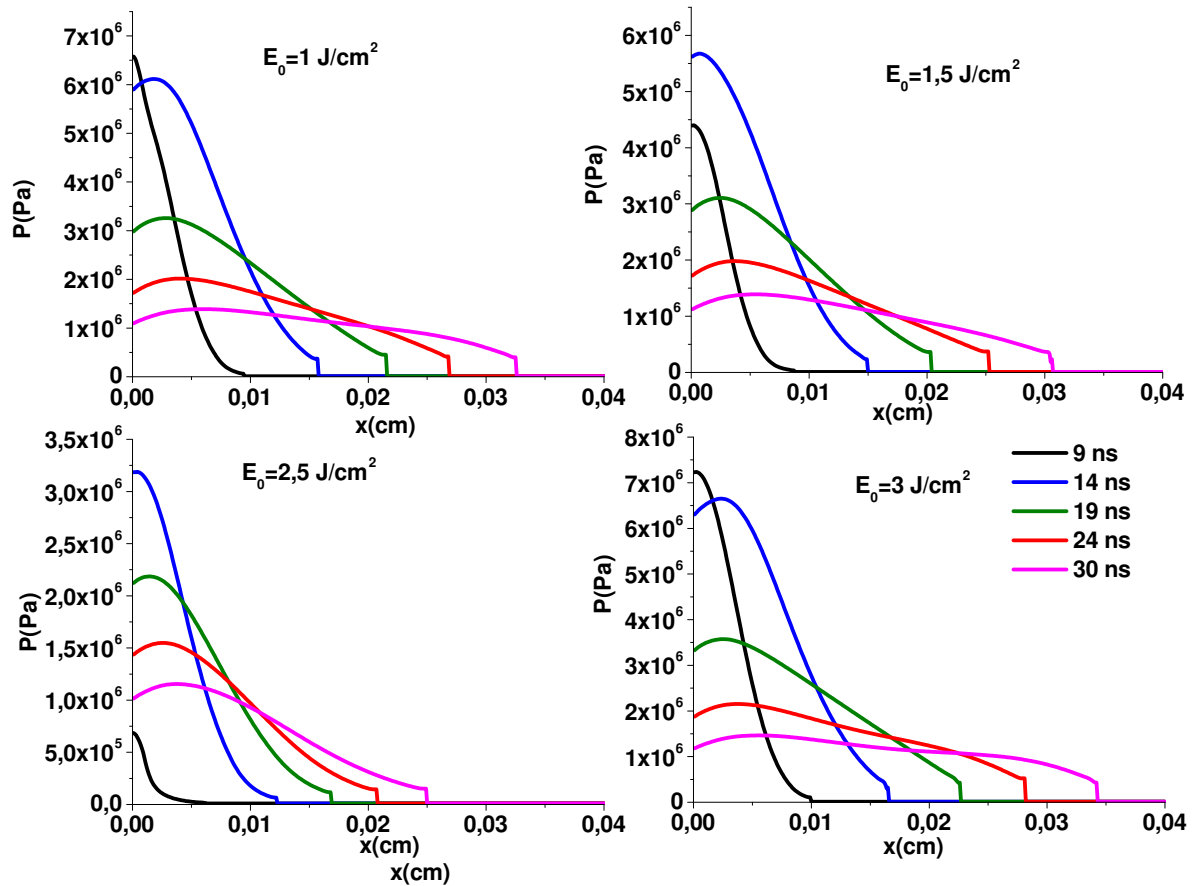


FIGURE 3.68 – Variation spatiale de la pression de la plume créée par une impulsion de durée de 8 ns et une longueur d’onde de 193 nm pour quatre densités d’énergie différentes.

Ceci se traduit par une augmentation de la vitesse de la plume, et donc une expansion rapide et la formation d’une onde de choc. Le déplacement du front de choc peut être facilement suivi à chaque instant car celui ci correspond à la position où la vitesse s’annule brutalement.

