

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA
RECHERCHE SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
« HOUARI BOUMEDIENE »
FACULTE DE CHIMIE



MEMOIRE

Présentée pour l'obtention du diplôme de **MAGISTER**
EN : CHIMIE

Spécialité : Chimie et Physique des Matériaux Inorganiques

Par Mme : HAMADI née BRIHMAT Farida

Sujet

**ETUDE DE L'EXPANSION HYDRODYNAMIQUE D'UN PLASMA DE
TITANE SOUS AMBIANCE GAZEUSE D'ARGON, EN VUE DE
DEPÔT DE COUCHES MINCES PAR ABLATION LASER**

Soutenue publiquement, le : 02 / 12 / 2010, devant le jury composé de :

M. A. DAHMANI	Professeur à l'USTHB	Président
M. D. MEZAOUI	Maître de Conférence A à l'USTHB	Directeur de thèse
Mme. F. CHAFA	Professeur à l'USTHB	Examineur
M. O. LAMROUS	Professeur à l'UMMTO	Examineur
M. O. ZIANE	Professeur à l'USTHB	Examineur

Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au Centre de Développement des Technologies Avancées (CDTA), au sein de l'équipe de recherche Traitement des Matériaux par Laser (TML), de la Division des Milieux Ionisés et Lasers, sous la direction de Monsieur E.H. Amara, Directeur de Recherche, sans qui ce travail n'aurait jamais abouti. Je le remercie sincèrement, car il m'a initié à la recherche, et m'a beaucoup aidé et soutenu depuis mon arrivée au CDTA, et surtout pour la réalisation de ce travail et de ce mémoire.

Je remercie sincèrement Monsieur D. Mezaoui, Maître de Conférence au Laboratoire des Sciences des Matériaux de la Faculté de Chimie de l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumedienne (USTHB), pour la confiance qu'il m'a accordé, en acceptant d'être mon directeur de thèse, et pour son soutien et patience durant ces quatre années.

Je remercie Monsieur A. Dahmani, Professeur à la Faculté de Chimie de l'USTHB, d'avoir accepté de présider ce jury.

Je remercie vivement Madame F. Chafa, et Monsieur O. Ziane, Professeurs à la Faculté de Physique de l'USTHB, ainsi que Monsieur O. Lamrous Professeur à la Faculté de Physique de l'Université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou (UMMTO) d'avoir accepté d'examiner mon travail, et je suis très sensible à l'honneur qu'ils m'ont fait en acceptant d'être membres de ce jury.

Enfin, pour mes amies et collègues de l'équipe TML, Mme D.Doumaz, et Melle S.Aggoune, j'adresse mes sincères remerciements et leur exprime ma gratitude pour leur aide à la compréhension de la thématique étudiée dans ce mémoire et pour leur soutien quotidien. J'espère qu'elles trouveront en cette thèse le fruit de leurs encouragements.

Je n'oublie pas mes collègues de l'équipe Interaction Laser Matière (ILM) sous la responsabilité de Monsieur T. Kerdja, Maître de Recherche A, que je remercie pour leur aide et discussions fructueuses notamment sur les aspects expérimentaux.

J'exprime également mes remerciements à Messieurs N.Ahmanache et M. Branci, chercheurs au CDTA pour leurs aides et avis précieux.

Enfin, ma reconnaissance va à toutes mes amies particulièrement Yamina Mebdouaa, Ghania Menguellet, Houria Kaddour, Salima Kaizra, Zahia Ghouila, ainsi que tous ceux et celles qui m'ont soutenu de près ou de loin.

Dédicace

A mes parents

A mon mari, Said, Amina et Malak

A ma famille et ma belle famille

SOMMAIRE

Nomenclature

Introduction.....	1
Revue Bibliographique.....	5

CHAPITRE I : PROCEDE D'ABLATION PAR LASER

I.1 L'ablation laser dans le dépôt de couches minces.....	16
I.2 Autres procédés de dépôt.....	19
I.3 Mécanisme fondamentaux de l'ablation laser.....	20
I.3.1 Interaction laser-cible solide.....	21
I.3.1.1 Seuil de fusion du matériau.....	24
I.3.1.2 Profondeur de la zone fondue.....	24
I.3.1.3 Evolution de la température de surface de la cible.....	25
I.3.1.4 Evaporation de la matière.....	25
I.4 Ejection de la matière.....	26
I.4.1 Formation du plasma.....	28
I.4.2 La couche de Knudsen.....	29
I.4.3 Mécanisme d'absorption et d'ionisation dans le plasma.....	31
I.4.3.1 Ionisation photonique (IP).....	31
I.4.3.2 Ionisation thermo-ionique : Effet Bremsstrahlung inverse (BI)...	32
I.5 Expansion du plasma.....	33
I.5.1 Expansion du plasma sous vide.....	33
I.5.1.1 Expansion monodimensionnelle (1D).....	34
I.5.1.2 Fin de l'expansion 1D.....	34
I.5.2 Expansion du plasma sous atmosphère contrôlée.....	35
I.6 Description des propriétés du plasma.....	36

CHAPITRE II : MODELISATION NUMERIQUE

II.1 Introduction	39
II.2 Méthode utilisée	40

II.2.1	Discrétisation des équations par la méthode des volumes finis.....	40
II.2.2	Utilisation des UDFs (User Defined Function).....	41
II.3	Procédure de la modélisation du procédé d’ablation laser	42
II.4	Modélisation de l’interaction entre l’impulsion laser et la cible	43
II.4.1	Modèle numérique.....	43
II.4.1.1	Géométrie et symétrie de la cible.....	43
II.4.1.2	Conditions initiales et aux limites du domaine.....	44
II.5	Modélisation de la formation et de l’expansion du plasma	47
II.5.1	Hypothèses du modèle.....	47
II.5.2	Domaine de calcul et Maillage.....	48
II.5.3	Equations hydrodynamiques durant le pulse laser.....	49
II.5.3.1	Conditions initiales et aux limites.....	50
II.5.4	Ionisation du plasma.....	54
II.5.5	Equations hydrodynamiques en absence du pulse laser.....	55
II.5.5.1	Conditions initiales aux limites	56
II.6	Transport des espèces chimiques	57
II.6.1	Diffusion massique dans les écoulements laminaires turbulents.....	57
II.6.2	Définition des Propretés Physique de la mixture.....	58
II.6.4.a-	Densité du mélange.....	58
II.6.4.b -	Conductivité thermique du mélange.....	59
II.6.4.c-	Capacité spécifique du mélange.....	59
II.6.4.d-	Viscosité du mélange.....	60

CHAPITRE III : RESULTATS DE LA MODELISATION

III.1	Résultats de la modélisation de l’interaction laser-cible	62
III.1.1	Evolution spatiale et temporelle de la température.....	62
III.1.1.1	Effet de la densité d’énergie du laser.....	63
III.1.1.1.a	Sur l’évolution spatiale de la température.....	63
III.1.1.1.b	Sur l’évolution temporelle de la température.....	65
III.2	Résultats de la Modélisation de la formation et de l’expansion du plasma	68

III.2.1	Formation de la vapeur.....	69
III.2.2	Influence de la pression du gaz ambiant.....	73
III.2.2.1	Sur la dynamique du panache de vapeur.....	73
III.2.2.2	Sur l'évolution temporelle et spatiale de la température du plasma.....	76
III.2.2.3	Sur l'évolution temporelle et spatiale de la densité du plasma.....	81
	Conclusions	85
	Références	88

NOMENCLATURE

A	Absorptivité
$\vec{a}$	Vecteur surface
β_c	Coefficient de collage des atomes
β	Coefficient d'atténuation
c	Vitesse de la lumière dans le vide
$C_{p,s}$	Capacité calorifique du solide
$C_{p,l}$	Capacité calorifique du liquide
C_{pi}	Capacité spécifique à pression constante de l'espèce i
d	Distance
D_{ij}	Coefficient de diffusion binaire de l'espèce i dans l'espèce j
$D_{i,m}$	Coefficient de diffusion de l'espèce i dans le mélange
D_t	Diffusivité turbulente
$D_{T,i}$	Coefficient de diffusion thermique de l'espèce i
E_I	Potentiel d'ionisation d'un atome
E^*	Energie du niveau excité
$E_{\#}^Z(n, l)$	Energie d'ionisation
E	Energie du faisceau laser
E_v	Energie dans la plume
F	Fluence du laser
$f_l(r,z,t)$	Distribution spatiale de la fraction du liquide
$f_s(r,z,t)$	Distribution spatiale de la fraction du solide
$f_l f_s$	Fraction du liquide et du solide respectivement
g_l^z	Poids statistique du niveau l à l'état de charge (Z)
g_n^{z-1}	Poids statistique du niveau n à l'état de charge (Z-1)
dG	Variation de potentiel de Gibbs
$h_{f,max}$	Profondeur maximale de la zone fondue
$h_{s,fus}$	Enthalpie du solide au point de fusion
$h_{l,fus}$	Enthalpie du liquide au point de fusion
h	Constante de Planck

ΔH_f	Enthalpie de fusion
ΔH_v	Enthalpie de vaporisation
I, I_0	Intensité laser et Intensité maximale de l'impulsion laser
$I(r, z)$	Profil spatial de l'intensité
$I(t)$	Profil temporel de l'intensité
$I_{s, fus}$	Intensité seuil de fusion
$I_{s, vap}$	Intensité seuil de vaporisation
J_i	Flux de diffusion d'une espèce chimique i
j_{at}	Flux de particules quittant la surface
K	Conductivité thermique
K_s	Conductivité thermique du solide
K_l	Conductivité thermique du liquide
K_i	Conductivité thermique de l'espèce i
κ_l	Diffusivité thermique du liquide
κ_s	Diffusivité thermique du solide
k	Indice d'extinction
k_B	Constante de Boltzmann
k_{pl}	Coefficient d'absorption du rayonnement laser par le plasma
L_f	Chaleur latente de fusion
l_p	Profondeur de pénétration
M	masse molaire
m_{at}	Masse atomique
M_{av}	Nombre de mach de la vapeur
M_i	Masse molaire de l'espèce i.
n	Indice de réfraction
$\bar{n}$	Indice de réfraction complexe
N_e	Densité électronique
N_n	Densité des atomes neutres
N_i	Densité des atomes ionisés
N_T	Densité Totale
$N(Z-1)$	Densité ionique à l'état de charge (Z-1)
p_{op}	Pression dans les conditions opératoires
P	pression

P_0	Pression ambiante
$P_{vap}(T_s)$	Pression de vapeur à la surface
R	Réflectivité
R_{gaz}	Constante des gaz parfaits
r_0	Rayon de la tache focale du laser
Sc_t	Nombre de Schmidt pour les écoulements turbulents.
$S(r,z,t)$	Terme source énergétique volumique
S	Entropie
S_{liq}	Entropie du liquide
S_{vap}	Entropie de la vapeur
t	Temps
T	Température
T_{fus}	Température de fusion
T_{vap}	Température de vaporisation
T_{amb}	Température ambiante
T_s	Température de surface
T_e	Température électronique
T_{liq}	Température du liquide
$T(r,z,t)$	Température dans l'espace et temps
U	Pertes d'énergie par rayonnement
v_{int}	Vitesse de l'interface
V	Volume total
V_i	Volume de la cellule notée i
V_{vap}	Volume de la vapeur
V_{liq}	Volume du liquide
v_0	Vitesse initiale
v_x, v_y, v_z	Composantes de vitesse dans l'espace
v_{vap}	Vitesse d'éjection de la vapeur
ν	Fréquence du laser
X_{Ti}	Fraction massique du titane
X_{Ar}	Fraction massique de l'argon
Z	Charge moyenne
α	Coefficient d'absorption

δ_{th}	Longueur de diffusion thermique
ϕ	Quantité scalaire
ε	Permittivité électrique complexe
ε_1	Permittivité électrique réelle
ε_2	Permittivité électrique imaginaire
ρ	Densité
ρ_l	Densité du liquide
ρ_s	Densité du solide
ρ_{vap}	Densité de la vapeur
$\rho_{vap}(T_s)$	Densité de la vapeur à la surface
μ_t	Viscosité turbulente
μ_i, μ_j	Viscosité de l'espèce i et j
Γ_ϕ	Coefficient de diffusion pour ϕ
χ_f	Distance d'arrêt
σ_{BI}	Section efficace due à la dispersion électron-ion et électron-neutre
α_{BI}	Coefficient d'absorption par Bremsstrahlung inverse
$\sigma_{BI, neu}$	Section efficace due à la dispersion électron-neutre
$\sigma_{BI, ion}$	Section efficace due à la dispersion électron-ion
σ_{PI}	Section efficace due à l'ionisation photonique
σ_{coll}	Section efficace des collisions électron-neutre
τ_L	Durée de l'impulsion laser
τ	Tenseur de la quantité de mouvement
γ	Coefficient adiabatique du gaz
ϕ_{moy}, ϕ_i	Valeur moyenne de la variable ϕ , la variable ϕ de la cellule notée i

INTRODUCTION

L'ablation de matière par laser pulsé est une méthode utilisée pour la synthèse de matériaux nouveaux. Parmi ses applications, le dépôt de couche mince par ablation, dit PLD (Pulsed Laser Deposition), est aujourd'hui une technologie clé pour de multiples applications industrielles, comme dans la fabrication de composés électroniques, et dans l'élaboration de cellules photovoltaïques pour améliorer leurs propriétés isolante ou conductrice. Elle est également utilisée dans la fabrication d'outils coupants en améliorant leurs propriétés mécanique et de résistance à l'usure et à la corrosion. Les propriétés optiques d'un matériau peuvent être également modifiées par dépôt de couches minces sous forme de revêtements décoratif ou anti-reflet.

Les processus physiques intervenant lors de l'ablation laser pour le dépôt de couches minces sont souvent complexes et encore mal compris. L'amélioration de nos connaissances notamment dans les domaines de l'hydrodynamique et de la cinétique des plasmas passe bien entendu par l'étude expérimentale des processus d'ablation mais aussi par le développement de modèles numériques performants. Ces modèles sont encore relativement simples, souvent unidimensionnel 1-D et basés sur les équations d'Euler qui ne permettent pas de traiter l'ensemble des phénomènes observé lors de l'ablation laser. Pour tenir compte à la fois des deux étapes successives et interdépendantes d'interaction laser matière précédemment décrites, le développement de modèles 2-D est nécessaire.

Le travail présenté dans ce mémoire porte sur l'étude théorique de l'ablation laser-matière en mode nanoseconde. Il tient compte des mécanismes fondamentaux d'évaporation de la matière, de la formation du plasma, et de sa dynamique à travers son expansion dans un milieu gazeux neutre (Argon ou Azote).

On développe une modélisation qui permet de traduire mathématiquement les phénomènes physiques de l'ablation laser, par la résolution numérique du système d'équation aux dérivées partielles représentant la conservation des grandeurs d'états comme la masse, l'énergie et la quantité de mouvement. La symétrie cylindrique que présente l'expansion du plasma permet de réduire l'étude à une approche en 2-D suivant les directions radiale et axiale (r, z).

On considère l'ensemble des processus physiques impliqués lors de l'interaction laser-matière, comme l'absorption de l'énergie laser, sa diffusion dans le matériau cible et les effets thermiques résultants. Ces effets produisent les changements de phase (solide-liquide-vapeur) puis l'éjection

de la matière. Ces processus dépendent fortement des paramètres laser (longueur d'onde, durée d'impulsion, intensité), mais aussi des propriétés physiques de la cible. Le comportement du plasma en présence d'un gaz ambiant, est décrit par un modèle hydrodynamique bidimensionnel et non stationnaire. Le but de notre travail est d'obtenir par le calcul les paramètres du plasma représentés principalement par sa densité, sa température, sa fraction massique, sa vitesse, et sa pression. On considère un plasma thermalisé, c'est à dire plusieurs dizaines de nanosecondes après extinction du faisceau laser.

Le modèle prend en compte la diffusion de masse et l'échange d'énergie entre les espèces ablatées et les espèces du gaz ambiant, ainsi que leur mouvement. L'approche développée est utilisée pour étudier l'influence du gaz ambiant sur la dynamique de l'expansion du panache (nuage de plasma) obtenu au cours de l'ablation laser d'une cible de Titane.

Cette thèse qui s'inscrit dans le cadre de l'exécution d'un projet de recherche mené au Centre de Développement des Technologies Avancées (CDTA), a pour objectif d'étudier les mécanismes physiques qui se produisent lors de l'interaction d'un faisceau laser pulsé de type Excimer (KrF) avec la surface d'un matériau en Titane (Ti), et son interaction avec un gaz ambiant, en vue de déposer des couches minces de type TiO_2 , C_xN_y , ZnO ,... Ce mémoire s'organise de la façon suivante:

- On consacre une partie à caractère bibliographique, où on passe en revue les études antérieures montrant l'état de l'art de la recherche dans le domaine des plasmas produit par ablation laser en mode nanoseconde.
- Dans le premier chapitre, on aborde l'interaction laser-matière ainsi que les différentes étapes telles que les processus de chauffage, de fusion, de vaporisation de la cible et de formation du plasma.
- Dans le second chapitre, on développe les modèles décrivant chacun des processus impliqués lors de l'ablation laser matière, en tenant compte des phénomènes physico-chimiques qui interviennent lors du dépôt de l'énergie laser, de la formation et de l'expansion du panache pour des conditions opératoires données.
- Dans le troisième chapitre on présente les principaux résultats de notre modélisation et leurs interprétations. On distingue de deux parties, dans la première, on explique en détail l'influence des paramètres expérimentaux, sur la température de surface de la cible, la

profondeur en fusion et la profondeur ablatée. Dans la seconde partie, on présente les résultats de la modélisation de la dynamique du plasma en expansion. Ceux-ci concernent l'évolution spatio-temporelle de la vitesse, la température, la densité, le degré d'ionisation des neutres, des ions et électrons du panache.

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

Les principaux travaux que l'on retrouve dans la bibliographie, et qui concernent l'interaction laser-cible, le transfert de chaleur dans le matériau, la formation et la dynamique du plasma sont sous formes d'études théoriques et expérimentales.

En 1995, J. R. Ho et *al* [1] ont développé un modèle théorique qui permet d'étudier le transfert de chaleur et la dynamique de la vapeur métallique (neutre) lors de l'ablation des matériaux par laser pulsé (*ns*, Excimer) à densités d'énergie variables. La densité d'énergie exprimée en J/cm^2 est également appelée fluence. Pour des cibles d'Aluminium, de Cuivre et d'or, leurs résultats fondamentaux font apparaître dans les courbes de refroidissement calculées durant et après le pulse laser, que les températures de surface du matériau sont élevées durant le pulse laser. Le maximum de température de surface et la profondeur de fusion dans le matériau sont presque linéairement proportionnels à la fluence laser.

Pendant les premiers instants de l'éjection, l'écoulement de la vapeur est suivant la direction axiale, il devient bidimensionnel après l'extinction du pulse laser. Enfin, les vitesses d'éjection de la matière sont supérieures à 1000 *m/s* aux faibles pressions du gaz ambiant de l'ordre de 10^{-4} *atm*. Les mêmes auteurs ont étudié en 1996, l'interaction d'un laser pulsé (*ns*) avec une surface métallique d'Aluminium dans un gaz ambiant d'Argon à 300 *K* et à une pression de 10^{-3} *atm*.

Dans leur second article paru en 1996, Ho et *al*. [2], considèrent la dynamique du gaz compressible en résolvant numériquement les équations d'Euler pour la masse, la quantité de mouvement et l'énergie. Ils introduisent dans l'équation de l'énergie, le rayonnement à travers l'équation de transfert radiatif (RTE), et le terme d'absorption par Bremsstrahlung inverse (B.I). La méthode D.O (Discrete Ordinate) a été utilisée pour la modélisation du rayonnement. Les taux d'ionisation ont été calculés par l'équation de Saha-Eggert en supposant l'équilibre thermodynamique local (LTE). Les principaux résultats montrent que 10% de l'énergie laser irradiée est absorbée dans le panache et que 35% de celle-ci est transférée par rayonnement thermique au milieu environnant. A hautes températures, le panache devient un milieu opaque, et par ailleurs une onde de choc se propageant à une vitesse de l'ordre de 10^4 *m/s* apparaît.

En 2003, A. Bogaerts et *al* [3], présentent un modèle d'ablation laser pulsé de durée de 10 nanoseconde (*ns*) et pour une intensité de l'ordre de (10^9 W/cm^2) d'une cible de Cuivre qui

décrit : L'interaction laser-solide, qui provoque un chauffage, une fusion et une vaporisation du matériau cible. L'expansion de la vapeur métallique dans le vide. La formation du plasma et la génération des ions de Cu^+ et Cu^{++} à côté des atomes neutres de Cu.

Les résultats de leur étude sont présentés en fonction du temps durant et après le pulse laser. Ils comprennent la distribution de la température au cœur de la cible, la profondeur de fusion, la quantité de matière évaporé et la distribution de la vitesse de la température de la densité de la vapeur dans la plume, ainsi que le degré d'ionisation résultant, les profils de densité des électrons des atomes de Cu, des ions de Cu^+ et Cu^{++} dans le plasma.

Ils ont constaté que le maximum de température est atteint près de la surface du Cuivre, la profondeur de fusion atteinte est de l'ordre de $2\ \mu\text{m}$, et la profondeur d'évaporation est de l'ordre de $70\ \text{nm}$, pour les paramètres laser donnés précédemment. Le panache de vapeur se délatte au cours du temps, il atteint une longueur de $100\ \mu\text{m}$ au bout de $20\ \text{ns}$, puis elle augmente à environ $2\ \text{mm}$ après $100\ \text{ns}$. La densité de vapeur dans la plume est très grande proche de la cible ($5\ 10^{25}\ \text{m}^{-3}$) puis elle diminue rapidement à $10^{24}\ \text{m}^{-3}$ dans toute la plume. La température de la vapeur dans la plume est calculée entre 10000 et $40000\ \text{K}$. A cette température élevée, le panache est plus au moins ionisé, et dans certaine région les ions de Cu^{++} sont majoritaires, dans ce cas l'énergie laser est absorbée par le plasma, et celle atteignant la cible est réduite. Enfin ils ont également effectués des calculs pour différentes intensités laser dans la gamme de 10^7 à $10^{10}\ \text{W/cm}^2$, ils constatent que pour des grandes irradiances laser, il y a plus de chauffage, plus de fusion, plus de vaporisation et plus d'espèces chargées dans le plasma.

En 2005, les mêmes auteurs [4] proposent une modélisation numérique décrivant l'effet des paramètres du laser sur la cible et sur la formation du plasma induit. Ces paramètres sont : l'intensité, la durée du pulse et la longueur d'onde. Les résultats montrent que le chauffage, la fusion, la vaporisation, la vitesse, la température du panache en expansion, et le degré d'ionisation, augmentent avec l'intensité du faisceau laser utilisé, de longueur d'onde $266\ \text{nm}$, et de durée d'impulsion de $5\ \text{ns}$. Le seuil de vaporisation pour le Cuivre est de l'ordre de $3\ 10^8\ \text{W/cm}^2$ et celui de la formation du plasma, de l'ordre $5\ 10^8\ \text{W/cm}^2$. L'effet de la durée d'impulsion montre deux tendances différentes, la première prend place lorsque l'intensité laser est constante, le chauffage, la fusion, la vaporisation et les paramètres du plasma (densité, température, vitesse) augmentent du fait de l'importance de la fluence avec la durée d'impulsion. Par contre si la fluence est constante, lorsque la durée d'impulsion diminue, l'irradiance laser augmente de par la

relation Fluence F (J/cm^2) = I (W/cm^2) $\times \tau_L$ (s). Pour une durée d'impulsion plus longue, la profondeur de fusion augmente légèrement, et il est constaté que l'écrantage dû au plasma est moins prononcé. La température du panache et la densité électronique, pendant ou juste après l'impulsion laser, deviennent plus élevés pour les impulsions courtes. L'effet de la longueur d'onde du laser a été étudié, sur les caractéristiques du panache (la température de surface, la profondeur de fusion, la densité du panache, vitesse, température, degré d'ionisation dans le plasma,...). Les résultats montrent que pour $\lambda=532\text{ nm}$, ces caractéristiques sont légèrement inférieures à ceux pour $\lambda=266\text{ nm}$. Ils sont très différents pour une longueur d'onde $\lambda=1064\text{ nm}$, en raison de l'effet de la réflectivité de la surface de la cible et de l'absorption du plasma. Il a été constaté que le seuil d'irradiance laser pour la fusion, la vaporisation, et la formation du plasma pour une cible irradiée à 1064 nm sont nettement supérieurs à celui de 266 et 532 nm . En d'autres termes, les longueurs d'onde les plus courtes sont les plus efficaces pour l'ablation laser.

En 2005, Z. Chen et *al* proposent un modèle numérique monodimensionnel décrivant l'ablation laser nanoseconde d'une cible en Cuivre [5]. L'expansion du panache s'effectue sous ambiance d'Helium à 1 atm , avec une intensité laser de l'ordre de 4.10^8 W/cm^2 , d'une durée de pulse de 10 ns et une longueur d'onde de 266 nm , en tenant compte de l'ionisation du gaz ambiant et de l'absorption de l'énergie du faisceau par le plasma. Le processus d'expansion est étudié en résolvant les équations de Navier-Stokes, en prenant en compte l'effet du gaz ambiant. Les particules ionisées de Cu et de He sont considérées comme pouvant se re-condenser à la surface de la cible pendant le pulse laser. La simulation montre que les degrés d'ionisation de Cu et de He varient d'une région à une autre du panache. Pour une intensité laser de $7\text{ }10^{12}\text{ W/cm}^2$, les particules de Cuivre une fois ionisées (Cu^+) sont majoritaires dans la région proche de la cible. Par contre les particules deux fois ionisées (Cu^{++}) se trouvent au cœur du panache. Son expansion est fortement influencée par l'ionisation du Cuivre et de l'Hélium, et par l'absorption de l'énergie laser. La vitesse de l'expansion augmente avec l'augmentation de l'intensité du faisceau laser, du fait qu'une partie de l'énergie laser contribue à l'ionisation de la vapeur qui se met en mouvement par la suite. Les principaux résultats obtenus montrent que la vitesse d'expansion du panache ionisé est supérieure à celle d'un plasma non ionisé. Les 2 processus PI et BI (e^- neutre) sont dominants au voisinage de la surface cible. Quant au processus BI (e^- -ion) il est plus important que le PI une fois que l'ionisation atteint le cœur du panache. Ils confirment aussi l'apparition d'une onde de choc lorsque la vapeur de Cuivre pousse l'Helium ambiant.

Les mêmes auteurs ont réalisé une étude de l'effet de la pression du gaz ambiant sur le chauffage [6]. Ils ont fait varier la pression de 0 à 5 *atm*, pour étudier sur du Cuivre, l'effet sur la fusion, la vaporisation et l'expansion résultante dans un gaz d'Hélium, sous des conditions données du faisceau laser durant 40 *ns*. Les différentes parties du modèle sont fortement couplées, et l'étude de la phase d'expansion après la fin du pulse laser, nécessite de connaître à la surface de cible, le flux d'évaporation, la fraction massique du plasma métallique, la température du plasma. D'autres considérations ont été prises en compte, comme l'absorption du rayonnement laser par le plasma produisant un effet d'écrantage qui atténue l'apport d'énergie laser sur la cible. Le modèle devient ainsi complexe, du fait que les différentes parties du modèle doivent être résolues simultanément en fonction du temps, afin d'obtenir une vue d'ensemble du mécanisme d'ablation laser de la cible, ainsi que la formation de plasma et son expansion dans le gaz ambiant. Les résultats montrent que la température de surface et la profondeur d'évaporation, ne sont pas influencées par la variation de la pression. L'influence de la pression du gaz ambiant sur la quantité d'énergie laser absorbée est faible. Le taux d'évaporation dans le vide est presque similaire à celui trouvé à la pression de 5 *atm*. La densité de vapeur du matériel ablaté est faiblement influencée par les différentes pressions aux temps avancé de l'expansion. L'effet de la pression sur la taille du panache est très important.

Des études expérimentales et théoriques de l'expansion d'un plasma de vapeur métallique produit par laser ont été effectués par Gomes et *al* [7]. Ils s'intéressent aux interactions entre le plasma métallique et le gaz ambiant (Argon ou Air) à la pression atmosphérique. Les matériaux utilisés, le Cuivre et l'Aluminium, sont soumis à un faisceau laser Néodyme-YAG (Nd-YAG) de durée d'impulsion de l'ordre de 8 *ns* et une énergie située entre 70 et 100 *mJ*, à une fréquence de tir de 10 *Hz*. L'expérimentation a porté sur l'étude de l'influence de la nature du gaz ambiant, et de celle de la cible, et de l'influence de la pression du gaz ambiant sur la température du plasma et la quantité de matière évaporée. Il a été constaté que les températures étaient plus basses dans l'Air que dans l'Argon, ce qui a permis un plus long temps d'observation dans l'Argon que dans l'Air, et cela était dû au fait que la masse atomique de l'Argon était plus importante, et du fait que l'Air est un gaz diatomique, alors que l'Argon est monoatomique. Ce fait a été confirmé dans des conditions similaires par Aguilera et *al*. [8]. Les résultats montrent l'effet de la nature des cible qui ont été employées (Al et Cu) sur l'évolution temporelle à pression atmosphérique, de la température de l'Aluminium dans l'Argon, et du Cuivre dans l'Air. Ils ont relevés des

températures qui dépassent 3000 K selon le matériau utilisé. La quantité de matière évaporée de l'Aluminium est plus importante que celle de Cuivre, ceci est lié à leurs températures de fusion respectivement 933 K et 1300 K. Il a été constaté que le comportement du plasma dépend aussi de la température d'ébullition du matériau, et qu'après une série d'expériences, sur des cibles d'Aluminium, des couches minces couvrent les parois intérieures de la chambre d'interaction. Alors que pour des cibles de Cuivre, les couches minces sont très fines. Par conséquent, les cratères obtenus sur une cible d'Aluminium sont plus profonds et plus large que ceux obtenus sur une cible de Cuivre. L'étude de l'effet de la pression du gaz ambiant (entre 1 et 5 atm) sur la température électronique du plasma montre que son évolution temporelle au voisinage de la surface de la cible croît avec la pression du gaz ambiant. Par contre, à cause de l'effet d'écrantage, la quantité de matière évaporée diminue lorsque la pression du gaz augmente.