Une analyse des figures de vitesse (3.69), permet de mettre en évidence les conséquences de l’effet plasma shielding. Comme nous l’avons déjà vu, le taux de l’écrantage du rayonnement laser par la cible est plus important pour les densités d’énergie les plus élevées. Les espèces dont la plume est composée deviennent plus énergétiques et fortement accélérées. L’expansion de la plume ne dure pas indéfiniment, à un certain moment elle est ralenti par le gaz environnant au niveau du front de choc.

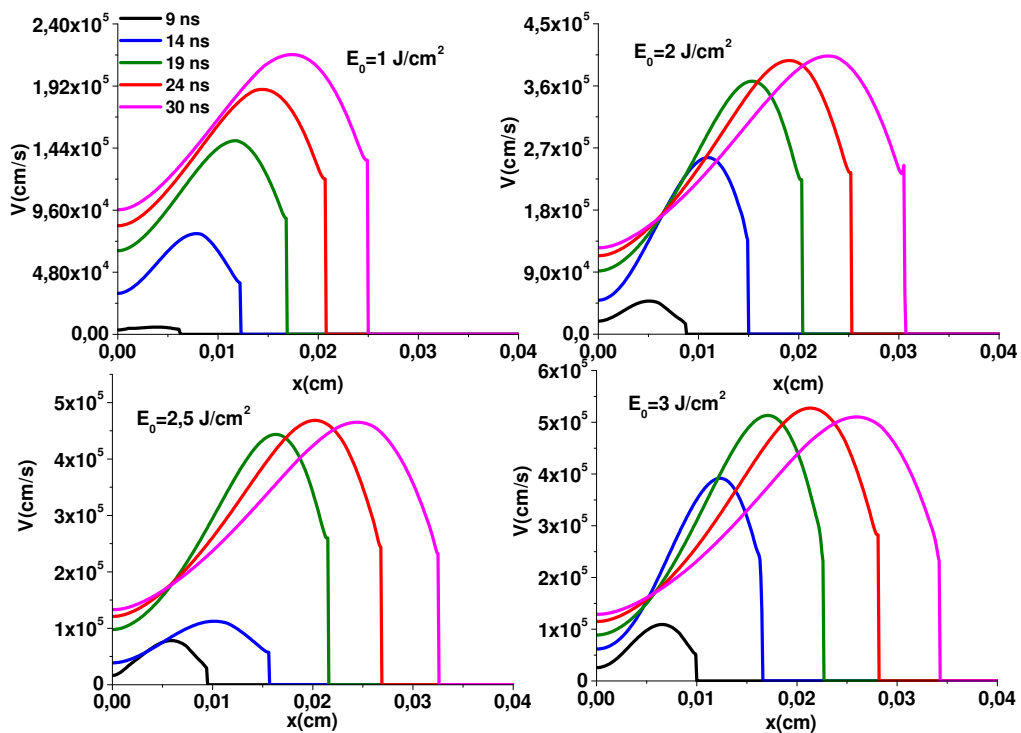


FIGURE 3.69 – Variation spatiale de la vitesse de la plume créée par une impulsion de durée de 8 ns et une longueur d’onde de 193 ns pour quatre densités d’énergie différentes.

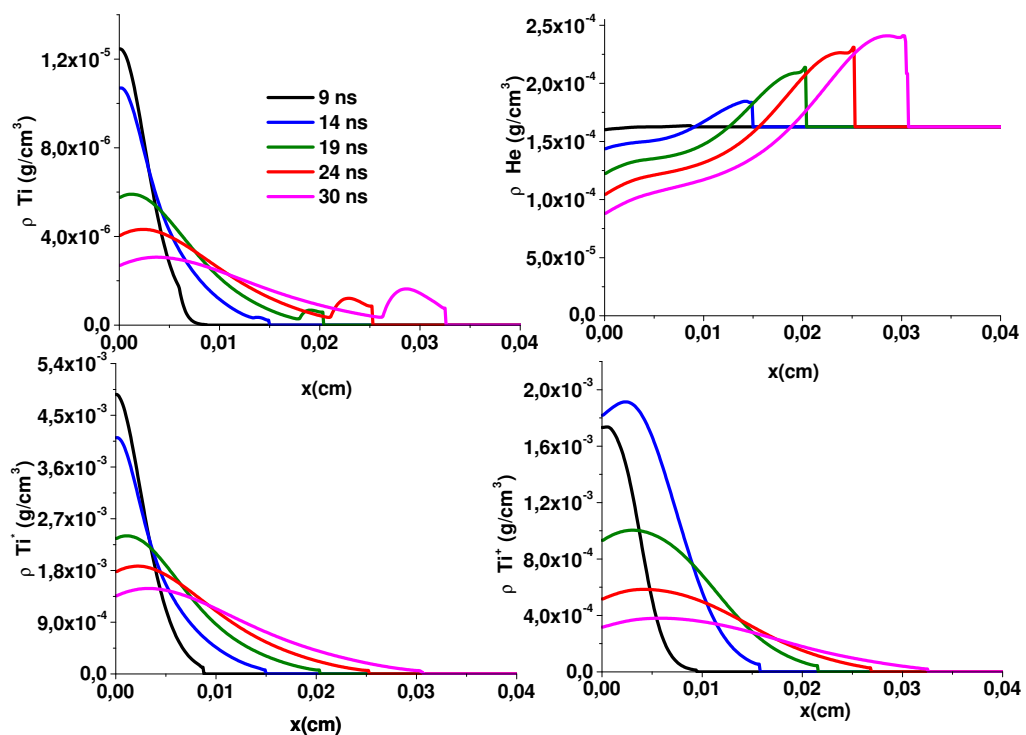


FIGURE 3.70 – Variation spatiale de la densité des espèces neutres (Ti), excitées (Ti*) et une fois ionisées ainsi que celle du gaz ambiant (He) pour une impulsion de 8 ns de durée et une longueur d’onde de 193 ns pour une densités d’énergie de 2 J/cm².

La figure (3.70) montre que les espèces neutres restent concentrées près de la surface

du matériau, leur densité a tendance à diminuer au fur et mesure qu'on s'éloigne de la surface en direction du rayonnement et en fonction du temps après la fin de l'impulsion. Ce comportement est dû à la formation d'électrons libres, d'espèces excités et ionisées grâce à l'absorption du rayonnement laser par la vapeur de titane qui croit avec le temps. Le gaz environnant, a quant à lui, de faibles densités près de la surface de la cible car la plume en expansion le repousse loin du matériau et il a de très fortes densités aux alentours du front de choc après lequel elles baissent brusquement pour devenir égales à la densité de l'hélium à pression atmosphérique.

3.3.9 Comparaison avec le cuivre

Puisque le titane et le cuivre sont deux matériaux largement utilisés dans les procédés par laser, une comparaison entre nos résultats sur le cuivre et le titane peuvent être d'un très grand intérêt. Parmi les différents aspects de l'interaction nous avons fait le choix de comparer les résultats des seuils de fusion, évaporation et allumage plasma ainsi que les profondeurs ablatées et les taux de l'écrantage plasma.

Les tableaux (3.16) et (3.17) résument les seuils de fusion, d'évaporation et d'allumage plasma respectivement calculés pour chacun des matériaux. Dans le tableau (3.18) nous présentons des exemples comparatifs de profondeurs ablatées calculées sous les mêmes conditions pour les deux matériaux.

D'une manière générale nous pouvons dire que nos calculs prédisent des seuils plus bas dans le cas du titane, et des profondeurs ablatées beaucoup plus importantes.

Une analyse des propriétés thermophysiques et optiques des deux matériaux nous ont permis d'attribuer le fait que les seuils sont plus bas dans le cas du titane, à sa très basse conductivité thermique dans les phases solides et liquides. Ce qui signifie que beaucoup moins d'énergie est diffusée au sein de la cible. A chaque fois que le rayonnement laser est absorbé par le matériau et converti en chaleur, il reste relativement concentré au niveau l'épaisseur de pénétration. Cette accumulation d'énergie fait que moins d'énergie est requise pour initier les processus de fusion et d'évaporation.