Sy-Bor Wen et al [9] ont étudié les processus d'expansion et de refroidissement de plasmas induit par impulsion laser nanoseconde (4 ns) de type Nd:YAG ($\lambda=1064$ nm), correspondant à une énergie de 20 mJ, et un diamètre focal de 174 μ m. L'onde de choc et la température du plasma ont été mesurées expérimentalement à l'interface plasma/gaz ambiant. La température a été obtenue à partir de mesures spectroscopiques des raies d'émission du plasma. Un modèle qui considère la conservation de la masse, de la quantité de mouvement, et de l'énergie de la région soumise au faisceau laser a été développé, ce qui permis de calculer la taille, la température, et la pression du panache pendant les processus d'expansion et de refroidissement. Les résultats de la simulation pour la position de l'onde de choc et de la température du plasma ont été comparés aux mesures expérimentales pour vérifier l'exactitude du modèle. L'expansion et le refroidissement de la vapeur dans l'Air allant de la nanoseconde jusqu'à une centaine de microsecondes après l'arrêt du pulse ont été étudiés. Le rayonnement comme mécanismes de transport de chaleur, l'équation de Saha et les équations d'états ont été utilisées, la densité, la pression et la température, ainsi que les positions des ondes de choc et la surface de contact entre le plasma et le gaz ambiant ont été déterminés au cours de la simulation qui considère une expansion symétrique et sphérique. Les conditions de sauts de la densité, de la pression, de la température et la vitesse à l'arrière de l'onde de choc ont été utilisées comme conditions aux limites. L'étude de l'expansion et du refroidissement du plasma a été faite pour deux intervalles de temps le premier allant de 0 à 1 μ s et le second de quelques microsecondes à une dizaine de microsecondes, après le pulse laser. Dans le premier cas seul une forte émission du continuum a été constatée, et les pertes d'énergie

par radiation étaient très faibles comparés à l'énergie totale du plasma avant $1\mu s$, ce qui peut être considérée comme un processus d'expansion adiabatique. Dans le deuxième cas, le plasma subit un refroidissement radiatif avec une pression égale à la pression du gaz ambiant. Par conséquent, l'équation de la quantité de mouvement n'est plus nécessaire dans la simulation pour cet intervalle de temps. Les principaux résultats ont concerné la nature de l'expansion, et il a été conclu que durant le premier intervalle de l'étude, l'expansion du plasma est très rapide, car la plus grande partie du rayonnement laser est converti en énergie cinétique pour le plasma, la vitesse de l'expansion du panache est proche de la vitesse de l'expansion libre : $v_v = \sqrt{16E_v/3M_v}$, où E_v est l'énergie dans le panache, et M_v sa masse. Pour un intervalle de temps intermédiaire allant de quelques dizaines à quelques centaines de nanosecondes, après l'impulsion de laser, une faible expansion a été observée, et la propagation de l'onde de choc externe suit la relation $d = C(E/\rho)^{1/5}t^{2/5}$. La densité, la pression, et la distribution de la température au cœur du plasma jusqu'à la limite de l'onde de choc externe ne peuvent pas être employées pour décrire ces propriétés dans le plasma à cause de la présence d'une composante additionnelle, qui par la suite commence à reculer vers la surface du matériau. Quand elle entre en contact avec la surface, de forts gradients de pression se produisent, et mènent à l'éjection de gouttelettes. Durant le dernier intervalle de temps, allant d'une centaine de nanosecondes à quelques dizaines de microsecondes, la température dans le plasma est considérée uniforme, et sa décroissance est due au transfert de chaleur radiatif mais pas aux effets de la dynamique du gaz. La simulation développée est en bon accord avec l'expérience.

Les travaux de Vivien [10] consistent en l'étude expérimentale des plasmas, pour mettre en évidence les processus qui interviennent en phase vapeur, dans le but d'élaborer des dépôts de couches minces par ablation laser réactive. Deux méthodes de diagnostic du panache ont été présentées, l'imagerie rapide par caméra ICCD, et la spectroscopie d'émission résolue dans le temps et l'espace. La première partie du travail de cette thèse concerne l'étude générale du plasma produit par ablation laser UV de divers matériaux dans des atmosphères gazeuses différentes. Ensuite les modèles classiques qui traduisent l'expansion dans le vide et en présence du gaz ambiant ont été décrits. La deuxième partie est consacrée à l'étude de l'ablation laser d'une cible de graphite dans une atmosphère contrôlée d'Azote (N_2 , NH_3) pour le dépôt de couches minces C_xN_y . L'étude a permis de détecter les électrons rapides émis par le plasma

pendant l'impulsion laser, quand la température est très grande, et de détecter les ions, suivis par des atomes neutres, et des molécules formées. L'énergie thermique initiale du plasma se transforme rapidement par expansion adiabatique en énergie cinétique. Dans le vide, la densité du plasma chute rapidement et le plasma subit alors une expansion libre à cause de l'absence de collisions. En présence du gaz et à basses pressions, des collisions entre les espèces se produisent, et l'énergie cinétique du plasma se transforme en énergie thermique, ce qui augmente la durée de vie du plasma.

Un autre travail expérimental a été présenté par Chu et *al* [11] pour montrer l'importance de la détermination de la distribution d'énergie cinétique. Deux techniques ont été utilisées, la spectroscopie d'émission et la fluorescence induite par laser dans un panache de Titane. L'avantage de ces techniques est la résolution temporelle et spatiale, ainsi que la possibilité de faire la distinction entre les différentes espèces. Les résultats reportent l'effet de la fluence du laser et de la pression du gaz ambiant sur les énergies cinétiques des espèces ablatées, par utilisation de la spectroscopie. Les paramètres du laser sont $\lambda=248\text{ ns}$ (KrF), la durée d'impulsion est de 20 ns , et les dimensions de la tâche focale rectangulaire du faisceau sont $0.34\text{ mm} \times 0.05\text{ mm}$. Les fluences atteintes vont de 3 à 8 J/cm^2 . Dans leurs résultats, les durées de vies typiques des lignes d'émission de Titane sont de l'ordre de plusieurs dizaines de nanosecondes, mais cependant, l'émission continuait à être observée $5\text{ }\mu\text{s}$ après la fin de l'impulsion laser. Une séparation plus rapide et plus lente de particules en mouvement dans le panache a été observée, cette séparation est régie par le nombre Knudsen. Les images de la fluorescence induite par laser (LIF) ont révélés que les ions de Titane occupent la première partie du panache en expansion, les espèces neutres lentes, occupent le centre de la plume. Les effets de la fluence du laser et la pression du gaz ambiants sur l'axe axiale de la vitesse du panache ont été étudiés par les mesures de temps de vol, les vitesses plus élevées que 10^4 m/s ont été enregistrées pour l'ablation des atomes de Titane neutre dans le vide à une fluence de 8 J/cm^2 . La vitesse axiale diminue graduellement à mesure que le panache s'éloigne de la surface cible, elle diminue de façon spectaculaire à faible fluence et à grande pression de gaz ambiant, du fait qu'aux faibles fluences les vitesses axiales initiales des atomes sont petites, et la pression du gaz ambiant constitue une résistance pour le panache de vapeur.

Hermann et *al* [12] ont étudié l'ablation réactive d'une cible de Titane par un laser XeCl (308 nm) en présence d'Azote. Afin de comprendre les mécanismes de formation et de propagation du

plasma, ils ont effectué des mesures spectroscopiques de panache, résolues dans le temps et dans l'espace. Plus précisément, ils se sont intéressés à la fabrication de TiN par ablation laser réactive. Le laser évapore une cible de Ti en présence d'un gaz ambiant à basse pression (10^{-3} à 1 mbar). L'intensité laser au seuil de vaporisation (25 MWcm^{-2}) est augmentée jusqu'aux intensités typiquement utilisées dans le procédé de dépôts de TiN par laser excimère ($\sim 500 \text{ MWcm}^{-2}$). A basse intensité (50 MWcm^{-2}), la vapeur métallique est peu ionisée et peu excitée, les atomes neutres de Ti dans l'état fondamental sont détectés par fluorescence induite par laser (LIF). A plus grande intensité (100 MWcm^{-2}), les atomes neutres et les ions de la vapeur métallique sont observés par spectroscopie d'émission, la densité, et la température électronique est calculée. Pour une intensité de l'ordre de 500 MWcm^{-2} , ils obtiennent une densité électronique $N_e \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ et une énergie $kT_e \sim 3 \text{ eV}$, à 100 ns après l'impulsion laser. Ils déduisent initialement pour le plasma sur la surface, une densité électronique $N_e \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ et une énergie $Kt_e > 10 \text{ eV}$. Ces valeurs sont peu influencées par la pression d'Azote dans le domaine $p \leq 1 \text{ mbar}$, ce qui permet de conclure qu'initialement le plasma est complètement ionisé pour cette intensité laser. La distance en fonction du temps est étudiée pour déduire les vitesses de propagation des espèces de Titane ionisés pour trois différentes pressions du gaz ambiant. Pour une pression d'Azote inférieure à 0.01 mbar, la propagation se fait à vitesse constante, tandis qu'un ralentissement du jet par le gaz est observé pour des pressions plus grandes.

Une étude des caractéristiques en densité et en température électronique des plasmas d'ablation de Titane en vue de dépôt de couche minces a été réalisée par Nait Amor [13], les mesures de ces paramètres ont été effectuées par deux moyens de diagnostic, le collecteur de charges loin de la cible et la spectroscopie d'émission près de la cible. En plus de la détermination des paramètres du plasma, il a étudié l'évolution spatio-temporelle en fonction des flux laser et sa dynamique sous vide et en présence du gaz ambiant. Les résultats obtenus montrent que le plasma possède deux composantes, une rapide constituée d'ions, et l'autre lente composée d'atomes neutres et de molécules. Les résultats montrent aussi que dans le vide, la densité et la température électronique chutent au cours du temps après l'arrêt du pulse laser. En présence du gaz ambiant, elles croissent jusqu'à leurs valeurs maximales, et diminuent par la suite. Ceci est dû à la présence du gaz ambiant qui a pour effet le refroidissement du front du plasma et la recombinaison des espèces présentes dans l'interface plasma gaz ambiant à cause des collisions qui se produisent. Un autre résultat est observé, il s'agit de la dynamique de l'expansion du plasma dans le vide et en

présence du gaz ambiant après la fin de l'impulsion laser, où l'énergie thermique du plasma est rapidement convertie en énergie cinétique des espèces ablatées. Dans le vide la détente du plasma se fait sans friction avec des vitesses de l'ordre de 10^4 m/s, par contre en présence du gaz ambiant, l'expansion est décrite en fonction de la pression du gaz ambiant, avec deux modèles : le modèle d'onde de choc (blast wave model) et le modèle de force de viscosité (drag force model).

Références Bibliographiques

- [1] **J. R. Ho, C. P. Grigoropoulos, and J. A. C. Humphrey**, “Computational study of heat transfer and gas dynamics in the pulsed laser evaporation of metals”, *J. Appl. Phys.* **78** (7) (1995) pp. 4696-4709.
- [2] **J. R. Ho and C. P. Grigoropoulos**, “Gas dynamics and radiation heat transfer in the vapor plume produced. by pulsed laser irradiation of Aluminium”, *J. Appl. Phys.* **79** (9) (1996) pp.7205- 7215.
- [3] **A. Bogaerts, Z. Chen, R. Gijbels, and A. Vertes**, “Laser ablation for analytical sampling: what can we learn from modeling?”, *Spectrochimica Acta Part B*, **58** (2003) pp. 1867-1893.
- [4] **A. Bogaerts and Z. Chen**, “Effet of laser parameters on laser ablation and laser induced plasma formation: a numerical modelling investigation”, *spectrochimica Acta Part B*, **60** (2005) pp. 1280-1307.
- [5] **Z. Chen, and A. Bogaerts**, “Laser ablation of Cu and plume expansion into 1atm ambient gas”, *J. Appl. Phys.* **97** (2005) pp. 063305-1 – 063305-12.
- [6] **Z. Chen, D. Bleiner, and A. Bogaerts**, “effect of ambient pressure on laser ablation and plume expansion dynamics”, *J. Appl. Phys.* **99** (2006) pp. 063304-1 - 063304-9.
- [7] **A. Gomes, A. Aubreton, J. J. Gonzalez and S. Vacquié**, “Experimental and theoretical study of the expansion of a metallic vapour plasma produced by laser”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37** (2004) pp. 689–696.
- [8] **J.A. Aguilera and C. Aragon**, “Temperature and electron density distributions of laser induced plasmas generated with an iron sample at different ambient gas pressure”, *J. Appl. Phys.*, **197-198** (2002) pp. 273- 280.
- [9] **Sy-Bor Wen, Xianglei Mao, Chunyi Liu, Ralph Greif and Richard Russo**, “Expansion and radiative cooling of the laser induced plasma”, *Journal of Physics: Conference Series*, **59** (2007) pp. 343–347.
- [10] **C. Vivien**, “Etude des plasmas produit par laser pour l’élaboration de couches minces par ablation laser reactive”. Thèse de doctorat, Université d’Orléans (France), 1998.
- [11] **S. S. Chu, and C. P. Grigoropoulos**, “Determination of Kinetic Energy Distribution in a Laser Ablated Titanium Plume by Emission and Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy”, *Journal of Heat Transfer*, **122** (2000) pp.771-775.
- [12] **J. Hermann, A.L. Thomann et C. Boulmer-Leborgne**, “Ablation réactive d'une cible de Titane par un laser XeCl en présence d'Azote”, *Annales de physique, Cl*, **19** (1994) pp. 57- 58.
- [13] **S. Nait Amor**, “caractérisation en densité et température électronique d’un plasma produit absorption laser”, Thèse de magister, Université USTHB (Algérie), 2003.

CHAPITRE I

PROCEDE D'ABLATION PAR LASER

En fonction de la puissance du faisceau laser et de sa focalisation, la surface d'une cible solide peut être localement chauffée, fondue, puis vaporisée. La vapeur ainsi créée peut être transformée en plasma. On définit la densité de puissance appelée aussi irradiance par le rapport de la puissance d'un faisceau laser par la surface de la tâche focal de celui-ci sur le matériau. La puissance est donnée en fonction de l'énergie délivrée par le système laser et on distingue deux type de faisceaux laser : continu et pulsé, à partir desquels, plusieurs applications d'interaction laser-matière peuvent être envisagées. En fonction de l'irradiance, on peut classer grossièrement, l'interaction laser-matière en trois régimes.

En régime bas flux situé à des irradiances inférieures 10^5 W/cm^2 , on obtient un chauffage superficiel de la cible, où une faible couche de matériau peut être liquéfiée. L'énergie fournie par le faisceau laser est dissipée dans la cible sous forme de chaleur. Du fait du chauffage superficiel et du refroidissement rapide par conduction, des traitements de surface tels que la trempe et le recuit peuvent être réalisés.

En régime dit flux intermédiaire situé entre 10^5 et 10^9 W/cm^2 , la couche superficielle du matériau est vaporisée. Pour obtenir des irradiances situées entre 10^8 et 10^{13} W/cm^2 , des lasers dits « impulsionnels » doivent être utilisés. La vapeur produite à partir de la matière éjectée de la cible devient plus dense et absorbe une fraction de l'énergie du faisceau laser ce qui aboutit à la création d'un plasma partiellement ionisé. Dans cette gamme de flux (10^5 - 10^{13} W/cm^2), on retrouve des applications telles que le dépôt de couches minces, le renforcement des surfaces par choc laser, le soudage, la découpe et l'analyse des matériaux.

En régime haut flux, obtenu pour des irradiances supérieures à 10^{13} W/cm^2 , le plasma est totalement ionisé, et l'application principale relative à ce régime concerne les études qui sont menées en « fusion inertielle » pour la réalisation d'une fusion thermonucléaire contrôlée. Ce domaine fait l'objet d'études nombreuses mettant en oeuvre des moyens onéreux considérables, principalement sur le plan expérimental. Sur le plan théorique, des modèles mathématiques très sophistiqués tentent de décrire les premiers instants de l'impact laser et la formation du plasma.

I.1 L'ablation laser dans le dépôt de couches minces

L'ablation laser consiste à vaporiser un matériau cible par un faisceau laser impulsif d'une durée de l'ordre de la nano-pico ou femtoseconde. Dans le régime situé entre la nanoseconde (10^{-9} s) et la picoseconde (10^{-12} s), et en fonction de la focalisation du faisceau,

des densités de puissances (irradiances) allant 10^8 à 10^{15} W/cm^2 peuvent être obtenues. En régime femtoseconde (10^{-15} s), les effets thermiques n'ont pas le temps de prendre place, et on assiste en général à une transformation directe solide-vapeur (sublimation). L'effet de bavures dû à la resolidification du matériau fondu étant inexistant, des applications se trouvent principalement en micro et nano-usinage.

Dans le cadre de ce travail, on s'intéresse aux applications d'ablation par laser pulsé dans le régime nanoseconde en vue d'effectuer sur un substrat préalablement chauffé, placé à quelques centimètres en face de la cible (3 à 10 cm), des dépôts de films minces (revêtement) par condensation de ces espèces. Le principe consiste en la focalisation d'un faisceau laser sur une cible, placée dans une enceinte sous vide ou en présence d'une ambiance gazeuse. L'absorption des photons laser entraîne un chauffage rapide et une ablation du matériau cible. Le plasma généré perpendiculairement à la surface de la cible, apparaît sous la forme d'un panache lumineux. Il est constitué d'un ensemble de particules neutres (atomes, molécules, radicaux), d'ions, d'électrons, et de photons émis et absorbés. La vitesse d'expansion du plasma est $\geq 10^5 \text{ cm/s}$, ce plasma transporte les espèces de la cible vers le substrat. Les caractéristiques physico-chimiques des dépôts obtenus dépendent des propriétés de la cible irradiée, des conditions d'irradiation (fluence, longueur d'onde et durée de l'impulsion laser), de la température du substrat de dépôt, et de la nature et de la pression du gaz ambiant. En 1965, Smith et Turner [10] ont réalisé le dépôt de matériaux inorganiques à l'aide d'un laser à rubis. Ceci constituait le premier dépôt utilisant la technique d'ablation laser.

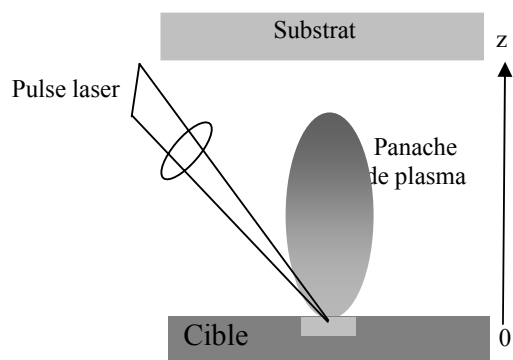


Fig (1) : Schéma du principe de la PLD

Depuis une vingtaine d'années, cette technique qui a montré son efficacité quant au dépôt d'une large variété de matériaux, présente des avantages par rapport à d'autres techniques, dont la facilité de mise en oeuvre.

En effet la source de vaporisation est située à l'extérieur du bâti d'ablation, contrairement au cas des techniques de dépôt mettant en oeuvre des faisceaux d'ions et d'électrons ou un gaz de pulvérisation. Dans le cas de l'ablation laser, un gaz réactif ou inerte est introduit dans l'enceinte de dépôt, permettant d'obtenir une réaction chimique avec le matériau ablaté, ce qui est particulièrement utile pour l'obtention de matériaux comme les nitrures pour lesquels les cibles n'existent pas. Cette technique possède de nombreux avantages parmi lesquels :

- Une température de dépôt relativement faible.
- La possibilité de déposer des films minces directement à partir de cibles solides.
- La possibilité de réaliser des couches minces mixtes et de contrôler leur stoechiométrie et leurs compositions grâce à une approche de type chimie combinatoire à partir de l'ablation de cibles distinctes placées sur un porte-échantillons multi cibles dans l'enceinte sous vide.

Ainsi, l'utilisation d'un système multi cibles permet dans une même expérience de déposer des multicouches en contrôlant précisément l'épaisseur de chaque couche. Par ailleurs, les espèces évaporées, chauffées par le faisceau après évaporation, peuvent atteindre de très hautes énergies, jusqu'à des dizaines et même des centaines d'électronvolts. Dans les premiers stades de la croissance, les premiers atomes qui arrivent sur le substrat s'y adsorbent et jouent le rôle de sites de nucléation, ce qui favorise la croissance initiale des couches ultraplates.

Par contre, pour citer les limitations de cette technique de dépôt par ablation laser, il n'est pas facile en raison du caractère très directionnel de l'évaporation, de réaliser des dépôts sur des substrats de grandes dimensions. Ceci profite à d'autres techniques plus aisées d'utilisation sur cet aspect. La formation de défauts à la surface du substrat, constitue défaut très spécifique au dépôt par laser pulsé, il est dû à la production de gouttelettes micrométrique émises de la cible. Les films préparés, particulièrement dans le cas des métaux, sont souvent contaminés par ces gouttelettes qui peuvent représenter une fraction non négligeable de l'ensemble de la matière évaporée. La grande énergie des atomes incidents sur le substrat peut entraîner aussi un mélange aux interfaces pour des multicouches de matériaux différents. La perte des espèces volatile lors de l'expansion du plasma peut également intervenir.

Certains de ces problèmes ont été résolus, la première approche pour éviter la condensation de gouttelettes sur le substrat a été de prendre les cibles plus homogènes et plus denses, et aussi l'optimisation des densités de puissance délivrées sur la cible par l'utilisation de longueurs d'ondes et des durées d'impulsions plus courtes. Pour ne pas irradier la cible sur la même surface

durant le dépôt, on la fait tourner, ce qui a montré une diminution dans la production des gouttelettes.

I.2 Autres procédés de dépôt

D'autres techniques de dépôt ont été utilisées dans la conception et la réalisation des nouveaux matériaux solides de haute performance. Ces matériaux sont utilisés dans de nombreux domaines comme la microélectronique (films conducteurs, isolants ou semi-conducteurs), en mécanique (dépôts de couches anti-usure et anti-corrosion). etc... Les techniques de dépôt les plus connues sont :

Les procédés par PVD (Physical Vapor Deposition) par pulvérisation ionique et évaporation sous vide, pour le dépôt de films minces consistent en l'extraction de manière énergétique des atomes d'une cible solide et leur re-déposition sur une surface. La PVD associe la technique de pulvérisation à un champ magnétique intense au niveau de la cible pulvérisée, et permet ainsi de maintenir un plasma de pulvérisation à des pressions faibles de l'ordre du *mTorr*. La technique PVD diffère du dépôt chimique en phase vapeur par la provenance des espèces qui vont constituer le film mince: celles-ci sont issues d'une source solide ou liquide et non d'un gaz. Les procédés PVD mettent en jeu des atomes individuels ou des petits clusters d'atomes, qui ne sont pas normalement présents en phase gazeuse. Ces atomes sont éjectés de la source solide, puis transitent dans la phase gazeuse avant de rencontrer la surface solide du substrat et participer à la formation d'un film mince. La particularité de tous les procédés Plasmas et donc du dépôt PECVD ou PVD, est de réaliser le dépôt d'un matériau hors conditions thermodynamiques: l'énergie nécessaire à la réaction est apportée par les espèces ionisées de la phase plasma et non sous forme thermique par chauffage du porte substrat, comme c'est le cas en CVD. Ainsi, des dépôts de films minces denses et isolants peuvent être réalisés à des températures proches de l'ambiante, typiquement inférieures à 100 °C.

La CVD (Chemical Vapor Deposition), et la CVD assistée par plasma appelée PECVD, est basée sur les réactions chimiques qui interviennent sur le substrat chauffé, à partir de la décomposition de précurseurs gazeux le plus souvent hydrocarbures, hydrures mais aussi fluorures, chlorures, bromures, iodures, organométalliques (y compris les carbonyles). Cette technique possède cependant un inconvénient majeur, la limite de température que peut supporter un substrat. En effet, le substrat doit être chauffé à une température qui est en général comprise, selon les matériaux à déposer, entre 500 °C et 2000 °C, afin que les

réactions chimiques voulues puissent avoir lieu. Or, de nombreux matériaux ne peuvent pas être chauffés à ces températures sans se détériorer ou subir des modifications de caractéristiques physiques. C'est pourquoi, le plus souvent, ce procédé de dépôt est assisté par plasma (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition PECVD), qui est une technique qui permet de réaliser des dépôts solides à partir de précurseurs gazeux et de réactions chimiques assistées par une décharge électrique.

I.3 Mécanismes fondamentaux de l'ablation laser

Le processus d'éjection de matière par ablation laser [11] est un phénomène complexe qui peut être décrit en trois étapes successives:

- Interaction photon laser-cible,
- Ejection de la matière, formation de la région dite 'couche de Knudsen', interaction du nuage formé avec le rayonnement laser et formation d'un plasma.
- Expansion du panache (dit plume en anglais) de plasma dans le vide ou sous atmosphère contrôlée.

Les irradiances considérées sont comprises entre 10^8 et 10^9 W/cm^2 et concernent donc un régime d'ablation à flux intermédiaire. Les phénomènes physiques qui ont lieu du début de l'interaction laser matière à l'extinction du plasma créé sont représentés sur la figure (2).

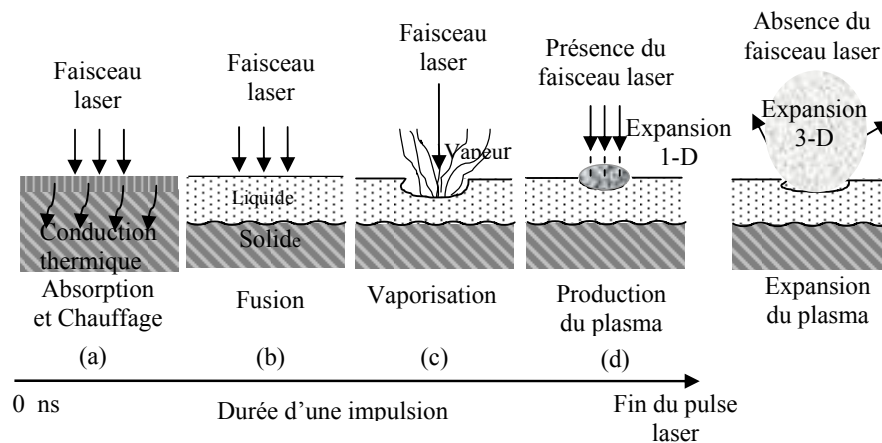


Fig (2) : Illustration des étapes intervenant dans le processus de l'ablation laser

I.3.1 Interaction laser cible solide

Lorsque le flux est suffisant, l'impact d'un faisceau laser sur une cible solide modifie les propriétés de surface de cette dernière, provoquant son chauffage, sa fusion et sa vaporisation. Une partie ou la totalité de l'énergie laser provoque l'excitation des électrons du réseau du matériau, et les électrons libres ou de valence oscillent à la fréquence du faisceau laser. Les électrons absorbent l'énergie laser et la communiquent aux ions de la matrice par collisions. L'énergie absorbée à la surface du matériau est ainsi convertie en énergie thermique qui conduit à une élévation de la température du matériau, accompagnée d'une diffusion de chaleur dans son volume. Il en résulte une modification de ses propriétés optiques et thermiques. Le dépôt d'énergie peut se réaliser sur une épaisseur donnée dans le solide jusqu'à une profondeur appelée profondeur de peau.

La propagation de la chaleur est décrite par l'équation de diffusion de la chaleur dans le solide, donnée par :

$$(\rho C_p)(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (K(T) \nabla T) + \underbrace{S(r, z, t)}_{\text{terme source energetique}} \quad (\text{I. 1})$$

Une fois l'énergie incidente absorbée selon le mécanisme décrit ci-dessus, il se forme au sein du solide une source d'énergie secondaire dont la distribution spatiale et temporelle est directement liée aux propriétés d'absorption α et de réflexion R du matériau pour la longueur d'onde considérée. L'expression de la source secondaire d'énergie dépend de l'intensité du rayonnement présente dans le matériau. Considérant la symétrie cylindrique, cette intensité décroît en fonction de la profondeur z selon une loi de transport classique appelée équation de Beer-Lambert :

$$dI(r, z) = -\alpha I(r, z) dz \quad (\text{I. 2})$$

La source de chaleur induite dans le volume du matériau est modélisée par l'expression suivante :

$$S(r, z, t) = (1 - R) I(t) \alpha I(r, z) \quad (\text{I. 3})$$

$I(r, z)$ représente l'intensité du faisceau laser gaussien en tout point du matériau calculée à partir de l'équation (I. 2), R et α sont respectivement le coefficient de réflexion et le coefficient d'absorption, $I(t)$ représente l'évolution temporelle de l'impulsion laser.

Pour modéliser la source d'énergie induite au sein du matériau, il est fondamental, pour le matériau considéré, de connaître précisément ses caractéristiques optiques (coefficient de

réflexion R coefficient d'absorption α ...) et thermiques (diffusivité thermique κ ...). Pour le laser utilisé (longueur d'onde λ , durée de l'impulsion τ_L et densité d'énergie appelée également fluence F).