Bien qu'il n'y ait pas de très grande différence entre les potentiels d'ionisation du cuivre et du titane (7.2 et 6.8 eV) il existe une différence considérable entre les seuils d'allumage plasma des deux matériaux. Cette différence est piloté par les seuils d'évaporation, qui comme nous l'avons indiqué plutôt sont très bas dans le cas du titane. Les seuils d'allumage plasma sont plus importants dans le cas du cuivre en comparaison avec ceux du titane. Dans le cas de la plus courte longueur d'onde la différence entre les seuils d'allumage pour les deux matériau n'est pas très grande. Ceci est du au fait que dans le cas des courtes longueurs d'onde qui portent des photons très énergétiques, le processus de photoionisation est dominant et donc responsable du claquage optique de la plume.

La quantité du rayonnement absorbée par le plasma formé au dessus de la surface de la cible et donc empêchée d'atteindre cette dernière, montre par exemple pour une impulsion de 193 nm (8 ns) et des densités d'énergie de 2 et 2.5 J/cm² que le taux du plasma shielding est supérieur de 5 et 9% respectivement pour le plasma de cuivre comparé à celui du titane. Cette petite différence dans le taux d'écrantage plasma contribue relativement peu au fait

qu'une quantité de matière plus importante est ablatée dans le cas du titane. Le fait que le taux d'écrantage plasma soit plus bas dans le cas du titane, signifie que beaucoup plus d'énergie arrive jusqu'à la surface de la cible et absorbée par le matériau et puisque le titane est caractérisé par une faible conductivité thermique, ceci signifie qu'il y a très peu de perte d'énergie dues au processus de diffusion de la chaleur au sein du matériau. Ainsi moins d'énergie est requise pour initier le processus d'ablation ce qui se traduit par de plus importants taux d'ablation au cours du temps. Le fait que les taux d'écrantage plasma soient faibles dans le cas du titane, contribue à ce que les quantités de matière ablatée dans ce cas soient plus élevées, néanmoins cette différence reste principalement due aux faibles valeurs de la conductivité thermique du titane.

$\lambda(\text{nm})/\tau(\text{ns})$	Seuils de fusion J/cm^2		Seuils d'évaporation J/cm^2	
	Cuivre	Titane	Cuivre	Titane
193/8	0.4	0.11	0.6	0.13
248/21	0.7	0.2	1.35	0.21
351/17	0.7	0.23	1.1	0.25

Tableau 3.16 – Comparaison entre les seuils de fusion et d'évaporation du cuivre et du titane, λ et τ étant la longueur d'onde et la durée de l'impulsion.

$\lambda(\text{nm})/\tau(\text{ns})$	Seuils d'allumage plasma J/cm^2	
	Cuivre	Titane
193/8	0.84	0.6
248/21	1.7	0.95
351/17	1.9	0.96

Tableau 3.17 – Comparaison entre les seuils d'allumage plasma du cuivre et du titane.

$\lambda(\text{nm})/\tau(\text{ns})$	Densité d'énergie J/cm^2	Profondeur ablatée (nm)	
		Cuivre	Titane
193/8	2.5	0.05	0.07
	3	0.05	0.08
248/21	2	0.03	0.085
	2.5	0.05	0.095
	3	0.05	0.11

Tableau 3.18 – Exemples de comparaison entre les profondeurs d'ablation du cuivre et du titane calculées sous les mêmes conditions.

La figure (??) montre que contrairement au cuivre, les seuils d'évaporation du titane sont très proches de ses seuils de fusion. Nous pouvons également voir que les seuils d'allumage du titane sont compris entre les seuils de fusion et d'évaporation du cuivre. Les seuils de fusion du cuivre sont quant à eux compris entre les seuils d'évaporation et d'allumage du titane.

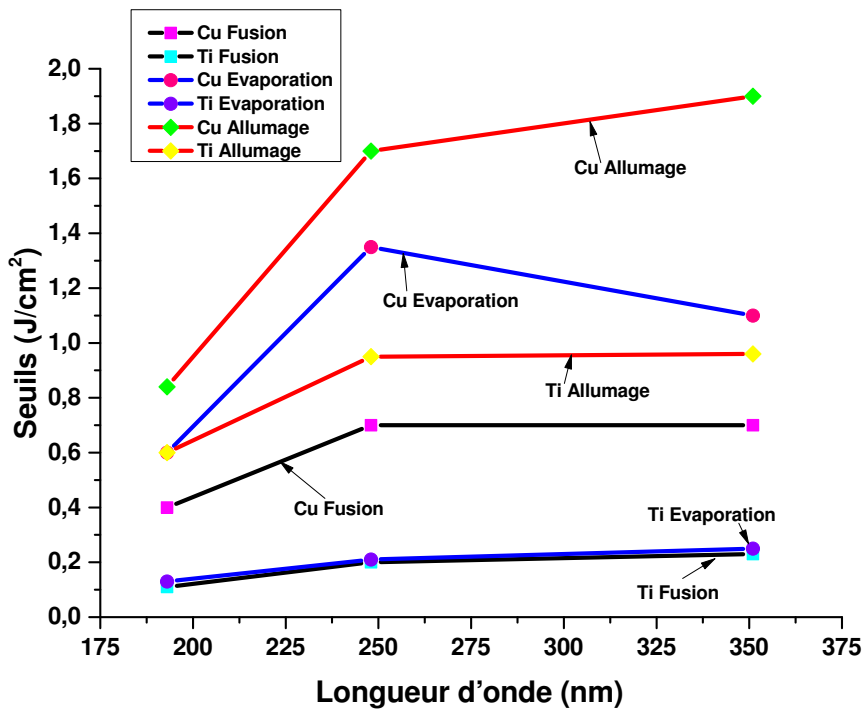


FIGURE 3.71 – seuils de fusion d'évaporation et d'allumage en fonction de la longueur d'onde pour le cuivre et le titane.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre consacré à la présentation et discussion de nos résultats de simulation. Avant d'entamer nos études nous avons d'abord validé notre modèle thermique 1D au moyen des propriétés des matériau et des paramètres des rayonnements considérés. Ensuite nous avons validé notre approches en calculant des seuils d'allumage plasma que nous avons comparé à des seuils théoriques et expérimentaux déterminés sous les mêmes conditions. En premier lieu nous avons étudié le processus d'ablation d'une cible en cuivre, par des impulsions laser de rayonnements ultraviolet ArF (193 nm, 8 ns), KrF (248 nm, 21 ns) et XeF (351 nm, 17 ns). Dans une première étape nous avons pris en compte la présence de seulement cinq espèces dans notre modèle hydrodynamique. Par la suite nous nous sommes intéressés à la mise en évidence de l'impact de la présence des espèces doublement ionisé sur le processus d'ablation, en particulier sur le seuil d'allumage, l'effet d'écrantage, la profondeur ablatée et l'expansion de la plume. En plus du cuivre nous avons mené une étude sur l'ablation laser d'un matériau en titane et avons comparés les résultats obtenu dans ce cas à ceux relatifs au cuivre.