Les coefficients de réflexion R et d'absorption α sont définis à partir de l'expression de la permittivité électrique du solide, qui dépend des mécanismes d'interaction entre le rayonnement et le matériau absorbant. Les expressions de R et α sont:

$$R = \frac{(n-1)^2 + k_{ex}^2}{(n+1)^2 + k_{ex}^2} \quad (I. 4) \quad \alpha(\lambda) = \frac{4\pi k_{ex}}{\lambda} \quad (I. 5)$$

n et k_{ex} sont les indices de réfraction et d'extinction du matériau définis à partir de l'indice complexe $\bar{n} = n + ik_{ex}$ et de la permittivité électrique complexe: $\varepsilon = \varepsilon_1 + i\varepsilon_2$, avec

$$\bar{n} = \sqrt{\varepsilon_1 + i\varepsilon_2} \quad \varepsilon = \bar{n}^2 \quad \varepsilon_1 = n^2 - k_{ex}^2 \quad \text{et} \quad \varepsilon_2 = 2nk_{ex}$$

Durant l'impact laser sur la surface du matériau, l'énergie laser pénètre à l'intérieur de la cible sur une profondeur l_p dite profondeur de pénétration ou épaisseur de peau. Elle va ensuite se dissiper dans le matériau sur une distance δ_{th} (longueur de diffusion thermique) suivant la loi de diffusion de la chaleur dans un solide. La profondeur de pénétration et la longueur de diffusion thermique sont liées au coefficient d'absorption α et à la diffusivité thermique κ_s par:

$$l_p = \frac{1}{\alpha} \quad (I. 6) \quad \delta_{th} = 2\sqrt{\kappa_s \tau_L} \quad (I. 7)$$

κ_s est reliée à la conductivité thermique, la capacité calorifique $C_{p,s}$ et la masse volumique ρ_s par: $\kappa_s = K_s / \rho_s C_{p,s}$. Pour δ_{th} , on utilise souvent l'appellation de zone affectée thermiquement (ZAT) qui est de l'ordre du nanomètre. A titre indicatif, dans le cas d'une cible de Titane, un faisceau laser de longueur d'onde $\lambda = 248 \text{ nm}$, et de durée d'impulsion $\tau_L = 25 \text{ ns}$, pénètre sur une profondeur $l_p = 16 \text{ nm}$, et la zone affectée thermiquement par diffusion thermique est approximativement égale à 500 nm . Dans le cas du Titane et la longueur d'onde citée, $\alpha = 6.1 \cdot 10^7 \text{ m}^{-1}$.

En fonction de la profondeur z , Duley [19] propose une solution analytique monodimensionnelle de l'équation de diffusion de la chaleur (I. 1). La distribution de la température dans la cible est donnée par l'expression suivante :

$$T(z,t) = \frac{\sqrt{\kappa_s t}}{K_s \sqrt{\pi}} I(t) \operatorname{erfc}\left(\frac{z}{2\sqrt{\kappa_s t}}\right) \quad (\text{I. 8})$$

Où $I(t)$ est l'intensité du pulse laser à l'instant t , et K_s la conductivité thermique du matériaux solide. Le changement d'état solide-liquide s'accompagne d'une variation brusque des propriétés thermique et physique du matériau. Pour des paramètres laser donnés (puissance, diamètre du faisceau, durée d'impulsion, et longueur d'onde), la température dépend de l'absorption du rayonnement, du transport de la chaleur dans le matériau, et de l'enthalpie de changement de phase solide-liquide. L'équation de la chaleur peut être réécrite :

$$\rho(T) C_p(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla \cdot (K(T) \nabla T) + S(r, z, t) + L_f \quad (\text{I. 9})$$

L_f est la chaleur latente de fusion du matériau.

Pour résoudre le problème de changement de phase, on introduit la notion de formulations enthalpiques. Dans les régions où $T < T_{fus}$ et $T > T_{fus}$ (T_{fus} est la température de fusion), on a :

$$h(T) = \int_0^T \rho(T) C_p(T) dT \quad T < T_{fus} \quad (\text{I. 10})$$

$$h(T) = \int_0^T \rho(T) C_p(T) dT + L_{fus} \quad T > T_{fus}$$

Pour $T = T_{fus}$, les fonctions enthalpiques prennent les valeurs entre $h_{s,fus}$ et $h_{l,fus}$ où

$$h_{s,fus} = \int_0^{T_{fus}} \rho(T) C_p(T) dT \quad (\text{I. 11})$$

$$h_{l,fus} = \int_0^{T_{fus}} \rho(T) C_p(T) dT + L_{fus}$$

Pour $h = h_{s,fus}$ on est dans la région solide à la température de fusion, alors que $h = h_{l,fus}$ correspond à la phase liquide pure à la même température. Ainsi, il existe une région dans laquelle la fusion est partielle, défini par :

$$h_{s,fus} < h < h_{l,fus}, \quad T = T_{fus} \quad (\text{I. 12})$$

A chaque point à l'intérieur de cette région, il peut être attribué une fraction du liquide

$f_l(r, z, t)$ et une fraction du solide $f_s(r, z, t)$ pour lesquels la somme $f_l + f_s = 1$. La fonction enthalpique pour une valeur de la température égale à la température de fusion du matériau est donnée par $h = h_s + f_l L_f$ et donc l'équation de la chaleur en formulation enthalpique peut s'écrire sous la forme:

$$\frac{\partial h(T)}{\partial t} = \vec{\nabla} \left(K(T) \vec{\nabla} T \right) + S(r, z, t) \quad (\text{I. 13})$$

I.3.1.1 Seuil de fusion du matériau

Le matériau commence à fondre lorsque sa surface atteint la température de fusion T_{fus} . Dans le cas d'une distribution spatiale gaussienne du faisceau laser, le point le plus énergétique se trouve au centre de celui-ci, l'intensité dans le faisceau est distribuée selon :

$$I(r) = I_0 \exp\left(-\frac{r^2}{r_0^2}\right) \quad (\text{I. 14})$$

Les paramètres fondamentaux qui permettent de déterminer le seuil de fusion du matériau [32] sont donnés par la relation suivante :

$$I_{s, fus} = \frac{2K_s (T_{fus} - T_{amb})}{(1 - R) \sqrt{\kappa_s} \tau_L} \quad (\text{I. 15})$$

$I_{s, fus}$ exprimée en (W/cm^2) peut être évalué pour chaque matériau. Dans le cas d'une cible de Titane, le minimum d'intensité nécessaire pour atteindre la température de fusion durant une impulsion laser qui dure 25 ns, est $17.7 MW/cm^2$.

I.3.1.2 Profondeur de la zone fondue

Durant le pulse laser, la profondeur du domaine fondu dans le matériau cible [32] atteint son maximum au centre du faisceau laser, et s'exprime par :

$$h_{f, max} = \frac{(1 - R)}{L_f} I_0 \tau_L - \frac{2K_s (T_{fus} - T_{amb})}{L_f \kappa_s^{1/2}} \tau_L^{1/2} \quad (\text{I. 16})$$

I.3.1.3 Evolution de la température de surface de la cible

Lorsqu'une surface métallique est soumise à une irradiation laser pulsé, l'évolution de la température à la surface ($z=0$) de la cible, pour un pulse de forme temporelle rectangulaire, c'est-à-dire où $I(t)$ est constant, est donnée par les expressions suivantes [5]:

$$\left\{ \begin{array}{ll} T_s(t) = \frac{A}{\rho_l C_{p,l} \sqrt{\kappa_l \pi}} 2 I_0 \sqrt{t} & t \leq \tau_L \\ T_s(t) = \frac{A}{\rho C_{p,l} \sqrt{\kappa_l \pi}} 2 I_0 (\sqrt{t} - \sqrt{t - \tau_L}) & t \geq \tau_L \end{array} \right. \quad (I. 17)$$

A : absorptivité (1- R)

ρ_l : densité (Kg/m^3)

$C_{p,l}$: capacité calorifique ($J/Kg.K$)

κ_l : diffusivité thermique (m^2/s)

I_0 : intensité maximale de l'impulsion laser (W/m^2)

τ_L : durée d'impulsion (s)

I.3.1.4 Evaporation de la matière

Pour une impulsion laser nanoseconde de densité d'énergie de l'ordre de $10^8 W/cm^2$, la surface du matériau atteint la température de vaporisation. Lorsque la température de surface est supérieure à la température de vaporisation T_{vap} du matériau, on peut calculer, grâce à l'équation (I. 18), la valeur de l'intensité du faisceau laser minimale $I_{s,vap}$ nécessaire pour l'éjection de particules de la cible [9]:

$$I_{s,vap} = \frac{\rho C_p \sqrt{\pi \kappa} (T_{vap} - T_{amb})}{2 A \sqrt{\tau_L}} \quad (I. 18)$$

Selon la relation (I. 18), le minimum d'intensité nécessaire pour atteindre la température de vaporisation T_{vap} durant l'impulsion laser est: $I_{s,vap} = 21.8 MW/cm^2$. Correspondant à une densité d'énergie (fluence) $F=0.54 J/cm^2$.

On regroupe dans le tableau (1) suivant les propriétés optique et thermique du Titane, pour une longueur d'onde du laser $\lambda=248 \text{ nm}$

Coefficient d'absorption (m^{-1}) à $\lambda=248 \text{ nm}$	$\alpha = 6.132 \cdot 10^7$
Coefficient de réflexion à $\lambda=248 \text{ nm}$	$R = 0.236$
Température de fusion (K)	$T_{fus} = 1941$
Température de vaporisation (K)	$T_{vap} = 3560$
Enthalpie de fusion ($J.Kg^{-1}$)	$\Delta H_f = 295.6 \cdot 10^3$
Enthalpie de vaporisation ($J.Kg^{-1}$)	$\Delta H_v = 893.7 \cdot 10^4$
Densité ($Kg.m^{-3}$)	$\rho_s = 5253$ $\rho_l = 4608$
Capacité calorifique ($J.Kg^{-1}.K^{-1}$)	$C_{p,s} = 520$ $C_{p,l} = 700$
Conductivité thermique ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	$K_s = 22.4$ $K_l = 20$
Diffusivité thermique ($m^2.s^{-1}$)	$\kappa_s = 8.5 \cdot 10^{-6}$ $\kappa_l = 6.2 \cdot 10^{-6}$
Chaleur latente de fusion ($J.m^{-3}$)	$L_f = 1642.5 \cdot 10^6$

Tableau.1 Récapitulatif des propriétés physiques et optique du Titane. Références [19].

I.4 Ejection de la matière

L'éjection de matière provoquée par l'irradiation d'une cible par un faisceau laser intense obéit à des mécanismes de nature thermique. La cible localement chauffée fond, puis le matériau se vaporise au niveau de la phase liquide qui est portée à une température supérieure à la température d'ébullition. Il se produit alors une situation d'instabilité thermodynamique au cours de laquelle de petites fluctuations de densité au sein de la couche liquide entraînent la formation de vapeur. L'évaporation concerne l'émission d'atomes ou de molécules à la surface d'un solide (sublimation) ou d'un liquide à une température supérieure à la température d'ébullition. Le flux de particules quittant la surface s'exprime par [12]:

$$j_{at} = \frac{\beta_c P_0}{\sqrt{2\pi m_{at} R_{gas} T_s}} e^{\left(\frac{\Delta H_v (T_s - T_{vap})}{R_{gas} T_s T_{vap}} \right)} \quad (I. 19)$$

Où β_c est le coefficient de collage des atomes de masse atomique m_{at} ($g/mole$), sur la surface, T_s et T_{vap} sont respectivement la température de surface, et la température de vaporisation (K), ΔH_v est l'enthalpie de vaporisation ($J/mole$), R_{gaz} est la constante des gaz parfaits ($J/mole K$), et P_0 la pression ambiante (Pa).

L'éjection de vapeur se produit par la surpression dans la phase liquide comme le montre la figure (2 (c)). Le calcul de la pression à la surface se fait en supposant que la transition de phase liquide-vapeur est un processus proche de l'équilibre thermodynamique, dans ces conditions, la formule de Clausius Clapeyron est valable. De façon générale, une transition de phase correspond à un échange de l'énergie libre c'est-à-dire, un changement de volume et d'entropie.

$$dG = VdP - SdT \quad (I. 20)$$

A l'équilibre thermodynamique $dG=0$, les deux phases ont la même température et la même pression

$$VdP = SdT \quad (I. 21)$$

$$\frac{dP}{dT} = \frac{S_{vap} - S_{liq}}{V_{vap} - V_{liq}} \quad (I. 22)$$

En remplaçant l'enthalpie de vaporisation par $\Delta H_v = (S_{vap} - S_{liq})T$, on obtient l'équation de Clausius Clapeyron

$$\frac{dP}{dT} = \frac{\Delta H_v}{T} \left(\frac{1}{V_{vap} - V_{liq}} \right) \quad (I. 23)$$

En négligeant le volume du liquide et en supposant que la vapeur se comporte comme un gaz parfait, $V_{liq} = 0$ et $V_{vap} = \frac{R_{gas} T}{P_{vap}}$, l'intégration de l'équation (I. 23) donne la pression de vapeur saturée en fonction de la température

$$P_{vap}(T_s) = P_0 \exp\left(\frac{\Delta H_v (T_s - T_{vap})}{R_{gaz} T_s T_{vap}}\right) \quad (I. 24)$$

T_s et T_{vap} sont respectivement, la température de surface et la température de vaporisation à la pression ambiante $P_0 = 1 \text{ atm}$ et à la température ambiante $T = 298 \text{ K}$.

I.4.1 Formation du plasma

Sous l'effet de la radiation laser, le flux de particules éjectées augmente. La densité de ces particules constituées d'atomes neutres, d'ions, de molécules ..., est proche de la densité du solide. Si l'énergie des espèces constituant le matériau est du même ordre de grandeur correspondant à leur énergie d'ionisation, un plasma commence à se former, et il est considéré en équilibre thermodynamique local au voisinage de la surface, sur une épaisseur de quelques libres parcours moyens. Cette couche de plasma est connue sous le nom de couche de Knudsen [3], sa densité est proche de celle du solide ($10^{25} - 10^{26} \text{ m}^{-3}$), sa température est de l'ordre de quelques eV ($1eV \sim 1.1604 \cdot 10^4 \text{ K}$), et sa pression de l'ordre de dizaines de $Kbar$. La couche formée qui absorbe presque intégralement les photons durant l'impulsion laser, même à de faibles intensités et proche du seuil d'ablation, devient fortement ionisée.

Les différentes régions de la cible solide et de la vapeur en interaction avec la radiation laser sont illustrées sur la figure (3)

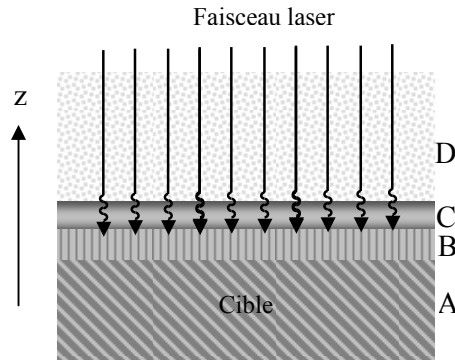


Fig (3): Différentes régions formées lors de l'interaction d'un faisceau laser avec un matériau solide

- A : zone non affectée par la radiation
- B : zone de vaporisation

- C : près de la surface de la cible, plasma dense, absorbant la radiation laser,
- D : plasma en expansion, transparent au rayonnement laser.

I.4.2 La couche de Knudsen

Les particules éjectées (évaporées) lors du processus d'ablation restent d'abord confinées parallèlement à la surface de la cible dans une couche appelée couche de Knudsen. Celle-ci a les mêmes dimensions que le spot laser et une épaisseur inférieure à quelques libres parcours moyens. Elle est principalement composée d'ions et d'électrons mais on y trouve également des atomes neutres, des particules diatomiques, et des gouttelettes de matériau en fusion. Durant l'impulsion laser, le faisceau laser traverse la couche de Knudsen où une partie des photons est absorbée, et favorise l'ionisation des particules de celle-ci ce qui fait augmenter le nombre d'électrons libres. La couche de Knudsen constitue alors un écran pour la cible.

Le modèle théorique de la couche de Knudsen est basé sur le traitement de la région comme une discontinuité. Initialement les espèces émises par la surface (vaporisées) ne sont pas en équilibre translationnel (la vitesse moyenne vectorielle n'est pas nulle), plusieurs collisions sont alors nécessaires pour établir un équilibre.

A travers cette région certaines conditions de saut exprimant la conservation de la masse, de la vitesse et de l'énergie sont appliquées. Les relations analytiques données par [13] ont été appliquées pour tenir compte de la discontinuité de la couche de Knudsen.

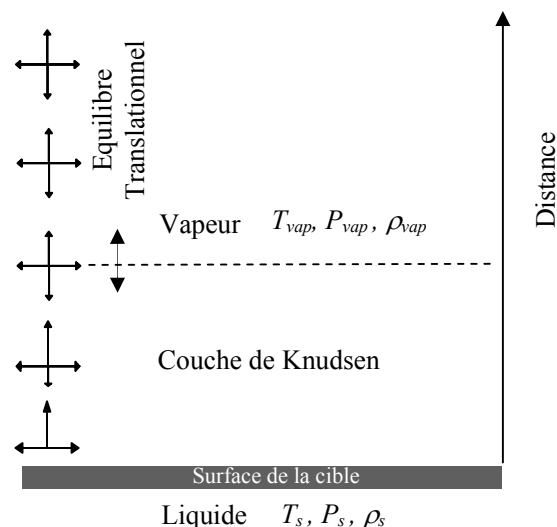


Fig (4): Couche de Knudsen

Si la densité des particules est assez importante pour qu'il y est collisions, l'équilibre translationnel doit être atteint sur la limite externe de la couche de Knudsen. Les particules passent au delà de cette couche, avec une fonction de distribution de vitesse maxwellienne [13] dans la direction de l'éjection de particules, perpendiculaire à la surface de la cible se déplaçant avec une vitesse notée v_{vap}

$$f_1 = \rho_{vap} (2\pi R_{gaz} T_{vap})^{-3/2} \exp \left[-\frac{(v_z - v_{vap})^2 + v_x^2 + v_y^2}{2R_{gaz} T_{vap}} \right], \quad -\infty \leq v_x, v_y, v_z \leq +\infty \quad (I. 25)$$

$$v_{vap} = \sqrt{\frac{2 k_B T_s}{\pi m_{at}}} \quad (I. 26)$$

v_x , v_y et v_z sont les composantes de vitesse dans l'espace

Si la densité des particules quittant la cible est assez faible, les particules se déplacent dans toute les directions (absence de collisions), la distribution de vitesse de ces particules est décrite par une fonction de distribution demi-maxwellienne [13]

$$f_2 = \rho_s (2\pi R_{gaz} T_s)^{-3/2} \exp \left(-\frac{v_x^2 + v_y^2 + v_z^2}{2R_{gaz} T_s} \right), \quad v_z \geq 0 \text{ et } -\infty \leq v_x, v_y \leq +\infty \quad (I. 27)$$

$$\frac{T_{vap}}{T_s} = \left[\sqrt{1 + \pi \left(\frac{\gamma - 1}{\gamma + 1} \frac{m}{2} \right)^2} - \sqrt{\pi} \frac{\gamma - 1}{\gamma + 1} \frac{m}{2} \right]^2 \quad (I. 28)$$

$$\frac{\rho_{vap}}{\rho_s} = \sqrt{\frac{T_s}{T_{vap}}} \left[\left(m^2 + \frac{1}{2} \right) e^{m^2} \operatorname{erf}(m) - \frac{m}{\sqrt{\pi}} \right] + \frac{1}{2} \frac{T_s}{T_{vap}} \left[1 - \sqrt{\pi} m e^{m^2} \operatorname{erfc}(m) \right] \quad (I. 29)$$

$$e^{m^2} \operatorname{erfc}(m) \approx 0.34802 a - 0.09588 a^2 + 0.74786 a^3 \quad (I. 30)$$

$$a = \frac{1}{(1 + 0.47047 m)} \quad m = \frac{v_{vap}}{\sqrt{2 R_{gas} T_{vap} / M_{av}}} \quad (I. 31)$$

T_{vap} , ρ_{vap} et T_s , ρ_s indiquent respectivement, la température et la densité de la vapeur, la température et la densité du liquide, adjacents à la couche de Knudsen. M_{av} est le nombre de Mach de la vapeur, et $erfc(m)$, la fonction d'erreur complémentaire.

I.4.3 Mécanisme d'absorption et d'ionisation dans le plasma

La vapeur créée interagit avec le faisceau laser incident, du fait que les électrons libres présents dans la vapeur éjectée sont rapidement chauffés. Il apparaît une excitation partielle interne pouvant aller jusqu'à l'ionisation par effet thermique. Une ionisation par collision peut se produire, et contribuer à la production d'électrons libres supplémentaires, pour cela il faudrait que l'énergie des électrons libres qui produisent les collisions soit suffisante. Les deux processus dominants l'absorption des photons dans le plasma produit par laser sont:

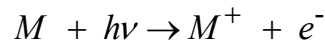
- a) l'ionisation photonique (IP).
- b) l'effet Bremsstrahlung inverse (BI) (rayonnement de freinage inverse).

I.4.3.1 Ionisation photonique (IP)

Dans les procédés d'ablation par laser ultraviolet, l'ionisation photonique (IP) direct des atomes excités dans la vapeur peut jouer un rôle significatif. C'est un mécanisme de gain d'électrons. La section efficace de l'absorption IP (cm^2), donné par [49], est approximativement égale à:

$$\sigma_{PI} \approx 2.9 \times 10^{-17} \frac{(E_I - E^*)^{2.5}}{(h\nu)^3} \quad (I. 32)$$

E_I (eV) est le potentiel d'ionisation des atomes et E^* (eV) est l'énergie des niveaux excités qui peuvent être photo-ionisés. La condition $h\nu > (E_I - E^*)$ doit être satisfaite pour que les atomes soient ionisés. Le phénomène d'ionisation multiphotonique est décrit par la réaction :



M : atome éjecté de la cible et vaporisé.

h : constante de Planck

ν : fréquence du laser

e^- : électron libre

M^+ : atome ionisé

I.4.3.2 Ionisation thermo-ionique : Effet Bremsstrahlung inverse (B.I)

L'ionisation thermo-ionique est un processus qui implique l'absorption de photons par des électrons libres. Si les électrons absorbent suffisamment d'énergie provenant du pulse laser, ils provoquent des collisions et peuvent ioniser les atomes neutres ou ionisés de la cible présents dans la vapeur. L'effet BI due à l'interaction électron-ion est plus efficace que l'interaction électron-neutre. Néanmoins, l'interaction électron-neutre peut avoir de l'importance dans les vapeurs faiblement ionisées. Le nombre d'électrons libres augmente de manière exponentielle par réactions en chaîne multiples:



M^+ et M^{++} : atomes ayant perdu un et deux électrons.

En conséquence, la quantité d'électrons dans la couche de Knudsen augmente fortement, tout comme la quantité d'ions. Ces électrons peuvent à leur tour absorber un photon et exciter un atome neutre.

Le processus de BI est habituellement décrit par la longueur inverse d'absorption $\alpha_{IB} (cm^{-1})$

$$\alpha_{BI} = \sigma_{IB} N_e = (\sigma_{BI,neu} + \sigma_{BI,ion}) N_e \quad (I. 33)$$

où $N_e (cm^{-3})$ est la densité électronique et $\sigma_{IB} (cm^2)$ représente toute la section transversale due à la dispersion électron-ion et électron-neutre qui sont données par :

$$\sigma_{BI,ion} \approx 1.27 \times 10^{-46} Z^2 \lambda^3 T_e^{-0.5} N_i \left[1 - \exp\left(-\frac{h\nu}{T_e}\right) \right] \quad (I. 34)$$

$$\sigma_{BI,neu} \approx 2.2 \times 10^{-32} \sigma_{coll} \lambda^2 T_e^{0.5} N_n$$

Où λ est la longueur d'onde du laser en (nm), T_e est la température électronique (eV), $h\nu$ est l'énergie du photon laser (eV), σ_{coll} est la section transversale pour des collisions électron-neutre (cm^2), Z est la charge ionique, N_n et $N_i (cm^{-3})$ sont les densités des atomes neutres et ionisés respectivement.

I.5 Expansion du plasma

Sous l'effet des très fortes pressions qui accompagnent l'ablation, l'expansion du plasma créé, qui est composé de différents types de particules (atomes, molécules, ions, électrons et gouttelettes), commence à la fin de l'impulsion laser [14]. Après la fin de l'impulsion laser, l'expansion devient adiabatique, un nuage de matière se détend dans une région proche de la surface de la cible, la température du plasma peut être considérée comme homogène et constante : l'expansion est isothermique. Initialement, la forme géométrique du plasma est fortement anisotrope, l'expansion s'effectue préférentiellement dans la direction axiale. Au delà d'un temps qui est typiquement de 100 fois la durée de l'impulsion laser, la majeure partie de l'énergie thermique est transformée en énergie cinétique. L'accélération des ions devient négligeable. L'expansion adiabatique du plasma a été étudiée théoriquement par Singh et Narayan [14]. Ces auteurs ont supposé que les équations qui la gouvernent sont identiques à celles régissant le régime d'expansion isothermique. Aux temps supérieurs, l'expansion des ions peut être considérée comme inertielle. La densité de particules N s'exprime: $N \propto t^{-3}$ et $N \propto z^{-3}$. Pour un gaz monoatomique où γ est égal à 5/3, on déduit que $T \propto t^{-2}$ et $T \propto r^{-2}$.

L'étape de l'expansion du plasma est déterminante pour estimer les flux de particules : composition, nature des espèces (ion ou neutre). Il existe un certain nombre de modèles qui traitent de l'expansion du plasma :

- sous vides.
- sous atmosphère contrôlée (de l'ordre du mbar).
- à pression ambiante (de l'ordre du bar).

Actuellement et à notre connaissance, il n'existe aucun code traitant de l'ensemble du phénomène d'ablation laser à flux moyen, c'est à dire partant du début de l'impulsion laser et donc de l'interaction laser-cible jusqu'à l'extinction du plasma et tenant compte de tous les phénomènes.

I.5.1 Expansion du plasma sous vide

L'expansion du panache peut être décomposée en trois phases : la formation de la couche de Knudsen suivie de l'expansion adiabatique du plasma, d'abord suivant une seule direction (la normale à la cible), puis dans les trois directions.

I.5.1.1 Expansion monodimensionnelle (1-D)

Durant le pulse laser, la phase d'expansion débute avant même la fin de l'impulsion laser [14]. Le nuage de matière se détend dans une région proche de la surface de la cible. L'expansion est isothermique, la température du plasma pouvant être considérée comme homogène et constante. Dans les premiers instants de l'expansion, la direction perpendiculaire à la cible est privilégiée. En fait, on considère que l'énergie engendrée par l'interaction laser-matériau est directement transformée en énergie cinétique des particules éjectées. De plus, la dimension du spot laser est beaucoup plus grande ($\sim 1\text{ mm}$ de diamètre) que l'épaisseur du panache ($\sim 100\ \mu\text{m}$). Au temps correspondant, le gradient de pression dans la direction perpendiculaire à la surface est élevé. Ceci entraîne une expansion quasi-monodimensionnelle du panache jusqu'à ce que les gradients dans les trois directions de l'espace soient équilibrés. Le modèle linéaire d'expansion s'écrit sous la forme : $d = vt$ ou v est la vitesse d'expansion des espèces.

Au début de l'étape d'expansion, la densité de particules est extrêmement élevée (10^{25} à $10^{26}\ \text{m}^{-3}$), le libre parcours moyen l des atomes est donc très petit, de l'ordre de $0,01$ à $0,1\ \text{nm}$, et la vitesse des espèces éjectées est de l'ordre de $10^4\ \text{m/s}$. La distance parcourue par les particules pendant la durée τ_L de l'impulsion laser ($\tau_L = 25\ \text{ns}$) est donc grande devant le libre parcours moyen l . L'équilibre translationnel peut être considéré comme immédiat et le plasma se comporte comme un fluide continu. On peut donc appliquer les équations de la dynamique des fluides pour simuler l'expansion du panache.

I.5.1.2 Fin de l'expansion 1-D

Après la fin de l'impulsion laser, on considère l'expansion du panache comme adiabatique (ni gains ni pertes d'énergie par le plasma) avec la relation suivante : $TV^{\gamma-1} = \text{constante}$

La dimension de la plume suivant l'axe z perpendiculaire à la cible est petite devant ses dimensions dans les directions parallèles à la cible, ce qui a pour conséquence de favoriser l'accélération suivant z . Ainsi l'expansion reste monodimensionnelle pendant quelques centaines de nanosecondes, nécessaires à l'équilibrage des gradients dans les trois directions, puis se poursuivra sans direction privilégiée de manière tridimensionnelle (phase 3-D).

I.5.2 Expansion du plasma sous atmosphère contrôlée

En présence d'un gaz réactif, le plasma peut interagir de manière complexe avec le milieu ambiant et conduire à la formation de couches présentant des propriétés très diversifiées, en terme de composition chimique, de structure cristalline et de morphologie (ablation laser réactive).

Lors du tir laser sur la cible en présence d'un gaz ambiant, la matière éjectée ne subit pas l'influence du gaz ambiant, l'expansion se fait à une dimension de la même manière que dans le vide. Ensuite une grande quantité d'énergie est libérée dans un petit volume pendant un court instant, ce qui conduit à une forte expansion de la plume en trois dimensions dans le milieu gazeux initialement au repos. La différence de pression qui existe entre la plume de plasma et le gaz ambiant donne naissance à une onde de choc. Cette dernière va se propager à travers le gaz ambiant au fur et à mesure de l'expansion de la plume de vapeur. Lorsque la pression du gaz ambiant non comprimé devient non négligeable par rapport à la pression derrière le front de l'onde de choc, on arrive à la limite de validité du modèle d'onde de choc (blast wave model). En effet, pour des temps supérieurs à la microseconde, le milieu devient quasi-continu, les pressions s'égalisent et les collisions entre vapeurs et gaz ambiant font que la plume ralentit jusqu'à être stoppée, et l'expansion du plasma peut être simulée par un modèle de viscosité (drag force model). La position du front de la plume s'écrit :

$$d = \chi_f [1 - \exp(-\beta t)] \quad (\text{I. 35})$$

χ_f est la distance maximale atteinte par le plasma pour un temps infini et β est le coefficient d'atténuation dépendant de la pression dans l'enceinte (coefficient de viscosité) défini par :

$$\beta = \frac{v_0}{\chi_f} \quad (\text{I. 36})$$

Avec v_0 la vitesse initiale d'expansion (à la fin du pulse laser).

Une approche basée sur une description par un modèle d'onde de choc suivi d'un modèle de viscosité a été envisagée [12] pour traduire l'effet des collisions entre les espèces éjectées et les molécules (ou les atomes) du gaz ambiant sur l'expansion du panache. Cette approche permet d'estimer l'évolution de la position du front du panache plasma par rapport à la surface de cible sous ambiance gazeuse.