Bibliographie

- [1] A.Bogaerts Z.Chen R.Gijbels A.Vertes. laser ablation for analytical simpling, what can we learn from modeling? *Acta Part B Atom Spectrosc*, 58 :1867–1893, 2003.
- [2] A. Bogaerts Z.Chen D.Bleiner. Laser ablation of copper in different background gasses : comparative study b numerical modeling and experiments. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 21 :384–395, 2006.
- [3] A. Bogaerts Z.Chen D.Bleiner. Laser ablation of copper in different background gasses : comparative study b numerical modeling and experiments. *Journal of analytical atomic spectrometry*, 21 :384–395, 2006.
- [4] Z.Chen A. Bogaerts. Laser ablation of cu and plume expansion into 1 atm ambient gas. *Journal of applied physics*, 97 :063305, 2005.
- [5] A. Bogaerts Z.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 :1169–1176, 2004.
- [6] A. Bogaerts Z.Chen. Effect of laser parameters on laser ablation and laser induced plasma formation : A numerical modelting investigation. *Spectrochimica Acta Part B*, 60 :1280–1307, 2005.
- [7] P. Clarke P.E. Dyer P.H. Key H.V. Snelling. Plasma ignition thresholds in uv laser ablation plumes. *App.Phys.A*, 69(Suppl) :S117–S120, 1999.
- [8] P.E. Dyer. Electrical characterization of plasma generation in krf laser cu ablation. *App.Phys.Lett*, 55 :1630, 1989.
- [9] I. M. Popescu M. Stafe, C. Negutu. Combined experimental and theoretical investigation of multiple-nanosecond laser ablation of metals. *Journal of optoelectronics and advanced materials*, 8(3) :1180 – 1186, 2006.
- [10] HP. Ravindra. *Thermal modeling of laser drilling and cutting of engineering materials*. PhD thesis, Graduate College of the Oklahoma State University, 2005.
- [11] J.JAVier Laserna José M.Vadillo. Laser-induced plasma spectroscopy : truly a surface analytical tool. *Spectrochimica Acta Part B*, 59 :147–161, 2004.

- [12] B.W. Smith J.D. Winefordner D.A. Rwak, B.C. Castle. Recent trends and the future of laser-induced plasma spectroscopy. *Spectrochimica Acta Part B*, 17(3) :453–461, 1998.
- [13] J.D. Parisse M. Sentis D.E.Zeitoun. Modeling and numerical simulation of laser matter interaction and ablation with 193 nanometer laser for nanosecond pulse. *International Journal of Numerical Methods for Heat and Fluid Flow*, 21 :73 – 94, 2011.
- [14] V.I.Mazhukin I.V.Gusev I.Smurov and G.Flamant. Laser-induced breakdown of metal vapor. *Microchemical journal*, 50(1) :413–433, 1994.
- [15] V.I.Mazhukin V.V. Nossov I.Smurov and G.Flamant. Analysis of nonequilibrium phenomena during interaction of laser radiation with metal vapors. *Surveys on Mathematics for industry*, 10 :45–82, 2001.

Conclusions et perspectives

Conclusions

La compréhension de l'aspect fondamental de l'interaction laser-matière permet d'optimiser ses paramètres pour de nombreuses applications notamment la PLD et la LIBS. Ceci est la principale motivation derrière ce travail. Dans cette thèse nous avons proposé un modèle décrivant l'interaction des impulsions de rayonnement ultraviolet en régime nanoseconde avec des cibles métalliques. Ce modèle en question a été présenté dans le deuxième chapitre de ce manuscrit qui a été précédé par un premier chapitre dédié à un état de l'art de la modélisation de l'interaction laser-matière. Le troisième et dernier chapitre a été quant à lui consacré à la présentation de nos résultats de simulation.

Nous avons prouvé la fiabilité de notre modèle en comparant les seuils d'allumage plasma qu'il prédit avec des seuils expérimentaux et théoriques et ceci dans le cas de l'interaction d'impulsions laser ultraviolettes (193 nm (8 ns), 248 nm (21 et 30 ns) et 351 nm (17 ns)) avec une cible en cuivre. Le fait que nos résultats soient en meilleur accord avec les résultats expérimentaux prouve que notre étude a été soigneusement menée en prenant en compte les processus les plus pertinents qui apparaissent lors de l'interaction. Nous avons examiné l'importance du déséquilibre électronique et nos résultats ont démontré que l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local largement utilisées dans la littérature dans le cadre de l'étude des plasmas induits par laser doit être révisée. Nous avons examiné l'effet de l'écrantage plasma ainsi que la dynamique de la plume en expansion.