Le modèle développé par Zel'dovich [15] est basé sur la propagation d'une onde de choc. Le mouvement du gaz est déterminé par deux paramètres : l'énergie de l'explosion E et la densité initiale ρ . La position d du front de l'onde de choc en fonction du temps s'écrit:

$$d = C \left(\frac{E}{\rho} \right)^{1/5} t^{2/5} \quad (\text{I. 37})$$

Où C est une constante, E est l'énergie laser dans la plume de vapeur et ρ est la densité du gaz ambiant. Cette formule peut être approximée par :

$$d = a \frac{t^{0.4}}{P^{0.2}} \quad (\text{I. 38})$$

Où P est la pression du gaz ambiant et a est une constante.

Ce modèle d'expansion n'est valable que dans les premiers instants de la croissance du panache, et l'approche de Predtechensky [16], toujours basée sur la propagation d'une onde de choc, donne une estimation de la valeur limite maximale atteinte par le front du panache d_{max} . Au-delà de cette valeur, le modèle d'onde de choc ne peut plus être appliqué. Cette approche est valable quand l'effet de la pression ambiante est très prononcé.

I.6 Description des propriétés du plasma

Les propriétés du plasma résultent d'un équilibre dynamique entre différents processus.

- L'absorption du faisceau laser, source fondamentale de la formation du plasma.
- L'expansion, source de refroidissement et de diminution de la densité du plasma.
- Les effets de recombinaison, source de diminution du taux d'ions, mais aussi d'échauffement.

Il faut principalement considérer le fait que lorsque la densité de particules approche une densité critique, proche de la densité du solide, le plasma, d'abord opaque au rayonnement incident, devient totalement réfléchissant. L'échauffement de la cible et le taux d'ionisation sont alors fortement réduits. Du fait de l'expansion, la densité du plasma diminue alors, ce dernier redevient transparent au rayonnement laser qui de nouveau irradie la cible.

Vers la fin de l'impulsion laser, Les principales propriétés caractéristiques du plasma (température électronique T_e , densité électronique N_e) dépendent des propriétés du rayonnement incident (irradiance et longueur d'onde). En considérant qu'il y a conservation de l'énergie lors de la transformation solide-plasma et que le plasma se propage à la vitesse du son, T_e et N_e peuvent être exprimées par les relations suivantes:

$$\left\{ \begin{array}{l} T_e = 3\sqrt{I \lambda \tau_L^{1/2}} \end{array} \right. \quad (I. 39)$$

$$\left\{ \begin{array}{l} N_e = 1.135.10^{15} \frac{M^{5/16}}{Z^{1/8}(Z+1)} \frac{I^{1/4}}{(\lambda \sqrt{\tau_L})^{3/4}} \end{array} \right. \quad (I. 40)$$

Où M représente la masse molaire en ($g/mole$), Z la charge moyenne, $I = \frac{F}{\tau_L}$ l'irradiance du faisceau laser (Wcm^{-2}), τ_L la durée de l'impulsion laser (s), F la fluence du laser (Jcm^{-2}), λ la longueur d'onde de la radiation (m).

CHAPITRE II

MODELISATION NUMERIQUE

II.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous présentons les modèles d'ablation laser d'un matériau solide en régime nanoseconde, que nous avons développé. Le matériau considéré est du Titane et la longueur d'onde du laser dans le domaine spectral de l'UV est $\lambda=248 \text{ nm}$. La modélisation basée sur une approche bidimensionnelle instationnaire se divise en deux parties. La première qui décrit l'interaction laser-cible et les effets thermiques engendrés, est basée sur un modèle thermique qui tient compte des paramètres du faisceau laser, et des caractéristiques optiques et thermiques du matériau. Le modèle thermique consistant en l'équation de la chaleur bidimensionnelle (I. 1) décrite dans le chapitre (I), et des conditions aux limites appropriées est résolu numériquement. Dans la seconde partie, on développe un modèle hydrodynamique qui permet l'étude de la phase de formation du plasma métallique et son expansion à irradiances intermédiaires dans un gaz neutre (Argon).

La discrétisation des équations du modèle est faite par la méthode des volumes finis implémentée par le logiciel de dynamique des fluides Fluent. Il permet la résolution de systèmes d'équations aux dérivées partielles ainsi que la génération de maillages (via le mailleur Gambit), et son adaptation dans les zones à forts gradients par raffinement des mailles. Dans le cas du problème traité, il est tout à fait clair que les cellules du maillage doivent subir un raffinement au voisinage de la surface, siège de l'absorption du rayonnement laser, et de fortes variations des températures. Certaines conditions aux limites sont introduites au fonctions définies par l'utilisateur, dites UDF (User Defined Functions) écrite en langage C++. Ces UDF sont utilisé pour personnaliser Fluent et l'adapter à un besoin particulier exigé par la modélisation. Elles peuvent être utilisées dans diverses applications telles que la personnalisation de conditions aux limites, la définition de propriétés physiques particulières du matériau traité, ou de termes sources spécifiques. Elles peuvent être chargées inter-activement dans le processus de calcul durant la résolution numérique des équations. Ceci permet d'améliorer les caractéristiques standard du code de calcul. Dans cette modélisation nous avons développé des UDF afin de prendre en compte les différents mécanismes impliqués comme l'absorption de l'énergie laser, et des conditions aux limites spécifiques.

II.2 Méthode utilisée

II.2.1 Discrétisation des équations par la méthode des volumes finis

Dans le cas de notre modélisation, c'est la méthode des volumes finis qui est utilisée à travers le logiciel de dynamique des fluides FLUENT [17]. Ce logiciel fait appel à une technique de contrôle de volume pour convertir les équations régissant le problème aux équations algébriques, qui peuvent être résolus numériquement. Cette technique de contrôle de volume consiste à intégrer les équations régissant le contrôle de chaque volume, rapportant les équations discrètes qui conservent chaque quantité sur un contrôle de volume de base. La discrétisation des équations gouvernantes peut être illustrée plus facilement en considérant l'équation de conservation du transport à l'état stationnaire d'une quantité scalaire ϕ . Ceci est démontré dans l'équation suivante écrite en formulation intégrale pour un volume de contrôle arbitraire V telle que :

$$\oint \rho \phi \vec{v} \cdot d\vec{a} = \oint \Gamma_\phi \nabla \phi \cdot d\vec{a} + \int_V S_\phi dV \quad (\text{II. 1})$$

où ρ est la densité, $\vec{v}$ le vecteur vitesse ($= v\vec{i} + v\vec{j}$ en 2-D), $\vec{a}$ le vecteur surface, Γ_ϕ le coefficient de diffusion pour ϕ , $\nabla \phi$ le gradient de ϕ ($= (\partial\phi/\partial x)\vec{i} + (\partial\phi/\partial y)\vec{j}$ en 2-D), et S_ϕ la source de ϕ par unité de volume. L'équation (II. 1) est appliquée pour chaque volume de contrôle, ou cellule, dans le domaine de calcul. La cellule triangulaire bi-dimensionnelle, montrée sur la figure (4) est un exemple d'un tel volume de contrôle. La discrétisation de l'équation (II. 1) sur une cellule quelconque donne :

$$\sum_f^{N_{\text{faces}}} \rho_f \vec{v}_f \phi_f \cdot \vec{a}_f = \sum_f^{N_{\text{faces}}} \Gamma_\phi (\nabla \phi)_n \cdot \vec{a}_f + S_\phi V \quad (\text{II. 2})$$

où N_{faces} est le nombre de faces (côtés) entourant une cellule, ϕ_f la valeur de ϕ « convectée » à travers la face f , $\rho_f \vec{v}_f \cdot \vec{a}_f$ le flux de masse à travers la face, $\vec{a}_f$ la surface de la face f .

($\vec{a} = |a_x \vec{i} + a_y \vec{j}|$ en 2-D), $(\nabla \phi)_n$ la magnitude de $\nabla \phi$ normale à la face f , V le volume de la cellule. Les équations résolues par FLUENT prennent la même forme générale que celle donnée ci-dessus et s'applique aux cas multidimensionnels, les maillages non structurés sont composés de polyèdres arbitraires.

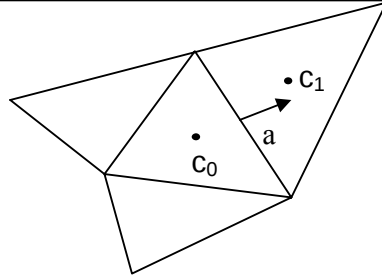


Fig. (5) Volume de contrôle utilisé pour illustrer la discrétisation d'une équation de transport scalaire

Par défaut, FLUENT mémorise des valeurs discrètes du scalaire ϕ au centre de la cellule (c_0 et c_1 sur la figure (4)). Cependant, les valeurs de faces ϕ_f sont nécessaires pour le terme de convection dans l'équation (II. 2) et doivent être interpolées à partir des valeurs au centre de la cellule. Ceci est accompli en utilisant ce que l'on appelle un schéma upwind. Ceci veut dire que la valeur à la face ϕ_f est déduite à partir de quantités en amont « upstream », ou upwind, relativement à la direction de la vitesse normale v_n dans l'équation (II. 2).

II.2.2 Utilisation des UDFs (User Defined Function)

Une fonction définie par l'utilisateur ou user-defined function, ou UDF, est une fonction qui est programmée par l'utilisateur et qui peut être chargée interactivement dans la procédure de calcul lors de la résolution numérique des équations du problème par le solveur Fluent. Cela permet d'améliorer les caractéristiques standard du code de calcul. Les UDFs sont écrites en langage de programmation C++. Les valeurs qui sont transmises au solveur par l'UDF ou envoyée par le solveur à l'UDF doivent être exprimées dans le système d'unité SI. Ainsi, les UDFs permettent de personnaliser Fluent pour l'adapter à un besoin particulier exigé dans la modélisation. Elles peuvent être utilisées dans diverses applications telles que :

La personnalisation de conditions aux limites, la définition des propriétés physiques des matériaux, les taux de réaction des surfaces et volumes, les termes source dans l'équation de transport, les fonctions de diffusivité, ...etc.

- L'ajustement de valeurs calculées à chaque itération.
- L'initialisation d'une solution.
- Exécution asynchrone d'UDFs (sur demande)
- Amélioration des modèles de Fluent (modèle multiphasique, modèle de radiation...).

II.3 Procédure de la modélisation du procédé d'ablation laser

L'organigramme montré sur la figure (6) représente les étapes suivies pour modéliser le procédé d'ablation laser. Il est constitué de deux parties dépendantes, la première décrit les effets thermiques causés par l'interaction du faisceau laser pulsé avec un matériau solide, et la seconde décrit la formation de la vapeur métallique et son expansion, en utilisant les conditions aux limites résultant de la première modélisation.

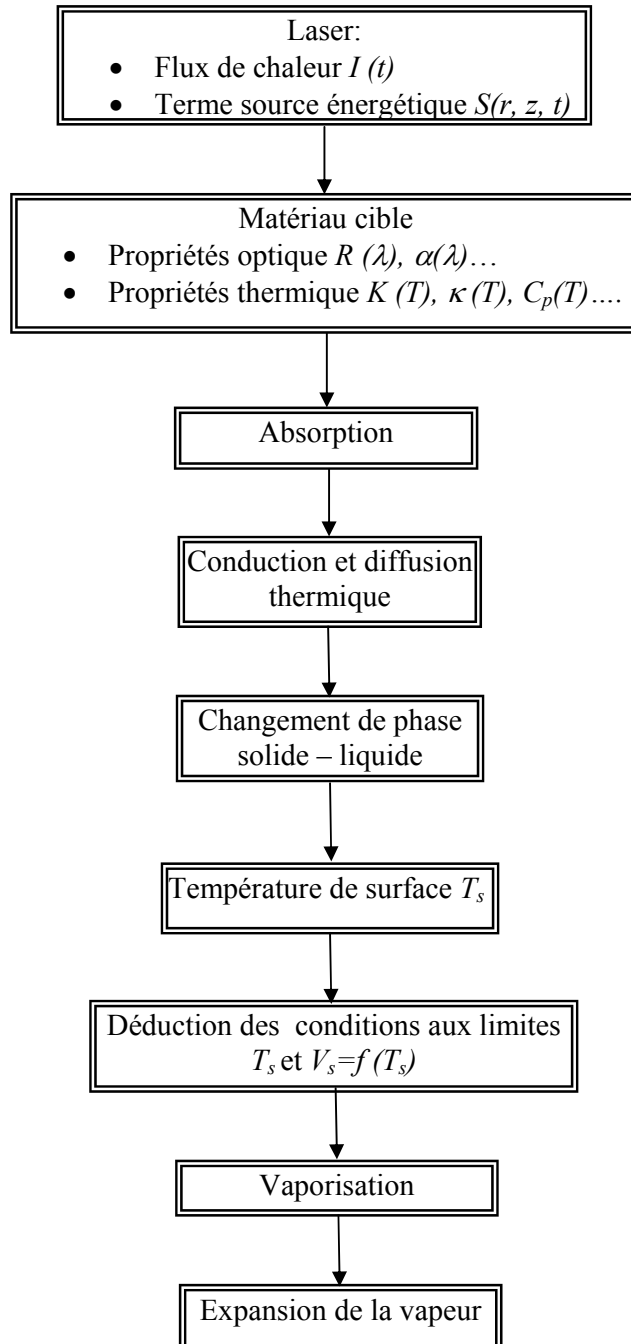


Fig. (6): Procédure de modélisation de l'ablation laser

II.4 Modélisation de l'interaction entre l'impulsion laser et la cible

II.4.1 Modèle numérique

On modélise les effets thermiques subis par le métal à la suite d'une interaction avec un faisceau laser pulsé, par la résolution numérique de l'équation de la chaleur bidimensionnelle (I.3), associée à des conditions aux limites et initiales. Le modèle numérique permet de déterminer l'évolution dynamique du champ de température $T(r,z,t)$, ainsi que les dimensions du domaine fondu dans le matériau. On considère une cible cylindrique, au centre de laquelle est situé l'impact du faisceau laser, et on s'intéresse aux effets induits par la diffusion de la chaleur dans la direction du faisceau laser (axiale) et dans la direction perpendiculaire à celui-ci (radiale).

II.4.1.1 Géométrie et symétrie de la cible

Sur la figure (7), on montre une cible cylindrique et le domaine de calcul. La géométrie de la cible peut se simplifier en considérant l'axisymétrie du cylindre de rayon R et de longueur Z . le champ de calcul est représenté par le rectangle en pointillé.

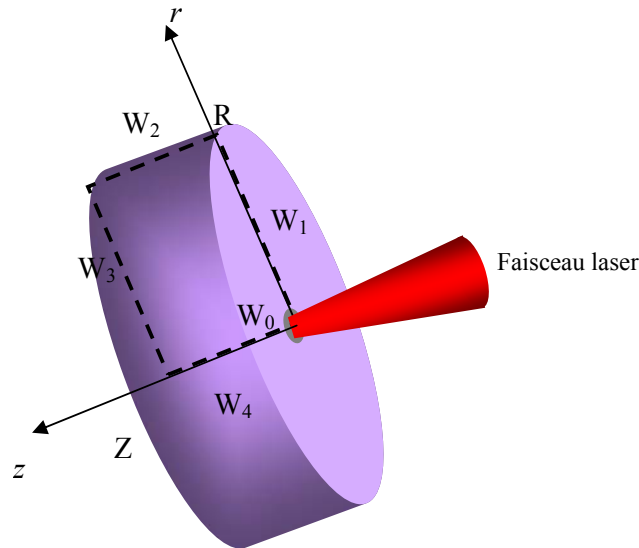


Fig (7) Schéma d'une cible cylindrique et du champ de calcul

La figure (8) représente le maillage du domaine de calcul illustré sur la figure (7), où sont imposées les différentes conditions aux limites.

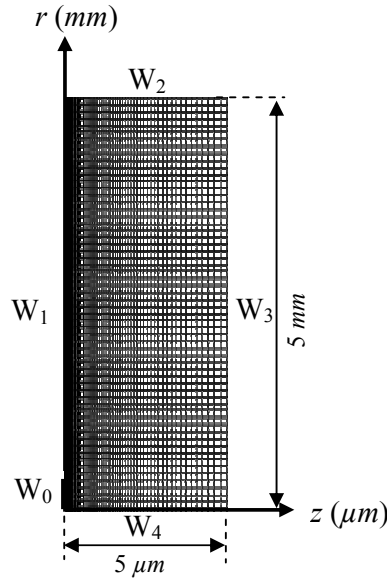


Fig (8): Maillage du champ de calcul incluant les axes r et z , et frontières du domaine (W_1 , W_2 , W_3 et W_4).

II.4.1.2 Conditions initiales et aux limites du domaine

On considère un domaine de calcul de dimensions $5\text{ mm} \times 5\text{ }\mu m$ suivant r et z respectivement, et un faisceau laser dont le diamètre de la tâche focale est de 1 mm . On impose sur les frontières du domaine W_1 une condition de flux nul (condition de Neumann), et sur W_2 et W_3 représentant les parois du matériau cible, une valeur de la température T égale à 300 K (condition de Dirichlet). La paroi W_4 représentant l'axe de symétrie du cylindre est affectée d'une condition à la limite appelée condition miroir. Celle-ci s'exprime par une condition de flux nul ayant pour expression :

$$K \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right) = 0 \quad (\text{II. 3})$$

Sur la surface notée W_0 , l'intensité laser est imposée, et la distribution temporelle de l'impulsion laser est donnée par la relation de Beer-Lambert :

$$dI(r, z) = -\alpha I(r, z) dz \quad (\text{II. 4})$$

Par ailleurs, on associe à l'équation de la chaleur les conditions aux limites et initiale suivantes :

$$T(t=0) = T_{amb} \quad (\text{II. 5}) \quad \text{et} \quad \left\{ \begin{array}{l} W_0 : I(z) = I_0 \exp(-\alpha|z|) \\ W_1 : K \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right) = 0 \\ W_2, W_3 : T = T_{amb} \\ W_4 : K \left(\frac{\partial T}{\partial r} \right) = 0 \end{array} \right. \quad (\text{II. 6})$$

La condition (II.5) signifie que la température à l'instant initial est égale à la température ambiante $T_{amb} = 300 \text{ K}$ sur toute la cible. Sur les parois W_2 et W_3 , situées aux extrémités de la cible, la température reste constante et est prise égale à T_{amb} pendant toute la durée de la simulation. La source d'énergie induite dans le volume du matériau est incorporée dans le calcul sous la forme d'un terme source énergétique dans l'équation (I.3).

La résolution numérique des équations aux dérivées partielles (I. 3 - II. 5 et II. 6) se fait par la méthode des volumes finis sur un domaine à deux dimensions, en utilisant un système de coordonnées cylindriques (r,z) . L'UDF qui a été développée pour la modélisation de la distribution de la température au sein d'un matériau est déterminée par une macro qui représente un groupe d'instruction prédéfinie dans un programme appelé 'header', inclus à travers l'instruction udf.h. Cette macro appelée DEFINE_PROFILE est utilisé pour fournir des données spécifiques concernant des conditions aux limites telles que le profil de l'irradiance laser sur la frontière notée W_0 . Une autre UDF est construite autour de la macro DEFINE_SOURCE qui calcule le terme source de l'énergie par unité de volume dans une zone touchée par le faisceau laser, à un instant et une position donnés. Celle-ci permet de calculer le terme source énergétique volumique, noté $S \text{ (W/m}^3\text{)}$ (équation (I. 3)), qui est insérée dans le processus de calcul pour la résolution de l'équation (I. 3).

```

/*****
/* Programme calculant l'irradiance laser  $I(W/m^2)$  et le terme source énergétique */
/* volumique  $S(W/m^3)$  pour la modélisation de la distribution de la température */
/* dans le matériau soumis à une impulsion laser. */
/* Auteur: F.Hamadi,TML/CDTA,Baba-Hassen,Alger */
/*****/

#include "udf.h"

DEFINE_PROFILE (flux de chaleur, thread, position)
{
    real x[ND_ND];
    real time, I, S;          // temps, Intensité du faisceau laser, terme source
    real  $\tau_L$  =25.e-9;      // Durée d'impulsion du faisceau laser (s)
    real alpha=6.1e7;         // coefficient d'absorption du matériau( $m^{-1}$ )
    real rl=0.001;            // rayon de la tache focale (m)
    real F= 3.e4 ;            // densité d'énergie du laser ( $J/m^2$ )
    face_t f;
    time = RP_Get_Real("flow-time");
    begin_f_loop(f,thread)
    {
        F_CENTROID(x,f,thread);
        if(time>0 && time<= $\tau_L$ )
        {
            if(x[1]<=rl)          // x[1]=y, la direction radiale
            {
                I= F / $\tau_L$ ;
                S= (1-R)*I*alpha*exp(-alpha*x[0]);
            }
            else if(time> $\tau_L$ )
            {
                I=0;
                S=1-R)*I*alpha*exp(-alpha*x[0]);
            }
            F_PROFILE (f, thread, position)=I;
        }
    }
    end_f_loop(f, thread)
}

/*****/

DEFINE_SOURCE (terme source, c, t, dS, eqn)
{
    real x[ND_ND];
    real time, I, S, source; // Temps, Intensité du faisceau laser,terme source*/
    real  $\tau_L$  =25.e-9;      // Durée d'impulsion du faisceau laser (s) */
    real F=3e4;             // Densité d'énergie du laser ( $J/m^2$ ) */
    real alpha=6.1e7;       // Coefficient d'absorption du matériau( $m^{-1}$ ) */
    real R= 0.236;          // Réflectivité du Titane à  $\lambda= 248$  nm */
    real rl=0.001;          // Rayon de la tache focale du faisceau laser(m) */
    real lp=1.6 e-8;        // Profondeur atteinte par le faisceau laser (m)*/

    time = RP_Get_Real("flow-time");
    C_CENTROID(x, c, t);
    if(time>0 && time<= $\tau_L$ )
    {
        if(x[0]<lp && x[1]<=rl)    /* x[0]=z, la direction axiale*/
        {
            I=F/ $\tau_L$ ;
            S=(1-R)*I*alpha*exp(-alpha*x[0]);
            source = S;
            dS[eqn] = -(1-R)*I*pow(alpha,2)*exp(-alpha*x[0]);
        }
    }
}

```

```

        else if(time>τL)
        {
            if(x[0]<lp && x[1]>rl)
            {
                I=0;
                S=(1-R)*I*alpha*exp(-alpha*x[0]);
                source = S;
                dS[eqn] = -(1-R)*I*pow(alpha,2)*exp(-alpha*x[0]);
            }
        }
    return source;
}

```

II.5 Modélisation de la formation et de l'expansion du plasma

La seconde partie de la modélisation concerne la formation puis l'écoulement hydrodynamique de la vapeur (plasma) produite lors de l'interaction laser-matière. Les mécanismes physiques qui gouvernent le mouvement hydrodynamique sont modélisés par les équations de Navier-Stokes décrivant l'écoulement d'un fluide newtonien. On considère dans notre modélisation les équations représentant la conservation de la masse, de la quantité de mouvement, de l'énergie, et des espèces chimiques issues de l'évaporation de la matière et de son expansion durant et après la fin du pulse laser. Le couplage des équations hydrodynamiques impose une résolution numérique par des méthodes de discrétisations, telle que la méthode des volumes finis Patankar [22], que nous avons appliquée dans notre cas à travers la mise en œuvre du logiciel de dynamique des fluides Fluent. Le système algébrique issu de la discrétisation est résolu par des méthodes numériques classiques, et on obtient ainsi les différents paramètres du plasma telles que la température, la densité, la pression, les vitesses, et la fraction massique du métal cible et du gaz environnant. Cela permet d'étudier en particulier l'expansion de la vapeur métallique de Titane, et sa diffusion dans un gaz environnant tel que l'Argon.

II.5.1 Hypothèses du modèle

On considère dans notre étude la formation de la vapeur durant l'impulsion laser et son expansion après extinction du faisceau laser. Les hypothèses du modèle sont:

- (a) Le plasma est composé d'un mélange de vapeur métallique et de gaz ambiant.
- (b) Le plasma est à l'équilibre thermodynamique local. Cette hypothèse généralement admise dans les plasmas de vapeurs métalliques à pression atmosphérique, permet de définir une température unique.

(c) les termes sources dans l'équation de l'énergie (décrivant la photo-ionisation et l'absorption par Bremsstrahlung inverse) ne sont pas pris en compte durant le pulse laser. Une fois l'impulsion laser terminée, le terme source d'énergie devient nul.

(d) Les pertes radiatives dues au rayonnement du plasma ne sont pas prises en compte.

(e) les propriétés thermodynamiques et les coefficients de transport du milieu ne sont fonction que de la fraction du mélange.

(f) La vapeur métallique éjectée à partir de la surface liquide est considérée comme un gaz idéal.

II.5.2 Domaine de calcul et Maillage

En considérant l'axisymétrie du problème, le domaine de calcul représenté sur la figure (9), est délimité par le rectangle formé par les côtés a, b, c, d et e. Les dimensions des côtés 'd' et 'e' sont $20\text{ mm} \times 20\text{ mm}$, respectivement suivant la direction radiale r et axiale z du domaine. Le côté 'e' représente l'axe de symétrie et la fraction 'a' représente le rayon r_0 de la tâche focale du faisceau laser qui est pris égal à 1 mm .

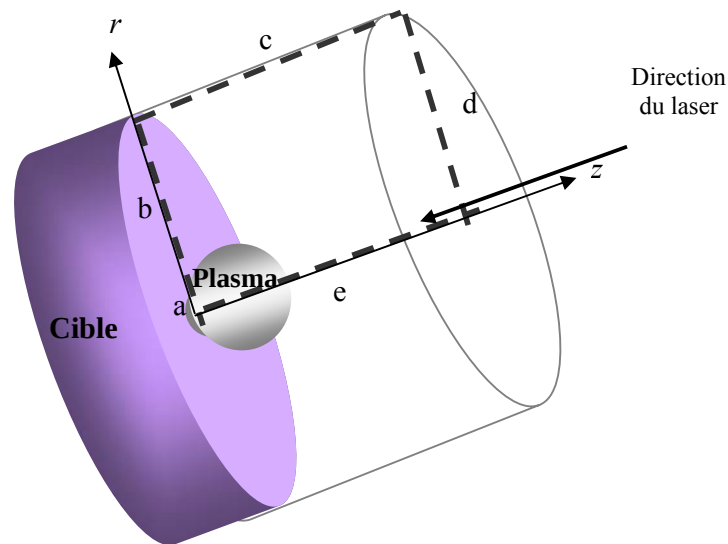


Fig (9) : Domaine de calcul considéré, vue d'ensemble

On représente sur la figure (10), un maillage du domaine réalisé à l'aide du logiciel Gambit, qui est utilisé pour le pré-traitement de problèmes (définition de la géométrie, du maillage, et de la réservation des conditions aux limites) qui seraient résolus numériquement par la

méthode des volumes finis implémentée par le solveur Fluent. La géométrie de notre modèle est un plan carré (bidimensionnel) composé de cellules quadratique. Un raffinement est appliqué dans la zone d'expansion du panache et près de la surface représentant l'impact du faisceau laser (région 'a'). Le maillage est construit sur 100 intervalles sur chaque côté (a et b constituant un seul côté), ce qui correspond à un champ de calcul constitué de 10000 mailles comme montré sur la figure (10).

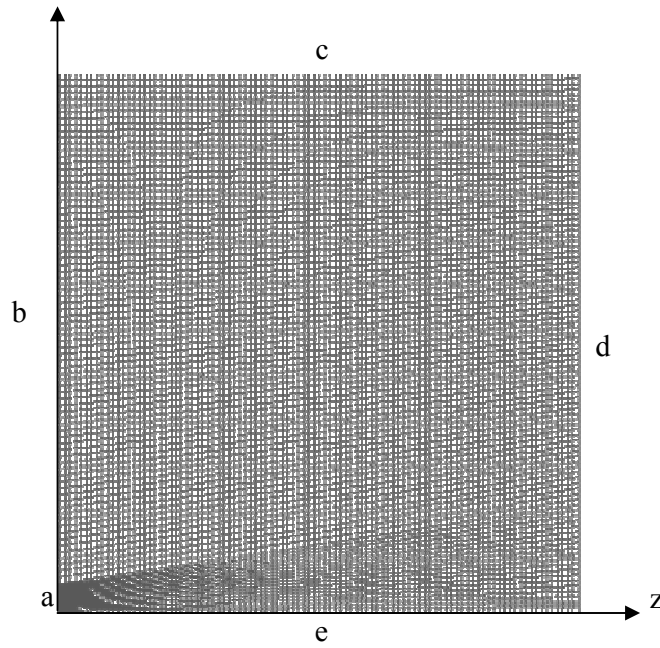


Fig (10) : Représentation schématique du champ de calcul utilisé dans la simulation

II.5.3 Equations hydrodynamiques durant le pulse laser

Les équations de conservation de la masse, de la quantité de mouvement et de l'énergie durant le pulse laser sont :

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla}(\rho v) = S_1 \quad (\text{II. 7})$$

$$\frac{\partial(\rho v)}{\partial t} + \vec{\nabla}(\rho v w) = -\vec{\nabla}(\tau) \quad (\text{II. 8})$$

$$\frac{\partial(\rho H)}{\partial t} + \vec{\nabla}(\rho v H) = \vec{\nabla} \left[\frac{K}{C_p} \text{grad}(H) \right] + S_2 \quad (\text{II. 9})$$

ρ est la densité massique totale du milieu, v la vitesse et S_1 le terme source pris égale à zéro dans notre cas. τ est le tenseur de la quantité de mouvement regroupant les termes de pressions et de contraintes. C_p , K et H sont, respectivement, la chaleur spécifique massique à pression constante, la conductivité thermique et l'enthalpie massique.

S_2 est le terme source d'énergie en volume représentant l'absorption du pulse laser par la vapeur, et les pertes par rayonnement. Son expression est donnée par :

$$S_2 = -U + k_{pl}I(z)\exp(-k_{pl}|z|) \quad (\text{II. 10})$$

Où U représente les pertes d'énergie par rayonnement, k_{pl} le coefficient d'absorption du rayonnement laser par le plasma, et $I(z)$ l'intensité du faisceau laser incident. Conformément à nos hypothèses de travail nous prenons $S_2=0$.

II.5.3.1 Conditions initiales et aux limites

On résout le problème de l'expansion en considérant le cas instationnaire, et l'on introduit des conditions initiales sur la température et la fraction massique du Titane. Sur tout le domaine de calcul (a, b, c, d et e), la température à l'instant initial est prise égale à la température ambiante $T_{amb} = 300 \text{ K}$, alors que la fraction massique du Titane est $X_{Ti}=0$.

Par ailleurs, des conditions aux limites doivent être fixées sur toutes les frontières du domaine de calcul, comme le montre la figure (9). Ainsi on impose :

$$\begin{aligned} \frac{\partial T}{\partial z} &= 0 && \text{sur b} \\ \frac{\partial T}{\partial z} = \frac{\partial T}{\partial r} &= 0 && \text{sur c et d} \\ \frac{\partial T}{\partial r} &= 0 && \text{sur e} \end{aligned}$$

Sur a, les profils de températures et de vitesses d'éjections des particules (en $z=0$) sont imposés comme conditions aux limites. Le modèle d'évaporation thermique est utilisé, de sorte que la pression de vapeur à la surface soit obtenue à partir de l'équation (I. 24) de Clausius-Clapeyron [48].

Les paramètres de l'écoulement initial sur le segment 'a', où $z=0$ et $r < (r_0=1 \text{ mm})$, sont calculés en considérant que la distribution de la température le long de la zone irradiée par le faisceau laser est fonction du temps, et que la vitesse de l'écoulement ou d'éjection des particules est supposé égale à la vitesse du son dans le milieu. La forme temporelle de la température de surface durant une impulsion laser de type rectangulaire est donnée par l'expression suivante [5] :

$$T_s = \frac{A}{\rho_l C_{p,l} \sqrt{\kappa_l \pi}} 2 I_0 \sqrt{t} \quad t \leq \tau_L \quad (\text{II. 11})$$

A : absorptivité

ρ_l : densité (Kg/m^3)

$C_{p,l}$: capacité calorifique (J/Kg.K)

κ_l : diffusivité thermique (m^2/s)

I_0 : intensité maximale de l'impulsion laser (W/m^2)

τ_L : durée d'impulsion (s)

La densité de vapeur à la surface $\rho_{vap}(T_s)$ exprimée en m^{-3} est calculée à partir de la loi des gaz parfait

$$\rho_{vap}(T_s) = \frac{p_{vap}(T_s)}{k_B T_s} \quad (\text{II. 12})$$

La vitesse des atomes de vapeur quittant la surface v_{vap} est exprimée par :

$$v_{vap}(T_s) = \sqrt{\frac{2 k_B T_s}{\pi m_{at}}} \quad (\text{II. 13})$$

La densité de la vapeur $\rho_{vap}(T_s)$, la vitesse de la vapeur $v_{vap}(T_s)$ et la température de surface T_s du matériau sont utilisés comme conditions aux limites dans l'étude de l'expansion de la vapeur [48]. La densité de puissance incidente I_0 considérée est de 280 MW/cm^2 , selon la relation (II. 12) la température de surface T_s au temps $t = 25 \text{ ns}$ est égale à 6800 K , la pression $P_{vap}(T_s)$ et la densité de la vapeur calculé à partir de la loi des gaz parfait $\rho_{vap}(T_s)$ à cette

température sont respectivement égaux à $1.01 \cdot 10^8 \text{ Pa}$, et $1.07 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ et la vitesse de la vapeur quittant la surface, $v_{vap}(Ts)$ est égale à 1399 m/s .

```

/*****
/* Programme calculant les profiles de la température de surface Ts et de la
/* vitesse  $v_{vap}(Ts)$  d'éjection de la vapeur, ainsi que la densité  $\rho_{vap}(Ts)$  de la
/* vapeur formée près de la surface, lors de la modélisation de la formation
/* de la vapeur durant l'impulsion laser
/* Auteur: F.Hamadi,TML/CDTA,Baba-Hassen,Alger
*****/

#include "udf.h"
DEFINE_PROFILE (surface temperature, thread, position)
{
FILE *fb;          /* pointeur*/
real x[ND_ND];
real time,I0;      /* Temps(s), Intensité du faisceau laser maximale (W/m²) */
real Ts;           /* Température de surface (K)*/
real  $\tau_L=25.e-9$ ; /* Durée d'impulsion laser (s)*/
real F=7e4;        /* Densité d'énergie du faisceau laser (J/m²)*/
real R=0.236;      /* Réflectivité du Titane à  $\lambda=248 \text{ nm}$ */
real Cp=700;       /* Capacité calorifique (J/Kg K)*/
real Rho=4608;     /* Densité (Kg/m³)*/
real diff=6.2 e-6; /* Diffusivité (m²/s)*/
real Pi=3.1416;
real T0=298;       /* Température ambiante (K)*/
real gamma=1.66;   /* taux de chaleur spécifique*/

face_t f;
fb=fopen("d:\\dense.txt","a");
time = RP_Get_Real("flow-time");
begin_f_loop(f,thread)
{
F_CENTROID(x,f,thread);
if(time>0 && time <=  $\tau_L$ )
{
if(x[1]<=r1)
{
I0= F / $\tau_L$ ;
Ts=T0+2*(1-R)*I0*sqrt(time)/(Rho*Cp*sqrt(Pi*diff));
F_UDMI(f,t,0)=Ts;
fprintf(fb,"%le\t %f\n",time,Ts);
}
}
fclose(fb);

F_PROFILE(f, thread, position)= F_UDMI(f,t,0);
}
end_f_loop(f, thread)
}

/*****
DEFINE_PROFILE (velocity, thread, position)
{
real x[ND_ND];
real time,I0;      /* Temps(s), Intensité du faisceau laser maximale (W/m²) */
real Ts,vel        /* Température de surface (K) et vitesse (m/s)*/
real  $\tau_L=25.e-9$ ; /* Durée d'impulsion laser (s)*/
real F=7e4;        /* Densité d'énergie du faisceau laser (J/m²)*/
real R=0.236;      /* Réflectivité du Titane à  $\lambda=248 \text{ nm}$ */
real Cp=700;       /* Capacité calorifique (J/Kg K)*/

```

```

real Rho=4608;      /* Densité (Kg/m³)*/
real diff=6.2 e-6; /* Diffusivité (m²/s)*/
real Pi=3.1416;
real T0=298;        /* Température ambiante (K)*/
real gamma=1.66;    /* taux de chaleur spécifique*/
real cbolz=1.38e-23; /* constante de boltzmann (J/K)*/
real Ma=48e-3;      /* Masse molaire du Titane (Kg/mole)*/
real rl=0.001;      /* Rayon de la tache focale du faisceau laser (m)*/

face_t f;
time = RP_Get_Real("flow-time");
begin_f_loop(f,thread)
{
    F_CENTROID(x,f,thread);
    if(time>0 && time<=tL)
    {
        if(x[1]<=rl)
        {
            I0= F /tL;
            Ts=T0+2*(1-R)*I0*sqrt(time)/(Rho*Cp*sqrt(Pi*diff));
            vel=sqrt(2*F_UDMI(f,t,0)*cbolz/(Ma*Pi));
        }
        F_PROFILE(f, thread, position)=vel;
    }
}
end_f_loop(f, thread)
}
/*****

DEFINE_PROFILE (pression, thread, position)
{
    real x[ND_ND];
    real time,I0;      /* Temps(s), Intensité du faisceau laser maximale (W/m²) */
    real Ts,press;     /* Température de surface (K)et la pression(Pa)*/
    real tL=25.e-9;    /* Durée d'impulsion laser (s)*/
    real F=7e4;         /* Densité d'énergie du faisceau laser (J/m²)*/
    real R=0.236;       /* Réflectivité du Titane à λ= 248 nm*/
    real Cp=700;        /* Capacité calorifique (J/Kg K)*/
    real Rho=4608;      /* Densité (Kg/m³)*/
    real diff=6.2 e-6; /* Diffusivité (m²/s)*/
    real Pi=3.1416;
    real T0=298;        /* Température ambiante (K)*/
    real gamma=1.66;    /* taux de chaleur spécifique*/
    real cbolz=1.38e-23; /* constante de boltzmann (J/K)*/
    real deltaH=6.83e-19; /* Enthalpie de changement de phase ( J/Kg)*/
    real Tvp=3560;      /* Température de vaporisation (K)*/
    real rl=0.001;      /* Rayon de la tache focale (m)*/
    face_t f;
    time = RP_Get_Real("flow-time");
    begin_f_loop(f,thread)
    {
        F_CENTROID(x,f,thread);
        if(time>0 && time<=tL)
        {
            if(x[1]<=rl)
            {
                I0= F /tL;
                press=exp(-deltaH*(F_UDMI(f,t,0)-Tvp)/(cbolz*
                    F_UDMI(f,t,0)*Tvp));
                F_UDMI(f,t,1)= press;
            }
        }
        F_PROFILE(f, thread, position)= F_UDMI(f,t,1)*1e5;
    }
}
end_f_loop(f, thread)

```

```

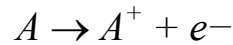
}
/*****
DEFINE_PROPERTY(cell_density, cell, thread)
{
  real rho;          /* Densité (Kg/m³) */
  real cbolz=1.38e-23; /* constante de boltzmann (J/K) */
  real Tvp=3560;      /* Température de vaporisation (K) */

  real temp = C_T(cell, thread);
  if (temp>=Tvp)
  {
    rho= F_UDMI(f,t,1)*1e5/( cbolz*temp);
  }
  return rho;
} ;

```

II.5.4 Ionisation du plasma

Dans le chapitre (I) nous avons parlé de la couche de vapeur appelée couche de Knudsen, qui se forme durant l'impulsion laser, où la température et la densité de la matière évaporée sont très élevées. La vapeur qui y est plus ou moins ionisée, constitue un plasma. En raison des collisions qui peuvent se produire entre les différentes particules, le plasma peut être considéré en équilibre thermodynamique local (ETL). Cela signifie qu'un équilibre thermique est établi entre les électrons, les ions et les neutres qui sont caractérisés par une température commune. Le degré d'ionisation, c'est-à-dire les fractions ionique et électronique peuvent être calculées par l'équation de Saha-Eggeart. (Eq (II. 14)), et pour illustrer sa mise en oeuvre, on représente sur la figure (11) la distribution des fractions ioniques des particules d'un plasma de Titane en fonction de la température. Le processus d'ionisation peut être décrit schématiquement par :



Dans le cas d'un gaz monoatomique, le plasma est principalement constitué des particules A, A⁺ et e⁻, définis par leur population N_0 , N^{+} et N_e respectivement, et par leur poids statistique g_0 , g^{+} , g_e respectivement. Ces grandeurs sont reliées entre elles par la relation de Saha-Eggeart :

$$\frac{N_e N(Z)}{N(Z-1)} = 6.1 \times 10^{21} \frac{g_l^Z}{g_n^{Z-1}} T_e^{3/2} \exp\left(-\frac{E_{\infty}^Z(n,l)}{T_e}\right) \quad (\text{II. 14})$$

N_e et T_e sont respectivement la densité électronique et la température électronique

$N(Z)$ et $N(Z-1)$ sont respectivement la densité ionique à l'état de charge (Z) et à l'état de charge $(Z-1)$.

g_n^{Z-1} est le poids statistique du niveau n à l'état de charge $(Z-1)$

g_l^Z est le poids statistique du niveau l à l'état de charge Z

$E_\infty^Z(n, l)$ est l'énergie d'ionisation

Pour calculer les fractions ioniques, on doit associer à l'équation de Saha-Eggert deux autres équations pour la conservation de la charge, et pour la conservation de la matière.

- la loi de quasi-neutralité de charge est donnée par: $N_e = \sum (N_i z_i)$
- La loi de la conservation de la matière s'exprime par: $N_T = \sum N_i$

A partir de l'équation de Saha, on montre sur la figure (11) les différentes courbes tracées pour une température du plasma donnée en considérant une densité de 10^{18} cm^{-3} . La proportion de chaque espèce (neutre et ionisée) en fonction de la température est représentée sur cette courbe.

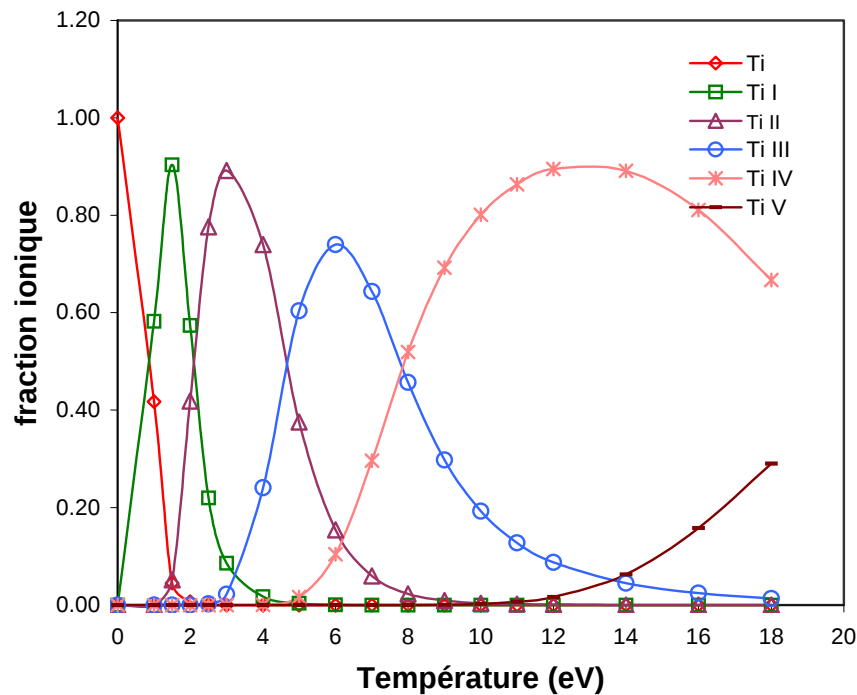


Fig (11) : Variation de la fraction ionique du plasma de Titane en fonction de la température.

II.5.5 Equations hydrodynamiques en absence du pulse laser

À la fin de l'impulsion laser, la vapeur métallique est déjà formée, les équations qui gouvernent la dynamique de celle-ci en présence du gaz ambiant restent les équations de conservation précédemment citées (II.7- II.9) additionnée de l'équation de conservation de l'espèce chimique donnée par :

$$\frac{\partial(\rho X_{Ti})}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \mathbf{v} X_{Ti}) = -\vec{\nabla} \cdot \mathbf{J}_{Ti} \quad (\text{II. 15})$$

$$\mathbf{J}_{Ti} = -\rho D_{Ti,m} \text{grad}(X_{Ti}) - D_{T,Ti} \frac{\text{grad}(T)}{T} \quad (\text{II. 16})$$

X_{Ti} et $D_{T,Ti}$ sont respectivement, la fraction de masse du plasma métallique et le coefficient de diffusion thermique du plasma de Titane dans le gaz ambiant. Le plasma de Titane se mélange au gaz ambiant par diffusion massique ou par convection thermique.

II.5.5.1 Conditions initiales et aux limites

Les conditions initiales sur la température et sur la fraction massique du Titane et celle du gaz ambiant présents dans la région proche de la surface sont respectivement $T_{i,Ti} = 28000K$, $X_{Ti}=1$ et $T_{i,Ar} = 300 K$, $X_{Ar}=0$. Dans le reste domaine de calcul la température est prise égale à T_{amb} et la fraction massique du Titane est $X_{Ti}=0$. La vitesse initiale de la vapeur du Titane est donnée par [81] : $V_{i,Ti} = 2/(\gamma-1) [\gamma k_B T_{i,Ti} / m_{at}]^{1/2} = 8898 \text{ m/s}$

Les conditions aux limites concernent les côtés b, c, d, e et a :

sur b : les températures suivent la condition $\frac{\partial T}{\partial z} = 0$

sur c et d : les températures suivent la condition $\frac{\partial T}{\partial z} = \frac{\partial T}{\partial r} = 0$

sur e : la condition du flux nul est appliquée $\frac{\partial T}{\partial r} = 0$

sur a : la condition du flux nul est imposée $\frac{\partial T}{\partial z} = \frac{\partial T}{\partial r} = 0$

Pour la résolution des équations hydrodynamiques, il est nécessaire de connaître les propriétés physiques des mélanges étudiés, telles que la conductivité thermique, la viscosité et la chaleur spécifique à la pression constante. Le tableau (2) rassemble ces propriétés pour l'Argon à l'état pur.

Gaz ambiant	Masse moléculaire M_{Ar} (Kg/mole)	Conductivité thermique K_{Ar} (W/m-K)	Viscosité μ_{Ar} (Kg/m-s)	Capacité calorifique Cp_{Ar} (J/Kg-K)	Densité ρ_{Ar} (Kg/m ³)
Argon	$39.94 \cdot 10^{-3}$	0.0158	$2.125 \cdot 10^{-5}$	520.64	1.6228

Tableau.2 Récapitulatif des propriétés physiques du gaz ambiant [27,17].

II.6 Transport des espèces chimiques

La méthode 'Species Transport' mise en oeuvre par le logiciel Fluent est utilisée pour modéliser le transport des espèces chimiques dans le mélange, avec ou sans réactions chimiques, en résolvant les équations décrivant la conservation de l'énergie, de diffusion, de réaction pour chaque espèce composant le mélange. La fraction massique de chaque espèce X_i dans l'équation de conservation (II. 15) est obtenue à partir de Fluent.

II.6.1 Diffusion massique dans les écoulements laminaires et turbulents

Dans l'équation (II. 16), J_i est le flux de diffusion des espèces i , qui augmente avec les gradients de concentration. On introduit les coefficients de diffusion de masse $D_{i,m}$ lors de la résolution des équations de transport des espèces. On calcule ainsi les flux de diffusion d'une espèce chimique J_i dans un écoulement laminaire en utilisant la loi de Fick:

$$J_i = -\rho D_{i,m} \nabla X_i \quad (\text{II. 17})$$

Les indices i et m correspondent respectivement à l'espèce i et à la masse m dans le mélange. Cette équation n'est valable que lorsque la composition du mélange ne varie pas, ou lorsqu'elle est indépendante de la composition. Il s'agit d'une approximation acceptable dans les mélanges dilués lorsque $X_i \ll 1$. Fluent peut aussi calculer le transport de mélanges non dilués dans le cas d'écoulements laminaires, dans le traitement de mélanges d'espèces multiples [17].

$$D_{i,m} = \frac{1 - X_i}{\sum_{j \neq i} (X_j / D_{ij})} \quad (\text{II. 18})$$

D_{ij} est le coefficient de diffusion binaire de l'espèce i dans l'espèce j .

Dans les écoulements turbulents, Fluent calcule la diffusion de masse sous la forme suivante:

$$J_i = - \left(\rho D_{i,m} + \frac{\mu_t}{Sc_t} \right) \nabla X_i - D_{T,i} \frac{\nabla T}{T} \quad (\text{II. 19})$$

Sc_t est le nombre de Schmidt pour les écoulements turbulents, et est égal à $\frac{\mu_t}{\rho D_t}$, où μ_t et D_t sont respectivement, la viscosité et la diffusivité turbulente.

Pour un mélange de plusieurs espèces, l'enthalpie de transport due à la diffusion des espèces est donnée par:

$$\nabla \cdot \left[\sum_{i=1}^n h_i J_i \right] \quad (\text{II. 20})$$

II.6.2 Définition des propriétés physique de la mixture

Le module de Fluent *Species transport*, incluant les espèces chimiques, nécessite la définition des propriétés physiques pour le mélange telles que:

- La densité, qui peut être définie en utilisant la loi des gaz parfaits.
- La viscosité, la conductivité thermique et la chaleur spécifique à pression constante qui doivent être définies en fonction de la composition.
- Les coefficients de diffusion massique.

a- Densité du mélange

Pour résoudre l'équation de transport des espèces, les densités du mélange d'une part, et d'autre part, celle des gaz (plasma et ambiant) séparément doivent être définies. Pour les écoulements compressibles, la loi des gaz à la forme suivante:

$$\rho = \frac{p_{op} + p}{R_{gaz} T \sum_i \frac{X_i}{M_i}} \quad (\text{II. 21})$$

p est la pression locale, R_{gaz} est la constante des gaz parfaits, X_i est la fraction massique de l'espèce i , M_i est la masse moléculaire de l'espèce i , et p_{op} est la pression dans les conditions opératoires (égale à la pression du gaz ambiant).

b- Conductivité thermique du mélange

Dans le module de transport des espèces, la conductivité thermique du mélange est fonction de la composition des espèces. Elle peut avoir une valeur constante ou être une fonction de la température. Si on utilise la loi d'un gaz idéal, le solveur Fluent calcule la conductivité thermique du mélange basé sur la théorie cinétique comme

$$K = \sum_i \frac{X_i K_i}{\sum_j X_j \phi_{ij}} \quad (\text{II. 22})$$

$$\phi_{ij} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_i}{\mu_j} \right)^{1/2} \left(\frac{M_j}{M_i} \right)^{1/4} \right]^2}{\left[8 \left(1 + \frac{M_i}{M_j} \right) \right]^{1/2}} \quad (\text{II. 23})$$

X_i et X_j sont respectivement la fraction molaire de l'espèce i et j .

M_i et M_j sont respectivement le poids moléculaire de l'espèce i et j

μ_i et μ_j sont respectivement la viscosité de l'espèce i et j

c- Capacité spécifique du mélange

$$Cp = \sum_i X_i Cp_i \quad (\text{II. 24})$$

Cp_i , est la capacité spécifique à pression constante lié à l'espèce i

d- Viscosité du mélange

$$\mu = \sum_i \frac{X_i \mu_i}{\sum_j X_j \phi_{ij}} \quad (\text{II. 25})$$

$$\phi_{ij} = \frac{\left[1 + \left(\frac{\mu_i}{\mu_j} \right)^{1/2} \left(\frac{M_j}{M_i} \right)^{1/4} \right]^2}{\left[8 \left(1 + \frac{M_i}{M_j} \right) \right]^{1/2}} \quad (\text{II. 26})$$

CHAPITRE III

RESULTATS DE LA MODELISATION

Après avoir détaillé dans la première partie du chapitre (II), le modèle numérique employé lors de la modélisation de l'interaction laser-cibles solides, nous présentons dans ce chapitre, les résultats obtenus, qui concernent la détermination de l'évolution temporelle et spatiale des du champ de température $T(r,z,t)$, ainsi que les dimensions du domaine fondu dans le matériau, en faisant varier la densité d'énergie du laser (Fluence).

III.1 Résultats de la modélisation de l'interaction laser-cible

III.1.1 Evolution spatiale et temporelle de la température

Les principaux résultats numériques de la première partie de la modélisation de l'interaction laser-cible sont présentés dans ce chapitre. L'essentiel des résultats concerne l'évolution de la température en fonction du temps, ainsi que les résultats de l'évolution de la température dans la direction du faisceau laser. Pour visualiser la distribution de la température $T(r, z, t)$ dans l'espace et à différents instants, on représente comme montré sur la figure (11) pour un temps donné l'évolution de la température suivant r et z . On note que sur le segment ($z=0$ et $0 < r \leq r_0$) atteint par le faisceau laser focalisé, où le maximum d'énergie est déposé, que la température la plus élevée y est atteinte. On s'intéresse au comportement temporel de ce segment, pour voir l'évolution de la température maximale, représentant la température de surface.

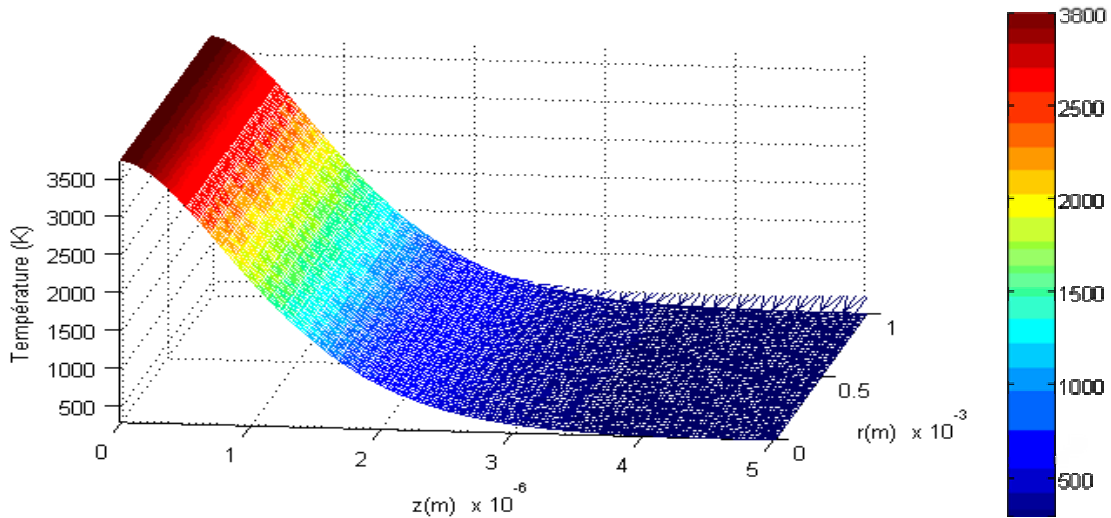


Fig (11) : Distribution de la température dans la cible du Titane à 25 ns, l'irradiance laser est de 120 MW/cm^2 . Le rayon gaussien est $r_0 = 1 \text{ mm}$, La durée de l'impulsion laser $\tau_L = 25 \text{ ns}$

III.1.1.1 Effet de la densité d'énergie du laser

III.1.1.1.a : Sur l'évolution spatiale de la température.

L'évolution spatiale du champ de température $T(r, z)$ dans une cible de Titane qui a été soumise à une impulsion laser focalisée, est étudiée juste après l'arrêt du pulse laser d'une durée $\tau_L = 25 \text{ ns}$. On montre sur les figures (12a et 12b) cette évolution pour trois densités d'énergies différentes. Il apparaît clairement sur la figure (12a), que quelle que soit la densité d'énergie imposée, la profondeur atteinte thermiquement durant le pulse laser est presque identique ($\sim 0.4 \mu\text{m}$).

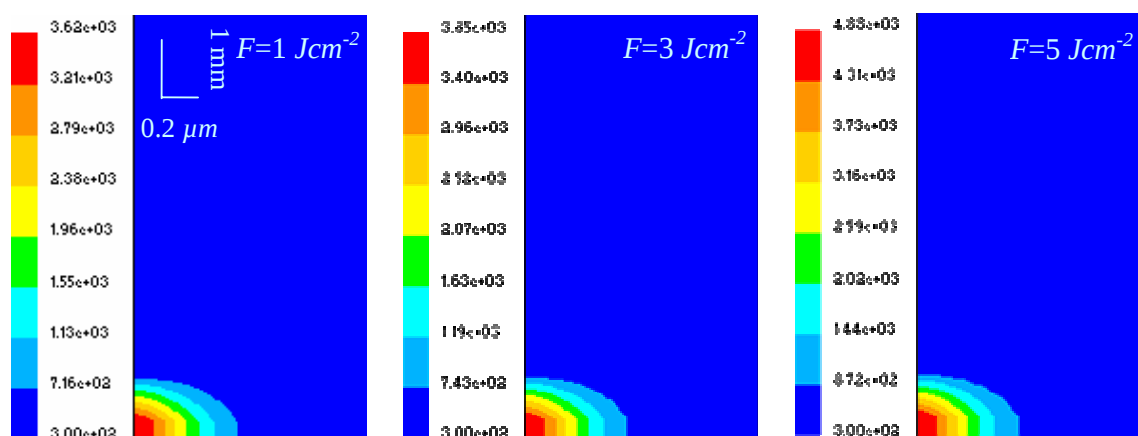


Fig (12a) : Distribution spatiale de la température dans la cible de Titane au cours de l'irradiation laser, de durée $\tau_L = 25 \text{ ns}$, pour trois densités d'énergies différentes.

Alors qu'après l'arrêt du pulse laser, pour une même densité d'énergie, la température dans le matériau diminue, car l'énergie déposée se dissipe dans la cible sur une longueur de diffusion thermique plus grande. La dimension et la forme évoluent dans le temps, comme montré sur la figure (12b).

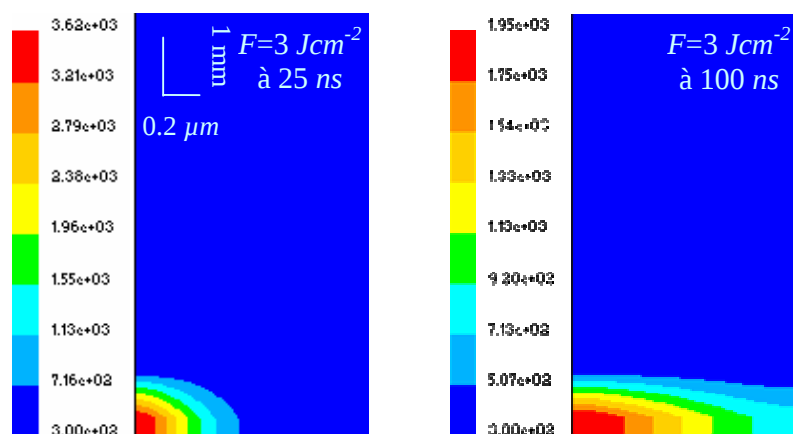


Fig (12b) : Evolution spatiale et temporelle de la température dans la cible de Titane

La distribution spatiale de la température dans la cible, juste après la fin de l'impulsion laser, pour quatre différentes fluences, est représentée sur la figure (13). On note que la température atteint son maximum à la surface ($z=0$) et diminue suivant la profondeur dans la cible. La température varie linéairement avec la fluence laser. En suivant la ligne horizontale en pointillés, représentant la température de fusion du Titane ($T_{fus}=1941\text{ K}$), on constate que la profondeur de la zone fondue est plus importante dans la cible pour les fluences les plus élevées.