Notre modèle a été en suite amélioré de telle sorte qu'il puisse prendre en compte la présence d'espèces deux fois ionisées, ceci a été appliqué au cas du cuivre, car de nombreux travaux prennent en compte la présence du Cu^{2+} soit dans des modèles hydrodynamique dans le cadre de l'hypothèse de l'équilibre thermodynamique local, soit dans des modèles cinétiques 0D. Dans notre cas nous avons pris en compte la formation du Cu^{2+} dans notre modèle hydrodynamique 1D qui prend en compte le déséquilibre thermique entre les électrons et les espèces lourdes contenues dans le plasma induit par laser. Notre principal objectif été d'étudier l'effet de la présence des espèces doublement ionisées dans le plasma non seulement sur sa dynamique en examinant sa température, sa vitesse d'expansion, les densités des différentes espèces qu'il contient mais également sur le matériau en question en évaluant la profondeur d'ablation et le taux de l'écrantage plasma.

Nos résultats ont montré que la présence du Cu^{2+} n'a aucun effet sur les seuils d'allumage plasma ni sur les profondeurs ablatées, car celles-ci atteignent leur maximum avant le début de l'effet de l'écrantage plasma. Il a été montré que l'écrantage plasma est légèrement affecté par la présence des espèces doublement ionisées (4 et 6% pour des rayonnements laser de deux densités d'énergies de 2 et 3 J/cm² respectivement), ce qui est principalement dû à leur contribution dans l'absorption du rayonnement par inverse Bremsstrahlung.

La légère augmentation de la quantité de l'énergie du rayonnement absorbée par le plasma due à la présence des ions deux fois ionisés a des effets non négligeables sur sa dynamique. Le déséquilibre thermique entre les électrons et les espèces doublement chargées dans le plasma s'est révélé être d'une très grande importance quand les espèces doublement ionisées sont prises en compte.

Nous avons également montré que la densité maximale du gaz environnant qui est poussé loin de la surface du matériau par l'expansion supersonique du plasma induit par

laser au niveau du front de choc est légèrement affectée par la présence des espèces doublement ionisées, en particulier après que l'intensité du rayonnement laser atteigne son maximum. Le gaz environnant est poussé loin de la surface du matériau sur une distance qui reste constante avec et sans la présence du Cu^{2+} .

L'étude que nous avons menée sur le titane peut être considérée comme une seconde validation de notre approche qui vise à décrire l'interaction des impulsions ultraviolettes nanosecondes avec des cibles métalliques. A notre connaissance aucune étude de ce genre n'a été déjà menée sur le titane. Nous nous sommes donc intéressée au processus d'ablation d'une cible en titane et plus particulièrement au déséquilibre thermique dans le plasma de titane. Dans ce cas là notre approche a été validée de la même manière que dans le cas du cuivre, c'est à dire en calculant des seuils d'allumage plasma induits par des rayonnement laser de différentes longueurs d'onde et durées d'impulsion. La comparaison de nos résultats avec des résultats expérimentaux et théoriques ont montré que nos résultats sont en bon accord avec les résultats expérimentaux, ce qui prouve une fois de plus que notre approche prend en considération les processus les plus pertinents qui interviennent lors de l'interaction et que le déséquilibre thermique entre les électrons et les particules lourdes doit être pris en compte lors de la modélisation des plasmas induits à partir de cibles métalliques.

L'étude comparative que nous avons effectué entre des résultats obtenu dans le cas du titane avec ceux du cuivre a montré l'existence d'écarts considérables notamment pour les seuils de fusion, évaporation et allumage plasma ainsi que des profondeurs ablatées. Ces écarts ont été principalement attribué à la faible valeur de la conductivité thermique du titane ($0.22 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ (solide), $0.33 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ (liquide)) comparée à celle du cuivre ($3.8 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ (solide), $1.7 \text{ W cm}^{-1} \text{ K}^{-1}$ (liquide))

Perspectives

Pour de futures études il serait très intéressant d'appliquer notre étude sur d'autres matériaux, afin de déterminer leur seuils de fusion, évaporation et allumage plasma dans le but d'établir des relations entre leur propriétés optiques et thermophysiques et les seuils en question.