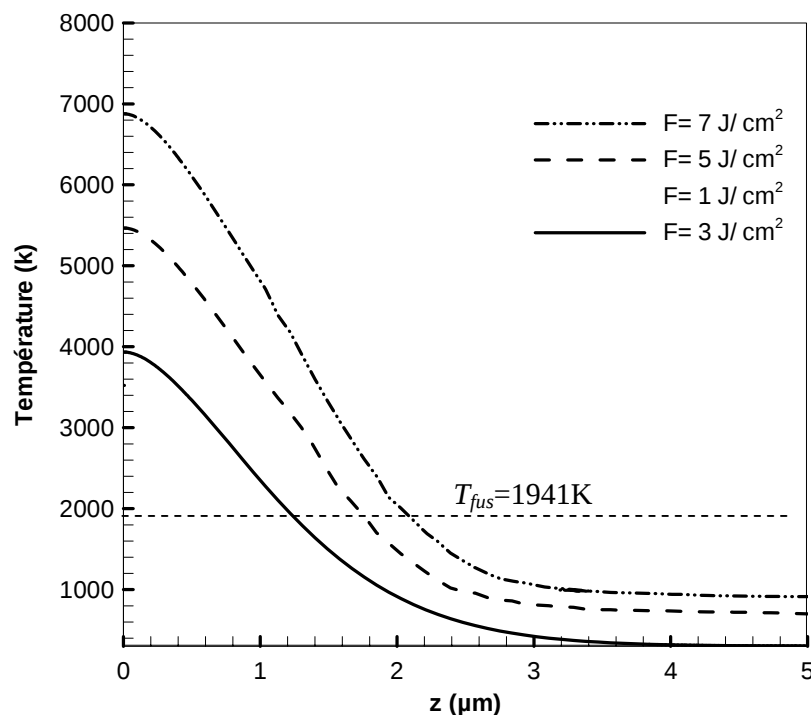


Fig (13) : Evolution de la température en fonction de la profondeur de la cible à $t=25\text{ ns}$, pour différentes fluences laser, dans les mêmes conditions données dans la figure (11)

La distribution spatiale de la température dans la cible durant et après le pulse laser représentée sur la figure (14) permet de déduire la profondeur fondue à chaque instant. Les températures diminuent en fonction du temps, et l'on note que cette diminution est plus prononcée à 25 ns . En effet, la valeur obtenue pour la température est beaucoup plus élevée comparativement aux autres instants correspondant à l'après pulse laser, car l'impulsion laser provoque le chauffage de la matière évaporée, et pour les autres temps, l'impulsion laser n'existant plus, une baisse de la température se produit. A l'aide de la ligne en pointillé, on peut indiquer à chaque temps la profondeur de la zone fondue.

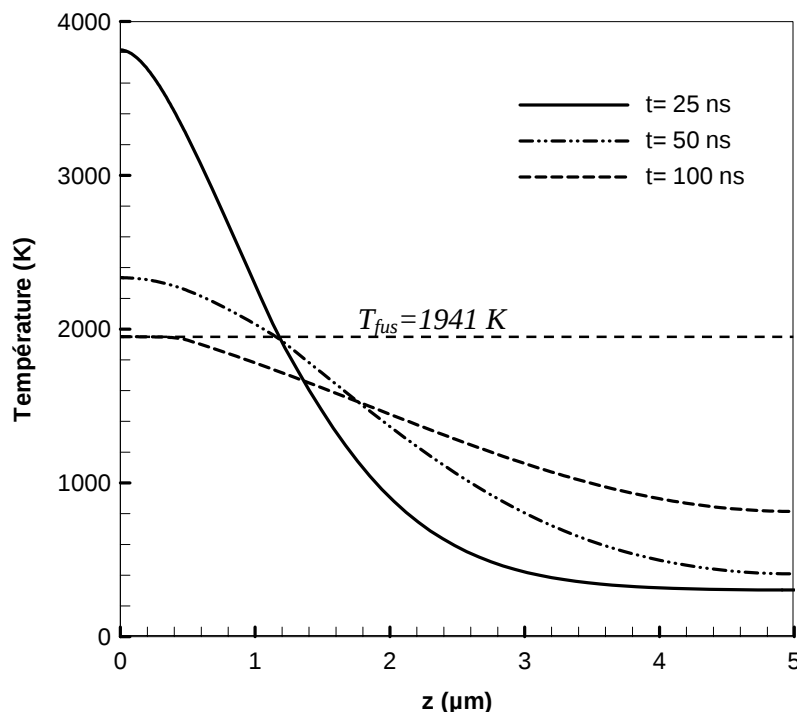


Fig (14) : Evolution de la température en fonction de la profondeur de la cible pour une irradiance de 120 MW/cm^2 durant et après le pulse laser. La ligne en tirets indique la température de fusion du Titane.

III.1.1.1.b: Sur l'évolution temporelle de la température

L'effet de la fluence du laser sur le comportement temporel de la température de surface ($z=0$) du Titane calculé à partir du modèle numérique, durant et après le pulse laser, est représenté sur la figure (15 a). On constate que pour différentes valeurs de la fluence du laser, initialement la température de surface augmente rapidement durant l'impulsion laser (25 ns), puis décroît graduellement jusqu'à la température ambiante. Dès que la température de changement de phase est atteinte, il apparaît un plateau dans la courbe d'évolution de la température, qui est dû à l'absorption ou au dégagement de chaleur provoqué par l'enthalpie de changement de phase au point de fusion. Ce comportement se produit, quand la température de surface est égale à la température de fusion du matériau. La température maximale est atteinte durant l'impulsion laser, en effet lorsque aucune énergie incidente n'intervient, les gradients de température diminuent par simple diffusion thermique, et l'étape du refroidissement est plus lente à la fin de l'impulsion laser. La température de surface suit une variation linéaire avec la fluence du laser. Sur la courbe (15 b), on présente les résultats de calculs de la température de surface de la relation analytique (I. 17) en fonction du temps durant et après le tir laser, pour différentes densités d'énergies donnée par Hermann [5]. On

constate une ressemblance dans le comportement de la température de surface, et on remarque l'absence du palier de changement de phase liquide-solide, parce que dans ce calcul, on n'a pas tenue compte de l'enthalpie de changement de phase au point de fusion.

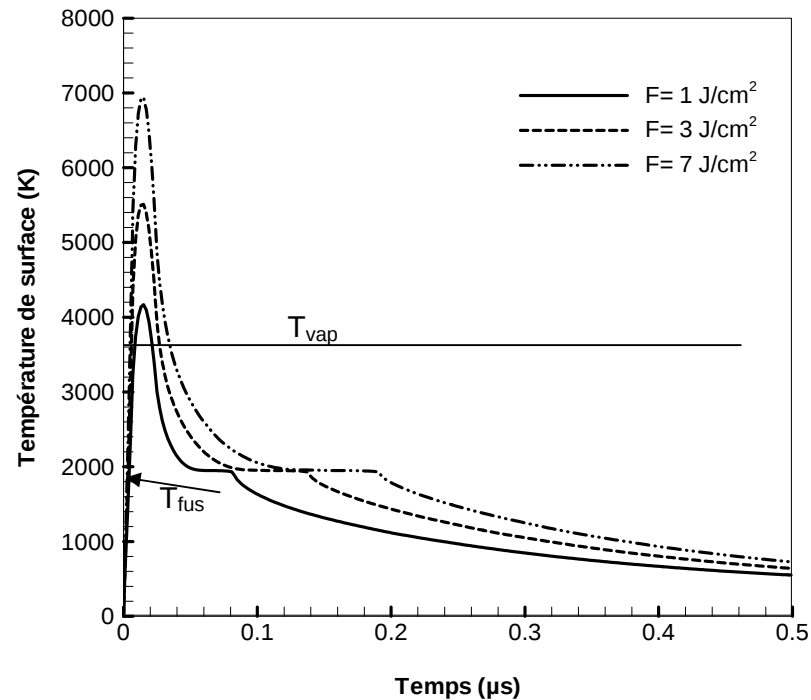


Fig (15 a) : Comportement temporel de la température de surface du Titane pour différentes valeurs de la fluence laser, dans les mêmes conditions données dans la figure (11)

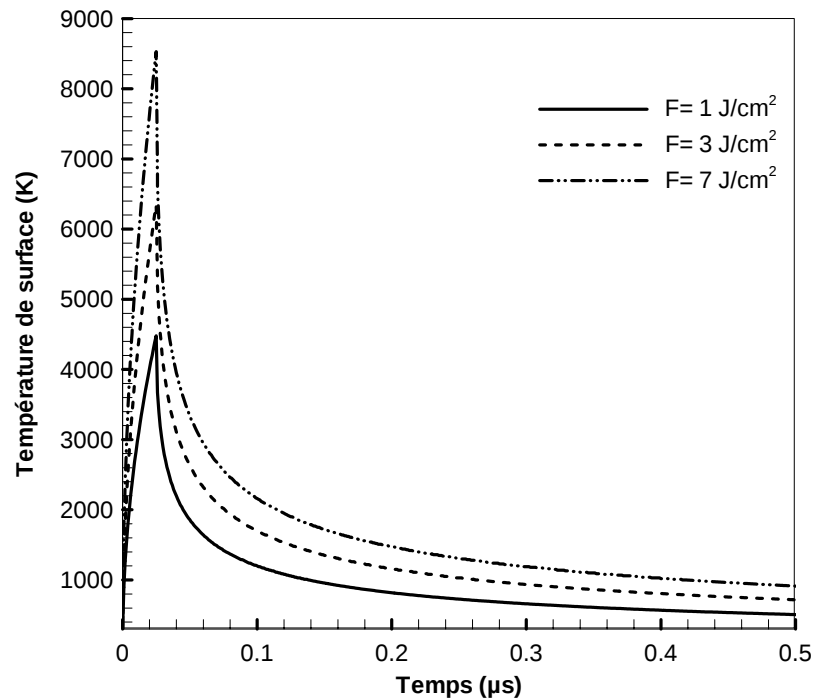


Fig (15 b) : Evolution temporel de la température de surface du Titane pour différentes valeurs de la fluence laser modèle analytique de [5]

Sur la figure (16), on montre le comportement temporel de la température dans la cible en trois points différents. A la surface de la cible en $z=0$, et en $r=0$, la température maximale est rapidement atteinte, car ce point correspond au maximum d'énergie du faisceau laser. Quant aux deux autres points situés légèrement en profondeur en $z=1\mu m$ et en $z=0.5\mu m$, pour $r=0$, on constate qu'ils subissent un échauffement par diffusion thermique, et ne sont pas atteint directement par l'énergie du faisceau laser. En effet, cela s'explique car la profondeur de pénétration d'un faisceau laser de type KrF vaut $0.0163\mu m$ pour le Titane. On remarque, ce qui paraît normal, que le point central ($z=0$), recevant le plus d'énergie, est le premier point à fondre et le dernier à se solidifier. Il est alors possible de déduire du comportement de ce point, que la température évolue plus lentement après l'impulsion laser d'une part, parce que l'énergie reçue est en partie consommée par le changement d'état et d'autre part à cause de l'augmentation de la réflectivité lors du passage de la phase solide à la phase liquide.

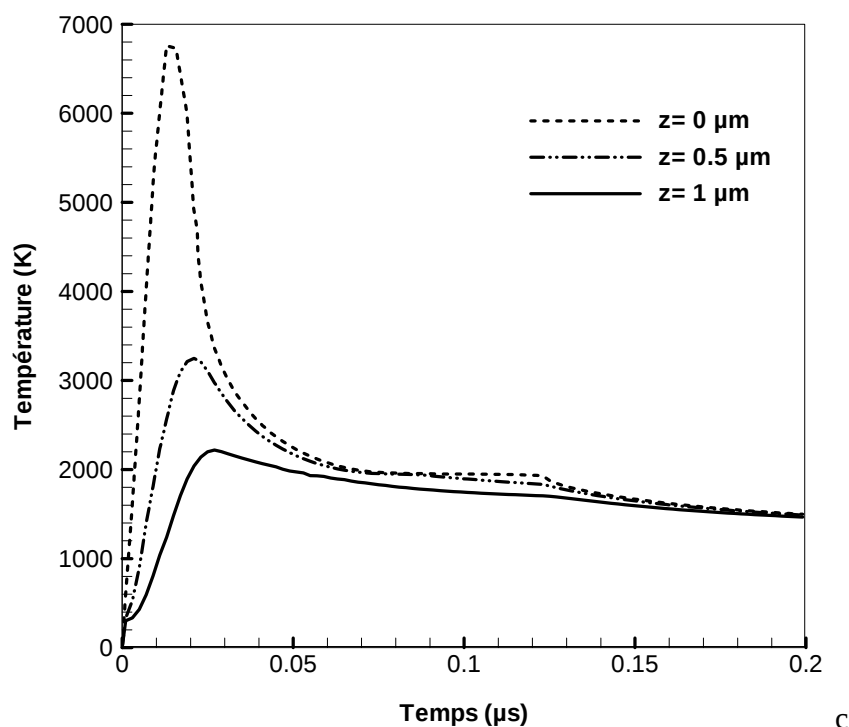


Fig (16) : Comportement temporel de la température de Titane pour différentes profondeurs en $r=0\text{ mm}$ et pour les mêmes conditions données dans la figure (11)

Durant l'impulsion laser, la plus grande partie de l'énergie est déposée dans la région d'absorption confinée de longueur de pénétration l_p . Le mécanisme de transport de la chaleur est fortement influencé par la conduction thermique dans cette région. On montre sur la figure

(17), que la température de surface varie quasi-linéairement avec la fluence laser, et on montre aussi l'influence de la fluence sur la profondeur du matériau fondu. La profondeur de fusion est fortement influencée par la densité d'énergie laser, son évolution n'est pas exactement linéaire, parce que la vapeur absorbe par effet d'écrantage, une partie de l'énergie du faisceau laser.

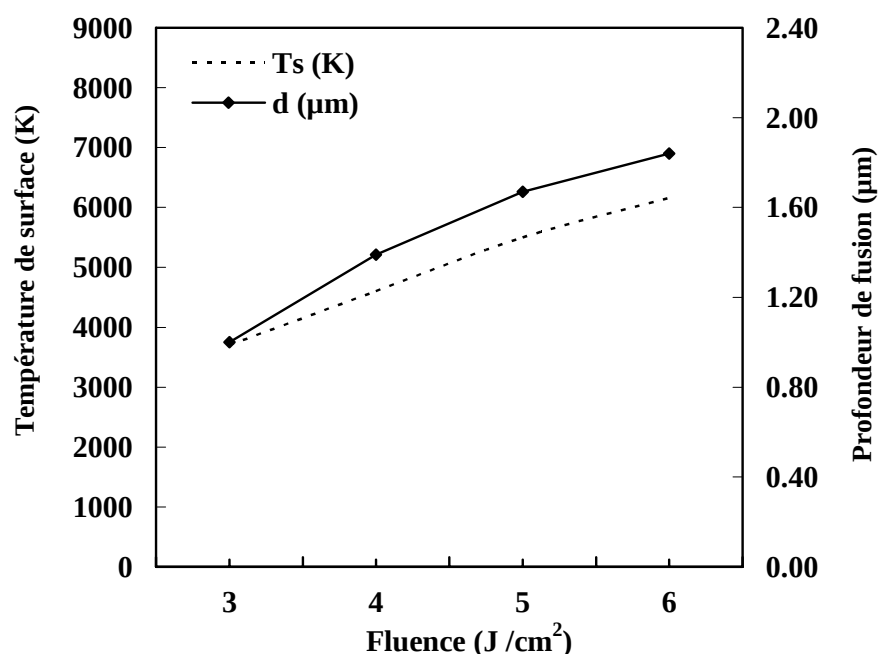


Fig (17): Température de surface et profondeur de fusion en fonction de la fluence laser à 25 ns.

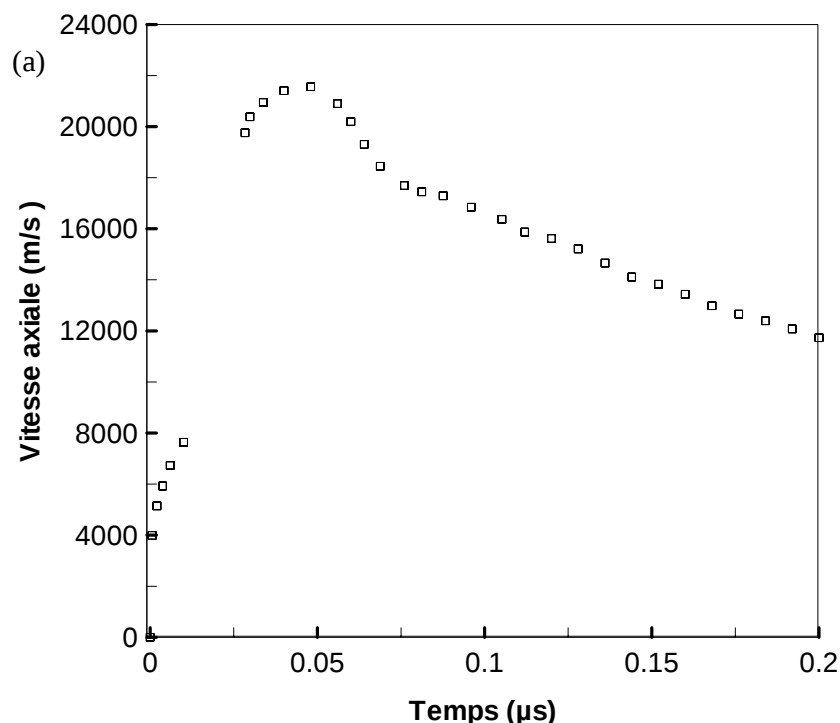
III.2 Résultats de la Modélisation de la formation et de l'expansion du plasma

Nous avons détaillé dans le Chapitre II, le modèle numérique utilisé pour l'étude de la formation et de la dynamique du panache de vapeur lors du procédé d'ablation laser. Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous présentons les résultats obtenus, qui concernent l'évolution temporelle et la distribution spatiale des paramètres de la plume de vapeur lors de sa formation et l'influence de la pression du gaz environnant sur :

- la dynamique du panache.
- l'évolution temporelle et spatiale de la température du plasma.
- l'évolution temporelle et spatiale de la densité du plasma.

III.2.1 Formation de la vapeur

L'évolution temporelle des paramètres de vapeur (température et densité) ainsi que la vitesse axiale de la formation de celle-ci, durant et après l'impulsion laser, pour une densité de puissance laser de 280 MW/cm^2 et une pression d'Argon de 70 Pa est présentée sur les figures (18). Sur la figure (a), on remarque que durant le pulse laser la vitesse axiale d'éjection de la vapeur est sonique, dépend de la température de surface du matériau. Juste à l'arrêt du pulse, la vapeur subit une forte expansion et atteint une valeur de $2.1 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ durant quelques dizaine de nanoseconde, puis la vitesse de l'expansion diminue au cours du temps, lorsque la plume de vapeur rencontre le gaz ambiant. Sur la figure (b), on montre l'évolution dans le temps de la température de la plume de vapeur, elle augmente durant le pulse laser, et continue à s'élever durant quelques nanoseconde après l'arrêt du pulse, puis décroît à cause du refroidissement qu'elle subit lorsque elle est en contact avec le gaz ambiant. Pour la densité de particules, on montre sur la figure (c), qu'elle augmente durant la formation de la plume vapeur, puis elle diminue dès l'arrêt du pulse laser.



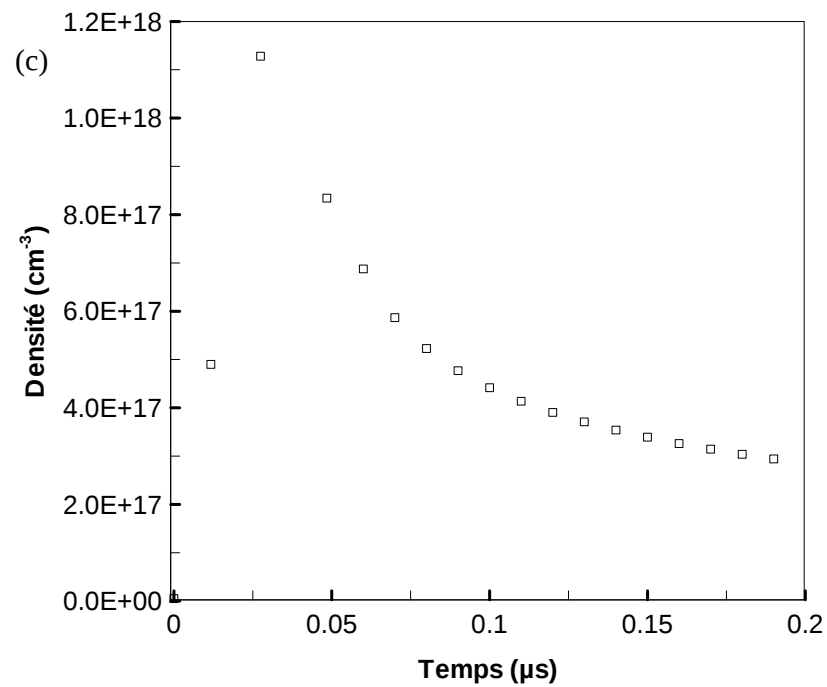
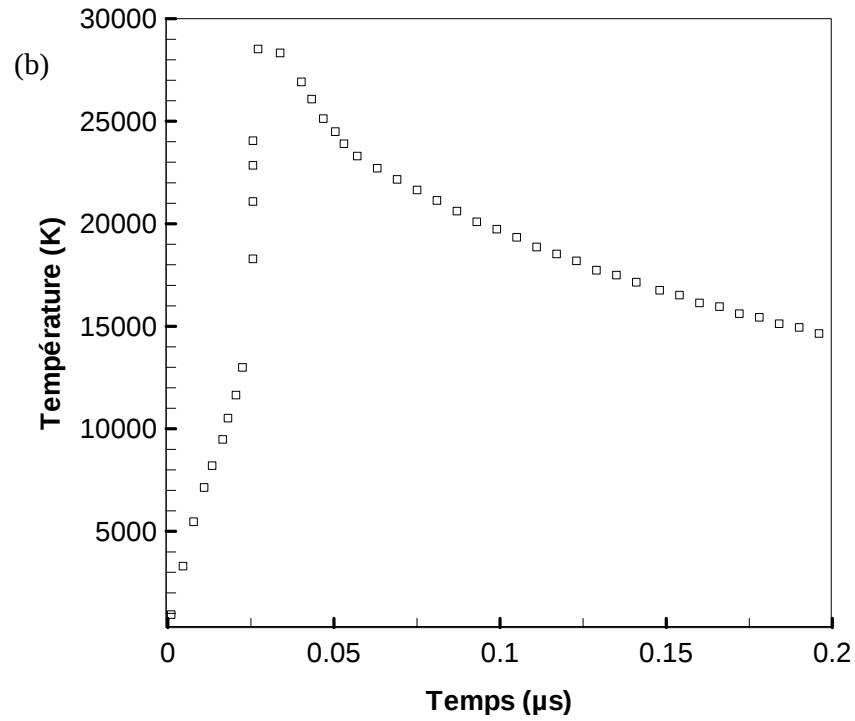
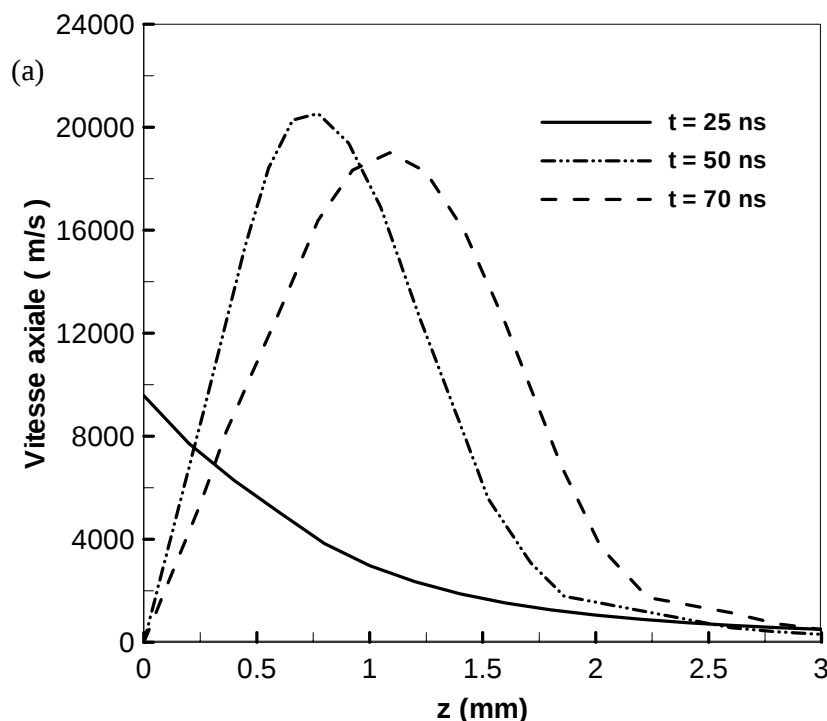


Fig (18): Evolution de la vitesse axiale, de la température et de la densité de la plume de vapeur durant et à l'extinction du pulse laser, pour une densité d'énergie de $F = 7 J/cm^2$ et une durée d'impulsion $\tau_L = 25 ns$

Les figures (19) montrent la distribution de la vitesse, de la température et de la densité dans la direction axiale de la plume de vapeur pour différents temps. La vitesse dans la plume de vapeur figure (19 a) est plus importante pendant quelques nanosecondes après l'arrêt du pulse laser, les valeurs les plus grandes sont situées au milieu de la plume de vapeur, elles atteignent une valeur maximale de $2 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ à 50 ns et $1.8 \cdot 10^4 \text{ m/s}$ à 70 ns . Près de la cible la vitesse diminue dans le temps. La distribution de la température dans la plume de vapeur est présentée sur la figure (19 b) elle sont de l'ordre de 2.1 à 2.5 eV , elle diminue légèrement en fonction du temps. Cette chute de température est la plus prononcée juste après l'arrêt du pulse laser. En effet, durant les 25 ns , la valeur calculée de la température est beaucoup plus élevée qu'en temps plus tard. A 50 ns et 70 ns , on remarque une baisse de température dans la plume, ce qui est dû à l'extinction du laser et à l'expansion de la plume. Sur la figure (19 c), on présente la distribution de la densité de la vapeur. Durant le pulse laser (25 ns), la vapeur formée est très dense ($\sim 9.2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$) et se situe près de la cible, elle diminue progressivement en fonction de la distance dans la plume et diminue rapidement au fil du temps à cause de la détente de la plume de vapeur.



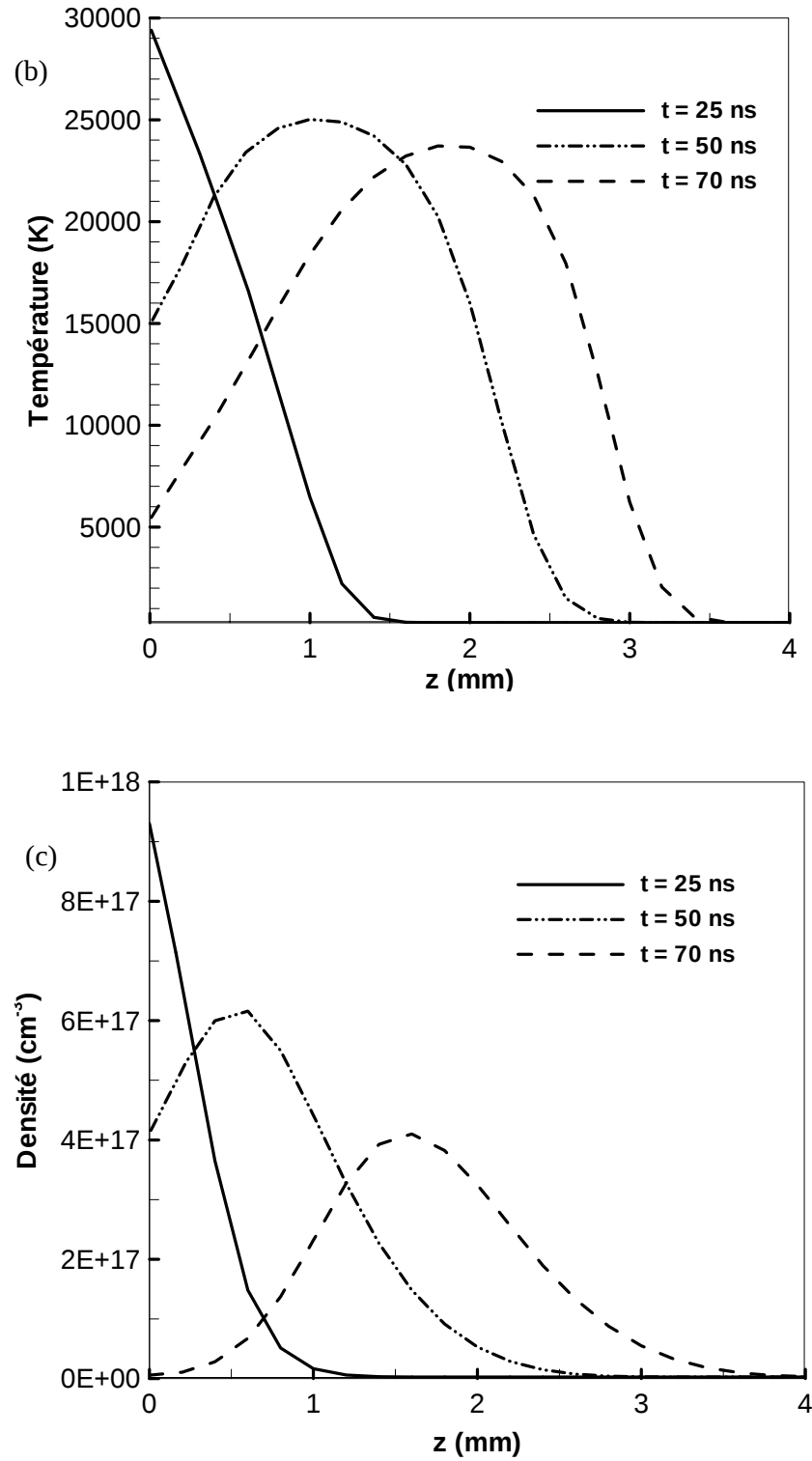


Fig (19): Distribution de la vitesse axiale, de la température et de la densité dans la plume de vapeur durant et à l'extinction du pulse laser, pour une densité d'énergie de $F = 7 \text{ J/cm}^2$ et une durée d'impulsion $\tau_L = 25 \text{ ns}$

III.2.2 Influence de la pression du gaz ambiant

III.2.2.1 Sur la dynamique du panache de vapeur

Des calculs d'expansion de vapeur de Titane sous atmosphère d'Argon à des pressions inférieures à la pression atmosphérique ont été effectués. On montre sur la figure (20), des séquences de distribution des espèces durant 1 μ s pour différentes pressions, 13 *Pa* (a), 70 *Pa* (b), 100 *Pa* (c), et 10³ *Pa* (d). La densité d'énergie est de 7 *J/cm*².