Il serait également utile d'intégrer la dépendance en température des propriétés thermiques et optique des matériaux et de faire évoluer le modèle de telle sorte qu'il puisse prendre en compte les phénomènes de thermo et photoémission, le chauffage du matériau par les radiations émises par le plasma et l'ionisation du gaz ambiant.

Nous projetons de faire évoluer le modèle pour qu'il puisse non seulement décrire l'ablation laser en régime ultra-court (ie : impulsions pico et femtosecondes) mais aussi couvrir d'autres intervalles du spectre électromagnétique (ie visible et infrarouge).

Mettre en place un dispositif expérimental serait idéal pour que l'on puisse confronter nos résultats de simulation à des cas réels, ça nous permettrait de faire évoluer d'avantage notre outil de manière à ce qu'il puisse être capable de décrire l'interaction quelque soit les propriétés du rayonnement et la nature du matériau.



Auteur : Mlle Amina Kahina AIT OUMEZIANE

Titre : Contribution à la modélisation de l'interaction laser-matière en régime nano et picoseconde : Optimisation des paramètres

Résumé :

L'objectif de ce travail de thèse est de contribuer au développement d'un modèle concis permettant la description des différents mécanismes susceptibles d'apparaître lors de l'interaction d'un rayonnement laser impulsif avec différents types de matériaux pour des intervalles temporels de l'ordre de la nanoseconde et/ou picoseconde. Nous cherchons à optimiser les modèles d'interaction laser-matière en prenant en compte la nature du rayonnement (densité de puissance, durée d'impulsion et longueur d'onde) et/ou du matériau. Le travail est de nature purement théorique puisque nous développerons des codes de calculs pouvant modéliser la dite interaction. Le travail est d'autant plus important que l'interaction étudiée peut déboucher sur de nombreuses applications notamment un moyen d'analyse de la composition chimique de matériaux très élégante et que l'on appelle la LIBS (laser induced breakdown spectroscopy).

Mots clés : Interaction Laser-matière, impulsion laser, modélisation, plasma induit par laser, simulation numérique.

Abstract :

The aim of this thesis is to contribute to the development of a comprehensive model allowing the description of the different processes that can appear during the interaction of nanosecond and/or picosecond pulsed lasers with various materials. In order to optimize the interaction model we take into account the laser parameters (power density, pulse duration, wavelength) and/or the nature of the material. This work is purely theoretical because it focuses only on modeling and it is of great interest because of the numerous applications that involve laser matter interaction, namely LIBS (laser induced breakdown spectroscopy) which is an elegant promising technique of spectrochemical analysis based on laser matter-interaction.

Key words : Laser-matter interaction, pulsed laser, modeling, laser induced plasma, numerical simulation.

ملخص

الهدف من هذه الرسالة هو المساهمة في تطوير نموذج شامل يسمح بوصف العوامل المختلفة التي يمكن ان تظهر خلال تفاعل ليزر نابض نانو ثانية و/ او بيكو ثانية مختلفة، من اجل تحسين نموذج التفاعل أخذنا بعين الاعتبار خصيات الليزر (كثافة الطاقة، مدة النبض والطول الموجي) ونوعية المادة. طبيعة هذا العمل هو نظري بحت لأنه يركز فقط على النمذجة التي لها أهمية كبيرة نظرا للتطبيقات العديدة التي تركز على تفاعل الليزر والمادة مثل **LIBS** وهي تقنية واعدة لتحليل المادة

الكلمات الرئيسية : ليزر نابض، التفاعل، المحاكات العددية، تفاعل الليزر و المادة، البلازما