Diverses interprétations peuvent être données sur les changements de comportement et donc de l'influence de la pression sur la taille et la forme du plasma. La première remarque sur les effets observés lors de l'expansion de la plume, est qu'aux faibles pressions 13 *Pa*, le front du panache de vapeur prend une forme sphérique au premiers instants (<300 *ns*), et lorsque le temps évolue, ce dernier s'allonge et devient elliptique. Cette forme est due à l'énergie cinétique élevée des particules émise dans la direction axiale. Un autre effet de la pression, visible sur la figure (20), est lié à l'évolution du libre parcours moyen qui est inversement proportionnel à cette dernière, ce qui a pour conséquence d'augmenter les distances d'expansion du panache, quand la pression diminue. On remarque aussi que l'interface plasma-gaz ambiant est bien apparente pour les différentes pressions utilisées. Pour des pressions de l'ordre de 70 et 100 *Pa*, un confinement des particules se produit au cours de l'évolution, et ce dernier est très remarquable pour une pression de l'ordre de 1000 *Pa*, ce qui est en conformité avec les observations expérimentales données par S.S. Chu et *al* [35].

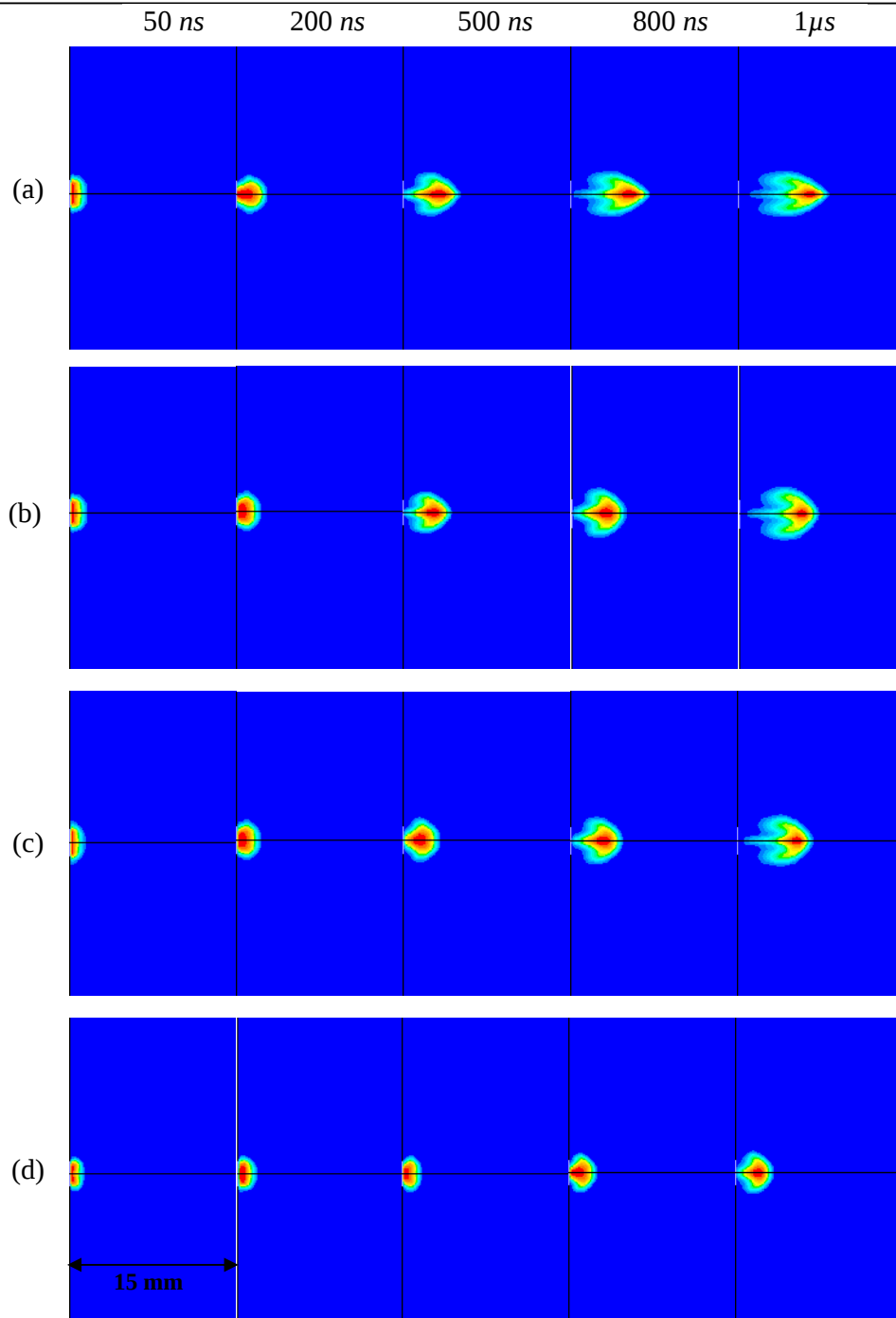


Fig. (20) Chronologie de la distribution de la fraction massique du Titane à différente pression 13 Pa (a), 70 Pa (b), 100 Pa (c) et 10^3 Pa (d), pour une densité d'énergie de 7 J/cm^2

Sur la figure (21), on présente les courbes position-temps ($z-t$), qui montrent la distance d'observation du front de la plume en fonction du temps pour une irradiance laser, $I = 280 \text{ MW/cm}^2$ ($= 7 \text{ J/cm}^2$) à différentes pressions (13 Pa, 70 Pa, 100 Pa et 10^3 Pa), ainsi que des modèles décrivant la dynamique de l'expansion de la vapeur en présence d'Argon. On note

qu'après la fin du pulse laser, pour une pression d'Argon de l'ordre de 13 Pa, et pour des temps inférieurs à 600 ns, la vapeur formée se détache de la cible en subissant une forte expansion libre. La figure illustre bien cette linéarité, et la propagation se fait avec une vitesse constante estimée à 10^4 m/s. La ligne droite représente la courbe de tendance de l'évolution $d \propto t$. On observe un ralentissement du panache de vapeur pour des temps supérieurs à 600 ns, et le panache qui continue à se propager dans le gaz ambiant, provoque la formation d'une onde de choc, à cause de la différence entre la pression du plasma et celle du gaz ambiant. L'expansion est alors décrite par ce que l'on appelle le modèle d'onde de choc (blastwave model) [15, 9], et la position d de son front suit en fonction du temps la loi $d \propto 0.3677 t^{0.4327}$, lorsque la pression d'Argon est de 13 Pa. Tandis que pour des pressions d'Argon situées entre 70 Pa et 100 Pa, le front de l'onde de choc suit la loi $d \propto 0.39507 t^{0.38}$ lorsque le temps varie entre 500 et 1000 ns, pour des temps supérieurs, la plume subit un ralentissement et sa dynamique est décrite par le modèle de force de viscosité. Pour une pression plus élevée égale à 10^3 Pa, un autre phénomène a été observé sur la courbe $z-t$, consistant en un ralentissement dès le début de l'expansion du panache après l'arrêt du pulse laser. On note par ailleurs, un arrêt d'expansion de la vapeur à partir de 2.5 μs , qui est dû à l'égalité entre les pressions d'Argon et de vapeur métallique. Les particules d'Argon vont donc diffuser dans la vapeur provoquant son arrêt, et cette dynamique est régit par ce que l'on appelle un modèle de force de viscosité (drag force model) [15], définie dans le chapitre I, par : $d = \chi_f [1 - \exp(-\beta t)]$, où χ_f est la distance d'arrêt de la plume et β le coefficient de freinage. Les paramètres de la courbe de tendance (fit) sont : $\chi_f = 5.21$ mm et $\beta = 1.919 \cdot 10^{-3}$ (ns^{-1}) ces ordres de grandeurs sont vérifiés expérimentalement par les travaux de [35].

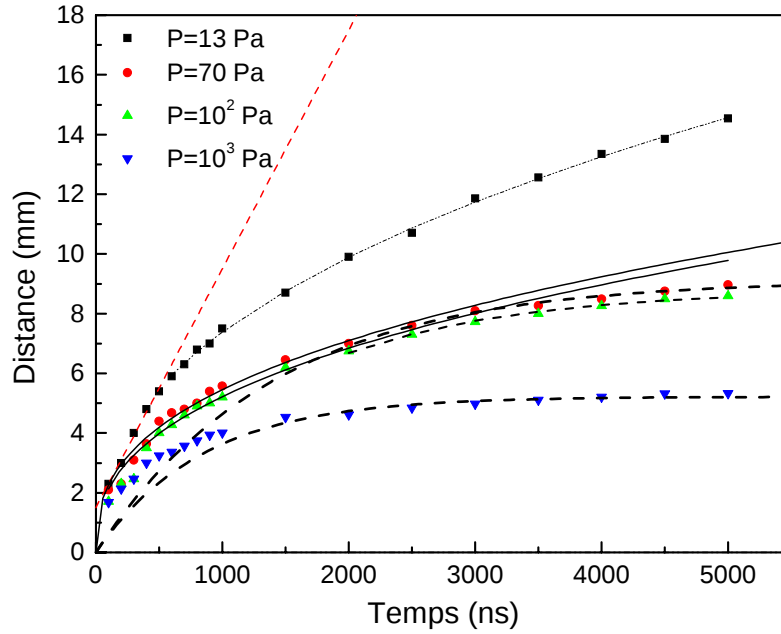


Fig (21): Evolution du front de la plume au cours du temps, pour différentes pressions de l'Argon. La ligne discontinue (rouge) représente l'ajustement numérique (fit) de l'expansion libre ($d \propto t$), les courbes en continue représentent l'ajustement numérique du modèle d'onde de choc ($d \propto t^{0.4327}$) lorsque $P = 13 \text{ Pa}$, ($d \propto t^{0.386}$) lorsque $P = 70$ et 100 Pa . Les courbes discontinues correspondent à l'ajustement numérique du modèle de forces de viscosité $P = 70, 10^2$ et 10^3 Pa ,

III.2.2.2 Sur l'évolution temporelle et spatiale de la température du plasma

On présente sur la figure (22) les résultats de la modélisation montrant l'évolution temporelle de la température des particules du plasma de Titane pour une série de distance prise entre 1 et 5 mm de la surface de la cible, à la position radiale $r = 0 \text{ mm}$. La densité d'énergie laser est de 7 J/cm^2 et la pression d'Argon de 13 Pa . On note qu'aux premiers instants, la température augmente rapidement, et varie entre 0.1 et 1.2 eV (pour rappel $1 \text{ eV} = 1.1604 \cdot 10^4 \text{ K}$), et que sa valeur maximale est atteinte durant le pulse laser. A la fin du pulse, l'énergie thermique emmagasinée dans la vapeur est convertie en énergie cinétique, et les particules du plasma diffusent alors dans le gaz ambiant qui est à une température initiale égale à 300 K . On observe un refroidissement du plasma, dû à l'extinction du pulse laser, aux distances z plus grandes. Ce résultat est confirmé par une étude développée par M.L.Sentis et al [29].

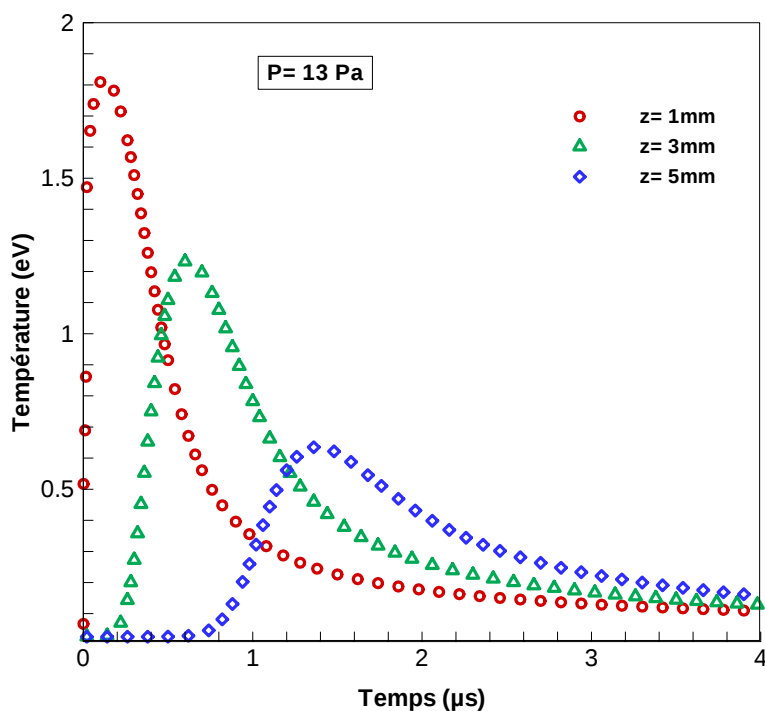


Fig (22): Evolution temporelle de la température du plasma de Titane pour différentes distances par rapport à la cible, et pour une atmosphère d'Argon de 13 Pa

Pour une pression d'Argon supérieure (70 Pa, 100 Pa et 1000 Pa), on montre sur les figures (23), (24) et (25) pour les mêmes paramètres donnés dans la figure (20), l'évolution de la température du plasma en fonction du temps. Pour la distance ($z=1mm$) proche de la cible, le panache de vapeur ne ressent pas la présence du gaz ambiant d'où la ressemblance dans la distribution de la température comme montré sur les figures (22-25). Un ralentissement de la propagation du plasma est observé, à cause de la pression du gaz ambiant, et une baisse de la température est également observée au cours du temps. Celle-ci est causée par la diffusion du plasma dans l'Argon (qui était à une température initiale de 300 K).

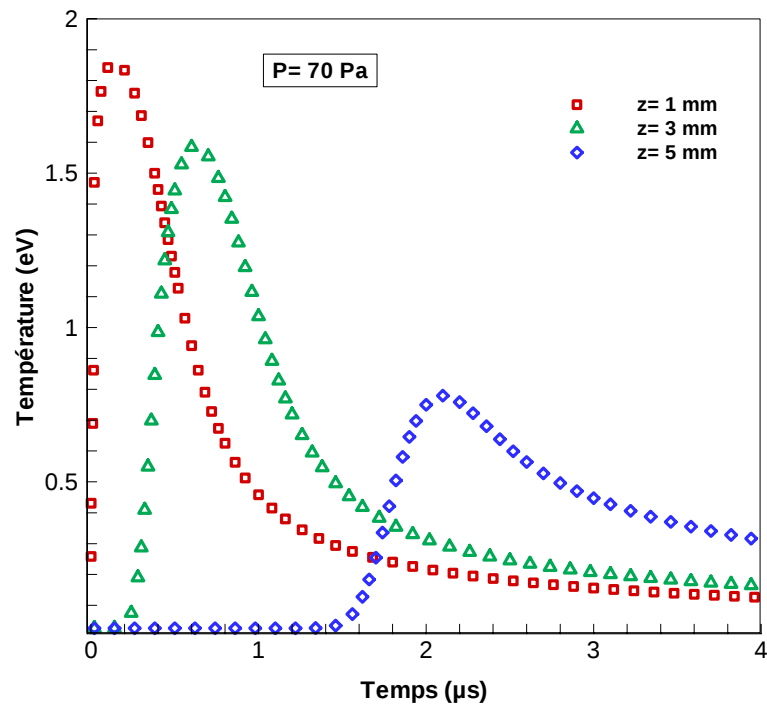


Fig (23): Evolution temporelle de la température du plasma de Titane pour différentes distances par rapport à la cible, et pour une atmosphère d'Argon de 70 Pa

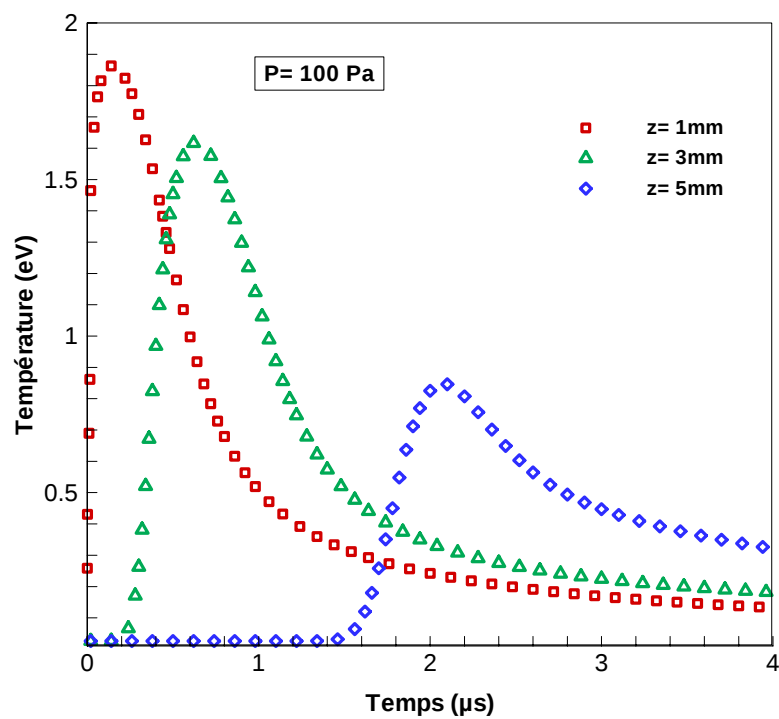


Fig (24): Evolution temporelle de la température du plasma de Titane pour différentes distances par rapport à la cible, et pour une atmosphère d'Argon de 100 Pa

Lorsque la pression du gaz ambiant est encore plus importante, la propagation de la plume de vapeur est plus ralentie et celle-ci mis $3\mu s$ pour atteindre la position $z=5mm$.

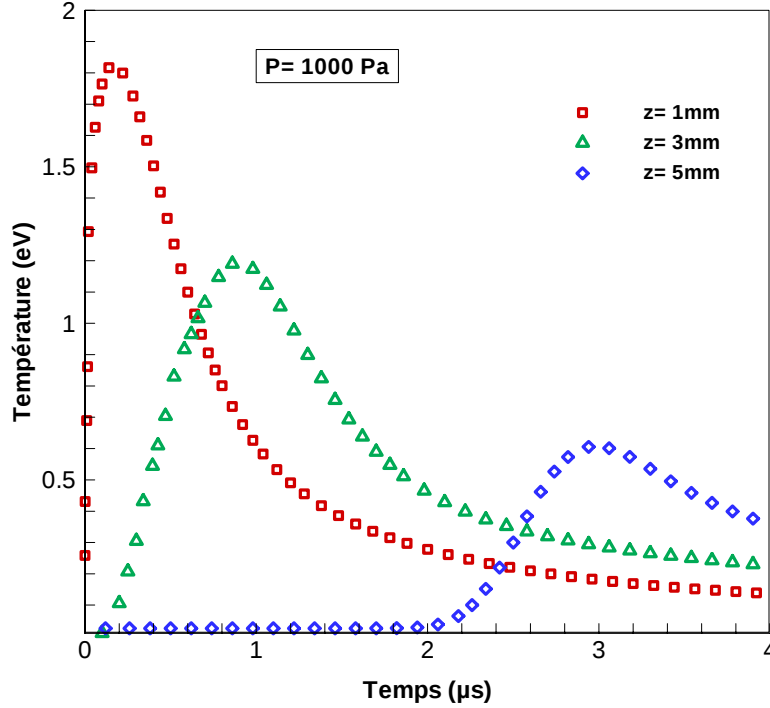


Fig (25): Evolution temporelle de la température du plasma de Titane pour différentes distances par rapport à la cible, et pour une atmosphère d'Argon de $10^3 Pa$

Sur les courbes présentées sur la figure (26), les résultats montrent que la température du plasma croît avec la pression du gaz ambiant. Ce phénomène s'explique par le fait que le coefficient d'absorption du plasma augmente avec la pression, et que donc les effets d'écrantage, dus à cette dernière, apparaissent plus tôt, ce qui rend le plasma plus chaud. L'énergie laser atteignant la cible varie donc de manière inversement proportionnelle à la pression, et dans une étude similaire [24], on a constaté ce phénomène. La détermination de la température moyenne du plasma (figure (26)) est calculé par la division de la sommation du produit de la variable ϕ (température ou densité) et le volume de la cellule par le volume total des cellules ayant une température supérieur à la température ambiante selon la relation [17]:

$$\phi_{moy} = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^N \phi_i |V_i|$$

ϕ_{moy} , V , ϕ_i , et V_i sont respectivement, la valeur moyenne de la variable ϕ (Température ou de la densité), le volume totale des cellules ayant une température supérieur à T_{amb} , la variable et le volume d'une cellule notée i

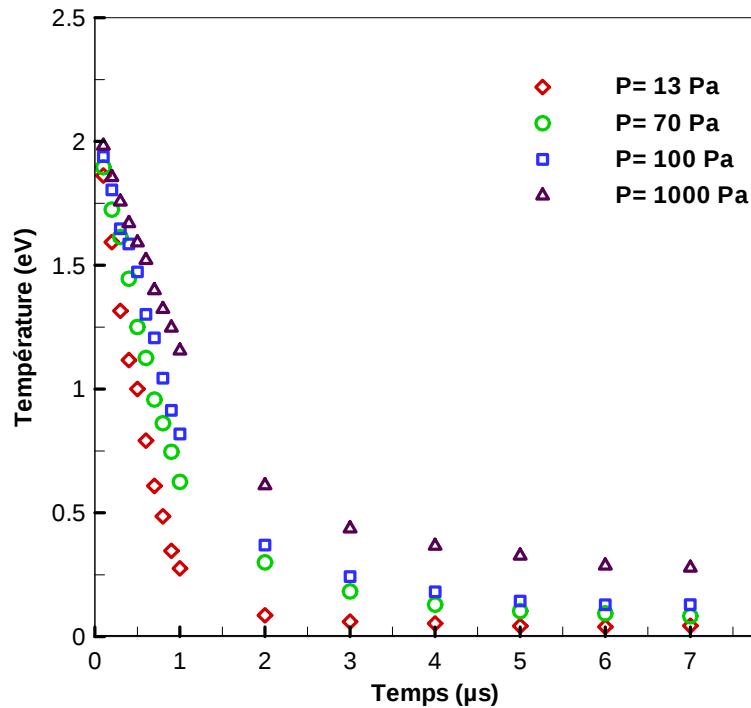


Fig (26): Evolution temporelle de la température moyenne du plasma de Titane dans une atmosphère d'Argon

Le programme correspondant pour calculer les paramètres du plasma (température moyenne et densité moyenne) dans la plume est :

```

/*****
/* Programme calculant les profiles de la température moyenne et la densité */
/* moyenne du plasma lors de la modélisation de la formation et de l'expans-*/
/* ion de la vapeur */
/* Auteur: F.Hamadi,TML/CDTA,Baba-Hassen,Alger */
/*****/

DEFINE_ON_DEMAND(Paramètres du plasma)
{
    Domain *d;
    Thread *t;
    real x[ND_ND];
    cell_t c;
    real temp,rho, temp_avg, rho_avg, volume;
    real tmin=300;
    d = Get_Domain(1);
    thread_loop_c(t,d)
    {
        begin_c_loop(c,t)
        {
            C_CENTROID(x,c,t);
            volume = C_VOLUME(c,t);
            temp = C_T(c,t);
            rho= C_R(c,t);

            if (temp>tmin)
            {
                vol_tot += volume;
                temp_avg += temp*volume;
                rho_avg += rho*volume;
            }
        }
    }
}

```

```

    }
    end_c_loop(c,t)
    temp_avg /= vol_tot;
}

```

Les profiles de température du plasma le long de l'axe z à différentes pression après l'extinction du laser à $1 \mu\text{s}$ sont présentés sur la figure (27). Quand la pression diminue le plasma étant moins confiné, les distances d'expansion de ce dernier vont augmenter. La détermination de la température, pour la direction axiale est possible jusqu'à environ 6 mm ($P = 13 \text{ Pa}$) contre plus de 5 mm pour $P = 70$ et 100 Pa . Nous constatons aussi une décroissance plus rapide de la température que nous attribuons au fait que le nombre de collisions avec le gaz ambiant diminue avec la pression ce qui entraîne une perte d'énergie plus faible

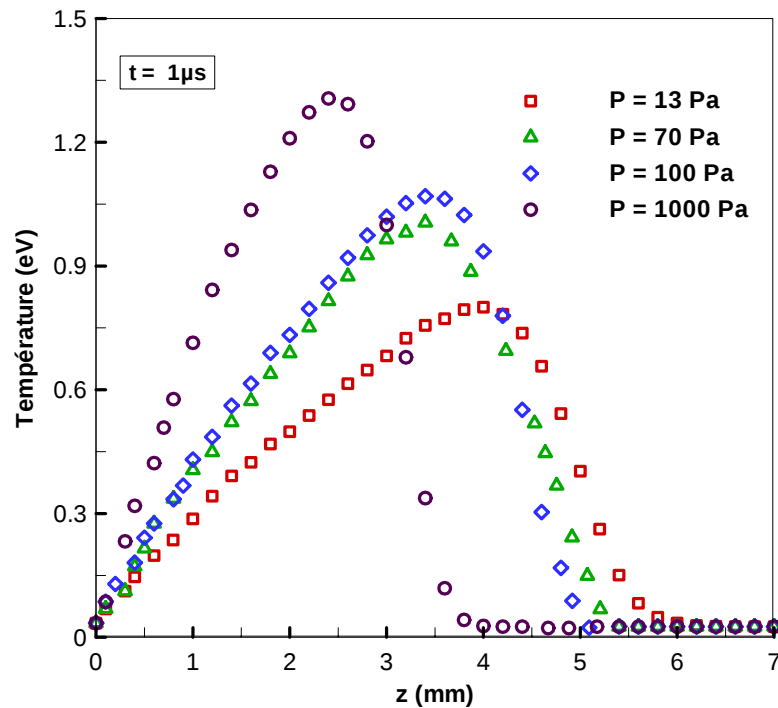


Fig (27): Evolution axiale (z) de la température moyenne du plasma de Titane dans une atmosphère d'Argon, $r = 0 \text{ mm}$.

III.2.2.3 Sur l'évolution temporelle et spatiale de la densité du plasma

On représente sur la figure (28), l'évolution temporelle de la densité des particules présentes dans le plasma, pour trois positions par rapport à la surface de la cible, et pour une pression du gaz ambiant de 70 Pa. On observe une augmentation puis une diminution de la densité au cours du temps, ce qui explique que le plasma est en expansion (détente), et on remarque aussi que, les densités sont plus importantes aux premiers instants près de la cible ($z=1\text{ mm}$), puis décroissent loin de celle-ci

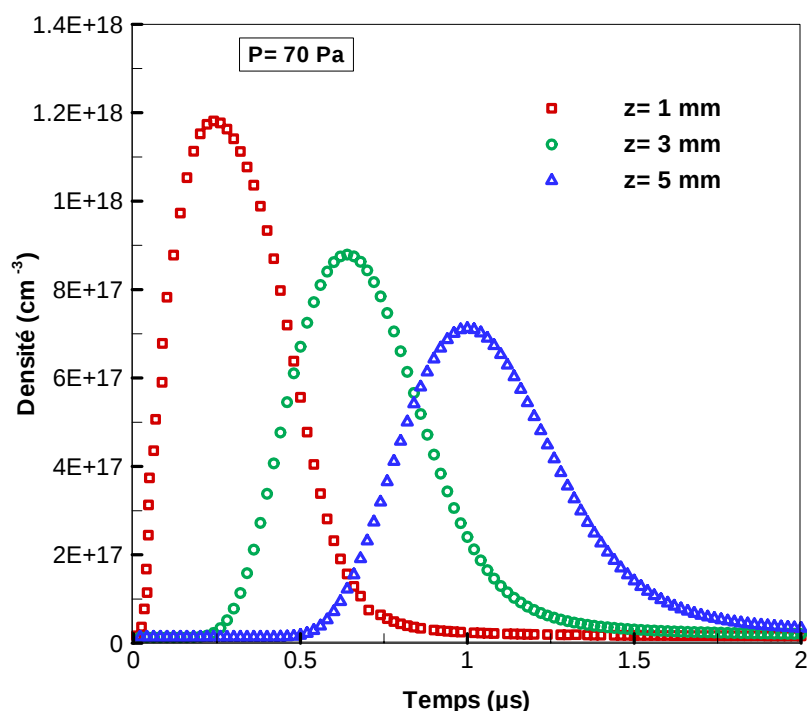


Fig (28): Evolution temporelle de la densité du plasma de Titane dans une atmosphère d'Argon de 70 Pa.

Sur les figures (29,30) on montre l'effet de la pression du gaz ambiant sur les profils de la densité du plasma, pour deux distances par rapport à la surface de la cible (1 et 5mm). De par la forte similitude dans les profils obtenus sur les courbes de la figure (29), pour $z=1\text{ mm}$, on montre qu'à cette distance le plasma formé est faiblement influencé par la pression du gaz ambiant. Tandis que pour $z=5\text{ mm}$, le plasma étant loin de la cible, l'effet de la pression du gaz ambiant est plus significatif. On constate donc une augmentation de la densité du plasma lorsque la pression du gaz ambiant augmente.

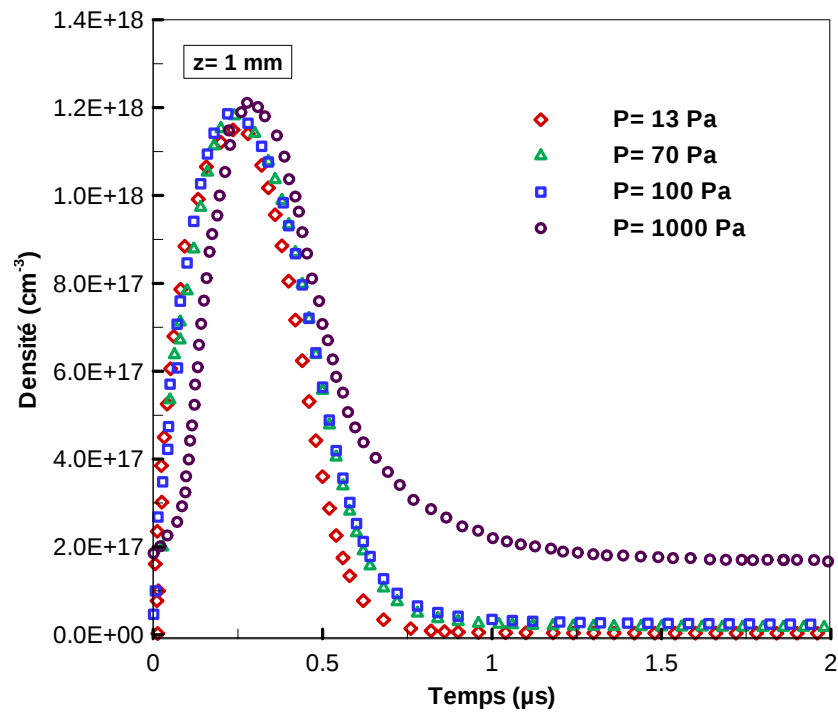


Fig (29): Evolution temporelle de la densité du plasma de Titane pour différentes atmosphères d'Argon à $z = 1 \text{ mm}$.

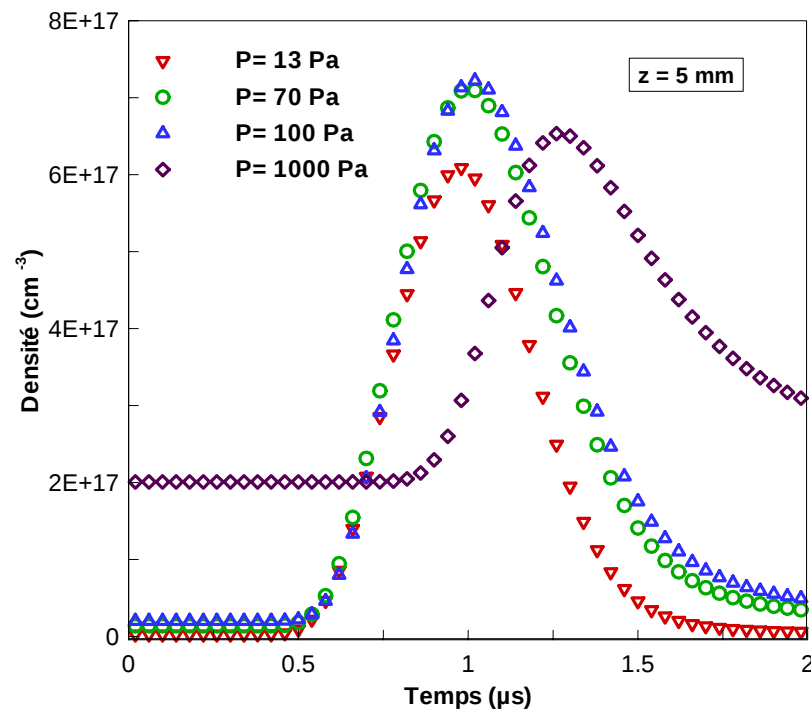


Fig (30): Evolution temporelle de la densité du plasma de Titane pour différentes atmosphères d'Argon à $z = 5 \text{ mm}$.

Sur le plan spatial, on montre sur la figure (31) l'évolution axiale de la densité du plasma. Les domaines de densités varient approximativement, entre 10^{16} et $8 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, pour une durée d'observation du plasma d'environ $1 \mu\text{s}$. On note que le comportement de l'évolution axiale se traduit par une augmentation de la densité du plasma lorsque la pression du gaz ambiant augmente. On peut aussi déduire à partir des différentes courbes, le libre parcours moyen du plasma dans la direction axiale pour chaque pression du gaz ambiant.

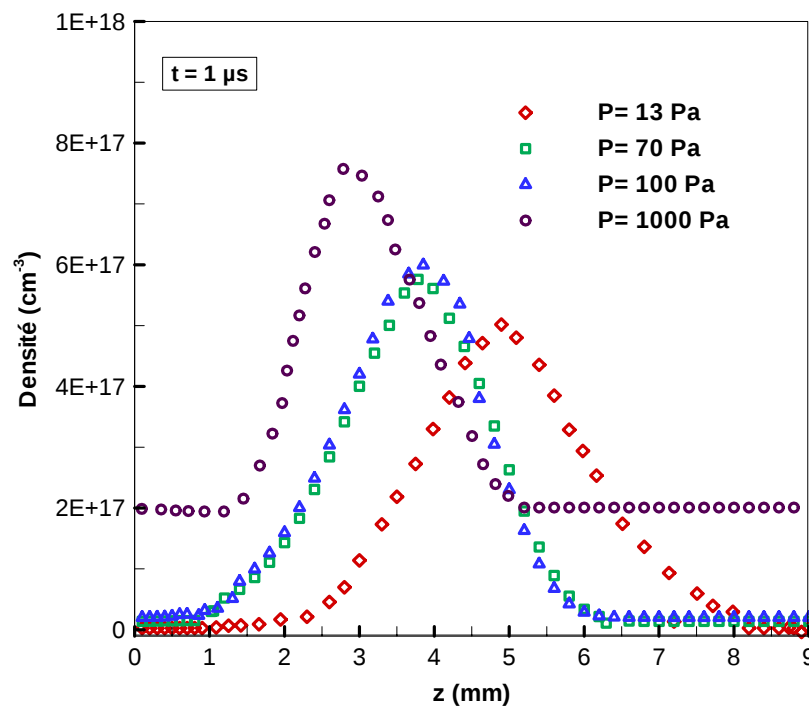


Fig (31): Evolution axiale (suivant z) de la densité du plasma de Titane pour différentes atmosphères d'Argon, en $r = 0 \text{ mm}$.

CONCLUSION GENERALE

Le travail de recherche présenté dans ce mémoire concerne l'étude numérique des mécanismes fondamentaux intervenant durant l'interaction d'un faisceau laser, de longueur d'onde située dans l'ultra-violet, avec la matière. Les densités de puissance développées sont typiquement celles appliquées dans les procédés d'ablation laser (10^8 - 10^9 W/cm²). La modélisation de l'interaction laser-matière est une tâche complexe, et nous avons, dans notre cas, adopté une démarche en deux parties. Dans la première on s'intéresse à l'interaction laser-cible, où les calculs développés concernent la résolution de l'équation de diffusion de chaleur en présence d'un changement de phase solide-liquide. La deuxième partie concerne la formation de la vapeur métallique, avec l'hypothèse d'une évaporation thermique. Et en se basant sur les résultats de la première partie, avec l'utilisation de l'équation de Clausius-Clapeyron, on peut ainsi obtenir les valeurs initiales donnant les vitesses d'éjection de la vapeur, et les températures de surface, ainsi que la pression de vapeur saturante à la surface. Ainsi, on ne tient pas compte de la théorie de la couche de Knudsen qui explique les énergies cinétiques très élevées des ions (de l'ordre de 100 eV) produits par ablation laser avec des flux typiquement appliqués dans des procédés PLD. Ces conditions initiales sont par la suite injectées dans le modèle hydrodynamique qui décrit l'écoulement du panache de vapeur, et son expansion dans un milieu ambiant (Argon), après extinction de l'impulsion laser de durées typiques de l'ordre d'une dizaine de nanosecondes.

Pour la résolution numérique des équations gouvernantes, nous avons utilisé le logiciel de dynamique des fluides Fluent mettant en œuvre la méthode des volumes finis.

Les résultats obtenus sont classés en deux parties, où la première montre essentiellement l'évolution de la température en fonction du temps, ainsi que son évolution dans la direction du faisceau laser suivant la profondeur de la cible solide, pour différentes valeurs de fluence durant et après le pulse laser. La température maximale est atteinte durant l'impulsion laser, car en effet lorsque aucune énergie incidente n'intervient, les gradients de température diminuent par simple diffusion thermique, et l'étape du refroidissement est plus lente à la fin de l'impulsion laser. La température de surface suit une variation linéaire avec la fluence du laser, et la température en profondeur de la cible est ainsi fortement influencée par la densité d'énergie du laser. Et dès que la température de changement de phase est atteinte, il apparaît un plateau sur la courbe d'évolution. Ce dernier est dû à l'absorption ou au dégagement de chaleur provoqué par l'enthalpie de changement de phase au point de fusion. On a aussi démontré que quelle que soit la densité d'énergie imposée, la profondeur atteinte thermiquement durant le pulse laser est presque identique ($\sim 0.4\mu\text{m}$), alors qu'à l'arrêt de celui-ci, et pour une même densité d'énergie, la température suivant la profondeur du

matériau diminue, car l'énergie déposée se dissipe dans la cible sur une longueur de diffusion thermique plus grande. La dimension et la forme évoluent dans le temps, et la profondeur de la zone fondue est plus importante dans la cible pour des fluences plus élevées.

Dans la deuxième partie de notre étude, on a exposé les résultats de la modélisation de la formation et de l'expansion du plasma qui concernent l'influence de la pression du gaz environnant sur la dynamique du panache, et sur l'évolution temporelle et spatiale de la température et de la densité du plasma. La première remarque sur les effets observés lors de l'expansion de la plume, est qu'aux faibles pressions, le front du panache de vapeur prend une forme sphérique au premiers instants, et lorsque le temps évolue, ce dernier s'allonge et devient elliptique. Cette forme est due à l'énergie cinétique élevée des particules émise dans la direction axiale, et c'est la forme qui est généralement observée dans les expériences des plasmas obtenus par ablation laser. Un autre effet de la pression est lié à l'évolution du libre parcours moyen qui est inversement proportionnel à cette dernière, ce qui a pour conséquence d'augmenter les distances d'expansion du panache, quand la pression diminue. Pour des pressions modérées ($\sim 10^2 \text{ Pa}$), un confinement des particules se produit au cours de l'évolution, et ce dernier est très remarquable pour une pression de l'ordre de 10^3 Pa . Pour comprendre la dynamique du plasma dans le milieu ambiant après l'arrêt du pulse laser, on a utilisé les modèles empiriques existants dans la littérature. Durant les premiers instants, la vapeur formée se détache de la cible en subissant une forte expansion libre. A de faibles pressions, le plasma formé continue à subir une expansion libre avec une vitesse constante, à des pressions modérées, la dynamique du plasma après son expansion libre est décrite par le modèle d'onde choc suivi du modèle de force de viscosité. Tandis que pour les fortes pressions ($\sim 10^3 \text{ Pa}$), la dynamique du plasma est décrite seulement par le modèle de force de viscosité. On a aussi démontré l'effet de la pression du gaz ambiant sur les paramètres du plasma (température et densité), et l'on a constaté que quelle que soit la pression du gaz ambiant, le plasma près de la surface de la cible n'est pas affecté par le gaz ambiant, d'où la ressemblance dans la distribution de la température et de la densité du plasma. Lorsqu'on s'éloigne de la cible, les paramètres du plasma sont très fortement influencés par la présence du gaz ambiant.

En conclusion, le travail réalisé constitue une contribution appréciable à l'étude des mécanismes physiques régissant les plasmas produits par ablation laser, dont la compréhension est primordiale avant de prétendre à l'étude de la formation de couches minces par la PLD.

REFERENCES

- [1] **C. Dutouquet**, “Processus physico-chimiques dans des plasmas d’ablation laser: étude par spectroscopie d’émission, d’absorption et par imagerie de fluorescence induite par laser”, Thèse de Doctorat, Université D’ORLEANS (France), 2001.
- [2] **C. Boulmer-Leborgne, J. Hermann, and B. Dubreuil**, “Plasma formation resulting from the interaction of a laser beam with a solid metal target in an ambient gas”, *Plasma Sources Sci.Technol*, **2** (1993) pp. 219-226.
- [3] **J.N. Leboeuf, K.R. Chen, J.M. Donato, D.B. Geohegan, C.L. Liu, A.A. Puretzky, and R.F. Wood**, “Modeling of plume dynamics in laser ablation processes for thin film deposition of materials”, *Phys. Plasmas*, **3** (1996) pp. 2203-2209.
- [4] **C. Ducruet**, “Étude de Plasmas Générés par Laser, Soumis à des Champs Magnétique et Électrique. Utilisation Possible en Techniques de Dépôts”, Thèse de Doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble 1 (France), 2003.
- [5] **J. Hermann**, “Caractérisation du plasma créé lors de l’interaction laser-cible métallique. Rôle du plasma dans le transfert d’énergie entre le faisceau laser et le métal”, Thèse de Doctorat, Université d’Orléans (France), 1991.
- [6] **M. Autric**, “Diagnostics du panache d’ablation”, *J. Phys. IV*, **9** (1999) pp. 131-134.
- [7] **J. Hermann, Al. Thomann, and C. Boulmer-Leborgne**, “Ablation réactive d’une cible de titane par un laser XeCl en présence d’Azote”, *J. Phys*, **19** (1994) pp. 57-58.
- [8] **B. Le Droff, F. Vidal, Y. Von Kaenel, M. Chaker, M. Sabsabi, T.W. Johnston, S. Laville, and J. Margot**, “Ultrashort pulses laser plasma thresholds and ablated mass of aluminum”, *J. Appl. Phys*, **89** (2001) pp. 8247-8252.
- [9] **S. Nait Amor**, “Caractérisation en densité et température électronique d’un plasma produit absorption laser”, Thèse de magister, Université USTHB (Algérie), 2003.
- [10] **H. M. Smith and A.F. Turner**, “Vacuum deposited thin films using a ruby laser”, *Appl. Opt*, **4** (1965) pp.147-148.
- [11] **O. Barthélemy, J. Margot, S. Laville, F. Vidal, M. Chaker, B.LE Droff, T. W. Johnston, and M. Sabsabi**, “Investigation of the state of local thermodynamic equilibrium of a laser-produced aluminum plasma at low fluence”, *Appl. Spec*, **59** (2005) pp.529-536.
- [12] **C. Vivien**, “Etude des plasmas produit par laser pour l’élaboration de couches minces par ablation laser réactive”, Thèse de Doctorat, Université d’Orléans (France), 1998.
- [13] **C.J. Knight** “Theoretical Modelling of Rapid Surface Vaporization with Back Pressure”, *AIAA Journal*, **17** (1979) pp. 519-523.
- [14] **R.K. Singh and J. Narayan**, “Pulsed-laser evaporation technique for deposition of thin films”: Physics and theoretical model, *Phys.Rev B*, **41** (1990) pp. 8843-8859.

- [15] **Y.A. Zel'dovich, and Y.U. Raizer**, "Physics of Shock Waves and High-Temperature hydrodynamic Phenomena", Vol. 1, ed. Academic Press, New York (1966).
- [16] **S. Amoruso, J. Schou, and J.G. Lunney**, "Influence of the atomic mass of the background gas on laser ablation plume propagation", *Appl. Phys A*, **92** (2008) pp. 907-911.
- [17] **Fluent 6.22**, www.Fluent.com.
- [18] **J. R. Ho, C.P. Grigoropoulos, and J. A. C. Humphrey**, "Computational study of heat transfer and gas dynamics in the pulsed laser evaporation of metals", *J. Appl. Phys*, **78** (1995) pp. 4696-4709.
- [19] **W.W. Duley**, "CO2 lasers: effects and applications", Publication info: New York: Academic Press, 1976.
- [20] **O. Barthélemy, J. Margot, M. Chaker, M. Sabsabi, F. Vidal, T. W. Johnston, S. Laville, and B. Le Drogo**, "Influence of the laser parameters on the space and time characteristics of an aluminum laser-induced plasma", *Spectrochim. Acta B*, **60** (2005) pp. 905-914.
- [21] **T.E. Itina, F. Vidal, Ph. Delaporte, and M. Sentis**, "Numerical study of ultra-short laser ablation of metals and of laser plume dynamics", *Appl. Phys A*, **78** (2004) pp.1089-1092.
- [22] **S.V. Patankar**, "Numerical Heat Transfer and Fluid Flow", Series in Computational methods in Mechanics and Thermal Sciences, (1980).
- [23] **D. Grojo, A. Cros, Ph. Delaporte, M. Sentis, H. Dubus, and R. Mionetto**, "Mécanismes d'éjection de particules par laser impulsif", *J. Phys. IV France*, **138** (2006) pp. 191-201.
- [24] **A. Aubreton**, "Modélisation et étude expérimentale d'un plasma métallique créé par ablation laser". Thèse de Doctorat, Université de Paul Sabatier, Toulouse III (France), 2002.
- [25] **C. R. Wilke**, "The prediction of the viscosity of multicomponent, nonpolar gaseous mixtures at atmospheric pressure", *J. Chem. Phys*, **18** (1950) pp. 517-531.
- [26] **A. Aubreton and M.F. Elchinger**, "Transport properties in non-equilibrium argon, copper and argon-copper thermal plasmas", *J. Appl. Phys*, **36** (2003) pp. 1798-1805.
- [27] **Handbook of Chemistry and Physics**, 84th Ed, CRC Press, 2003-2004.
- [28] **H. Borchert, K. Darée, and M. Hugenschmidt**, "Plasma formation during the interaction of picosecond and nanosecond laser pulses with BK7 glass", *J. Phys. D: Appl. Phys*, **38** (2005) pp. 300-305.
- [29] **M.L. Sentis, H.C. Le, W. Marine, J.D. Parisse, and D. Zeitoun**, "Modélisation de l'expansion hydrodynamique d'un panache d'ablation laser", *J Phys. IV*, **9** (1999) pp.139-142

- [30] **A. Gomes, A. Aubreton, J.J. Gonzalez, and S. Vacquié**, “Experimental and theoretical study of the expansion of a metallic vapour plasma produced by laser”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **37** (2004) pp. 689-696.
- [31] **J.C. Orlianges**, “optimisation de dépôt par ablation laser de film minces d’alumine et de carbone tétrahydrique amorphe pur et dopé : propriétés des couches et intégration dans la fabrication de composants MEMS RF ”, Thèse de Doctorat, Université de Limoge, (France), 2003.
- [32] **J. Y. Degorce**, “ Dynamique hors équilibre de phénomènes de transport dans un solide absorbant soumis a une impulsion laser”, Thèse de Doctorat, Université Bordeaux 1, (France), 2005.
- [33] **S. Pal, S. Dey, and T. Miebach**, “Numerical simulation of a dual-source supersonic plasma jet expansion process: continuum approach”, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **40** (2007) pp. 3128–3136.
- [34] **J. Hermann, C. Vivien, A.P. Carricato, and C. Boulmer-Leborgne**, “A spectroscopic study of laser ablation plasmas from Ti, Al and C targets”, *Appl. Surf. Sci.*, **127–129** (1998) pp. 645–649.
- [35] **S.S. Chu and C.P. Grigoropoulos**, “Determination of Kinetic Energy Distribution in a Laser Ablated Titanium Plume by Emission and Laser-Induced Fluorescence Spectroscopy”, *Journal of Heat Transfer*, **122** (2000) pp. 771-775.
- [36] **S. Bruneau, J. Hermann, T. Itina, M. Sentis, A. Semerok and W. Marine**, “Ablation de matériaux par laser femtoseconde”, *J. Phys. IV France*, **108** (2003) pp. 41-44.
- [37] **A. De Giacomo**, “Experimental characterization of metallic titanium-laser induced plasma by time and space resolved optical emission spectroscopy”, *spectrochimica Acta Part B*, **58** (2003) pp.71-83.
- [38] **T.E. Itina, V.N. Tokarev, W. Marine, and M. Autric**, “Monte Carlo simulation study of the effects of non-equilibrium chemical reactions during pulsed laser desorption”, *J. Chem. Phys.*, **106** (1997) pp. 8905-8912.
- [39] **V.N. Tokarev, and A.F.H. Kaplan**, “An analytical modeling of time dependent pulsed laser melting”, *J. Appl. Phys.*, **86** (1999) pp. 28-36.
- [40] **A. Basillais, R. Benzerga, E. Le Menn, J. Mathias, C. Boulmer-Leborgne and J. perrière**, “Diagnostic du plasma d’ablation laser pour la croissance de couches minces”, *J. Phys. IV France*, **108** (2003) pp. 29-32.
- [41] **C. Dutouquet and J. Hermann**, ”Étude des processus physico-chimiques dans un plasma produit par ablation laser pour la croissance de couches minces” *J. Phys. IV France*, **108** (2003) pp. 59-62.
- [42] **J. Hermann, A.L. Thomann, C. Boulmer-Leborgne, B. Dubreuil, M.L. De Georgi, A. Perrone, A. Luches, and I. N. Mihailescu**, “Plasma diagnostics in pulsed laser TiN layer deposition”, *J. Appl. Phys.*, **77** (1995) pp. 2928-2936.

- [43] **J.R. Ho and C.P. Grigoropoulos**, “Gas dynamics and radiation heat transfer in the vapor plume produced. by pulsed laser irradiation of aluminium”, *J. Appl. Phys*, **79** (9) (1996) pp. 7205-7215.
- [44] **Sy. Wen, X. Mao, C. Liu, R. Greif, and R. Russo**, “Expansion and radiative cooling of the laser induced plasma”, *Journal of Physics: Conference Series*, **59** (2007) pp. 343–347.
- [45] **A. Bogaerts and Z. Chen**, “Nanosecond laser ablation of Cu: modeling of the expansion in He background gas, and comparison with expansion in vacuum”, *J. Anal. At. Spectrom*, **19** (2004) pp. 1169-1176.
- [46] **A.V.Gusarov, A.G. Gnedovets, and I. Smurov**, “Two-dimensional gas-dynamic model of laser ablation in an ambient gas”, *Appl Surf Sci*, **154** (2000) pp. 66-72.
- [47] **S. Amoruso**, “Modelling of laser produced plasma and time of flight experiments in UV laser ablation of Aluminium targets”, *Appl. Surf. Sci.*, **138-139** (1999) pp. 292-298.
- [48] **A. Bogaerts, Z. Chen, R. Gijbels, and A. Vertes**, “Laser ablation for analytical sampling: what can we learn from modeling?” *Spectrochimica Acta Part B*, **58** (2003) pp. 1867-1893.
- [49] **S. Amoruso**, “Modelling of UV pulsed-laser ablation of metallic targets”, *Appl. Phys A: Mat. Sci. Proc*, **69** (1999) pp. 323-332.
- [50] **J.G. Lunney**, “Pulsed laser deposition of metal and metal multilayer films”, *Appl. Surf. Sci*, **86** (1995) pp. 79-85.
- [51] **D. Bleiner and A. Bogaerts**, “Computer simulation of sample chambers for laser ablation-inductively coupled plasma spectrometry”, *spectrochimica Acta Part B*, **62** (2007) pp. 155-168.
- [52] **J. Hermann, C. Boulmer-Leborgne, B. Dubreuil, and I.N. Mihailescu**, “Influence of irradiation conditions on plasma evolution in laser-surface interaction”, *J. Appl. Phys*, **74** (5) (1993) pp. 3071-3079.
- [53] **J. Neamtu, I.N. Mihailescu, C. Ristoscu, and J. Hermann**, “Theoretical modelling of phenomena in the pulsed-laser deposition process: Application to Ti targets ablation in low-pressure N₂”, *Appl. Phys*, **86** (1999) pp. 6096-6106.
- [54] **S. Amoruso, R. Bruzzese, N. Spinelli, and R. Velotta**, “Characterization of laser-ablation plasmas”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. phys*, **32** (1999) pp. 131-172.
- [55] **A. Bogaerts, Z. Chen, and D. Bleiner**, “Laser ablation of copper in different background gases: comparative study by numerical modeling and experiments », *J. Anal. At. Spectrom.*, **21** (2006) pp. 384–395.
- [56] **A. Bogaerts and Z. Chen**, “Effect of laser parameters on laser ablation and laser-induced plasma formation: A numerical modeling investigation”, *Spectrochimica Acta Part B*, **60** (2005) pp. 1280–1307.

- [57] **Z. Chen and A. Bogaerts**, “Laser ablation of Cu and plume expansion into 1 atm ambient gas”, *J. Appl. Phys*, **97** (2005) pp. 063305-1 – 063305-12.
- [58] **I. Labazan**, “Determination of electron density in a laser-induced lithium plume using cavity ring-down spectroscopy”, *J. Phys. D: Appl. Phys*, **37** (2004) pp. 2975-2980.
- [59] **Z. Chen, D. Bleiner, and A. Bogaerts**, “Effect of ambient pressure on laser ablation and plume expansion dynamics: A numerical simulation”, *J. Appl. Phys*, **99** (2006) pp. 063304-1 - 063304-9.
- [60] **T. E. Itina, W. Marine, and M. Autric**, “Mathematical modelling of pulsed laser ablated flows”, *Appl. Surf. Sci*, **154 -155** (2000) pp. 60–65.
- [61] **S. Pal, S. Dey, and T. Miebach**, “Numerical simulation of a dual-source supersonic plasma jet expansion process: continuum approach”, *J. Phys. D: Appl. Phys*, **40** (2007) pp. 3128-3136.
- [62] **T.E. Itina, F. Vidal, P. Delaporte, and M. Sentis**, “Numerical study of ultra-short laser ablation of metals and of laser plume dynamics”, *J. Appl. Phys*, **79** (2004) pp. 1089-1092.
- [63] **M. Aden, E. Beyer, and G. Herziger**, “Laser induced vaporisation of metal as a Reimann problem”, *J. Phys. D: Appl. Phys*, **23** (1990) pp. 655-661.
- [64] **M. Capitelli, A. Casavola, G. Colonna, and A. De Giacomo**, “Laser-induced plasma expansion: theoretical and experimental aspects”, *Spectrochimica Acta Part B*, **59** (2004) pp. 271–289.
- [65] **H. Borchert, K. Darée, and M. Hugenschmidt**, “Plasma formation during the interaction of picosecond and nanosecond laser pulses with BK7 glass”, *J. Phys. D: Appl. Phys*, **38** (2005) pp. 300–305.
- [66] **L. Torrisi, D. Margarone, A. Borrielli, and F. Caridi**, “Ion and photon emission from laser-generated titanium-plasma”, *Appl. surf. Sci*, **254** (2008) pp. 4007–4012.
- [67] **L. Torrisi, A. Picciotto, L. Andó, S. Gammino, D. Margarone, L. Láska, M. Pfeifer, and J. Krása**, “Pulsed laser ablation of gold at 1064 nm and 532 nm”, *Czechoslovak Journal of Physics*, **54** (2004) pp. 421-430.
- [68] **S.S. Harilal, C.V. Bindhu, M.S. Tillack, F. Najmabadi, and A.C. Gaeris**, “Internal Structure and Expansion Dynamics of Laser Ablation plumes into Ambient Gases”, *J. Appl. Phys*, **93** (2003) pp. 2380-2388.
- [69] **J.D. Parisse, W. Marine, and M. Sentis**, “Étude numérique de l'interaction laser matière en régime pico et nanoseconde”, *J. Phys. IV France*, **9** (1999) pp. 149-150.
- [70] **F. Vidal, S. Laville, T.W. Johnston, O. Barthélemy, M. Chaker, B. Le Droffoff, J. Margot, and M. Sabsabi**, “Numerical simulations of ultrashort laser pulse ablation and plasma expansion in ambient air”, *Spectrochimica Acta Part B*, **56** (2001) pp. 973-986.

- [71] **V.I. Mazhukin, V.V. Nossov, and I. Smurov**, “Analysis of laser-induced evaporation of Al target under conditions of vapour plasma formation”, *Thin Solid Films*, **453-454** (2004) pp. 353–361.
- [72] **C.L. Liu, J.N. Leboeuf, R.F. Wood, and D.B. Geobegan**, “Computational modeling of physical processes during laser ablation”, *Materials Science and Engineering B*, **47** (1997) pp. 70-77.
- [73] **H.C. Le, J. Vuillon, D. Zeitoun, W. Marine, M. Sentis, and R.W. Dreyfus**, “2D modeling of laser-induced plume expansion near the plasma ignition threshold”, *Appl. surf. Sci.*, **96-98** (1996) pp. 76-81.
- [74] **K.C. Le Thanh, C. Parzani, and M.H. Vignal**, “A volume of fluid method for a two-dimensional plasma expansion problem”, *Journal of Computational Physics*, **225** (2007) pp. 1937–1960.
- [75] **M.L. Sentis, H.C. Le, W. Marine, J.D. Parisse, and D. Zeitoun**, “Modélisation de l’expansion hydrodynamique d’un panache d’ablation laser”, *J. Phys. IV France*, **9** (1999) pp. 139-142.
- [76] **S. Laville, F. Vidal, T.W. Johnston, M. Chaker, and B. Le Droffoff**, “Modeling the time evolution of laser-induced plasmas for various pulse durations and fluencies”, *Phys. Plasmas*, **11** (2004) pp. 2182-2190.
- [77] **A.V. Gusarov, and I. Smurov**, “Thermal model of nanosecond pulsed laser ablation: Analysis of energy and mass transfer”, *J. Appl. Phys.*, **97** (2005) pp. 1063-1070.
- [78] **A. Fell, D. Kray, and G.P. Willeke**, “Transient 3D/2D simulation of laser-induced ablation of silicon”, *J. Appl. Phys.*, **92** (2008) pp. 987-991.
- [79] **S.S. Harilal, B. O’Shay, Y. Tao, and M.S. Tillack**, “Ambient gas effects on the dynamics of laser-produced tin plume expansion”, *J. Appl. Phys.*, **99** (2006) pp. 083303-1 - 083303-10.
- [80] **C. Vivien, J. Hermann, and C. Boulmer-Leborgne**, “Étude de la propagation du plasma produit par ablation laser pour différentes cibles dans le vide et dans différents gaz ambiants”, *J. Phys. Cl*, **22** (1997) pp. 133-134.
- [81] **K. R. Chen, J.N. Leboeuf, R.F. Wood, D.B. Geohegan, J.M. Donato, C. L. Liu, and A. A. Puretzky**, “ accelerated expansion of laser ablated materials near a solid surface”, *Phys Rev Let*, **75** (1995) pp. 4706- 4709.